

拡散膜活性炭吸着法による水中 ^{222}Rn 濃度測定における水分の影響

京都大学 ○米田 稔
 京都大学 井上 頼輝
 積水ハウス 吉本 継哉

1. はじめに

流下にとまなう河川水の水質変化を検討する際、地下水の河川への流出を考慮する必要がある。このとき地下水の河川への浸出量や浸出地点を推定する方法の一つとして放射性希ガス ^{222}Rn の水中濃度を測定する方法¹⁾がある。水中の ^{222}Rn 濃度測定法としては様々なものが提案されているが、筆者らは活性炭シートをポリエチレン袋に入れ密封したもの（ラドン捕集器）を水中に沈めておき、ポリエチレン膜を通過し活性炭に吸着した ^{222}Rn ガスを放射能検出器で測定する方法を提案した²⁾。しかしラドン捕集器を河川中に沈めておいたとき、ポリエチレン袋内に水が入ってしまう場合が多く、水中の ^{222}Rn 濃度と活性炭への ^{222}Rn ガス吸着量の関係を明らかにするには、 ^{222}Rn ガスの活性炭への吸着における水分の影響を明らかにする必要がある。本研究では活性炭への ^{222}Rn ガス吸着量に対する水分の影響を明らかにするとともに、活性炭を直接水中に浸した場合とポリエチレン袋に入れ密封し水中に浸した場合について、 ^{222}Rn ガスの活性炭への吸着モデルを作成し、これを実験によって検証することにより、活性炭への ^{222}Rn 吸着量から水中 ^{222}Rn 濃度を求める関係式を明らかにする。

2. 水分の影響

^{222}Rn 捕集器内に水が浸入した場合の ^{222}Rn 捕集量に及ぼす影響をみるため次のような実験を行った。

①ポリエチレン膜厚0.005cm、面積 $20 \times 25 \times 2 = 1000\text{cm}^2$ のポリエチレン袋内に、両面テープで活性炭15gを均等に両面に接着したシートを入れる。②袋内に水を入れず密封したもの（水無）、20mlの水で活性炭を湿らせて密封したもの（水少）、150mlの水を袋の中に入れて密封したもの（水多）を各7サンプル作る。③各サンプルを同時に水道流水中に浸し、同じ期間放置した後、同時に取り出す。ポリエチレン袋をシール容器に入れ、一晩放置して ^{222}Rn とその娘核種が永続平衡に達した後、Ge半導体検出器によって、 ^{214}Bi と ^{214}Pb から出る γ 線を測定し、 ^{214}Bi と ^{214}Pb の放射エネルギーを求める。その放射エネルギーを、各サンプルを水道流水中から取り出した時点で半減期補正し、その値を各サンプルの ^{222}Rn 吸着量とする。

実験結果を図1に示す。活性炭を乾燥状態にしていたものの方が、水で湿らせたものより明らかに多くの ^{222}Rn を吸着したが、吸着量のばらつきは大きくなった。この原因としては乾燥状態の活性炭も実際は様々な割合で湿ってしまったため、その効果が ^{222}Rn 吸着量にあらわれたと考えられる。また活性炭が完全に濡れた状態になると、 ^{222}Rn 吸着量は水分量の違いにあまり影響されなくなってくるものと考えられる。実河川での測定を考えるとポリエチレン袋の気密性を保つことは困難であり、河川中に放置している間に袋内に水が入ってしまう可能性が高いので、信頼性のある測定結果を得るためには最初から活性炭を湿らせてお

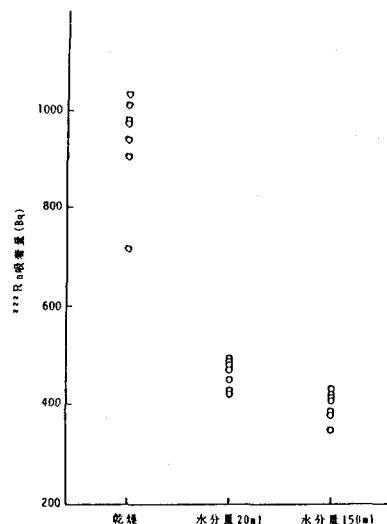


図1 水分と ^{222}Rn 吸着量との関係

た方が良いと考えられる。

3. 活性炭を水中に直接浸した場合の

^{222}Rn 吸着モデル

2. で使用したものと同一活性炭シートをガーゼで包んだものを多数作成し、水道流水中に浸して活性炭への ^{222}Rn 吸着量の時間変化を観察した。活性炭に吸着した ^{222}Rn 量は2. と同じ方法で測定し、水道流水中 ^{222}Rn 濃度はトルエン抽出LSC法³⁾で測定した。結果を図2に示す。

図2の結果を説明するため次のモデルを考えた。水中に活性炭を直接浸したとき、活性炭の周りには流動しない極薄い水の静止層(以後静止水膜と呼ぶ)が存在すると考える。このとき吸着部位に ^{222}Rn ガスが到達するためには、静止水膜を ^{222}Rn ガスが拡散で移動していくことが必要となる。吸着量の時間変化の律速段階として様々なものが考えられるが、本研究では静止水膜内外の ^{222}Rn 濃度の差に基づく拡散が律速段階であると考え、単位量の活性炭に吸着する ^{222}Rn 量の時間変化を表す式として次式を用いる。

$$\frac{dq}{dt} = \frac{D_w a}{L} (C_0 - C_i) - \lambda q \quad (1)$$

ここで、 q :単位量の活性炭に吸着する ^{222}Rn 量(Bq/g)、 D_w :水中の ^{222}Rn ガスの拡散係数

(cm^2/sec)、 a :活性炭単位量当り吸着部位入口の総面積(cm^2/g)、 L :静止水膜の平均厚さ(cm)、 C_0 :外部水中 ^{222}Rn 濃度(Bq/ cm^3)、 C_i :静止水膜と活性炭との接触面における ^{222}Rn 濃度(Bq/ cm^3)、 λ : ^{222}Rn の崩壊定数($2.1 \times 10^{-6} \text{sec}^{-1}$)、 t :活性炭水中放置時間(sec)。

また q がヘンリー型の吸着式で表されると仮定すると、

$$q = k C_i \quad (2)$$

k は吸着係数(Bq/g-charcoal per Bq/ cm^3)である。(1)、(2)式を連立させ、 $t=0$ のとき $C_i=0$ の初期条件で解くと、活性炭 m (g)に吸着する全 ^{222}Rn 量 Q (Bq)は次式であらわされる。

$$Q = k m \lambda u \int_0^t C_0 \exp \{ -\lambda (1+u)(t-w) \} dw \quad (3)$$

ここで $u = D_w a / \lambda k L$ なる無次元量である。(3)式中で未知である二つのパラメータ k と u については、図2の実験結果からパラメータフィッティングにより、 $k = 1.9 \times 10^3$ (Bq/g-charcoal per Bq/ cm^3)、 $u = 3.7$ (-) という推定値を得た。このとき(3)式から計算された ^{222}Rn 吸着量の経時変化を実測値と比較して図3に示す。図3より(3)式は活性炭を直接水中に浸した場合の ^{222}Rn 吸着量の経時変化を比較的良く表現していると考えられる。

4. 濡れた活性炭をポリエチレン袋で密封した場合の水中 ^{222}Rn 吸着モデル

3. と同様の実験を、膜厚0.005cmのポリエチレン袋に活性炭シートと水50mlを入れ密封したものについて行った。結果を図4に示す。3. と同様に、ポリエチレン袋内に濡れた活性炭を密封した場合の活性炭への

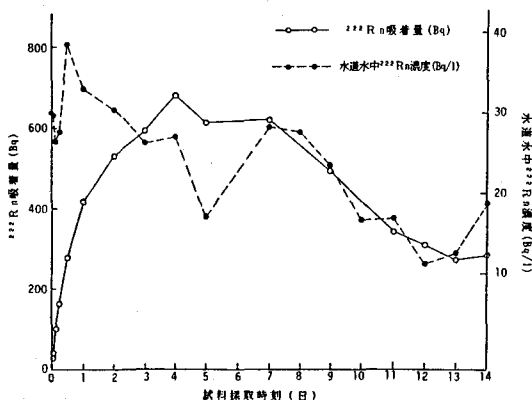


図2 活性炭をガーゼで包んだ場合の水道水中 ^{222}Rn 濃度及び活性炭吸着 ^{222}Rn 量の経時変化

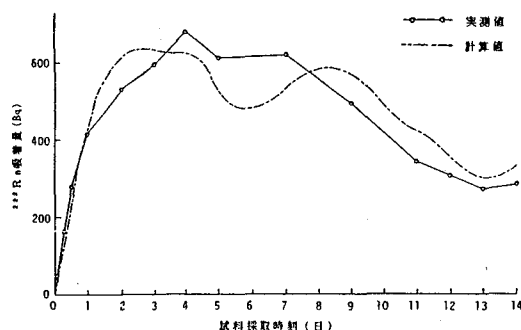


図3 活性炭をガーゼで包んだ場合の ^{222}Rn 吸着量の実測値と計算値の比較

^{222}Rn 吸着量を表す式を以下のようにして作成した。まず活性炭が濡れているため活性炭表面上には静止水膜が存在しこれがポリエチレン膜と接していると考え、3.と同様にポリエチレン膜と静止水膜を拡散で通過する段階が ^{222}Rn 吸着の律速段階であると考えて、活性炭への ^{222}Rn 吸着量 Q (Bq)の時間変化が次式で表されると仮定する。

$$\frac{dQ}{dt} = \alpha_w (C_m - C_i) - \lambda Q \quad (4)$$

ここで、 α_w :静止水膜に対する ^{222}Rn の透過しやすさを表す係数(cm^3/sec)、 C_m :静止水膜とポリエチレン膜との接触面における静止水膜側での ^{222}Rn 濃度(Bq/cm^3)、他の記号は(1)式と同じである。

また次式が成立すると仮定する。

$$\alpha_w (C_m - C_i) = \alpha_p (C_{p0} - C_{mp}) \quad (5)$$

但し、 C_{p0} :外部の水とポリエチレン膜との接触面におけるポリエチレン膜側での ^{222}Rn 濃度(Bq/cm^3)、 C_{mp} :静止水膜とポリエチレン膜との接触面におけるポリエチレン膜側での ^{222}Rn 濃度(Bq/cm^3)、 α_p :ポリエチレン膜に対する ^{222}Rn の透過しやすさを表す係数(cm^3/sec)。次に分配に係わる係数 K_w を考え、 C_{p0} 、 C_{mp} を次式で表す。

$$C_{p0} = K_w C_0, \quad C_{mp} = K_w C_m \quad (6)$$

^{222}Rn ガスの活性炭への吸着については(2)式と同じヘンリー型を仮定し、(2)、(4)、(5)、(6)式を連立させ、 $t=0$ のとき $C_i=0$ の初期条件で解くと、活性炭 m (g)に吸着する全 ^{222}Rn 量 Q (Bq)は(3)式中の u を次式に示す ω で置き換えた式となる。

$$\omega = \frac{\alpha_w \alpha_p K_w}{k m \lambda (\alpha_w + \alpha_p K_w)} \quad (7)$$

今、未知である二つのパラメータ k と ω について

では、図4の実験結果からパラメータフィッティングにより、 $k = 1.7 \times 10^3$ ($\text{Bq}/\text{g-charcoal per Bq}/\text{cm}^3$)、 $\omega = 0.45$ (-) という推定値を得た。このとき(3)式の u を ω で置き換えて計算された ^{222}Rn 吸着量の経時変化を実測値と比較して図5に示す。図5より(3)式の u を ω で置き換えた式は濡れた活性炭をポリエチレン袋に入れて密封し、水中に浸した場合の ^{222}Rn 吸着量の経時変化を比較的良く表現していると考えられる。

5. 結論

本研究では拡散膜活性炭吸着法で水中 ^{222}Rn 濃度を測定する際、活性炭が濡れると ^{222}Rn ガスの活性炭への吸着量が減少することを示した。また活性炭を直接水中に浸した場合と、濡れた活性炭をポリエチレン袋に入れ密封し水中に浸した場合について、活性炭への ^{222}Rn 吸着量を表す式を導出し、実験によりこれらの式が十分な精度を持っていることを示した。これらの式を用いて拡散膜活性炭吸着法による水中 ^{222}Rn 濃度の定量的測定が可能になると考えられる。

(参考文献)

- 1) 木村; 水中のラドンの測定とその応用(1)水文学, Radioisotopes 27巻12号 日本R I 協会, 1978
- 2) 米田, 井上, 滝根; 河川水中 ^{222}Rn 濃度測定による地下水浸出地点推定, 土木学会第43回年講第2部, 1988
- 3) 野口; 液体シラークによるRadonの放射能測定, Radioisotopes 13巻5号 日本R I 協会, 1964

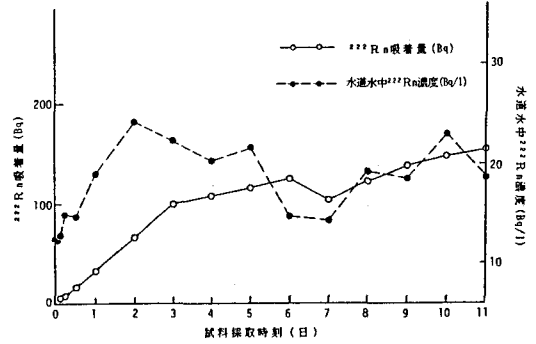


図4 濡れた活性炭をポリエチレン袋に入れた場合の水道水中 ^{222}Rn 濃度及び活性炭吸着 ^{222}Rn 量の経時変化

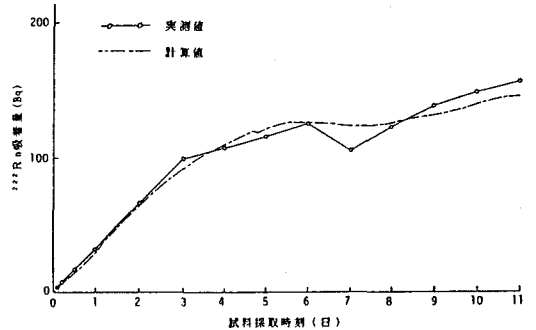


図5 濡れた活性炭をポリエチレン袋に入れた場合の ^{222}Rn 吸着量の実測値と計算値の比較