

一般論文

飽和砂層内における放射性核種の挙動に関する研究 (II)

—石英砂層カラムによる放射性無機陰イオンの破過曲線について—

福井正美*¹, 桂山幸典*¹

(1975年10月13日受理, 1976年7月14日再受理)

Studies on the Behavior of Radionuclides in a Saturated Sandy Layer (II)

—The Breakthrough Curves of Radioactive Inorganic Anions
through the Quartz Sand Column—Masami FUKUI*¹ and Kosuke KATSURAYAMA*¹

The sorption of some inorganic anions to Toyoura fine sand were examined by using single column experiments. Adsorption of Cl^- was weak but SO_4^{2-} and PO_4^{3-} were adsorbed extremely. The breakthrough curve of SO_4^{2-} for Ca^{2+} saturated sand was similar to that of cation, though SO_4^{2-} was leached with deionized water. This means that the sorption phenomenon is based on not an ion exchange but a chemical reaction on solid phase. The adsorbed ion of PO_4^{3-} on a fine sand was not leached with 10^{-3}N CaCl_2 solution and distilled water. This irreversible phenomenon stems from that the ion pairs of PO_4^{3-} as $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ or CaHPO_4 are formed in solution and these colloidal particles or precipitates are filtered on fine sand. Iodine in solution consists of two soluble forms, one is non-reactive forms to fine sand, and another is tightly sorbed on the quartz sand. Thus, the behavior of anions is affected by various types of reaction, though it was not based on the ion exchange.

I 概 説

環境土壌水中における種々のイオンまたは分子の挙動に関する研究は、農業改良の施肥法¹⁾および土壌物理²⁾に関連する研究の一環としてなされてきたが、このような研究は、最近では産業廃水や放射性物質による環境汚染評価の観点から、衛生工学³⁾および保健物理の分野^{4,5)}においても行なわれてきている。

放射性物質が土壌水を媒介にして環境汚染を生じさせる可能性は、厳しい法的規制をもってしても皆無であるとは断言できず、地中における放射性物質の挙動に関する基礎的研究の累積が必要と考えられる。従来、このような研究の対象とする放射性核種は、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr などの長寿命放射性陽イオンがおもに取り上げられてきた

が、これらの無担体状陽イオンの挙動も、系統的に同一の条件でなされた研究は少ない。そして定性的な挙動は、ある程度明らかにされているが、互いに比較、検討を行なえるデータの集積はみられない。そこで、本論文では、従来あまり着目されていなかった放射性無機陰イオンを対象とした。この取り扱い施設としては、病院および研究所などが考えられる。そして、特に β 線のみを放出する陰イオンが廃水中に混入した場合には、連続測定式の水モニターを使用しても、その検出感度が廃水中の核種不明時に法に定められた許容放出濃度を測定するには十分でないため、処理施設を持たない所では、低濃度の放射性廃水が一般環境水中へ放出される恐れもある⁷⁾。

以上のことから、本論文では放射性無機陰イオンが環境に放出された場合を想定し、そのときの砂層中における各陰イオンの易動性を知るために、簡単なカラムを用いた実験から、破過曲線および砂層吸着分布を求めた。

*¹ 京都大学原子炉実験所放射線管理部門; 大阪府泉南郡熊取町 (〒590-04)
Div. of Radiation Control, Res. Reactor Inst.
Kyoto Univ.; Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka.

II 実験方法

1. 実験装置

実験に用いた装置の系統図を Fig. 1 に示す。貯留水槽としては、カラムに充填する試料砂を処理するため、および試料砂に吸着させた拡散物質を溶離するために、5l のポリエチレン製水槽を設置した。これと並列に、放射性核種でラベルした拡散物質溶液水槽 (0.5l ポリエチレン製水槽) を設置した。使用したカラムは長さ 22cm の透明塩化ビニール製であり、下部には支持底として 200 メッシュのステンレススチール製金網が取り付けられている。カラムの内径は、実験の初期には 5cm のものを用いたが、拡散物質の試料砂に対する吸着の強弱を考慮して、2cm のものに変更した。カラムからの流出液濃度を測定するためと、拡散物質溶液の流入量を流出流量から知るために、フラクションコレクターを設置した。前述した貯留水槽からカラムへの溶液の輸送には、微量チューブポンプを用いた。

2. 実験材料およびその調整方法

カラムに充填する試料砂には、土木材料の標準砂としてよく用いられる豊浦石英砂 (平均粒径が 0.223 mm の均等度の大きい細砂) を用いた。豊浦石英砂は充填する前に蒸留水で水洗し、60°C で乾燥した後、実験室内で風乾したものをを用いた。この砂 625 g を気泡がトラップされないように攪拌しながら、内径 5cm のカラムに 20 cm の長さで飽和水砂層として充填した。砂層内間隙水量は、169 ml であった。同様に内径 2cm のカラムに、長さ 20cm の飽和水砂層として 100 g の豊浦石英砂を充填した場合、その砂層内間隙水量は 26.2 ml であった。

3. 拡散物質

拡散物質として用いた核種は ^{35}S , ^{32}P , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{131}I である。また、一般的には砂にほとんど吸着されず、間

隙水のトレーサーと考えられる $^3\text{H}_2\text{O}$ も、それらとの挙動の比較のために用いた。さらに、環境水中に陰イオンが通常の化学分析により検出される程度に存在する場合や、放出される放射性廃水中にも存在する場合を想定して、陰イオン濃度が前述した放射性核種の砂層内における挙動におよぼす影響を検討するために、前述した放射性核種をトレーサーとし、それらの塩を拡散物質として用いた。すなわち、カラムに流入させる溶液 (以下原液と記す) に添加した担体は ^{35}S , ^{32}P , ^{36}Cl , ^{131}I に対して、それぞれ硫酸ナトリウム、リン酸水素ナトリウム、塩化カルシウム、ヨウ化セシウムである。

Table 1 には、担体を添加しない場合の放射性溶液中の陰イオン濃度を示す。また担体を添加した場合の原液の陰イオン濃度を Table 2 に示す。

4. 実験方法

カラム実験では、破過曲線を求めることを主目的としたが、 γ 線を放出する ^{131}I の場合は、カラム内の砂を採取し、砂層吸着分布も求めた。

拡散物質の破過曲線を求める手順は、つぎのとおりである。

1) カラムに充填した砂層を、蒸留水もしくは塩化カルシウム溶液により処理する。前者による処理の目的は、砂を充填する場合の間隙水の濁りを除くためであり、後者の目的はそれに加えて砂に吸着されている陰イオンを塩素イオンにより置換すること、および未吸着座を飽和させるためである。

2) カラム内の砂層間隙水量に対する流出量の比 (以下 τ と記す) を基準にして、一定量の原液を貯留水槽からカラムに流入させる。この場合の流入量は前述したように、カラムの出口に設置されたフラクションコレクターに流入する量により知ることができる。本実験で、直径 5 cm, 長さ 20 cm の砂層内の間隙水量は 169 ml であったが、フラクションコレクターでは、この量の 0.02 倍 (3.38 ml) が 1 分割量となるように分割量を設定した。同じ長さで直径 2cm の砂層の場合は、間隙水量 26.2 ml の 0.05 倍 (1.31 ml) を 1 分割量となるように設定した。

3) カラム内に流入させた一定量の拡散物質を、蒸留水もしくは塩化カルシウム溶液により溶離させる。前者による溶離の目的は、砂層への拡散物質の吸着機構が、砂粒子表面での沈殿生成によるものであるかどうかを判定するためであり、後者の場合は、塩素イオンとの交換反応を検討するためである。

4) 以上、2), 3) の過程でフラクションコレクターに分割採取した流出液濃度 (C) を測定し、流入原液濃度

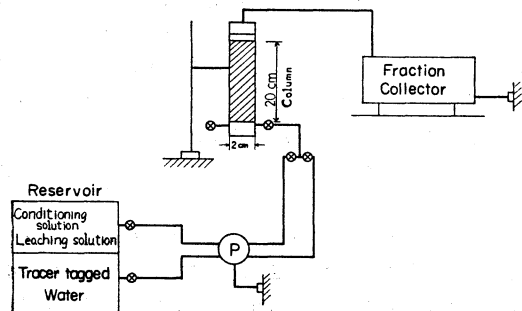


Fig. 1 Schematic diagram of column experiment.

Table 1 The physical and chemical characteristics of tracer nuclides.

Tracer nuclides	³⁵ S	³² P	³⁶ Cl	¹³¹ I
Concentration of tracer (M/l)	$<10^{-10}$	$<10^{-10}$	1.8×10^{-6}	$<10^{-10}$
Chemical form	H ₂ SO ₄	H ₃ PO ₄	HCl	NaI
Max. β -ray energy (MeV) of tracer nuclide	0.167	1.69	0.709	0.812

Table 2 The solution used to column experiments.

Run number	Conditioning solution	Leaching solution	Introduced raw solution				Figure number
			Tracer	Carrier	Anion coexisted	Volume	
1*	H ₂ O	H ₂ O	³⁶ Cl	1.8×10^{-6} M, HCl	—	5 τ ***	3
2*	5×10^{-4} M, CaCl ₂	5×10^{-4} M, CaCl ₂	//	5×10^{-4} M, CaCl ₂	—	//	3
3*	//	//	³² P	C.F.	5×10^{-4} M, Cl	//	4
4*	//	H ₂ O	//	//	//	//	4
5*	//	5×10^{-4} M, CaCl ₂	//	3.3×10^{-5} M, Na ₂ HPO ₄	//	//	4
6*	//	H ₂ O	³⁵ S	C.F.	//	//	5
7*	//	5×10^{-4} M, CaCl ₂	//	//	//	//	5
8*	//	//	//	5×10^{-5} M, Na ₂ SO ₄	//	//	5
9*	H ₂ O	H ₂ O	¹³¹ I	C.F.	—	10 τ	6
10*	5×10^{-4} M, CaCl ₂	5×10^{-4} M, CaCl ₂	//	//	5×10^{-4} M, Cl	5 τ (+2.5 τ)	6
11*	//	//	//	//	//	5 τ	6
12*	//	//	//	1×10^{-4} M, CsI	//	//	6
13**	//	//	//	C.F.	//	//	6

* column length 20 cm, average flow velocity 2.2×10^{-2} cm/sec. ** column length 40 cm, average flow velocity 2×10^{-3} cm/sec. *** τ : pore volume.

(C₀) に対する比を求め、前述した τ に対してプロットし、破過曲線を求めた。ここで、濃度の測定は、すべての分割採取した流出液については行なわず、一定間隔ごとに行なったが、濃度勾配が急激な範囲については、密に測定した。

砂層吸着分布を求める手順は、つぎのとおりである。

- 1) 破過曲線を求める場合の操作と同様にして、カラム内砂層を塩化カルシウム溶液により処理する。
- 2) 一定量の原液をカラム内に流入させる。
- 3) カラム内の 20cm の砂層を飽和含水状態で押出しながら、20 分割する。
- 4) 24 時間放置し、風乾したものを各分割量から約 1 g 採取して測定する。そして、単位砂量あたりに吸着している放射エネルギーを、原液濃度で除すことにより、吸着分布を求める。

以上の実験において、カラム内の流向は砂の目づまりによる流速の変動を防止するために上向きとした。ま

た、間隙内流速は 2.2×10^{-2} cm/sec 程度に設定し、室内温度は $20 \pm 2^\circ\text{C}$ であった。原液の pH は、6~7.5 の範囲に調整した。

5. 放射能測定法

破過曲線を求めるために分割採取した溶液から 0.5 ml を採水し、10 ml の液体シンチレータに溶解させ、液体シンチレーションカウンターにより流出液の放射性物質濃度を測定した。カラムに流入させる原液の放射性物質濃度は、どの核種についても 10^{-2} $\mu\text{Ci/ml}$ 程度に調整した。

砂に吸着された ¹³¹I の放射性は、約 1 g をポリエチレン製試験管に採取し、NaI(Tl) ウェル型シンチレーションカウンターにより測定した。この場合、採取量が 1 g 程度では幾何学的効率に変動がなかった。また、原液は 0.5 ml を採水し、砂を測定する場合と同じ試験管に入れて、その放射能を測定した。

III 実験結果および考察

Fig. 2 には内径 5cm, 長さ 20cm に充填した砂を蒸留水を通水して水洗し, 0.6 τ の原液を流入させた後, 再び蒸留水により流出させた場合の破過曲線を示す。この結果をみれば, トリチウム水は砂にほとんど吸着されないため, その破過曲線は流れ軸方向の分散効果のみにより平坦化されており, 吸着による立ち上りの遅れる現象はみられていない。トリチウム水と類似した挙動を示す陰イオン状の放射性核種は ^{36}Cl だけであり, ^{32}P , ^{35}S , ^{14}C , ^{131}I などは, なんらかの機構で非常によく豊浦石英砂に吸着されることが明らかになった。したがって, 以下のカラム実験では, 単位砂量あたりに通水する拡散物質質量を増すために, 内径 2cm, 長さ 20cm に充填した砂層カラムを用いて, その破過曲線から吸着現象を検討した。

1. ^{36}Cl

Fig. 3 は, 5 τ (131 ml) の原液を流入させた場合の破過曲線を示したものである。

Run 1 で示した結果は, 蒸留水で水洗した砂層に ^{36}Cl を拡散物質として蒸留水に添加した原液を通水し, 再び蒸留水により流出させたものである。Run 2 では, 5×10^{-4} モルの塩化カルシウム溶液を約 1 τ 通水して処理した砂層に, ^{36}Cl をトレーサーとして同濃度の塩化カルシウム溶液に添加した原液を流入させ, 再び処理液と同じ溶液により流出させたものである。これらの結果をみれば, Run 2 の原液の流出液濃度のプラトーが Run 1 のそれに比べて若干大きい, 立ち上がり点や濃度フロントの形状はほとんど変わらない。したがって, 5×10^{-4} モル濃度の担体として加えられた塩化カルシウムの影響はなかった。この原因としては, 豊浦石英砂の有する陰イオン交換容量が少なく, Run 1 の原液の塩素イオン濃度 (1.8×10^{-6} モル) でも, 陰イオン交換による吸着損失が無視できたためと考えられる。また, 流入原液濃度に対する流出液濃度の比 (C/C_0) が 0.5 に相当する流出点が $\tau=1$ に近いことから, 拡散物質が媒質に吸着されないと仮定した場合の, 多孔性媒質内での質量保存式から得られる分散方程式の理論曲線⁶⁾により予想される結果と破過曲線が一致する。

以上のことから, ^{36}Cl が一般環境土壌水中に放出された場合には, 地下水と同程度の速さで流動し広範囲の汚染を起こす恐れがあると考えられる。

2. ^{32}P

Fig. 4 に示す破過曲線において, 原液の流入量は塩素イオンの場合と同じ (5 τ) である。またカラムに充填

した砂は, どの場合も 5×10^{-4} モルの塩化カルシウム溶液を 1 τ 通水して処理した。

Run 3 は, 5×10^{-4} モルの塩化カルシウム溶液に無担体状の ^{32}P を添加した原液 5 τ を流入させ, 処理液と同

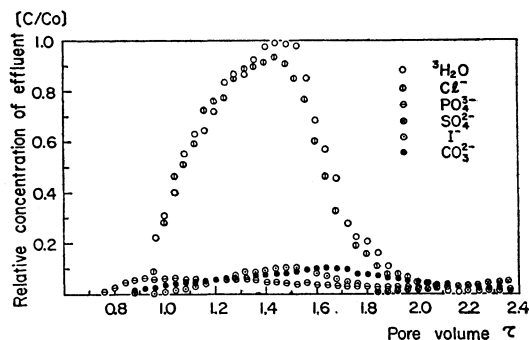


Fig. 2 The breakthrough curves of anion slugs of 0.6 pore volume inflow, using Toyoura sand washed with water.

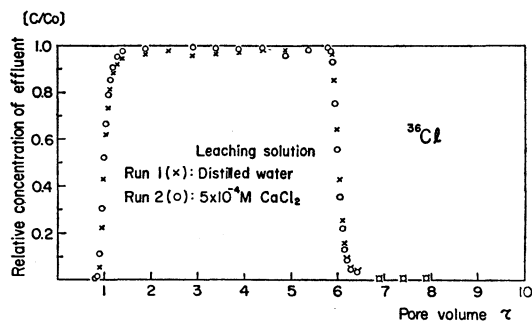


Fig. 3 The breakthrough curves of Cl^- slugs of 5 pore volume inflow. The contents of solution used in these experiments were shown in Table 2.

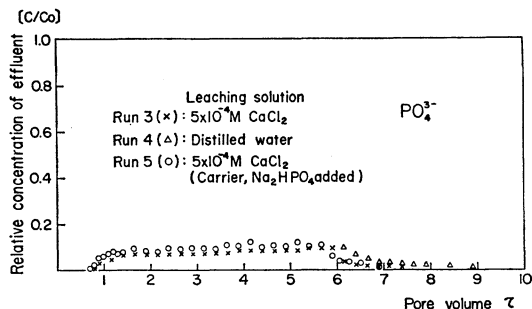


Fig. 4 The breakthrough curves of PO_4^{3-} slugs of 5 pore volume inflow. The contents of solution used in these experiments were shown in Table 2.

じ溶液により溶離させた場合の破過曲線である。Run 4 は、同じ条件で流入させた原液を蒸留水で流出させたものである。この場合の流出液濃度は、当然のことではあるが 6τ まで Run 3 の結果とほぼ同じであった（流入条件が同じである）ため、それ以後の流出液濃度を Run 3 と比較するために掲げた。Run 5 は、リン酸水素ナトリウムを 3.3×10^{-5} モルの濃度になるように、 5×10^{-4} モル塩化カルシウム溶液中に ^{32}P の担体として添加した原液 5τ を流入させ、それを処理液と同じ溶液により溶離した場合の破過曲線である。

Run 3, 4, 5 の結果をみれば、いずれもその形状に大差はないが、 ^{36}Cl に比べると ^{32}P は非常に強く豊浦石英砂に吸着されることがわかる。しかも、それらの場合はいずれも流入した拡散物質量に対する流出量の比が小さく、不可逆的に吸着されている。さらに、破過曲線の立ち上がり、砂に強く吸着されるにもかかわらず、Fig. 3 に示された ^{36}Cl の場合と同程度に早いという特色がある。

担体の影響および溶離条件の違いによる差はわずかではあるが、担体を添加した場合の流出液濃度がそのプレート状の所で若干高くなること、溶離液として蒸留水を用いた場合は、塩化カルシウム溶液を用いた場合よりも、わずかではあるが溶離量の多いことなどが認められた。

^{32}P はリン酸イオン (PO_4^{3-}) あるいはリン酸水素イオン (HPO_4^{2-}) などの陰イオンとして溶液中に存在していることが考えられるが、共存する陽イオンのカルシウムと難溶性の無機化合物を形成していることも確かである。リン酸カルシウムの溶解度積は 3.1×10^{-23} ⁹⁾ であり、Run 4 で検討したように蒸留水により、捕捉された ^{32}P を溶離してもそれが流出されないのは、前述したような不溶性に近い解離定数を有する化合物として ^{32}P が捕捉されているためと考えられる。一方、イオン状あるいは微細な粒子として存在する ^{32}P は、砂層に吸着されずに流出するものと考えられる。破過曲線において立ち上りの早い流出成分が、これに相当するものと推定される。また、担体としてリン酸イオンを添加しても、共存するカルシウムイオンが充分にあれば、イオン状として存在する量はその溶解度積から決定されるから、大部分のリン酸イオンはカルシウムイオンと不溶性の化合物を形成し砂層に捕捉される。したがって、流出する ^{32}P が無担体状の場合に比べても、それほど多くならなかったものと考えられる。

結局、 ^{32}P が環境土壤水中に放出された場合は、その大部分は不溶性の化合物として不可逆的に捕捉され、広範囲な環境汚染を起こす恐れはないと考えられる。

3. ^{35}S

Fig. 5 に示した破過曲線の境界条件も、 ^{36}Cl や ^{32}P の場合と同じであり、カラムに充填した砂層も、すべて同じ濃度の塩化カルシウム溶液で処理してカラム実験に用いた。図中、Run 6 は無担体状の硫酸イオンを流入させ、それを蒸留水で流出させた破過曲線であり、Run 7 は同じ条件での流入原液を、 5×10^{-4} モル塩化カルシウム溶液で溶離させたものである。また、Run 8 は担体として硫酸ナトリウムを 5×10^{-5} モルの濃度になるように 5×10^{-4} モル塩化カルシウム溶液に添加した原液 5τ を、処理液と同じ溶液で溶離させたものである。これらの結果に共通した特徴は、 ^{36}Cl および ^{32}P の場合と異なり、破過曲線の立ち上り点の遅れが観測されることである。さらに、溶離液として蒸留水を用いた場合、初期の流入原液濃度 (C_0) よりも数倍ほど高い濃度の溶液が流出することである。これらのことから、硫酸イオンは一見陽イオンのイオン交換吸着に基づく破過曲線と類似した傾向を示すが、蒸留水による溶離が顕著に示されることから、砂粒子表面においてカルシウムの化合物（硫酸カルシウム）を形成し、吸着されていると考えられる。したがって、このような現象は一種の Fajans-Paneth の規則¹⁰⁾に従う反応の例とも考えられる。硫酸カルシウムの溶解度積は、 1.2×10^{-6} ¹¹⁾ と前述したリン酸カルシウムに比べてはるかに大きいため、原液を調整したときから不溶性の化合物として存在するのではなく、砂層を通過する間に難溶性の化合物を生成して吸着されるものであり、リン酸カルシウムの場合とは砂層での捕捉の機構は異なると考えられる。この場合、硫酸カルシウムの生成反応の速度定数が、みかけ上イオン交換に基づく反応の速度定数と同様に考えられることから、破過曲線の立ち

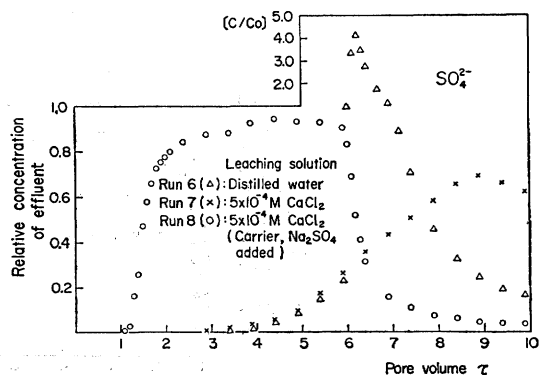


Fig. 5 The breakthrough curves of SO_4^{2-} slugs of 5 pore volume inflow.

The contents of solution used in these experiments were shown in Table 2.

上り点が遅れるものと結論づけられる。また、担体を添加した場合も、実際の条件でのカルシウムイオンと硫酸イオンの濃度積 (2.5×10^{-8}) は、前述した硫酸カルシウムの溶解度積 (1.2×10^{-6}) よりも小さいため、原液中において沈殿が析出するまでにはいたらない。

結局、硫酸イオンの場合はある硬度を有する環境土壌水中では、イオン交換現象による陽イオンの挙動と類似して、可逆的な反応で水の流れにある時間遅れを伴って移動すると考えられる。

4. ^{131}I

Fig. 6 は、 ^{131}I を種々の条件で吸着、溶離させた場合の破過曲線を示す。図中 Run 9 では、蒸留水を通水して間隙水中の濁りを除いただけの豊浦石英砂を充填したカラムを用い、これに無担体状の ^{131}I を蒸留水に溶解させた原液を 10τ だけ流入させ、その後蒸留水で溶離させたものである。これをみれば、曲線の立ち上り点は C/C_0 が 0.5 に相当する流出点が $\tau=1$ よりも少し遅れている。さらに従来の陰イオンと異なる点は、 C/C_0 が 0.7~0.75 程度まではすみやかに上昇するが、それ以後ではプラトー状になることである。

Run 10 では、 5×10^{-4} モル塩化カルシウム溶液を $1l$ (38τ) 通水して処理した豊浦石英砂充填カラムに、処理液に無担体状の ^{131}I を溶解させた原液 5τ を流入させ、それを同濃度の処理液 (塩化カルシウム溶液) 2.5τ により溶離させた。そして、この吸着分布が存在するカラムに、同じ ^{131}I を含む原液を 2.5τ 流入させたときの破過曲線である。これによれば、Run 9 に比べて立ち上り点は少し早くなり、水の流れと同じ程度になっているが、プラトー状態にある破過曲線の濃度は、それほど

変わらない。また、処理液 2.5τ により溶離されなかった、初期吸着分布が存在する場合の破過曲線のプラトー高さ (Run 10, $8.5 \sim 10\tau$) も、それが存在しない場合のプラトー高さ ($1.5 \sim 5.5\tau$) に比べて有意差はみられない。したがって、初期吸着分布の存在は、吸着速度に影響を及ぼしてはいないと考えられる。

Run 11 の破過曲線は、Run 10 の実験により得られた流出液を流入原液として用い、その他は Run 10 と同じ条件で 7.5τ まで観察したものである。この場合も、立ち上りやプラトー高さは、Run 10 の結果と著しい差はなかった。

Run 12 は、ヨウ化セシウム濃度が 1×10^{-4} モルとなるように担体を加えた原液を用いたもので、他の条件は Run 10 と同様にして 9.4τ まで観察した破過曲線である。これによれば、Run 9~Run 11 に比べてプラトー高さが $0.9 \sim 1.0$ と高くなっている。

Run 13 はカラム長を 40cm 、間隙内平均流速を $2 \times 10^{-3} \text{ cm/sec}$ と遅くし、 ^{131}I の砂層内における滞留時間を長くしたものである。これによれば、プラトー高さは従来の破過曲線のものに比べて低く、 0.5 程度となっている。

以上の結果から、 ^{131}I の破過曲線にみられる飽和砂層内での挙動に関する着目点をまとめると、つぎのとおりである。

1. 立ち上り点からみて、水の流れに対する ^{131}I の流速が同程度である成分が存在する。
2. 破過曲線のプラトー高さが流入させる原液量を増しても、ほとんど増加しないことから、不可逆的に砂層に吸着される ^{131}I の成分が存在する。

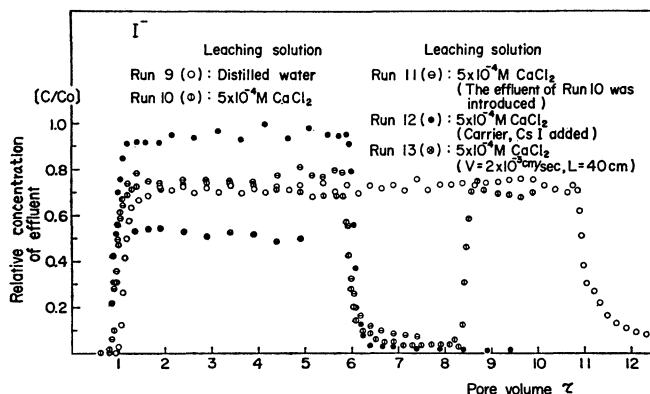


Fig. 6 The breakthrough curves of I^- slugs under various conditions of leaching.

The contents of solution used to these experiments were shown in Table 2.

3. 一度破過曲線を得るために砂層内に通水したその流出液を、24時間後に再び原液として用いた場合のプラトー高さは、はじめの場合と変わらない。このことから、 ^{131}I の吸着されやすい成分と吸着されにくい成分の流出液中における比率は、24時間後では一定であると考えられる。

4. プラトー高さが滞留時間をカラム長や流速を変えて長くすることにより低くなることから、吸着平衡がすみやかに達成されず、吸着現象が進んでいることがわかる。しかしながら、担体として CsI を $1 \times 10^{-4} \text{ M}$ 濃度となるように添加した場合には、プラトー高さが1に近くなり、吸着損失が少なく、みかけ上の吸着平衡がほぼ達成されている。

以上の結果から、溶液中における ^{131}I の成分は少なくとも2種類であることが推定されるため、pHおよび ^{131}I の担体濃度を変えてMIBK（メチルイソブチルケトン）を用いた溶媒抽出を行なった。実験方法は、 ^{131}I を含む 5×10^{-4} モルの塩化カルシウム溶液10mlをMIBKと等量に混合し、有機溶媒中へ分配された ^{131}I をバッチ法で抽出して、この濃度をウェル型MaI(Tl)シンチレーションカウンターで測定した。Fig. 7には、MIBKに混合される以前の ^{131}I の放射性溶液濃度(C_0)に対するMIBKに分配された ^{131}I の濃度(C)の比率が、溶液のpHを3~8に調整した場合につき示されている。この場合、ヨウ素の溶液濃度は無担体状のものと 10^{-8} 、 10^{-6} M/l の3種類につき行なった。この結果から、MIBKに抽出されるヨウ素量は、低pH溶液ほど多いことがわかる。また、溶液中のヨウ素濃度が高いほどMIBKに抽出される比率が低くなることが明らかになった。このように、MIBKに抽出される分子状と考えられる ^{131}I の成分がpHにより変化することから、pHの破過曲線に及ぼす影響が考えられる。そこで、pHを4.1と6.1に調整した原液5 τ をRun 10と同じ条件で流入させた破過曲線を求めると、そのプラトー濃度は前者では0.35程度であり、後者の場合は0.65程度であった。このことから、豊浦石英砂層に吸着されやすい成分は、 ^{131}I の分子状のものであると推定される。以上の推論を確かめるために、pHを4.1、6.1および8.1に調整した原液3種類をそれぞれ8 τ だけ流入させた場合の砂層吸着分布を求めた。その結果をFig. 8に示す。これをみれば、pHが低い（分子状の ^{131}I が多い）ほど ^{131}I がよく吸着されることが明らかである。また、このことは逆にイオン状の ^{131}I が豊浦石英砂に吸着されにくく、流出しやすいつ成分であることを意味している。

最後に、無担体状の ^{131}I を含む原液の流入量の増加に

伴う砂層内吸着分布の変化を検討するため、1, 2, 4, 8, 16 τ を流入させた場合の吸着分布をFig. 9に示す。この場合、原液のpHは6.1と一定とした。この結果

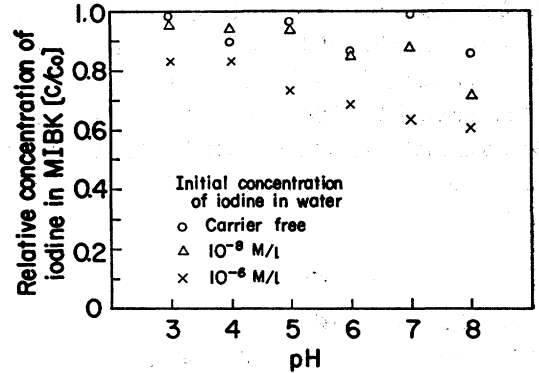


Fig. 7 The ratio of molecular iodine to total iodine in $5 \times 10^{-4} \text{ M}$ CaCl_2 solution.

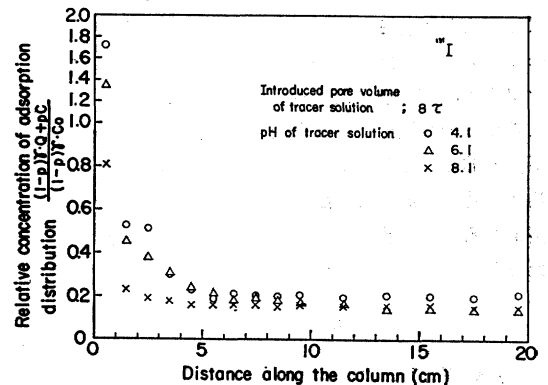


Fig. 8 The effect of pH on the transportation distribution of ^{131}I along the column.

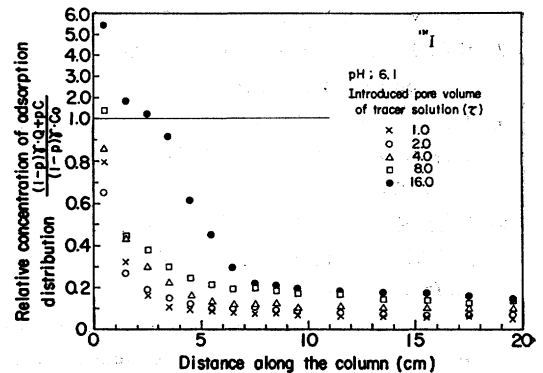


Fig. 9 The transportation distribution of ^{131}I for five kinds of inflow pore volume.

によれば, 流入量の増加に基づく流入端近辺における吸着量の増大は著しいが, 流出端近辺では緩慢である。この原因は, 流入端近辺で分子状の ^{131}I が不可逆的に吸着されることにより, 流出端近辺での間隙水中におけるその成分が減少するためと考えられる。

以上のことから, ^{131}I は無担体状では環境土壌水中に放出された場合, その多くは土壌に吸着されるが, 土壌水と同程度の速さで砂層中を流動する成分も無視できないと考えられる。そして担体が $1 \times 10^{-4} \text{ M}$ 濃度程度で含まれていれば, より広範囲な土壌汚染を生じることが想定される。

IV あとがき

本報では, 現象を単純化したカラム法により, 数種の無機陰イオンの飽和砂層内における挙動を実験的に検討した。その結果, 陰イオンでも通常環境水中に存在する程度のカルシウムイオンの濃度場では, たとえ土壌が陰イオン交換容量の少ないものであっても, なんらかの反応により吸着されるが, それは陽イオンの場合に生じるイオン交換反応に基づくものではなく, 共存するカルシウムイオンや砂層内に吸着されているカルシウム成分との化学的な反応による難溶性物質の生成に関する現象が支配的となることが実験的に例証された。また, 難溶性化合物を生成しない陰イオンでも分子状で存在する未解離のものは, 物理的に吸着されることも一部明らかになった。

参考文献

- 1) C.W. THORNTWHAITE, J.R. MATHER and J.K. NAKAMURA; Movement of radiostromtium in soil, *Science*, **131**, 1015 (1960).
- 2) W.R. GARDNER; Movement of nitrogen in soil, *Soil Nitrogen Agronomy*, **10**, 550 (1965).
- 3) H.C. PREUL; Underground pollution analysis and control, *Water Research*, **6**, 1141 (1972).
- 4) 高橋幹二, 楠城 力, 田町敏夫, 田中良積; 土砂試料中におけるヨウ素ガスの挙動, 保健物理, **9**, 211 (1974).
- 5) 筒井天尊, 西牧研壮; 放射性廃棄物地中処分の安全性の評価に関する研究 (I), 保健物理, **10**, 79 (1975).
- 6) J.R. MILLER and R.F. REITEMEIR; The leaching of radiostromtium and radiocesium through soil, *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, **27**, 141 (1963).
- 7) V.J. SODD *et al.*; Concentrations of the medi-

cally useful radionuclides, technetium-99 m and iodine-131 at a large metropolitan waste water treatment plant, *Health Phys.*, **28**, 355 (1975).

- 8) M. FUKUI and K. KATSURAYAMA; Fundamental study on longitudinal dispersion of tritiated water through saturated porous media, *Health Phys.*, **28**, 717 (1975).
- 9) 日本化学会編, “化学便覧”, p. 1338 (1966), 丸善, 東京.
- 10) B. JIRGENSONS and M.E. STRAUMANIS; “コロイド化学”, p. 81 (1967), 培風館, 東京.
- 11) 長島弘三, 富田 功; “分析化学” (基礎化学選書 2), p. 266 (1969), 裳華房, 東京.

会費払込のお願い

当学会の会費は, 前納制になっておりますので, 昭和 51 年度分, およびそれ以前の年度の会費を未納の方は, 至急お払込みくださいますようお願いいたします。

現在, 会費の納入を遅滞されている方が大分おり事業運営上非常に支障をきたしております。都合上退会される方は, 退会手続をとるようお願いいたします。

会 費 正会員 3,000 円
 準会員 2,000 円

なお振込口座番号は東京 24488 (払込料金は当学会負担) です。