

粘土鉱物粒子の選択配向を考えたカラム試験による Cs 分配係数の比較 Comparison of Cs distribution coefficient from column experiments Considering the preferred orientation of clay mineral particles

橋井一樹¹ 砂川優樹¹ 登尾浩助²

¹ 明治大学大学院農学研究科 ² 明治大学農学部

要旨(Abstract)

放射性セシウム (Cs) の分配係数 K_d は Cs 固定サイトが存在するとき経時変化することが報告されているが、詳しくは分かっていない。粘土粒子のもつ Cs 固定サイトは粘土粒子上に偏って分布すること、粘土粒子に選択配向性があることを考慮し、固定サイトと液相の接触面積が律速因子であると仮定し、配向条件下でカラム実験を実施する。

キーワード：溶質移動、放射性セシウム、粘土鉱物

Key words: Solute Transport Radio cesium Clay Minerals

1. 背景

原子炉内生成物のひとつである放射性核種 ^{137}Cs は半減期が約 30 年と長く、その環境中での動態について多くの研究がなされてきた。福島第一原子力発電所事故に伴って環境中へと放出され土壌表面に沈着した ^{137}Cs は、液相中に一価の陽イオン Cs^+ として存在し、移行の過程で土粒子の負電荷に吸着、もしくは粘土鉱物によって固定される (山口ら, 2012)。

^{137}Cs の土中移行モデルについては数多くの議論が交わされているが、高精度な短期予測には至っていない (Kirchner et al., 2009)。また、カラム試験における ^{137}Cs の K_d がバッチ試験と異なる現象も報告されている。これらの要因として、強い Cs 選択性をもつ固定サイト (FES) の存在による、従来の平衡吸着モデルでは想定されていない K_d の経時変化が指摘されている。

本発表では、両実験の主な律速因子が FES と液相の接触面積ならば、粘土粒子の整列によって FES 接触面積が変わると仮定し、加圧条件下でカラム試験を行い、その結果を報告予定である。

2. 理論

Cs のような汚染物質の土中挙動を評価するために、式(1)の土粒子への吸脱着を考慮した一次元移流分散方程式が広く利用されている。

$$R \frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - v \frac{\partial c}{\partial x} \quad (1)$$

t は時間、 c は溶質濃度、 D は分散係数、 v は平均間隙流速、 R は遅延係数である。 R は土壌ごとに固有のパラメータで、Henry 型と呼ばれる式(2)で与えられる。

$$R = 1 + \frac{\rho_d K_d}{n} \quad (2)$$

ρ_d は土壌の乾燥密度、 K_d は分配係数である。他に Freundlich 型、Langmuir 型の R があり、 ^{137}Cs のような低濃度溶質においては、線形吸着である Henry 型が最も一般に利用される (江種, 2022) が、 ^{137}Cs は Freundlich 型に適合する (山口, 2014)。 Freundlich 型は吸着量が非線形である場合に多用される経験式である。

ここで、各型の K_d は、吸着因子である土粒子の全表面上において吸着サイトが均一かつ等価であると仮定されるが、FES をもつ粘土鉱物粒子が層状ケイ酸塩であること、FES が積層面に露出したシリケートレイヤーの層間部

にのみ発現することから、この仮定は満たされない。バッチ試験がカラム試験に対して高い K_d 値が得られる要因が固相と液相の混合がよく進むため (Kaplan and Serne, 1995)、すなわち溶質と吸着サイトの接触回数が増加するからであることを考えると、カラム試験により得られる K_d は、溶質が移動する間隙に接する吸着サイト量に依存すると考えられる。

鉛直方向の溶質移動を考えると、吸着体である粘土粒子がランダムに配向している場合に対して、FESが生じている粒子側面を鉛直方向に平行になるよう配向させた場合は、より高い K_d が得られると仮説を立てた。本発表では、鉛直方向に加圧することで先述の配向状態を再現できる加水黒雲母を使用して、これを確かめる。

3. 実験計画

カラム内部に充填する試料は福島県石川町の真砂土より抽出した黒雲母画分で、配向性と鉍物種は橋井ら(2024)で報告した。配向状態の維持のため、 $\Phi 49.5\text{mm} \times 100\text{mm}$ のステンレス製カラムに、Oリングで止水した同じ径のステンレス円柱を挿入する。挿入時の付加圧力は土圧センサで測定する。得られた結果の解析と ^{137}Cs 溶液の調整は、佐藤ら(2024)に従う。

参考文献

- 山口紀子ら. 2012. 土壌-植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因. 農環研報. 31: pp. 75-129.
- 中尾淳. 2021. 福島第一原子力発電所事故により放出された放射性セシウムの土壌中での動態と制御因子. 地球化学. 55: pp. 96-109
- Kaplan and Serne. 1995. Distribution Coefficient Values Describing Iodine, Neptunium, selenium, Technetium, and Uranium Sorption to Hanford Sediments. U.S. Department of Energy.
- 佐藤治夫. 2002. 圧縮ベントナイト中の粘土粒子の配向特性および核種移行経路に及ぼす粘土鉍物含有率および圧縮成型

方向の影響に関する基礎的研究. 原子力バックエンド研究. 9: pp. 49-60

中井泉, 泉富士夫. 2021. 粉末X線解析の実際. 朝倉書店

江種伸之. 2022. 移流分散方程式で用いられる遅延係数について. 地下水学会誌. 64: pp. 215-223

山口紀子. 2014. 土壌への放射性Csの吸着メカニズム. 土壌の物理性. 126: pp11-21

佐藤匠ら. 2024. 土壌カラム実験による ^{137}Cs の分配係数の経時変化調査. 土壌物理学会(ポスター発表)

橋井一樹ら. 2024. 福島県石川町の真砂土を利用した粘土鉍物標準試料の精製. 農業農村工学会(ポスター発表)