(昭和 57 年 2 月 17 日受理)

チタン変性した繊維状カチオン交換体による 微量ウランおよびラジウムの捕集^{*1}

三菱レイヨン株式会社 宮松徳久^{*2}・折戸善一・広野修一郎^{*3}
寒竹嘉彦・小口 登^{*4}

RECOVERY OF TRACE URANIUM AND RADIUM WITH USE OF FIBROUS CATION EXCHANGER MODIFIED BY TITANIC ACID

*By Tokuhiisa Miyamatsu, Shuichiro Hirono, Noboru Oguchi,
Zenichi Orito and Yoshihiko Kanchiku*

(Mitsubishi Rayon Co. Ltd., Product Development Center,
600 Daiko-cho, Higashi-ku, Nagoya-City, Aichi Pref., Japan 461)

With use of fibrous cation exchanger modified by introducing titanic acid, a study on recovery of trace uranium and radium in the waste water from uranium mines was carried out.

The fibrous adsorbent was proved to have an enough adsorption capacity for neutral or weak alkaline uranium solution such as mine water, rain leach water, dam water and so on.

Adsorption of a trace amount of radium in the waste water from uranium refining process was also investigated.

Using the granular adsorbent composed of fibrous adsorbent, field adsorption experiments were carried out with column system.

It was revealed that both uranium and radium are efficiently captured from the waste water of the uranium refining process of the Power-Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation at the Ningyo Toge Mine.

(Received February 17, 1982)

1. 結 言

^{*1} この報文を「繊維状イオン交換体及びその応用に関する研究(第9報), Study on fibrous ion exchanger and its application (Part 9)」とする。

^{*2} 現在の所属: ダイヤフロック株式会社, 東京都千代田区丸の内1の5の1

Present address: Dia-flock Co. Ltd. (Marunouchi Chiyoda-ku, Tokyo 100 Japan)

^{*3} 現在の所属: 動力炉核燃料開発事業団, 東京都港区赤坂1-9-13

Present address: Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107 Japan)

^{*4} 現在の所属: 日本女子大学被服学科, 東京都文京区目白台2-8-1

Present address: Japan Women's University (Mejirodai, Bunkyo-ku, Tokyo 112 Japan)

近年低品位ウラン鉱の処理が注目されると共に, ウラン鉱山の公害問題が大きくクローズアップされている。

これらの問題解決のためには, 低濃度, 特に約1 ppm以下の極低濃度ウラン溶液からのウラン捕集技術の開発が必要である。

又, ウラン鉱山排水中に含まれるラジウムの除去もウラン以上に重要な問題となっている。

筆者らは, 海水中のウランに対する吸着剤として特に繊維状チタン酸系複合吸着剤について研究を進め既報^{1,2)}で報告したが, 本報では, ウラン鉱山に関連する低濃度ウランの捕集にこれらの吸着剤の応用を試みた。

すなわち, ウラン鉱山に関連する各種のウラン溶液における, これらの吸着剤のウラン吸着能力を調査した。

同時に, ウラン精錬排水中の痕跡量のラジウムの吸着

について検討を行なった。

これらの検討をふまえ、繊維状吸着剤を充填密度を高め、S. S. (浮遊固形物) による目詰りを回避できる“繊維状吸着剤の集まりよりなる顆粒状吸着剤”としてカラム方式用に改良した吸着剤を用い、ウラン鉱山の精錬排水を対象に現場での実証試験を実施した。

本検討は現在の複雑なウラン排水の処理方法を一段の吸着方式に代替し得ることを示唆するものとする。

2. 実 験

2.1 試 薬

特記しない限り試薬特級又は一級を用いた。

2.2 供試吸着剤

2.2.1 QC-I f (Ti) — 弱酸性カチオン交換繊維を基材とする繊維状複合吸着剤

製造は既報¹⁾に従って行なった。すなわち、アクリル繊維を原料としてこれをヒドラジン処理と苛性ソーダ水溶液によるニトリル基の加水分解反応を行なってカルボキシル基をイオン交換基とする弱酸性カチオン交換繊維を得る。次に、このカチオン交換繊維に硫酸チタニルの硫酸水溶液を含浸させ加熱濃縮せしめた後、アンモニア蒸気と接触せしめることにより、カチオン繊維内にチタン酸を導入した繊維状複合吸着剤を得た。このものは、繊維直径約 45μ 繊維長平均、約 1.5 mm、チタン酸導入前の弱酸性カチオン交換繊維の総イオン交換容量は 6.8 meq/g-H⁺ form、チタン含有率は TiO_2 として 7.1 wt % であった。

2.2.2 QCS-Ti — 強酸性カチオン交換繊維を基材とする繊維状複合吸着剤

製造は、既報¹⁾と同一条件で実施した。すなわち強酸性カチオン交換繊維をカラムに充填しこれに希釈した硫酸チタニル水溶液を通し、チタニルイオンを吸着せしめ、ついで苛性ソーダ水溶液を通すことにより、強酸性カチオン交換繊維内にチタン酸を含有する繊維状複合吸着剤を得た。

このものは、繊維直径約 45μ 、繊維長平均 1.5 mm、チタン酸導入前の総イオン交換容量 3.2 meq/g-H⁺ form、チタン含有量は TiO_2 として 36.2% である。

2.2.3 QCS-Ti (g) — 微細繊維のかたまりよりなる粒状の強酸性カチオン交換体を基材とする繊維性粒状複合吸着剤

合成木材パルプとして販売されている高密度ポリエチレン製微細繊維 (三井ゼラパック社製, SWP E-400) を風乾後、乾燥状態のままディスク型リファイナ (パルプ叩解用装置: 熊谷理機製) にかかけ厚紙状であったポリエチレン繊維をほぐし、バルキーな綿状とする。ほぐしたポ

リエチレン製微細繊維 300 グラムを内径 30 cm の肉厚のステンレス皿状容器に均一に入れ、これにスチレン (St) : ジビニルベンゼン (DVB) : アゾビスイソブチロニトリル (AIBN), 100 : 20 : 0.6 (重量比)、混合液 630 g を加え、直径 29 cm のステンレス製円板をのせ圧力を加え 40℃ で 30 分保持する。次にステンレス棒で繊維を練るように攪拌するとモノマーを含んだ微細繊維は毛玉状にからまり直径 1~1.5 mm の小球となる。殆ど全ての繊維が小球状となったのを確認したら、これを 5 l のセパラブルフラスコに移し 3 l の 1% 無水芒硝水を加え、緩やかに攪拌しながら 85℃ で 4 時間重合を行なう。

モノマーの一部は繊維に吸収された状態で重合され、又一部は主として小球内の繊維接点部分に付着して重合されバインダーとしても機能する。

次に St-DVB 共重合体とポリエチレン製繊維との重合体よりなる、この小球をよく乾燥し、98% 硫酸中、90℃ で 8 時間浸漬し St-DVB 共重合体部分にスルホン酸基を導入する。約 20℃ に冷却後硫酸を取り去り、次いで、冷えた 50% 硫酸、冷水の順に通し硫酸を除去して 3.9 meq/g-H⁺ form の交換容量を持ち、2.0~3.0 mm の直径の糸まり状をした強酸性カチオン交換体を得た。

このものは、通常のイオン交換樹脂 (0.5 mm 内外) に比べ直径が大きくカラム充填して用いる場合、水中の浮遊固形物 (S. S.) の目詰りによる通水性の低下は、きわめて少なく、又内部にはきわめて大きな連通した空間を有するため、カラムに充填した場合の充填密度はやや低い (内径 5 cm のカラムの場合で約 0.24 g/cc) が直径のわりにイオン交換速度が速い特徴を持っている。

この小球状繊維状イオン交換体を内径 5 cm のカラムに充填し、QCS-Ti の場合における既報¹⁾条件に従ってチタン酸を導入した。

最後に得られた球状吸着剤を湿潤状態で分級し、4~12 メッシュの成分を供試した。チタン含有量は、 TiO_2 として 22.3 wt % であった。

2.2.4 Ti-1 (尿素法チタン酸)

硫酸チタニルの硫酸溶液 (チタン含有量 TiO_2 として 24% 全酸分 9.11 当量/l) 20.9 g を、蒸留水 5 l に溶解せしめ尿素 100 g を添加する。この時僅かに白濁が生じる。これを攪拌しながら加熱沸騰せしめ、30 分間沸騰させた後放冷する。

生成したチタン酸を沈降させデカンテーションにより一回洗浄した後浚別し、浚液に SO_4^{2-} が認められなくなるまで洗浄する。これを幾パッチか繰返し、沈殿を集めて減圧乾燥し、さらに乳鉢で粉碎し、200 メッシュ通過部分を供試した。このものの 850℃ 強熱減量は 16.02% であったので、含水酸化チタンとしては、 $\text{TiO}_2 \cdot (\text{H}_2\text{O})$

0.85 となる。

又、比表面積(BET法)は $32.2 \text{ m}^2/\text{g}$ であった。

2.2.5 QAP-120 強塩基性繊維状アニオン交換体

これは、スチレンージビニルベンゼン系の強塩基性アニオン交換体であり製造は既報⁴⁾に従って行ない、Cl 形で風乾したものを使用した。特性値は以下のとおりであった。

繊維直径：約 38μ ，繊維長：平均 1.2 mm 。

架橋度(全モノマーに対するジビニルベンゼン純分の割合)：10 wt %。

官能基： $\text{CH}_2\text{N}(\text{CH}_3)_3\text{Cl}$ ，総イオン交換容

量： $3.2 \text{ meq/g-OH-form}$ 。

2.2.6 ダイイオン SA-10 A ー強塩基性アニオン交換樹脂 ー

三変化成製の強塩基性アニオン交換樹脂(官能基は QAP-120 と同じであり Cl 形)をそのまま風乾したものを供試した。

2.3 供試ウラン溶液

ウラン溶液は動力炉核燃料開発事業団より提供を受けた下記の、4 種の液をそのまま、或いは希釈する等変性して用いた。

〈硫酸リーチング液〉

東濃月吉鉱山より入手した硫酸リーチング液 A 液⁵⁾を用いた。

ウラン濃度 1200 ppm ，pH 1.2，蒸発残分 6.82% であった。

〈雨水リーチング液〉

東濃月吉鉱山の鉱石を野積し、雨水によりリーチングした液でウラン濃度： 303.6 ppm ，pH 8.2 のものを使用した。

〈坑内水〉

坑内水とは、坑道内に浸出した地下水であり、東濃月吉鉱山坑内より採取したものを使用した。地下水の浸出量の多少により、ウラン濃度は約 $40 \sim 80 \text{ ppm}$ ，pH 7～9 の範囲で変動していた。

〈ダム排水〉

ダム排水とは、人形峠事業所内にあるウラン精錬所の固液分離排液・溶媒抽出排液・浄化沈殿排液等を石灰で中和した液及び坑内水を貯えたダムの水であり、ダム周辺は鉱さい、堆積場ともなっているため微量のウランに加えて痕跡量のラジウムが含まれている。

雨量、その他の条件により水質の変化はあるが平均値として、pH：7～8，ウラン濃度：約 0.5 ppm ，E：0.1～0.5 ppm，²²⁶Ra 濃度：7～ $50 \times 10^{-8} \mu \text{ ci/cc}$ ， SO_4^{--} 濃度 $200 \sim 500 \text{ ppm}$ である³⁾。

2.4 ウラン吸着試験

2.4.1 坑内水中のウランの吸着性

ビーカー又は、フラスコ内に所定量の坑内水を入れ、これにあらかじめ、精秤しておいた吸着剤を投入し、室温下で、攪拌しつつ、48 時間ウランの吸着を行なう。

この操作は、固液比を変えた数組について、同時に実施する。吸着剤投入後 48 時間で吸着剤を濾別除去し、得られた濾液中のウラン濃度を測定し、吸着前後のウラン濃度との差より吸着剤単位量当りのウラン吸着量を算出し、吸着等温図を求め解析した。

2.4.2 アルカリ変性した硫酸リーチング液中のウランの吸着

前記硫酸リーチング液(ウラン濃度 1200 ppm ，pH 1.2)に等量の 1 M-NaCO_3 を加え混合し、生じた金属水酸化物等の沈殿を一昼夜放置後に No. 2 濾紙を用い濾別して得た液(ウラン濃度約 600 ppm)をさらに水道水で希釈し、5 倍希釈液(ウラン濃度 115 ppm ，pH 9.8)及び 19 倍希釈液(ウラン濃度 27.2 ppm ，pH 9.7)を得た。

各々の液について固液比を変えた吸着試験を坑内水中のウラン吸着試験(2.4.1)と同様に行なった。

2.4.3 ダム排水中のウランの吸着

供試液としてダム排水を用い吸着試験を坑内水中のウランの吸着試験(2.4.1)と同様に行なった。

ただし、QCS-Ti (g) は顆粒状で他の吸着剤に比べて粒径が大きく吸着が遅いことが予想されたので、あらかじめ砕いたものを使用した。

2.5 吸着剤の種類とウランの吸着速度の比較

雨水リーチング液を脱イオン水で約 10 倍希釈して調整したウラン濃度 28.1 ppm の溶液 5.0 l を、あらかじめ精取しておいた 1.5 g の吸着剤と共に 10 l ビーカー内に入れ、マグネチックスターで攪拌しつつ吸着を行なう。所定時間毎に約 $50 \sim 60 \text{ cc}$ の液をサンプリングし、直ちに吸着剤を濾別除去して得た濾液のウラン濃度を測定し、時間と吸着率の関係を図表にまとめ吸着速度の比較を行なった。

2.6 カラム法によるダム排水中のウランの捕集試験

カラム、ポンプ等の器具を動燃事業団人形峠鉱業所ダム排水処理施設の屋内に設置し、供試液となるダム排水は屋内に導入されているダム排水の本管より分取して用いた。

試験は昭和 53 年 10 月 16 日より開始し、同 11 月 11 日までの間に以下の内容で実施した。

1) 吸着試験

吸着剤 QCS-Ti (g) を約 3 l 内径 100 mm のカラムに充填し、SV 約 20 (約 60 l/hr) の速度で連続 100 時間以

上通水し、吸着処理した。試験中流速を記録し、サンプリングは毎日原水を1回、処理水については、2回行ない、それぞれについてウラン濃度を測定した。

2) 溶離再生試験

溶離液として1M・炭酸アンモニウム溶液12lを使用し、SV=4の速度でウランの溶離を行なった。サンプリングは1フラクションを1.5lとし、各フラクションについてウラン濃度の測定を行なった。

3) 繰り返し試験

上記吸着試験と溶離試験を併せて1サイクルとして、2サイクルの試験を行なった。

2.7 ダム排水中のラジウムの吸着試験

(1) 吸着平衡

ダム排水2l又は4lに対し、吸着剤(Ti-1)を200～5mgの範囲で変えることにより、固液比の異なる数点の供試液-吸着剤の系を用意し、攪拌下、室温下で同時に48時間の吸着試験を行ない、各系について母液のラジウムの定量を行なった。

(2) カラム吸着試験

前記したカラム法によるダム排水中のウラン捕集試験中にサンプリングした原水及び処理水の一部についてラジウムの測定を行ない吸着性を判断した。

2.8 分析方法

2.8.1 水溶液中のウランの定量

A. チオシアン酸アンモニウム比色法

リーチング液、雨水リーチング液等比較的ウラン濃度の高い液に適用した。

B. アルセナゾⅢによる吸光光度法

試料(1～30ml)を50ml ビーカーにとり、ゆるやかに蒸発乾固する。残留物に濃硝酸1ml、60%過塩素酸1mlを加え蒸発乾固する。ビーカー内の残留物を8M塩酸5mlに溶解し、砂状亜鉛を加え、約15分間放置後、溶液を25mlメスフラスコに移し飽和シュウ酸溶液(7M塩酸にシュウ酸を飽和させたもの)14mlを数回(5+5+4の3回)に分けてビーカーを洗いメスフラスコに移す。これに0.1%アルセナゾⅢ溶液1.0mlを加え、8M塩酸で標線まで希釈し混合する。この溶液を1cm吸光セルに入れ、水を対照にして665nmにおける吸光度を測定する。坑内水、ダム排水等ウラン濃度の低い液に適用した。

2.8.2 ラジウムの定量

測定は動燃事業団人形峠鉱業所製錬課分析室に依頼しエマネーション法(Ra-Rn)により行なった。

2.8.3 吸着剤中のチタン含有量及びイオン交換体の交換容量

測定法は既報^{1,2)}に述べた方法に準じて行なった。

3. 結果と考察

3.1 ウラン鉱山に関連する各種低濃度ウランに対する吸着性

ウラン鉱山に関連するウラン溶液としては、鉱石よりウランを浸出して得られるリーチング液を始めとして、自然水が鉱石と接触しウランを含むようになった坑内水、地下水及び河川水等、リーチング、精錬等の排液がある。

3.1.1 リーチング液中のウランの捕集

ウラン鉱石からのウラン浸出は硫酸等の鉱酸による酸リーチングと炭酸ソーダ等を用いるアルカリリーチングが行なわれており、いずれの場合もリーチング液中のウラン濃度は、0.2～0.3g/lから数g/lで操業されている²⁾。

酸リーチング法は、通常硫酸を用いるのでリーチング液の酸性はきわめて強い。このため、チタン酸を有効成分とする吸着剤ではチタンの溶出が想定されたので、検討はアルカリ性液に限定して行なった。

この場合、鉱石より直接アルカリリーチングしたウラン溶液を用いるべきであるが、国内でアルカリリーチングは実施されていないため、硫酸リーチング液に炭酸ソーダを加え、アルカリ性にした液を一昼夜静置し、沈降物等の固型物を除いた母液を供試液として用いた。

結果を図1に示す。供試したチタン系吸着剤QCS-Tiはウラン濃度の広い範囲ではほぼ一定(約10mg-U/g-Ad)の吸着量を示しており、ウラン濃度が低くても十分効率よくウランの捕集が行なえることを示唆している。

Fig. 1. Uranium adsorption by titanic adsorbent (QCS-Ti) and anion exchanger (QAP-120 and Dia ion SA-10A) from alkaline leach liquor of pH 9.6～10.0 at 23～26°C.

一方、同時に試験した強塩基性アニオン交換体である QAP-120、及び SA-10 A はいずれも広い濃度範囲で、70~90 mg-U/g-Ad もの高い吸着量を有している。

この吸着量の差より判断する限り、アルカリリーチング液からのウラン捕集に対しては、強塩基性アニオン交換体がより適性を備えていることは明らかである。

3.1.2 坑内水中のウランの捕集

Ti-1 の結果は図 2 において僅かに、右上がりの直線関係にあり、ウラン濃度 0.1~100 ppb での平衡吸着量は、おおむね 500~5000 $\mu\text{g-U/g-Ad}$ である。これより通常数 10 ppb の坑内水中のウランの捕集は十分可能と判断できる。又、QC-1f (Ti) の結果はデーターのバラツキにより明確な直線関係にないが、Ti-1 に近い吸着能を有していることは明らかである。

Fig. 2 Uranium adsorption equilibrium in the uranium mine water of pH 7.3 at 20~23°C.

むしろ、QC-1f (Ti) はチタン含有量が TiO_2 として 7.1 wt % と Ti-1 の約 $\frac{1}{10}$ 弱であるにもかかわらず、これに匹敵する吸着能を示した事に注目すべきであろう。

なお、供試した坑内水は通常 pH が 7~9 であり HCO_3^- を多く含有していることからウランは主として $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ として存在すると考えられ、海水中のウランと類似している。

この観点より坑内水を対象とした図 2 の結果と海水中のウランの吸着試験との比較は興味を持たれる。

すなわち Ti-1 を吸着剤とし、天然海水を供試液とした筆者らのウラン吸着試験⁴⁾では、外洋のウラン濃度である 3.3 ppb における平衡吸着量として、400 $\mu\text{g-U/g-Ad}$ を確認している。これに対し図 2 において Ti-1 の濃度 3.3 ppb における外挿吸着量は約 2500 $\mu\text{g-U/g-Ad}$ であるから、海水の場合の約 6 倍強となっている。

3.1.3 ダム排水中のウラン吸着

Ti-1 及び QCS-Ti (g) を吸着剤としてダム排水中の溶存ウランに対する吸着挙動を調べた結果を図 3 に示す。この結果よりいずれの吸着剤もダム排水中の溶存ウランを捕集するに十分な吸着容量を持つと考えられる。

Fig. 3. Uranium adsorption equilibrium in the dam water of Ningyo-Toge Refinery of pH 4.5 at 18~26°C.

3.2 吸着速度

吸着剤間のウラン吸着速度の比較を雨水リーチング液を供試液として比較検討し、図 4 に結果を示した。

なお、東濃月吉鉱床のウラン鉱石を野積しておく、酸化され雨水により、ウランが浸出される性質があり、この性質を利用して野積した鉱石を通過した雨水を捕集した液が雨水リーチング液である。この雨水リーチング液中には、 HCO_3^- イオンも多く含まれ微アルカリ性でもあり先の坑内水の場合同様ウランは主として $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$

Fig. 4. The rate of uranium adsorption at 22~26°C from rain leach solution of pH 6.85 containing 28.1 mg-U/l uranium by various adsorbents weighing 1.5 g/5.0 L.

の状態で存在していると推定される。

図4は吸着速度には形状(粒径)の影響がきわめて強いことを示している。すなわち粒径 $1190 \sim 297 \mu^0$ のイオン交換樹脂ダイイオンSA-10Aの吸着が格段に遅い。

一方、同じイオン交換基を有する繊維状アニオン交換体QAP-120は、20分後ではほぼ吸着を完了している。QAP-120は約 38μ の太さの繊維状であるため浮遊性が良く比表面積も大きなことが速い吸着速度につながると考えられる。ダイイオンSA-10Aの場合イオンの粒子内拡散が律速になっていることも考えられる。一方、QCS-Ti、QC-1f(Ti)等の繊維状複合吸着剤の吸着速度はマトリックスがカチオン交換体であるにもかかわらずほぼQAP-120に匹敵している。

複合吸着剤のウランの吸着においてマトリックスのイオン性が障害にならないことも示唆しており、興味を持たれる。

3.3 カラム法によるダム排水中のウランの捕集

3.3.1 吸着試験について

3.1.3の結果をふまえカラム法によるダム排水中のウランの捕集試験を現地(人形峠)に試験設備を搬入して行なった。供試液(原水)は山間の凹地に形式されたダムに貯えられた水であり、微生物、山土、動植物の腐敗物等に起因する浮遊固型物を含んでいた。このため通常の繊維状吸着剤を使用せず4~12メッシュの顆粒状吸着剤QCS-Ti(g)を用い、浮遊固型物による目詰りを避けた。かくして実施した吸着試験の結果を図5に示す。期

間中原水のウラン濃度は0.05 ppmから0.25 ppmの範囲で変動した。

処理水のウラン濃度は第1サイクルの平均値で0.006 ppm第2サイクル平均値で0.010 ppmであり、ウラン吸着率は共に約96%に達した。

第1及び第2サイクルの終りにおいて処理水中のウランの漏出の立ち上がりは認められない。原水ウラン濃度は通常1.25~2.5 ppmであるが、降雨量が多かったために0.05~0.25 ppmと極度に濃度が低まり、吸着剤に対する負荷が予想以上に軽くなり、試験終了時点で、まだ十分吸着余力が残っていたと考えられる。

3.3.2 脱着試験について

脱着試験結果を図6に示す。ウラン回収率を算出すると、第1サイクルで52%、第2サイクルで87%となる。第1サイクルでの脱着の際吸着剤に残存したと考えられるウラン量を考慮すると、第2サイクルでのウラン回収率は約60%となり、第1サイクルの値に近い。

この様に脱着工程におけるウラン回収率が低いことは、脱着剤の能力不足が主因と考えられ、脱着液を加熱してその脱着力を高める²⁾等の対策が必要と考える。しかし、この条件のままだでも、ウラン回収率については、原水ウラン濃度が高くなるか、或いは、より長期間吸着を行なうことにより、ウランの吸着レベルが高まれば、相対的にウランの回収率はかなり向上するであろう。

3.4 痕跡量ラジウムの吸着

人形峠ダム排水中に含まれるラジウムに対して尿素法

Fig. 5. Results of field tests (adsorption).

On each run of the test, uranium in treated water was less than 20 ppb and uranium adsorption ratio was more than 95%.

Fig. 6. Result of field test (elution).

Conditions:

Adsorbent: QCS-Ti(g) 3L in 100mm ϕ columnEluant: 1M-(NH₄)₂CO₃ 12L

Flow rate: S.V. 4 (12L/hr.)

Fig. 7. Radium adsorption equilibrium for titanic acid powder (Ti-1) in the dam water of Ningyo Refinery of pH 4.25.

チタン酸を吸着剤として、その吸着性を調べ結果を図7に示した。

各プロットは右上がりの一本の直線(吸着等温線)にのり、ラジウムはチタン酸系吸着剤により、吸着できることを示している。又、3.3.1項に記載したカラム法によるダム排水中のウラン捕集試験の第2サイクル開始後1.5日でのサンプリング水中のラジウム測定結果は、原

水 78.1 pico Curie/l に対し処理水は 0.692 pico Curie/l であり、99.1%の除去率であった。なおこの時ウランは原水 229 ppb に対し処理水 18 ppb で 92.1%の除去率となっている。

以上の結果は、先に検討したウランの吸着と共にウラン鉱山の環境対策上重要な問題となっているラジウムに対する一つの解決方法となり得ることを示唆するものと考ええる。

4. 結 語

繊維状カチオン交換体内にチタン酸を導入した繊維状複合ウラン吸着剤を用い、ウラン鉱山に関連する各種の低濃度ウラン溶液からのウランの吸着性について調べた。

この結果、坑内水、雨水リーチング液、ダム排水等の中性ないし、微アルカリ性のウラン溶液に対し、優れた吸着能を有することを確認した。

又、チタン酸系吸着剤による、ウラン精錬排水中に含まれるラジウムの吸着性について調査を行なった。

これらの検討をふまえ、繊維状吸着剤の集まりよりなる顆粒状吸着剤を用いた充填塔方式による吸着試験を動力炉核燃料開発事業団人形峠鉱業所内のダム排水を対象とする現地試験を行ない、ウラン精錬排水からのウラン及びラジウムの捕集ができることを確認した。

なお、本研究は1976～1979年の間、動力炉核燃料開発事業団と三菱レイヨンとの間で低濃度ウラン回収研究として行なわれたものである。本研究の発表を許可された動力炉核燃料開発事業団、三菱レイヨン株式会社および研究を実施するにあたり御懇切な御指導を賜った動力炉核燃料開発事業団の武中資源部部長に厚く謝意を表わします。

文 献

- 1) 宮松徳久, 小口 登, 寒竹嘉彦, 青柳孝信, 織学誌, **38**, T-537 (1982)
- 2) 宮松徳久, 小口 登, 寒竹嘉彦, 中島 敦, 折戸善一, 田中義彦, 織学誌, **38**, T-546 (1982)
- 3) 動力炉核燃料開発事業団人形峠鉱業所, 測定値
- 4) 宮松徳久, 小口 登, 織学誌, **36**, T-217 (1980)
- 5) 宮松徳久, 広野修一郎, 小口 登, 寒竹嘉彦, 武捨衛人, 織学誌, **39**, T-25 (1983)
- 6) 宮松徳久, 小口 登, 織学誌, 投稿中
- 7) 三菱金属昭和50年度, 海水希少資源回収システム技術開発調査報告書 3～6 (1976)
- 8) 三菱レイヨン昭和51年度, 海水希少資源回収システム技術調査報告書(昭和52年2月)
- 9) ダイヤイオンカタログ