コバルトの化学形とその土壌環境 における溶解/沈殿特性

加藤 尚武*, 上田 真三**

(1990年 3月15日 受理)

Chemical Speciation of Cobalt and Its Dissolution/Precipitation Characteristics in Soil Environment

By Naotake KATOH and Shinzou UETA

KEYWORDS: cobalt 60, dissolution, solubility, hydroxides, ion exchange, pH value, precipitation, absorption, distribution functions, soils

低レベル放射性廃棄物の陸地処分の上から, ^{60}Co は遷移金属であるため, 土壌環境中で種々の化学形をとる可能性がある。Coの化学形とpHとの関係およびその土壌中における挙動については幾つかの報告がある^{(1)~(5)}。

本研究は, これらの研究報告に基づいて, Coの溶解/沈殿特性をパッチ試験により検討した。

1. 実験装置および方法

本研究で用いた実験装置の概略をFig. 1に示す。内径90 mm, 高さ90 mmのガラス製円筒容器を用いた。Co(NO₃)₂水溶液はNaOHによりpH=8となるように調整した。Co濃度は200 ppmとした。水溶液中には, Co²⁺イオンとCo(OH)₂が共存しているものと考えられる⁽⁶⁾。

吸着剤としては, 秋田県尾去沢の川砂, 市販のNa型の陽イオン交換樹脂(Amberlite IR-120 B)およびCa型の陽イオン交換樹脂(市販のNa型陽イオン交換樹脂を容積100 mlのカラムに充填し, CaCl₂ 0.5 Nの水溶液300 mlを流してCa型としたもの)を脱イオン水で十分に洗浄したものを用いた。

Co水溶液は250 ml, 吸着剤は30 gを用い, 液相が完全混合に近くなるように, かつ砂や樹脂が浮遊しない程度にゆっくりと攪拌した。1 hごとに2 mlの水溶液をサンプリングし, Co, Ca濃度を原子吸光光度計により測定した。

Fig. 1 Detail drawing (a) and experimental apparatus (b)

2. 実験結果および考察

尾去沢砂を用いた場合の実験結果をFig. 2に示す。

図は, 水溶液中のCo, Ca濃度およびpHの時間変化を示している。実験開始から4 hほどは, 水溶液中のCo²⁺がCa型のイオン交換能力をもつ尾去沢砂のCa²⁺とイオン交換を行うので, Co濃度が減少し, Ca濃度が増加している。しかし, 4~5 hの間で, Co濃度が急激に減少している。水溶液は初めは黄色味を帯びた懸濁液であったが, このCo濃度の急激な減少とともに無色透明となり, 沈殿物が観察された。Caは5 hで濃度が最大となり, その後減少している。イオン交換により浸出したCa²⁺がCa(OH)₂となり, コロイド状のCo(OH)₂に対して凝集剤として働いたものと考えられる。実際, 砂を用いないでpH=8のCoの懸濁液にCa(OH)₂を加えると, 同様の沈殿物が観察された。

5 h以後の液相のCoは, ほとんどCo²⁺として存在していることになる。pH値の単調な減少は, 液相からの水酸化物が消失し, 新たな平衡に向かってOH⁻が消費されることにより説明できる。

Co濃度の急激な減少とCa濃度の低下が時間的に一致していないのは, 速度論的な問題として今後検討しなければならない。

この現象をさらに確かめるために, 陽イオン交換樹脂を用いた実験も行なった。Na型のものでは, 黄色味

* 工学院大学 (Kogakuin Univ.)

**三菱金属㈱ (Mitsubishi Metal Corp.)

Fig. 2 Dissolution/precipitation experiment (Osarizawa sand)

を帯びた懸濁液が無色透明になるような変化はなかったが、Ca型のものでは、尾去沢砂の場合と全く同じ現象が観察された。結果をFig. 3に示す。実験開始から10 hの間の濃度、pH値の変化はFig. 2の場合と同様である。したがって、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ が $\text{Co}(\text{OH})_2$ にとって凝集剤として働くものと考えられる。10 h以後はFig. 2とは異なり、 Co^{2+} が減少し Ca^{2+} が増加しているが、これ

は陽イオン交換樹脂が尾去沢砂よりイオン交換容量が大きく、まだイオン交換が進行していることを示している。

Fig. 2と3で、Co濃度の急激な減少とCa濃度の低下について、時間的にかなり違いがあるが、攪拌を含めた速度論的な問題によるものと考えられ、今後の検討課題である。

Fig. 3 Dissolution/precipitation experiment (Amberlite IR-120 B)

3. 結 言

Ca型のイオン交換能力のある土壌では、 Co^{2+} と Ca^{2+} のイオン交換により生成する $\text{Ca}(\text{OH})_2$ が凝集剤として働き、水溶液中に懸濁している $\text{Co}(\text{OH})_2$ を沈殿させるような現象のあることがわかった。Mg型についても、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ が $\text{Co}(\text{OH})_2$ にとって凝集剤として働くことが実験により確かめられた。土壌の吸着能力を考える場合、Na型、Ca型、Mg型などでCoの挙動が異なることがありうる点に注意する必要がある。さらには、共

存する陽イオンの種類によって起こる沈殿などの現象は、U, Pu, Am, Npなどの核種についても、大いにありうるものと考えられるので、今後さらに検討したい。

— 参考文献 —

- (1) 大貫敏彦, 和達嘉樹: 原子力誌, 26[10], 880 (1984).
- (2) MAHARA, Y., KUDO, A.: *Health Phys.*, 41[4], 645 (1981).
- (3) *idem*: *Water Res.*, 15, 413 (1981).
- (4) 加藤正平: “放射性物質による陸圏の汚染と線量推定の諸問題”, 96 (1976), 技術寄与研究会.
- (5) 加藤尚武, 村上徹明, 田坂広志, 上田真三: 原子力誌, 29[9], 834 (1987).