炭酸カルシウムとの共晶析による淡水からの放射性ストロンチウム連続除去に及ぼす過飽和度の効果

Effect of super-saturation on continuous removal of radioactive strontium from fresh water by co-crystallization with calcium carbonate

*市川 恒樹[1,2]，山田 一夫[2]
[1]北海道大学，[2]国立環境研究所

Ca^{2+}イオンを含む淡水が放射性 Sr により汚染された場合の除染法として、これに Na_2CO_3 を添加して過飽和 $CaCO_3$ 水溶液とし $CaCO_3$ 結晶を充填したカラムに通すことにより、$CaCO_3$ と共晶析させて Sr を連続除去する方法を開発した。Sr 除染率は溶液の過飽和度上昇と共に上昇し、99.5%以上の除染が可能だった。

キーワード：放射性ストロンチウム、共晶析、 炭酸カルシウム、除染率、過飽和度

1. 緒言

放射性 Sr で汚染された地下水等の淡水を Sr^{2+}吸着剤によって除染しようとする場合、安定 Sr^{2+}の数百倍存在する Ca^{2+}が Sr^{2+}吸着を阻害する。このため吸着除去の前処理として $CaCO_3$ の沈殿処理が行われているが、スラリーの発生、処理の非連続性などの問題がある。そこで模擬汚染地下水に Na_2CO_3 溶液を加えて作成した $CaCO_3$ 過飽和水溶液を $CaCO_3$ 結晶充填カラムに通し、Ca^{2+}と Sr^{2+}を同時に晶析除去することを試みた。

2. 実験と結果

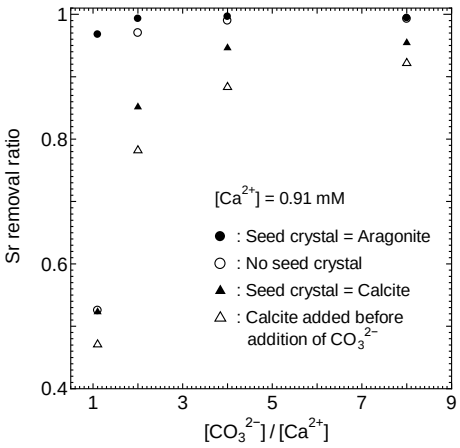

図１．$CaCO_3$ 過飽和溶液に炭酸カルシウム結晶を投入した際の Sr 除去率

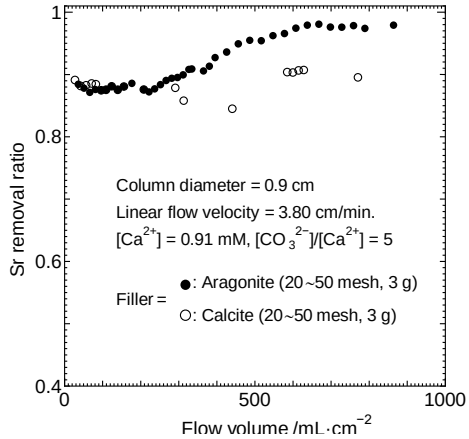

図２．$CaCO_3$ 過飽和溶液を炭酸カルシウム充填カラムに流した際の Sr 除去率

Ca^{2+}、Na^+、Mg^{2+}、K^+、Sr^{2+}、および HCO_3^-、$HSiO_3^-$、Cl^-、SO_4^{2-}、NO_3^-を含む模擬地下水を淡水として使用した。Sr^{2+}の濃度は ^{85}Sr ラベル 1μM とし、Ca^{2+}濃度は $CaCl_2$ を加えて調整した。汚染地下水に対して 1/10 の体積の Na_2CO_3 水溶液を加えて炭酸カルシウム過飽和溶液とし、バッチ処理の場合には、これに $CaCO_3$ 結晶であるカルサイトまたはアラゴナイトを溶液重量の 6%添加後、濾液の放射線量を、連続処理の場合には体積流速 10:1 で流した混合液をカルサイトまたはアラゴナイトを 3g 充填したカラムに通したのちの溶液の放射線量を測定することにより、ストロンチウム除去率を算出した。バッチ処理、カラム処理における除去率を各々図 1 と図 2 に示す。$CaCO_3$ の溶解度積は 7×10^{-10} なので、実験条件下で除去される Sr のほとんど $CaCO_3$ との共晶析によるものである。図 1 より、$CaCO_3$ 溶液の過飽和度が増すほど $CaCO_3$ 結晶への Sr 取り込み量が増すため、Sr 除去率が上昇することが分かる。共晶析の種結晶としては、カルサイトよりも Sr を取り込みやすいアラゴナイトのほうが高い Sr 除去率を示す。種結晶を加えない場合、CO_3^{2-}/Ca^{2+}濃度比 1.1 以下ではカルサイトが、2 以上ではアラゴナイトが過飽和溶液から発生する。模擬地下水に予め種結晶を加えてから Na_2CO_3 溶液を加えて混合した場合、過飽和度が最大値に達する前に共晶析が生じるため Sr 除去率は低下する。カラム法で共晶析を行った場合も、図 2 に示すように、アラゴナイトが高い Sr 除去率を与える。流通初期にアラゴナイトが低い Sr 除去率を示すのは、模擬地下水と Na_2CO_3 溶液の混合が不完全なことによる。共晶析による Sr 取り込み量は溶液の Sr 濃度に比例するので、Sr 除去率は Sr 濃度に依存しない。Ca^{2+}濃度を増加すると、過飽和度に加えて共晶析量も増加するため、Sr 除去率はいっそう増加するが、8mM になると Na_2CO_3 溶液混合と同時に結晶析出が起こる。

*Tsuneki Ichikawa[1,2] and Kazuo Yamada[2]
[1,2]Hokkaido Univ., [2]National Institute for Environmental Studies