



福島原子力事故関連情報アーカイブ

Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	灰洗浄・イオンクロマトグラフ濃縮に用いる吸着材の「分配係数」の意味
Alternative_Title	The meaning of "distribution coefficient" of adsorbent for ash washing-ion chromatograph condensation
Author(s)	山田 一夫(国立環境研究所), 市川 恒樹(国立環境研究所), 三浦拓也(国立環境研究所), 遠藤 和人(国立環境研究所) Yamada, Kazuo(National Inst. for Environmental Studies); Ichikawa, Tsuneki(National Inst. for Environmental Studies); Miura, Takuya(National Inst. for Environmental Studies); Endo, Kazuto(National Inst. for Environmental Studies)
Citation	第 10 回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.39 The 10th Workshop of Remediation of Radioactive Contamination in Environment
Subject	セッション：減容化技術
Text Version	Publisher
URL	https://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/230594
Right	© 2021 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第 10 回環境放射能除染研究発表会要旨集」のデータであり、発表内容に変更がある場合があります。 学会は発表の機会を提供しているもので、内容に含まれる技術や研究の成果について保証しているものではないことをお断りいたします。



灰洗浄・イオンクロマトグラフ濃縮に用いる吸着材の「分配係数」の意味

○山田一夫¹⁾、市川恒樹^{1,2)}、三浦拓也¹⁾、遠藤和人¹⁾
 1)(国研)国立環境研究所、2)北海道大学

1. はじめに

事故により放射能汚染した焼却灰は熔融炉により減容化されているが、さらに熔融飛灰を洗浄しCsのイオンクロマトグラフ濃縮(灰洗浄減容化)が検討されている。福島第一原子力発電所での汚染水処理でもイオンクロマトグラフ濃縮は実施されており、吸着材の性能を示す指標として「分配係数」という用語が用いられることがある。しかしながら、汚染水の場合は放射性核種の除去が目的であり処理前後の水中のCs濃度変化が問題となるのに対して、減容化処理では吸着材に濃縮することが目的であるため処理前後の水中のCs濃度が見かけ上変化しない状態近傍での吸着剤へのCs吸着量=飽和Cs吸着量が問題になるため、分配係数は全く異なる値となる。分配係数とは、固相中の濃度(mol/kg)の液相中の濃度(mol/L)に対する比(L/kg)で、溶媒抽出や中性分子の吸着能を表す物性値であるが、これとは異なる機構であるイオン交換に対しても、原子力分野等で慣用的に用いられる。しかしながらこの場合、分配係数には実験条件依存性があるため、係数ではなく分配比とも呼ぶのが適切と考えられる。ところで、県外最終処分では処理・処分全体を考慮してプロセス設計を行う必要がある。ここで吸着材の基本特性(イオン交換容量(CEC)とイオン選択係数)を吸着実験数値から求めると、任意の溶液組成と吸着材と溶液の量比から吸着量を、イオン交換反応の理論式から求めることができ便利である。本稿では、分配係数が各種因子の影響をどのように受けるかを試算し、プロセス設計において吸着材の性能を分配係数で表現する際の注意点をまとめる。

2. イオン交換反応の理論式

イオン交換反応式から、イオン選択係数を定義し、電気的中性の法則と併せて解くと、平衡状態での吸着量は、CECとイオン選択係数、および溶液中のイオン濃度から算定できる。この関係式に、分配係数を導入すると以下の式が得られる。

$$[CEC] = \frac{VK_D[Cs^+]_0}{10^3WK_D + V} + K_D \frac{1}{K_{Cs/Na}} \frac{[Na^+]_0}{1 + \frac{10^3WK_D}{VK_{Cs/Na}}} + K_D \frac{1}{K_{Cs/K}} \frac{[K^+]_0}{1 + \frac{10^3WK_D}{VK_{Cs/K}}} + K_D \frac{1}{K_{Cs/Rb}} \frac{[Rb^+]_0}{1 + \frac{10^3WK_D}{VK_{Cs/Rb}}}$$

[CEC]: イオン交換容量、V: 溶液量、W: 吸着材量、 $K_D = [X-Cs]/[Cs^+]$: Csの分配係数、[X-Cs]: 吸着剤X中のCs濃度、 $[M^+]_0$: イオンM⁺の初期濃度、 $K_{Cs/M} = \frac{[X-Cs][M^+]}{[Cs^+][X-M]}$: イオンM⁺に対するCs⁺のイオン選択係数。

3. 評価条件

評価対象は、フェロシアン化銅(CuFeCN)、ケイチタン酸(CST)、ゼオライト(Zeolite)とした。それぞれ、実測で、CECは2, 1.5, 3.8 eq/kg、 $K_{Cs/Na}$ は150,000, 22,000, 700、 $K_{Cs/K}$ は14,000, 2,200(設定値), 70(設定値)とした。溶液組成は、NaClとKClは1M、CsClは100 μ Mとした。一般焼却灰の熔融飛灰の化学組成と、CuFeCNの $K_{Cs/Rb}$ の測定例から、Rbは吸着に大きな影響を及ぼさない([Rb⁺]/[Cs⁺]に対し $K_{Cs/Rb}$ は十分大)、ここでは考慮していない。

4. 結果と考察

図1に固液比と分配係数 K_D 、もしくは吸着量の関係を示す。吸着材種類により K_D は複雑な挙動を示すが、固液比を1/100以下になると一定となる。 K_D が一定となる固液比は、CECと $K_{Cs/M}$ やイオン環境を種々変化させても同様であった。一方、吸着量は、吸着材の特性に従い、より広い範囲で固液比の影響を受ける。特に $K_{Cs/M}$ が小さい場合、固液比が大きい条件1/10,000で飽和吸着に達するが、 $K_{Cs/M}$ が大きい場合、飽和吸着は1/1,000,000まで増加する。飽和吸着量は、同じ $K_{Cs/M}$ の場合はCECに比例し、同じCECの場合は $K_{Cs/M}$ に依存する。

以下に試算による結果から、 K_D で吸着材を評価する際の要点を示す。

- ・ 吸着実験で K_D を求める場合、固液比は1/100以下とする。
- ・ 吸着量は吸着材の性能により固液比依存性が強いので、広い固液比範囲での検討が必要である。Cs選択性が高いほど、小さい固液比での評価が必要である。
- ・ 吸着材を初期にK型にしてから吸着試験を行う。
- ・ イオン交換サイトの特性には分布があり理論が適用できる吸着割合の領域がある。低吸着量でイオン選択性が高い。
- ・ 吸着材の品質管理を K_D で行う際は、溶液の化学組成依存性と固液比依存性があることを踏まえた複数条件とする。
- ・ 処理対象溶液の化学組成依存性が強いので処理対象物の化学組成・溶出率の変動範囲を評価する。
- ・ 吸着材を溶液に投入する平衡吸着試験は吸着材量算出の基礎となるが、現実の装置設計では多段カラム化する必要があるため、その際の溶液の通過抵抗やイオン交換速度などを考慮する必要がありスケールアップした実験が必要である。

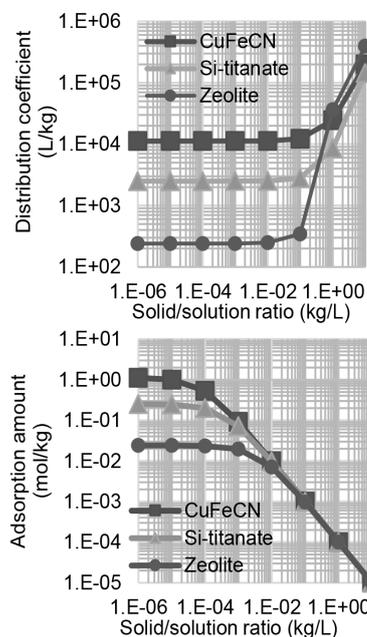


図1 固液比と分配係数/吸着量

The meaning of “distribution coefficient” of adsorbent for ash washing-ion chromatograph condensation

(NIES¹⁾, Hokkaido U.²⁾ ○K. Yamada¹⁾, T. Ichikawa^{1,2)}, T. Miura¹⁾, K. Endo¹⁾