

JAERI-M

8044

放射性廃棄物の陸地処分に関する安全性研究
通気層における放射性核種の分布と移動

1979年1月

武部慎一・和達嘉樹

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

放射性廃棄物の陸地処分に関する安全性研究
(通気層における放射性核種の分布と移動)

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
武部 慎一・和達 嘉樹

(1978年12月18日受理)

本報は放射性廃棄物の陸地処分の安全評価に関する基礎的研究であり、通気層中の放射性核種の挙動を知るため、砂層モデル装置により ^{60}Co 、 ^{137}Cs および ^{90}Sr - ^{90}Y の分配係数ならびに砂層中分布、砂層中移動速度を求めた。

その結果、各核種の不飽和分配係数は、酸性の場合において大きく、中性およびアルカリ性の場合において小さい。放射性核種は流下に際して砂層表面層に大部分が吸着し、砂層深部に行くに従って、それらの分布比は指数関数的に減少する。井上らにより提案されている放射性核種の通気層移動を表わす式により、核種の移動速度を算出した。それによると、酸性における各核種の移動速度は小さく、アルカリ性の場合には大きい。しかし、水の移動速度に比較するとかなり小さい値であり、 ^{60}Co で約 $1/100$ 、 ^{137}Cs では約 $1/10,000$ 、 ^{90}Sr - ^{90}Y では約 $1/1,000$ である。

Radiological Safety Studies on the Ground Disposal of Radioactive Wastes
— Distribution and Migration of Radionuclides in an Aerated Zone —

Shinichi TAKEBE and Yoshiki WADACHI

Division of Environmental Safety Research,

Tokai Research Establishment, JAERI

(Received December 18, 1978)

This report concerns with a fundamental study on the safety evaluation of the ground disposal of radioactive wastes. In order to reveal behavior of radionuclides in an aerated zone, the distribution coefficient, distribution ratio and migration rate of ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{90}Sr - ^{90}Y were measured with sand layer model apparatus.

Each radionuclide shows a large distribution coefficient (unsaturated) in the acidic and small value in both the neutral and the alkaline condition. In pouring a radioactive aqueous solution into the sand layer, most of the radionuclide is adsorbed on the surface of sand layer and the distribution ratio is to be decreasing exponentially towards the deeper layer. The migration rates of ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{90}Sr - ^{90}Y were calculated by Inoue's equation regarding the radionuclide migration in an aerated zone. Each migration rate is small in the acidic and large in the alkaline condition. These migration rates, however, are considerably small as compared with that of water itself: ^{60}Co ca. 1/100, ^{137}Cs ca. 1/10,000 and ^{90}Sr - ^{90}Y ca. 1/1,000.

Keywords: Radiological Safety, Ground Disposal, Radioactive Wastes, Aerated Zone, Distribution Ratio, Distribution Coefficient, Migration Rate, Sand Layer, Cesium-137, Cobalt-60, Strontium-90 - Yttrium-90.

目 次

1. 緒 言	1
2. 実 験 方 法	1
2.1 実験に用いた砂および砂層モデル	1
2.2 放射性水溶液流下実験	2
2.3 放射性核種の流出比, 分配係数および分布比	2
3. 実験結果と考察	3
3.1 放射性核種の分配係数	3
3.2 放射性核種の砂層中分布および地中移動	4
3.3 放射性核種の砂層中移動速度	5
4. 結 言	6
参 考 文 献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1. Sand and sand layer model used in the experiment	1
2.2. Flow-down experiment of radioactive aqueous solution	2
2.3. Effluent ratio, distribution coefficient and distribution ratio of radionuclides	2
3. Results and discussion	3
3.1. Distribution coefficients of radionuclides	3
3.2. Distribution and migration of radionuclides in the sand layer	4
3.3. Migration rates of radionuclides in the sand layer	5
4. Concluding remarks	6
References	7

表 目 次

Table 1	砂の化学組成	8
Table 2	pH および流下量による放射性核種の分配係数の影響	9
Table 3	放射性水溶液の流下実験における pH	8
Table 4	pH および流下量による放射性核種の移動速度の影響	10

図 目 次

Fig.1	カラム断面図	11
Fig.2	砂層中の空隙率と保水率	12
Fig.3	砂層中の飽和度および空隙率	13
Fig.4	^{60}Co の砂層中分布比	14
Fig.5	^{60}Co の砂層中心部における分布比	15
Fig.6	^{137}Cs の砂層中分布比	16
Fig.7	^{137}Cs の砂層中心部における分布比	17
Fig.8	^{90}Sr - ^{90}Y の砂層中分布比	18
Fig.9	^{90}Sr - ^{90}Y の砂層中心部における分布比	19

Contents of tables

Table 1	Chemical composition of sand.	8
Table 2	Influences of pH and effluent volume on the distribution coefficients (kd').	9
Table 3	The pH of radioactive aqueous solution in the experiment.	8
Table 4	Influences of pH and effluent volume on the migration rates of radionuclides.	10

Contents of figures

Fig. 1	Sectional scheme of column.	11
Fig. 2	Water retention ratio and porosity of the sand layer.	12
Fig. 3	Porosity and degree of saturation of the sand layer.	13
Fig. 4	Distribution ratio of ^{60}Co in the bulk sand layer.	14
Fig. 5	Distribution ratio of ^{60}Co in the center of the sand layer.	15
Fig. 6	Distribution ratio of ^{137}Cs in the bulk sand layer.	16
Fig. 7	Distribution ratio of ^{137}Cs in the center of the sand layer.	17
Fig. 8	Distribution ratio of ^{90}Sr - ^{90}Y in the bulk sand layer.	18
Fig. 9	Distribution ratio of ^{90}Sr - ^{90}Y in the center of the sand layer.	19

1. 緒 言

我国の急増する放射性廃棄物に対処するため、原子力委員会は昭和51年10月、放射性廃棄物の処理処分について基本方針を示した。それによると、低レベル廃棄物の処分は事前に安全性を評価し、試験的処分の結果を踏えて慎重に進めるものとし、処分法としては処理の形態に応じて海洋処分と陸地処分（保管，地中処分）を併せて行う方針である。

日本原子力研究所における放射性廃棄物の陸地処分に関する安全性研究は、昭和51年度より開始された。安全評価上最も重要な放射性核種の地中移行に関する基礎的研究として、初めに放射性核種の土壌への吸着様式および吸着に与える種々の影響を調べ、次に小規模地層モデル（プラスチック製カラム，内径5cm，多段2重構造）を用いた放射性水溶液流下実験により、通気層状態砂層中における ^{60}Co および ^{137}Cs の分配係数に与えるpHの影響ならびにこれら核種の砂層中分布比および移動速度¹⁾について調べた。

本報告は前報¹⁾と同様な放射性水溶液流下実験をスケールアップした地層モデル（プラスチック製カラム，内径10cm，多段2重構造）により行い、通気層状態砂層中における ^{60}Co ， ^{137}Cs ， ^{90}Sr — ^{90}Y の分布比と垂直方向の移動速度を求め、核種の化学形とそれらの相互関係を検討した。

2. 実験方法

2.1 実験に用いた砂および砂層モデル

実験に用いた砂は東海研究所敷地内（海岸より約500m，地下約3m）より採取した海岸砂である。初めに水道水で十分洗浄し、草木根，泥土，小石等を取除き，乾燥後，JIS標準篩で1680 μ 以上の粗砂を除き，イオン交換水で再度洗浄し乾燥した。このようにして得られた砂のモード径は350 μ ，密度は2.63g/cm³である¹⁾。砂の化学組成はTable 1²⁾に示した。

地表モデルは，アクリル製多段2重構造のカラムに，上記のごとく調整した砂を空隙率約40%で充填したもので，十分イオン交換水を流下させた後，約1日放置し通気層状態の砂層としたものである（Fig.1参照）。この場合，砂層は10cm ϕ ×24cm hである。砂層の保水率および空隙率をFig.2に示し，その時の砂層中水分飽和度^{3),4)}をFig.3に示す。

1. 緒 言

我国の急増する放射性廃棄物に対処するため、原子力委員会は昭和51年10月、放射性廃棄物の処理処分について基本方針を示した。それによると、低レベル廃棄物の処分は事前に安全性を評価し、試験的処分の結果を踏えて慎重に進めるものとし、処分法としては処理の形態に応じて海洋処分と陸地処分（保管、地中処分）を併せて行う方針である。

日本原子力研究所における放射性廃棄物の陸地処分に関する安全性研究は、昭和51年度より開始された。安全評価上最も重要な放射性核種の地中移行に関する基礎的研究として、初めに放射性核種の土壌への吸着様式および吸着に与える種々の影響を調べ、次に小規模地層モデル（プラスチック製カラム、内径5cm、多段2重構造）を用いた放射性水溶液流下実験により、通気層状態砂層中における ^{60}Co および ^{137}Cs の分配係数に与えるpHの影響ならびにこれら核種の砂層中分布比および移動速度について調べた。¹⁾

本報告は前報¹⁾と同様な放射性水溶液流下実験をスケールアップした地層モデル（プラスチック製カラム、内径10cm、多段2重構造）により行い、通気層状態砂層中における ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr — ^{90}Y の分布比と垂直方向の移動速度を求め、核種の化学形とそれらの相互関係を検討した。

2. 実験方法

2.1 実験に用いた砂および砂層モデル

実験に用いた砂は東海研究所敷地内（海岸より約500m、地下約3m）より採取した海岸砂である。初めに水道水で十分洗浄し、草木根、泥土、小石等を取除き、乾燥後、JIS標準篩で1680 μ 以上の粗砂を除き、イオン交換水で再度洗浄し乾燥した。このようにして得られた砂のモード径は350 μ 、密度は2.63g/cm³である。¹⁾砂の化学組成はTable 1²⁾に示した。

地表モデルは、アクリル製多段2重構造のカラムに、上記のごとく調整した砂を空隙率約40%で充填したもので、十分イオン交換水を流下させた後、約1日放置し通気層状態の砂層としたものである（Fig.1参照）。この場合、砂層は10cm ϕ ×24cm hである。砂層の保水率および空隙率をFig.2に示し、その時の砂層中水分飽和度^{3),4)}をFig.3に示す。

2.2 放射性水溶液流下実験

塩酸および水酸化ナトリウムでpHを調整した放射性水溶液^{*}を、マイクロチューブポンプにより一定の流速（線流速 0.13 cm/min ）で通気層状態砂層に流下させた。

この際、放射性核種は全て塩化物であり、 ^{137}Cs および ^{60}Co はほぼ等しい放射能濃度、すなわち約 $1 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ の混合溶液を使用し、 ^{90}Sr は単独で放射平衡にある約 $1 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ の水溶液を使用した。流出液を連続的に所定量分取し、それらの放射能濃度を測定した。一方、放射性水溶液を流下させた後、約1日放置後、砂層を表面から水平方向および垂直方向に所定の間隔で分取し、それらの放射エネルギーを測定した。

放射能測定は、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs についてはTMC製 $5''\phi \times 4''$ NaI(Tl) γ 線波高選別装置、 ^{90}Sr — ^{90}Y については流下実験直後および放射平衡後にAloka製端窓型GM計数装置により行なった。

2.3 放射性核種の流出比、分配係数および分布比

本実験における放射性核種の流出比（E）、分配係数（ K_d' ）および砂層中分布比（R）は、おのおの次式に従って算出した。

$$E = A_f / A_i \quad \dots\dots\dots (1)$$

A_i : 砂層を流下する前の放射性水溶液の放射能濃度 ($\mu\text{Ci/ml}$)

A_f : 砂層を流下した後の放射性水溶液の放射能濃度 ($\mu\text{Ci/ml}$)

$$K_d' = \frac{V}{M} \cdot \frac{A_i - A_f}{A_f} = \frac{V}{M} \left(\frac{1}{E} - 1 \right) \quad \dots\dots\dots (2)$$

V : 放射性水溶液通水量 (ml)

M : 砂層の重量 (g)

$$R = A_j / A_t \quad \dots\dots\dots (3)$$

A_t : 砂層に流下した全放射エネルギー (μCi)

A_j : 各砂層部分の放射エネルギー (μCi)

ただし、ここで言う分配係数（ K_d' ）は、カラム内砂層全体に放射性核種が均一に吸着したとして計算したものである。放射性核種の化学濃度と砂の量から、明らかに飽和吸着に達していない状態での分配係数である。従って、いわゆる分配係数より小さい値の不飽和分配係数である。

¹⁾
*本実験における放射能濃度 ($\mu\text{Ci/ml}$) は、前報¹⁾で報告した実験の場合とほぼ同濃度である。

3. 実験結果と考察

3.1 放射性核種の分配係数

本実験で求める放射性核種の分配係数 (K_d') は、前述したごとく (2.3 参照)、不飽和状態における分配係数であり、飽和状態における分配係数 (K_d)⁵⁾ とは異なり、 $K_d' < K_d$ なる関係にある。(2)式より明らかなように、不飽和状態における分配係数 (K_d') は、流下量の増加に従って増大するものである。本実験では、砂層の調整条件を一定とし、各 pH の放射性水溶液を砂層に流下させ、(2)式により分配係数 (K_d') を求め、放射性核種の溶存状態が分配係数に及ぼす影響を調べた。結果を Table 2 に示す。

Table 2 によれば、 ^{60}Co は酸性 (pH 3)^{*} では流下量の増加に従って分配係数も増加し、一様に大きな値を示す。一方、中性 (pH 7)^{*} では流下量により分配係数の値は相当にばらつき、一定の増減傾向を示さない。しかし、アルカリ性 (pH 12)^{*} では流下量の増加に従って逆に分配係数は減少する傾向を示し、それらの値も一様に小さい。これらの現象の原因は次のように考えられる。

^{60}Co は酸性 (pH 3) において陽イオンとして溶存し、イオン交換吸着により砂に良く吸着されるために大きな値を示す。また、分配係数の流下量による増加は、前述したごとく砂の吸着容量の不飽和状態によるものである。一方、中性 (pH 7) における分配係数のばらつきは、加水分解により生ずる多量体^{8~10)} によるものと考えられる。アルカリ性 (pH 12) の場合は、加水分解により生成された非イオン状の $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ が砂に吸着し難いためである。

一方、 ^{137}Cs は広い pH 領域で陽イオンとして溶存しているために、pH によらず砂へ良く吸着する。さらに、 ^{137}Cs には粘土鉱物質に対する特異吸着があり、それが一層分配係数を大きくしているものと考えられる。

また、前報¹⁾の内径 5 cm カラムにおいても、 ^{60}Co および ^{137}Cs の各 pH での分配係数は同様な傾向を示している。

$^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ については、流下直後の流出液の放射能測定により求めた分配係数、すなわち、括弧内の値は、酸性 (pH 3) では約 10^4 を示し、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs と同様大きい値を示し、多価の陽イオンとして溶存する $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ が砂に良く吸着されることがわかる。また、中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) では、 ^{137}Cs のそれに比べて ^{60}Co 同様約 2桁小さい値、すなわち $10^0 \sim 10^1$ を与えている。

一方、放射平衡時に求めた分配係数の値は、酸性 (pH 3) では ^{137}Cs のそれと同様大きい値が、中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) では小さい。しかし、 ^{60}Co よりそれだけ約 1桁大きい値を示した。これらのことは、流出液の放射能減衰測定によりわかったことであるが、流出液には ^{90}Y が放射平衡にあるよりはるかに多量に含まれていたことから説明で

*酸性、中性、アルカリ性というのは、流下前の放射性水溶液の pH を言う。以後の記述はこれに従う。

きる。すなわち、中性およびアルカリ性で $^{90}\text{Y}^{3+}$ は加水分解により $^{90}\text{Y}(\text{OH})_3$ となり砂に吸着され難く水と共に流出するため、流下直後の分配係数値が低くなる。このように、 ^{90}Y が ^{90}Sr に先行し、水と共に砂層中を移動する現象はすでに認められており^{15),16)}、本報告でも後の核種の砂層中分布において再度述べる。

以上のように、放射性核種の砂への吸着は、pH により放射性核種の溶存化学形が異なるため pH の影響を受ける。ここで、本実験での流下前の放射性水溶液の pH の流下後の pH とを Table 3 に示す。この流下前後の pH の違いは、土壌(砂)の持つ大きなイオン交換容量によるものであり、砂層を流下した液は流下前の pH によらずいずれもほぼ中性に戻る。それ故、前述のように放射性核種の分配係数が異なるのは、砂層流下前の pH による放射性核種の溶存化学形の違いに基づくものであると結論される。

3.2 放射性核種の砂層中分布および地中移動

流下量 (0.5 l, 1 l, 2 l, 4 l) ごとの砂層中の ^{60}Co の分布比を Fig. 4 に示す。また、Fig. 5 には砂層中心部 (0~3 cm) における ^{60}Co の分布比を示す。以上の砂層中分布比から、 ^{60}Co の大部分は砂層表面層に吸着し、分布比は砂層深部に行くに従っておおむね指数関数的に減少する。砂層深部 (約 12 cm 以上) ではほぼ一定値となる。しかし、pH によりその値は異なり、中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) においては、 10^{-2} 程度の大きい値を示している。一方、酸性 (pH 3) においては、 $10^{-4} \sim 10^{-5}$ の小さな値を与えるにすぎない。以上の結果は、前報¹⁾においても認められたことであり、中性およびアルカリ性で ^{60}Co が砂層中を水と共に比較的容易に移動するためであり、前述のように加水分解により生成する $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ が砂に吸着され難く移動し易いためである。

同様に、 ^{137}Cs の砂層中の分布比を Fig. 6、砂層中心部分布比を Fig. 7 に示す。Fig. 6 および Fig. 7 より明らかなように、 ^{137}Cs は砂層表面層に大部分が吸着し、砂層中分布比は砂層深部に行くに従い急激に指数関数的に減少する。そして分布比は、砂層深部 (約 12 cm 以上) では pH によらずほぼ一定の小さな値を示す。以上の結果は、 ^{137}Cs は中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) においても陽イオンとして溶存しているため、広い pH 範囲にわたり砂に吸着し易く、移動し難いためと説明される。

^{90}Sr - ^{90}Y の場合の砂層中分布比を Fig. 8、中心部分布比を Fig. 9 に示す。これによると流下直後の中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) での砂層深部 (約 12 cm 以上) における分布比は、 ^{60}Co のそれに類似している。しかし、放射平衡時の分布比は、流下直後の値に比べ、約 1~2 桁ほど小さい値を示している。このことは、中性およびアルカリ性で ^{90}Y が ^{60}Co と同様に加水分解を受け砂に吸着し難い $^{90}\text{Y}(\text{OH})_3$ となり、砂中を移動し易く、そのために砂層中に広く分布するためである。さらに、流下直後と放射平衡時の砂層中分布比の差は、中性 (pH 7) の方がアルカリ性 (pH 12) よりも大きい。このことは、中性において半減期 64 h の ^{90}Y がより多く砂層中に分布するためである。すなわち、 ^{90}Y は水と共に移動するが、その多くは流出せず砂層中にとどまるために起こる現象である。これらのことは、Y が種々の物質への吸着に示す中性領域でのコロイド的挙動¹⁷⁾に基づくものと考えられる。

3.3 放射性核種の砂層中移動速度

以上、得られた分配係数 (K_d') を用いて、井上¹⁶⁾により提出されている通気層中放射性核種の移動に関する式により、放射性核種の砂層中移動速度を計算した。この移動に関する式は、帯水層での理論が通気層にも修正適用できるものとしたもので、(4)式で示される。

$$K_{fa} = \frac{V_a}{V_A} = 1 + \frac{1-f}{f \cdot s} \cdot \rho \cdot K_d \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、

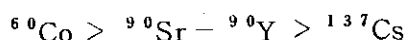
- K_{fa} : 通気層での時間変換係数
- V_a : 通気層中の水の浸透速度 (cm/day)
- V_A : 通気層中の放射性核種の移動速度 (cm/day)
- f : 地層の空隙率
- ρ : 地層構成土壌の密度 (g/cm³)
- s : 地層間隙の水の飽和度
- K_d : 放射性核種の分配係数 (3)式参照, (ml/g))

この際、放射性核種の分配係数には各流下量における不飽和の分配係数 (K_d') (Table 2 参照) を、砂層の空隙率 f および飽和度 s には砂層全体における平均値 (Fig. 2 および Fig. 3 参照) を、そして水の砂層中浸透速度 V_a には流下線流速 (0.13 cm/min) を用いる。得られた計算結果を Table 4 に示す。

Table 4 に見られるごとく各放射性核種について、酸性 (pH 3) の場合は砂層中移動速度は各条件下で小さい値を示している。しかし、中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) においてはそれらの値は一般に大きく、この傾向は ⁶⁰Co および ⁹⁰Sr-⁹⁰Y において特に著しい。ここで、¹³⁷Cs は広い pH 範囲で陽イオンとして溶存しているため砂層に良く吸着し、全般に小さい移動速度を与える。しかし、⁶⁰Co は前述したように、中性およびアルカリ性では加水分解により、難溶性水酸化物を形成し、それが砂に吸着し難いため、砂層中移動速度は大きくなる。一方、⁹⁰Sr-⁹⁰Y の場合は、流下直後のデータより求めた分配係数による砂層中移動速度は、各 pH において ⁶⁰Co と似た移動速度を示すが、放射平衡時のデータより求めた分配係数による移動速度では、¹³⁷Cs と ⁶⁰Co の中間の値を示す。

以上の結果を前報¹⁾の内径 5 cm のカラムの場合と比較すると、⁶⁰Co の中性およびアルカリ性の場合ではほぼ一致するが、⁶⁰Co の酸性の場合および各 pH での ¹³⁷Cs の場合については、今回の内径 10 cm のカラムにより求めた移動速度は小さくなっている。これは、砂量が多いためにイオン形で溶存している放射性核種の吸着が多くなるためである。すなわち、このような傾向は分配係数に不飽和分配係数を用いているためである。

本実験条件下で各核種の砂層中移動性を定性的に比較すると、全般に次のような関係があると言えよう。



ただし、⁹⁰Sr は自然の砂層中では、カルシウムイオンや炭酸イオンの影響により吸着が少

なくなり、その砂層中移動速度はより大きくなるものと考えられる。

また、これらの砂層中移動速度は、水の移動速度と比較して、これら核種が移動し易いアルカリ性においても、 ^{60}Co では約 $1/100$ 、 ^{137}Cs では約 $1/10,000$ および放射平衡時の $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ では約 $1/1,000$ という小さな値である。

以上の結果は小規模な地中モデルを使用し、カラム内砂層を調整した後用いているため、これらのデータを直接、実際の場合に適應することは難しい¹⁸⁾。特に、不飽和分配係数を用いる解析法では、実験条件により分配係数の値が変るため、より現実的な条件を考慮に入れた環境シミュレーション試験を行い、安全解析のために必要なパラメーターを求めることが必要である。また、自然状態の土壌をそのまま掘り抜き使用するも一方法である。

4. 結 言

(1) 不飽和状態における分配係数は、流下量の増加に従い増大し、その値は放射性水溶液の流下前の pH に依存する。すなわち、放射性核種の溶存化学形により影響を受ける。不飽和状態における分配係数 (K_d') は pH 3 で大きく、pH 7 および pH 12 では小さい。これは、酸性 (pH 3) において、放射性核種 (^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$) がいずれも陽イオンとして溶存しているために、イオン交換吸着により砂に良く吸着されるためである。一方、中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) においては、 ^{60}Co および ^{90}Y は加水分解により難溶性水酸化物を形成し、砂に吸着し難くなるため、分配係数が小さくなる。

(2) 放射性核種は砂層表面層に多くの部分が吸着し、その分布比は砂層深部に行くに従って指数関数的に減少する。そして、砂層深部 (12 cm 以上) で分布比はほぼ一定値を示す。しかし、それらの値は核種および pH により異なり、 ^{60}Co では中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) で分布比は大きい。 $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ は流下直後の場合は ^{60}Co と同様な値であるが、放射平衡時では約 1~2 桁小さい値を示す。これに対し、 ^{137}Cs は pH によらず一様に小さい値である。中性およびアルカリ性におけるこのような結果は、 ^{60}Co および ^{90}Y の加水分解により生成する難溶性水酸化物が砂に吸着し難く、水と共に砂層中を比較的容易に移動するためである。

(3) 井上らの通気層中放射性核種の移動式により、放射性核種の砂層中移動速度を求めた結果、 ^{60}Co の移動速度は中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) で大きい、 ^{137}Cs の移動速度は pH によらずに小さい。すなわち、 ^{60}Co は加水分解による難溶性水酸化物が砂に吸着し難く、水と共に砂中を移動し易いためである。一方、広い pH 領域で陽イオンとして溶存する ^{137}Cs は砂に良くイオン交換吸着し、砂層中を移動し難いためである。これらの結果は前報¹⁾の場合と良く一致するが、その値は前報¹⁾に比較して小さい。これは砂量が多いためにイオン形で溶存している放射性核種の吸着が多くなるためである。また、 $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ は ^{60}Co と ^{137}Cs の中間の結果を示した。以上これら核種の砂層中移動性を比較すると、全般に次のような関係が得られる。

$$^{60}\text{Co} > ^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y} > ^{137}\text{Cs}$$

なくなり、その砂層中移動速度はより大きくなるものと考えられる。

また、これらの砂層中移動速度は、水の移動速度と比較して、これら核種が移動し易いアルカリ性においても、 ^{60}Co では約 $1/100$ 、 ^{137}Cs では約 $1/10,000$ および放射平衡時の $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ では約 $1/1,000$ という小さな値である。

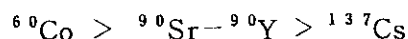
以上の結果は小規模な地中モデルを使用し、カラム内砂層を調整した後用いているため、これらのデータを直接、実際の場合に適應することは難しい¹⁸⁾。特に、不飽和分配係数を用いる解析法では、実験条件により分配係数の値が変わるため、より現実的な条件を考慮に入れた環境シミュレーション試験を行い、安全解析のために必要なパラメーターを求めることが必要である。また、自然状態の土壌をそのまま掘り抜き使用するも一方法である。

4. 結 言

(1) 不飽和状態における分配係数は、流下量の増加に従い増大し、その値は放射性水溶液の流下前の pH に依存する。すなわち、放射性核種の溶存化学形により影響を受ける。不飽和状態における分配係数 (K_d') は pH 3 で大きく、pH 7 および pH 12 では小さい。これは、酸性 (pH 3) において、放射性核種 (^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$) がいずれも陽イオンとして溶存しているために、イオン交換吸着により砂に良く吸着されるためである。一方、中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) においては、 ^{60}Co および ^{90}Y は加水分解により難溶性水酸化物を形成し、砂に吸着し難くなるため、分配係数が小さくなる。

(2) 放射性核種は砂層表面層に多くの部分が吸着し、その分布比は砂層深部に行くに従って指数関数的に減少する。そして、砂層深部 (12 cm 以上) で分布比はほぼ一定値を示す。しかし、それらの値は核種および pH により異なり、 ^{60}Co では中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) で分布比は大きい。 $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ は流下直後の場合は ^{60}Co と同様な値であるが、放射平衡時では約 1~2 桁小さい値を示す。これに対し、 ^{137}Cs は pH によらず一様に小さい値である。中性およびアルカリ性におけるこのような結果は、 ^{60}Co および ^{90}Y の加水分解により生成する難溶性水酸化物が砂に吸着し難く、水と共に砂層中を比較的容易に移動するためである。

(3) 井上らの通気層中放射性核種の移動式により、放射性核種の砂層中移動速度を求めた結果、 ^{60}Co の移動速度は中性 (pH 7) およびアルカリ性 (pH 12) で大きい、 ^{137}Cs の移動速度は pH によらずに小さい。すなわち、 ^{60}Co は加水分解による難溶性水酸化物が砂に吸着し難く、水と共に砂中を移動し易いためである。一方、広い pH 領域で陽イオンとして溶存する ^{137}Cs は砂に良くイオン交換吸着し、砂層中を移動し難いためである。これらの結果は前報¹⁾の場合と良く一致するが、その値は前報¹⁾に比較して小さい。これは砂量が多いためにイオン形で溶存している放射性核種の吸着が多くなるためである。また、 $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ は ^{60}Co と ^{137}Cs の中間の結果を示した。以上これら核種の砂層中移動性を比較すると、全般に次のような関係が得られる。



さらに、これらの放射性核種の移動速度は、移動し易いアルカリ性においても水の移動速度に比較してはるかに小さく、 ^{60}Co では約 $1/100$ 、 ^{137}Cs では約 $1/10,000$ および放射平衡時の ^{90}Sr — ^{90}Y では約 $1/10,000$ という小さな値である。

謝 辞

本報告の終わりにあたり、多くの便宜を与えて下さった環境安全研究部天野恕部長に感謝すると共に、結果を検討して下さい下さった低レベル廃棄物処理処分研究室松鶴秀夫研究員、実験に参加して下さい下さった北海道大学工学部本名武氏並びに放射能測定に協力して下さい下さった保健物理部線量計測課備後一義副主任研究員、同間辺巖研究員にそれぞれ感謝の意を表わす。

参 考 文 献

- 1) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: JAERI-M 7642 (1978).
- 2) 会川英明, 古平 登: JAERI-memo 3218 (公開) (1968).
- 3) 土壤物理性測定法委員会編: "土壤物性測定法" p47, 養賢堂版 (1975).
- 4) 八幡敏雄: "土壤の物理" p18, 東京大学出版会 (1975).
- 5) Y. Inoue and S. Morisawa: Health Phys., 26, 53 (1974).
- 6) R.K. Schulz: "Soil chemistry of radionuclides", Health Phys., 11, 1317 (1965).
- 7) S.W. Mayer and E.R. Tompkins: J. Am. Chem. Soc., 69, 2866 (1947).
- 8) M. Pourbix: "Atlas of electrochemical equilibria in aqueous solutions", Pergamon press (1966).
- 9) G.K. Schweitzer, W.M. Jackson: J. Am. Chem. Soc., 76, 941 (1954).
- 10) D.W. Rhodes: Soil Sci. Soc. Proc., 21, 389 (1957).
- 11) 筒井天尊, 西牧研壯: 保健物理, 10, 79 (1975).
- 12) 筒井天尊, 西牧研壯: 保健物理, 10, 203 (1975).
- 13) Harvin L. Granstrom, Bernd Kahn: J. Phys. Chem., 59, 408 (1955).
- 14) 日本粘土学会編: "粘土ハンドブック", p101, 技報堂 (1966).
- 15) Y. Inoue, W. J. Kaufmorn: Health Phys., 9, 705 (1963).
- 16) 井上頼輝, 森沢真輔: 日本原子力学会誌, 14, 522 (1972).
- 17) I. E. Starik 著, 石渡良志, 他訳: "放射化学の基礎", p112, 南江堂 (1962).
- 18) 加藤正平, 他: 日本原子力学会誌, 20, 42 (1978).

さらに、これらの放射性核種の移動速度は、移動し易いアルカリ性においても水の移動速度に比較してはるかに小さく、 ^{60}Co では約 $1/100$ 、 ^{137}Cs では約 $1/10,000$ および放射平衡時の $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ では約 $1/10,000$ という小さな値である。

謝 辞

本報告の終わりにあたり、多くの便宜を与えて下さった環境安全研究部天野恕部長に感謝すると共に、結果を検討して下さい下さった低レベル廃棄物処理処分研究室松鶴秀夫研究員、実験に参加して下さい下さった北海道大学工学部本名武氏並びに放射能測定に協力して下さい下さった保健物理部線量計測課備後一義副主任研究員、同間辺巖研究員にそれぞれ感謝の意を表わす。

参 考 文 献

- 1) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: JAERI-M 7642 (1978).
- 2) 会川英明, 古平 登: JAERI-memo 3218 (公開) (1968).
- 3) 土壤物理性測定法委員会編: "土壤物性測定法" p47, 養賢堂版 (1975).
- 4) 八幡敏雄: "土壤の物理" p18, 東京大学出版会 (1975).
- 5) Y. Inoue and S. Morisawa: Health Phys., 26, 53 (1974).
- 6) R.K. Schulz: "Soil chemistry of radionuclides", Health Phys., 11, 1317 (1965).
- 7) S.W. Mayer and E.R. Tompkins: J. Am. Chem. Soc., 69, 2866 (1947).
- 8) M. Pourbix: "Atlas of electrochemical equilibria in aqueous solutions", Pergamon press (1966).
- 9) G.K. Schweitzer, W.M. Jackson: J. Am. Chem. Soc., 76, 941 (1954).
- 10) D.W. Rhodes: Soil Sci. Soc. Proc., 21, 389 (1957).
- 11) 筒井天尊, 西牧研壯: 保健物理, 10, 79 (1975).
- 12) 筒井天尊, 西牧研壯: 保健物理, 10, 203 (1975).
- 13) Harvin L. Granstrom, Bernd Kahn: J. Phys. Chem., 59, 408 (1955).
- 14) 日本粘土学会編: "粘土ハンドブック", p101, 技報堂 (1966).
- 15) Y. Inoue, W. J. Kaufmorn: Health Phys., 9, 705 (1963).
- 16) 井上頼輝, 森沢真輔: 日本原子力学会誌, 14, 522 (1972).
- 17) I. E. Starik 著, 石渡良志, 他訳: "放射化学の基礎", p112, 南江堂 (1962).
- 18) 加藤正平, 他: 日本原子力学会誌, 20, 42 (1978).

Table 1 Chemical composition of sand ²⁾

Chemical Composition	Weight percent
SiO ₂	63.00
TiO ₂	0.87
Al ₂ O ₃	8.50
FeO	3.30
Fe ₂ O ₃	3.53
MnO	0.13
MgO	2.45
CaO	4.13
Na ₂ O	6.21
K ₂ O	5.41
H ₂ O	2.04
Total	99.58

Table 3 The pH of radioactive aqueous solution in the experiment.

Initial pH	Final pH
3.0	5.8
7.0	6.0
12.0	6.8

Table 2 Influences of pH and effluent volume on the distribution coefficients (kd').

Radionuclides	pH	Distribution coefficients (kd')			
		0.5	1.0	2.0	4.0
⁶⁰ Co	3.0	6.4 x 10 ³	2.2 x 10 ³	1.1 x 10 ⁴	7.2 x 10 ⁴
	7.0	4.0 x 10 ¹	2.1 x 10 ²	1.1 x 10 ¹	—
	12.0	2.5 x 10 ¹	9.3 x 10 ⁰	6.4 x 10 ⁰	4.7 x 10 ⁰
¹³⁷ Cs	3.0	>8.3 x 10 ⁴ *	>1.7 x 10 ⁵ *	>3.4 x 10 ⁵ *	>6.8 x 10 ⁵ *
	7.0	>8.3 x 10 ⁴ *	1.2 x 10 ⁴	3.5 x 10 ³	3.3 x 10 ³
	12.0	7.3 x 10 ³	5.3 x 10 ³	5.3 x 10 ³	1.1 x 10 ⁴
⁹⁰ Sr- ⁹⁰ Y	3.0	—	—	>2.0 x 10 ⁶ ** (2.5 x 10 ⁴)	—
	7.0	—	—	4.8 x 10 ² (1.2 x 10 ¹)	—
	12.0	—	—	5.3 x 10 ¹ (2.7 x 10 ⁰)	—

*; Radioactivity of effluent solution is less than limit of detection of radioactive measurement equipment, therefore, these values were calculated from the value of detection limit of 5"φ x 4" NaI (Tl) scintillation counter (1 x 10⁻⁵ μCi/l).

**; These values were calculated from the value of detection limit of Geiger-Müller counter (1 x 10⁻⁶ μCi/ml).

Table 4 Influences of pH and effluent volume on the migration rates of radionuclides.

Radionuclides	pH	Migration rates (cm/day)			
		0.5	1.0	2.0	4.0
^{60}Co	3.0	4.3×10^{-3}	1.3×10^{-2}	2.6×10^{-3}	4.0×10^{-4}
	7.0	7.2×10^{-1}	1.4×10^{-1}	1.4×10^{-1}	—
	12.0	1.2×10^0	3.7×10^0	4.5×10^0	6.2×10^0
^{137}Cs	3.0	$>3.5 \times 10^{-4} *$	$>1.7 \times 10^{-4} *$	$>8.5 \times 10^{-5} *$	$>4.3 \times 10^{-5} *$
	7.0	$>3.5 \times 10^{-4} *$	2.4×10^{-3}	8.3×10^{-3}	8.8×10^{-3}
	12.0	4.0×10^{-3}	5.5×10^{-3}	5.5×10^{-3}	2.6×10^{-3}
$^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$	3.0	—	—	$>1.5 \times 10^{-5} **$ (1.2×10^{-3})	—
	7.0	—	—	6.0×10^{-2} (2.4×10^0)	—
	12.0	—	—	5.5×10^{-1} (1.1×10^1)	—

(*,**; See Table 2.)

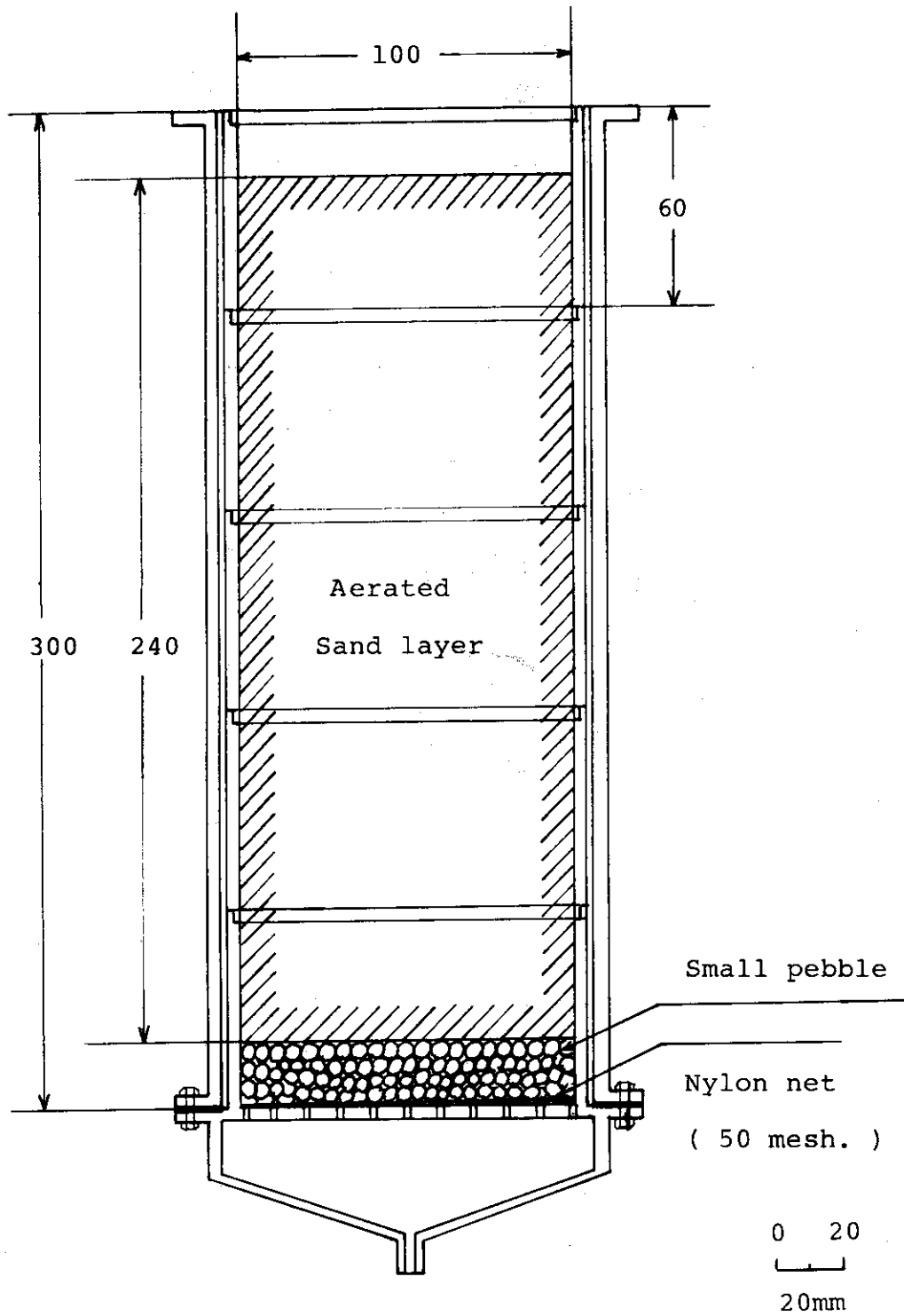


Fig. 1 Sectional scheme of column.

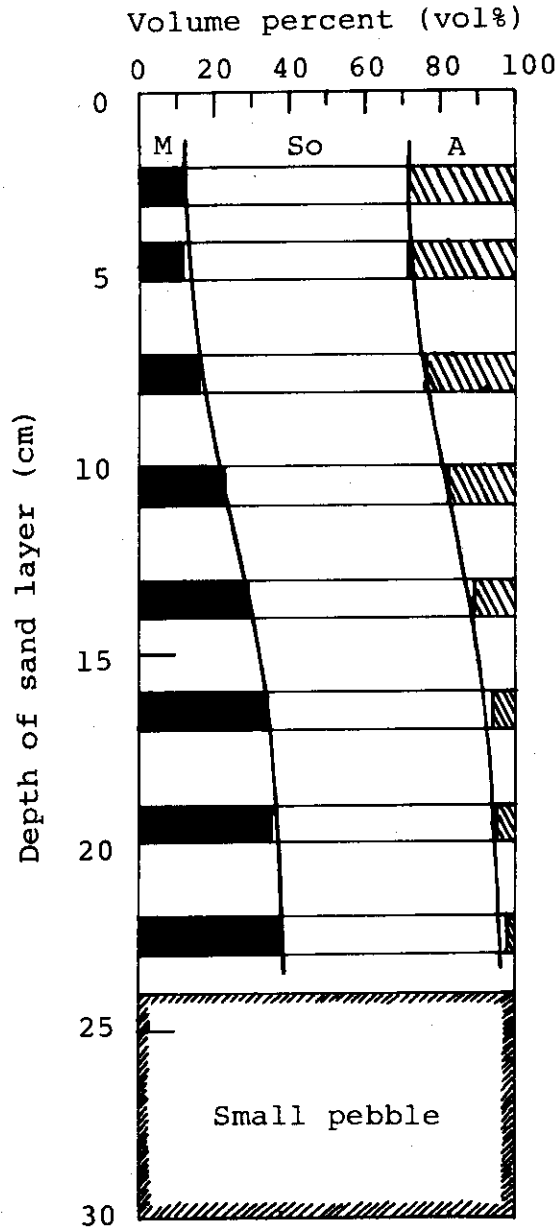


Fig. 2 Water retention ratio and porosity of the sand layer (room temp.).

M: Water retention ratio (vol%).

\bar{M} : Average water retention ratio in the column, $\bar{M} = 24.4$ (vol%).

A: Porosity of stratum (vol%).

\bar{A} : Average porosity of stratum in the column, $\bar{A} = 15.1$ (vol%).

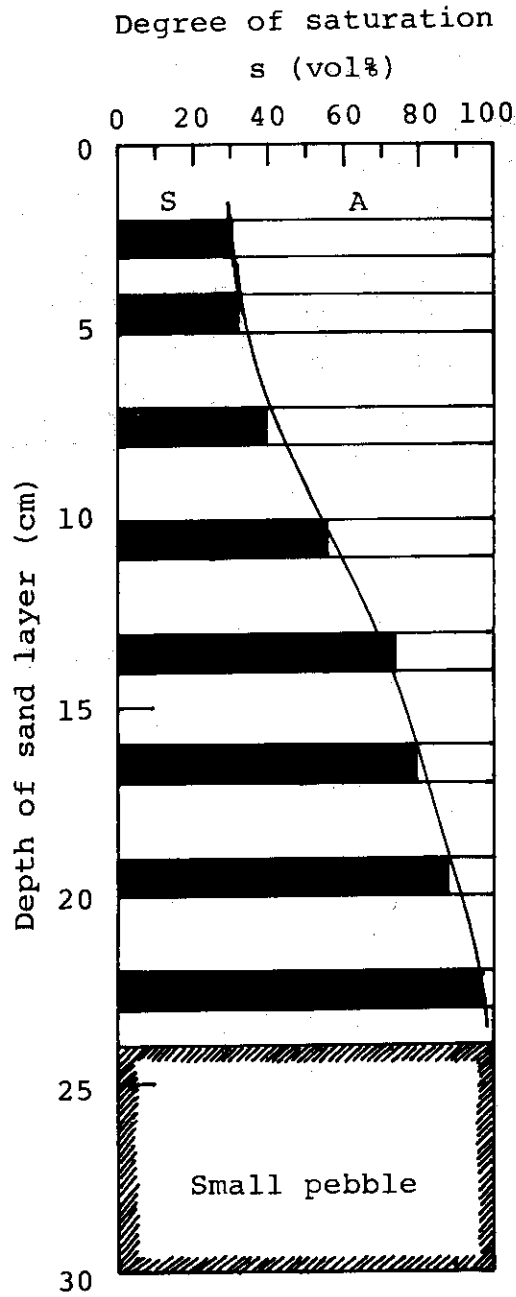


Fig. 3 Porosity and degree of saturation of the sand layer (room temp.).

$$S = (M / A) \times 100$$

S: Degree of saturation (vol%).

\bar{S} : Average degree of saturation in the column, $\bar{S} = 61.9$ (vol%).

M: Water retention ratio (vol%).

A: Porosity of stratum (vol%).

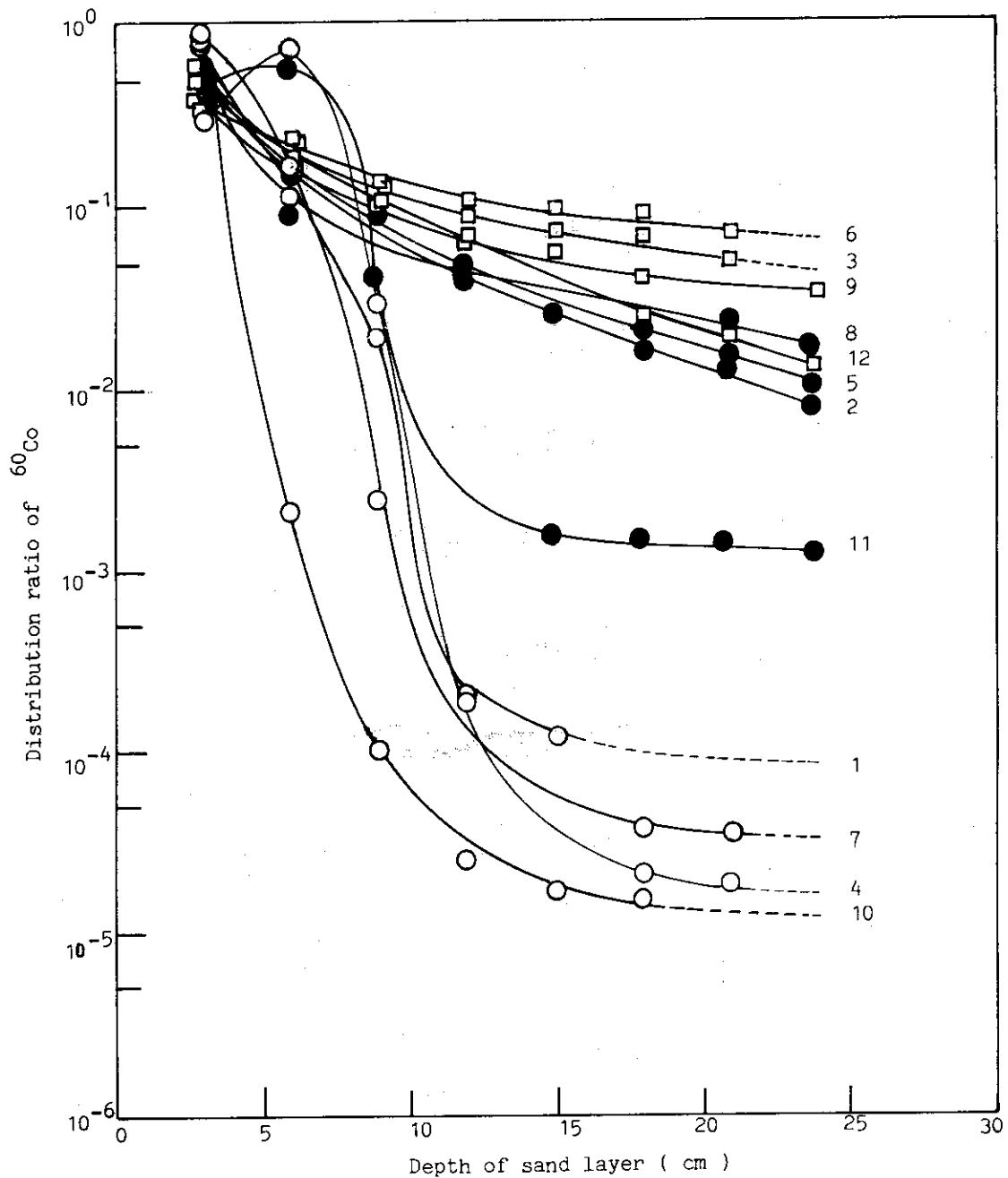


Fig. 4 Distribution ratio of ^{60}Co in the bulk sand layer.

Following to the experimental number and experimental condition.

- 1; (○), 0.5 , Ac , 2; (●), 0.5 , N , 3; (□), 0.5 , Al ,
 4; (○), 1.0 , Ac , 5; (●), 1.0 , N , 6; (□), 1.0 , Al ,
 7; (○), 2.0 , Ac , 8; (●), 2.0 , N , 9; (□), 2.0 , Al ,
 10; (○), 4.0 , Ac , 11; (●), 4.0 , N , 12; (□), 4.0 , Al .
 Ac; Acidic (pH 3), N; Neutral (pH 7), Al; Alkaline (pH 12).

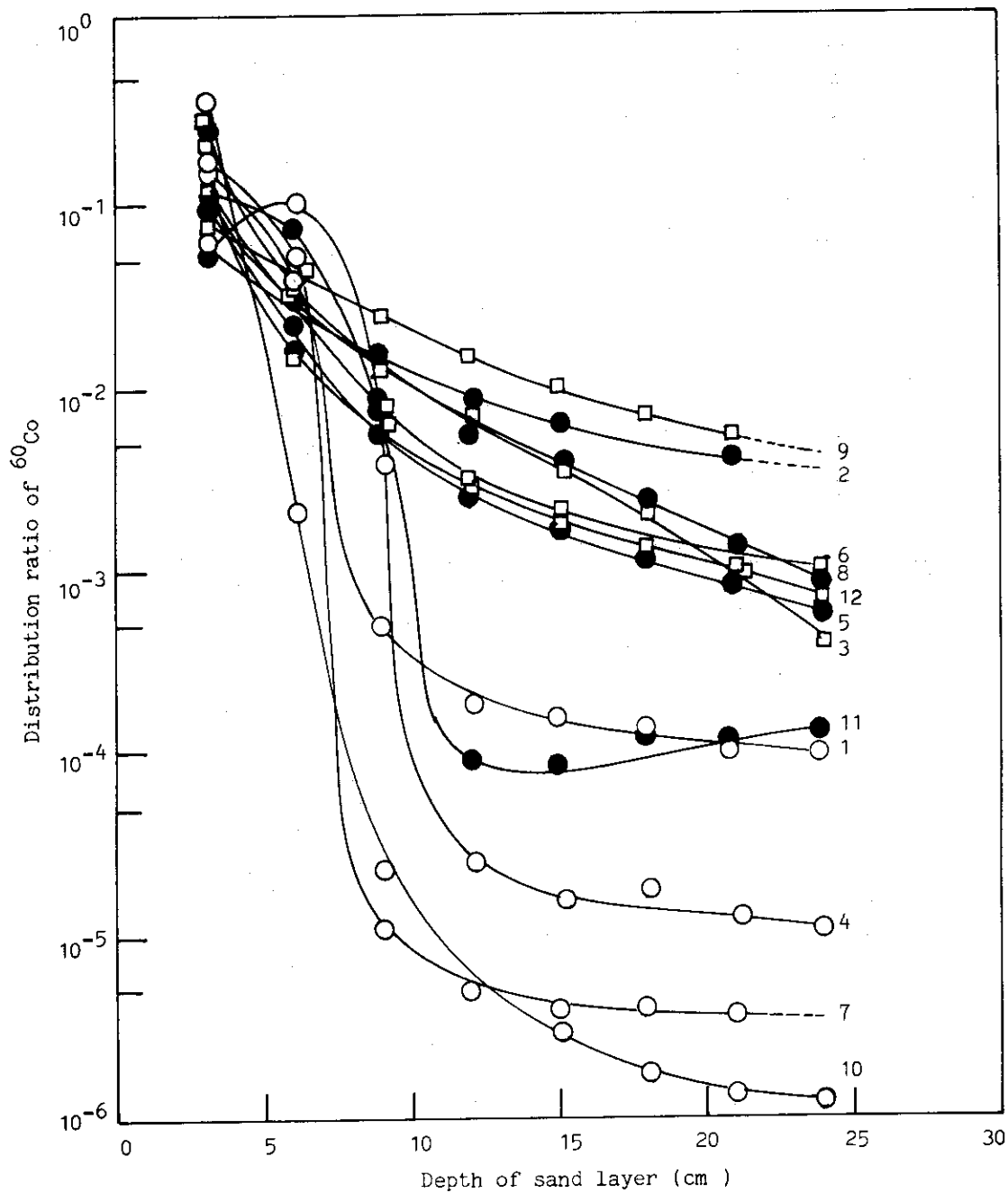


Fig. 5 Distribution ratio of ⁶⁰Co in the center of the sand layer.

Following to the experimental number and experimental condition.

- 1; (○), 0.5 , Ac , 2; (●), 0.5 , N , 3; (□), 0.5 , Al ,
 4; (○), 1.0 , Ac , 5; (●), 1.0 , N , 6; (□), 1.0 , Al ,
 7; (○), 2.0 , Ac , 8; (●), 2.0 , N , 9; (□), 2.0 , Al ,
 10; (○), 4.0 , Ac , 11; (●), 4.0 , N , 12; (□), 4.0 , Al .
 Ac; Acidic (pH 3) , N; Neutral (pH 7) , Al; Alkaline (pH 12).

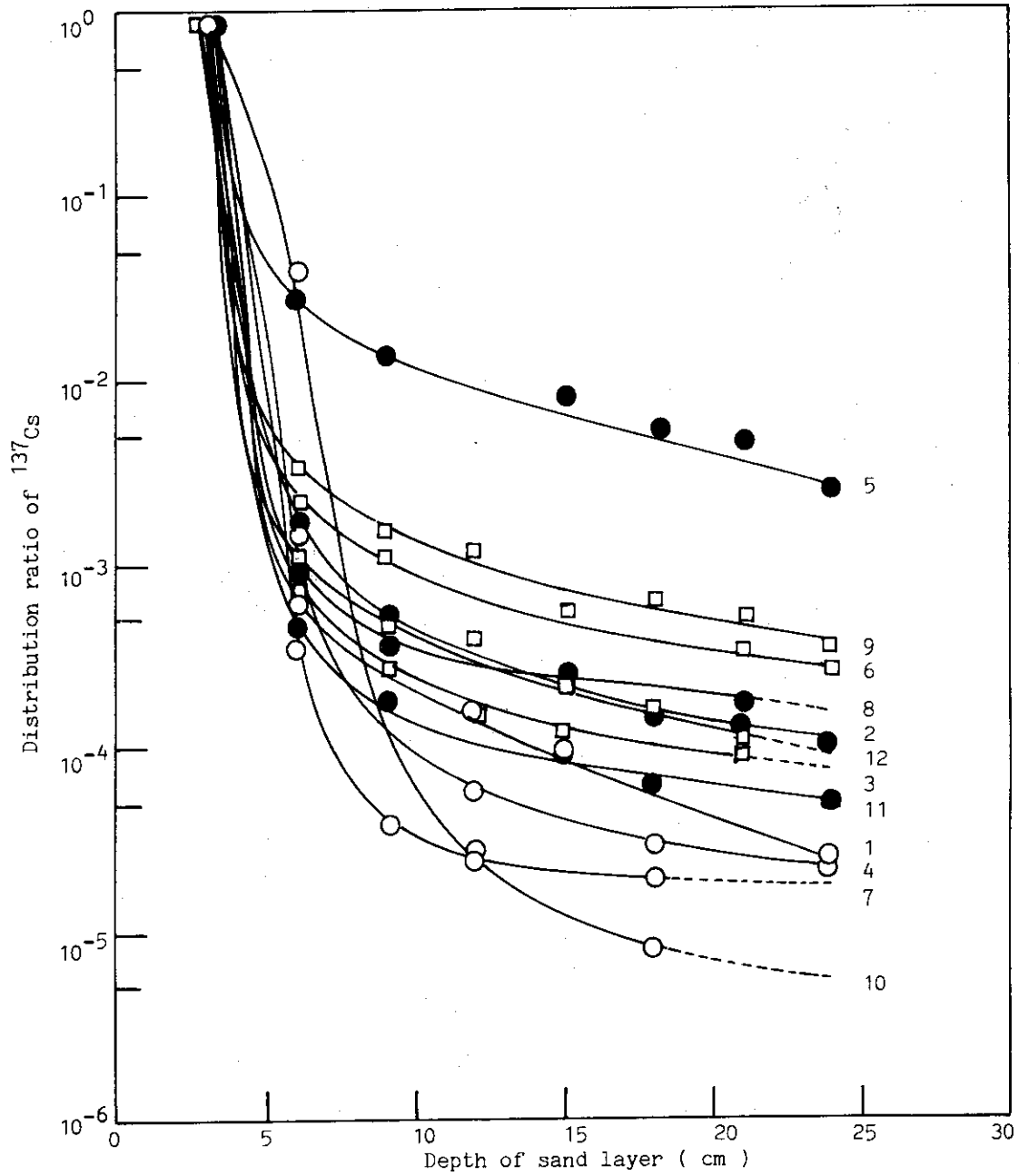


Fig. 6 Distribution ratio of ^{137}Cs in the bulk sand layer.

Following to the experimental number and experimental condition.

- 1; (○), 0.5 , Ac , 2; (●), 0.5 , N , 3; (□), 0.5 , Al ,
 4; (○), 1.0 , Ac , 5; (●), 1.0 , N , 6; (□), 1.0 , Al ,
 7; (○), 2.0 , Ac , 8; (●), 2.0 , N , 9; (□), 2.0 , Al ,
 10; (○), 4.0 , Ac , 11; (●), 4.0 , N , 12; (□), 4.0 , Al .
 Ac; Acidic (pH 3), N; Neutral (pH 7), Al; Alkaline (pH 12).

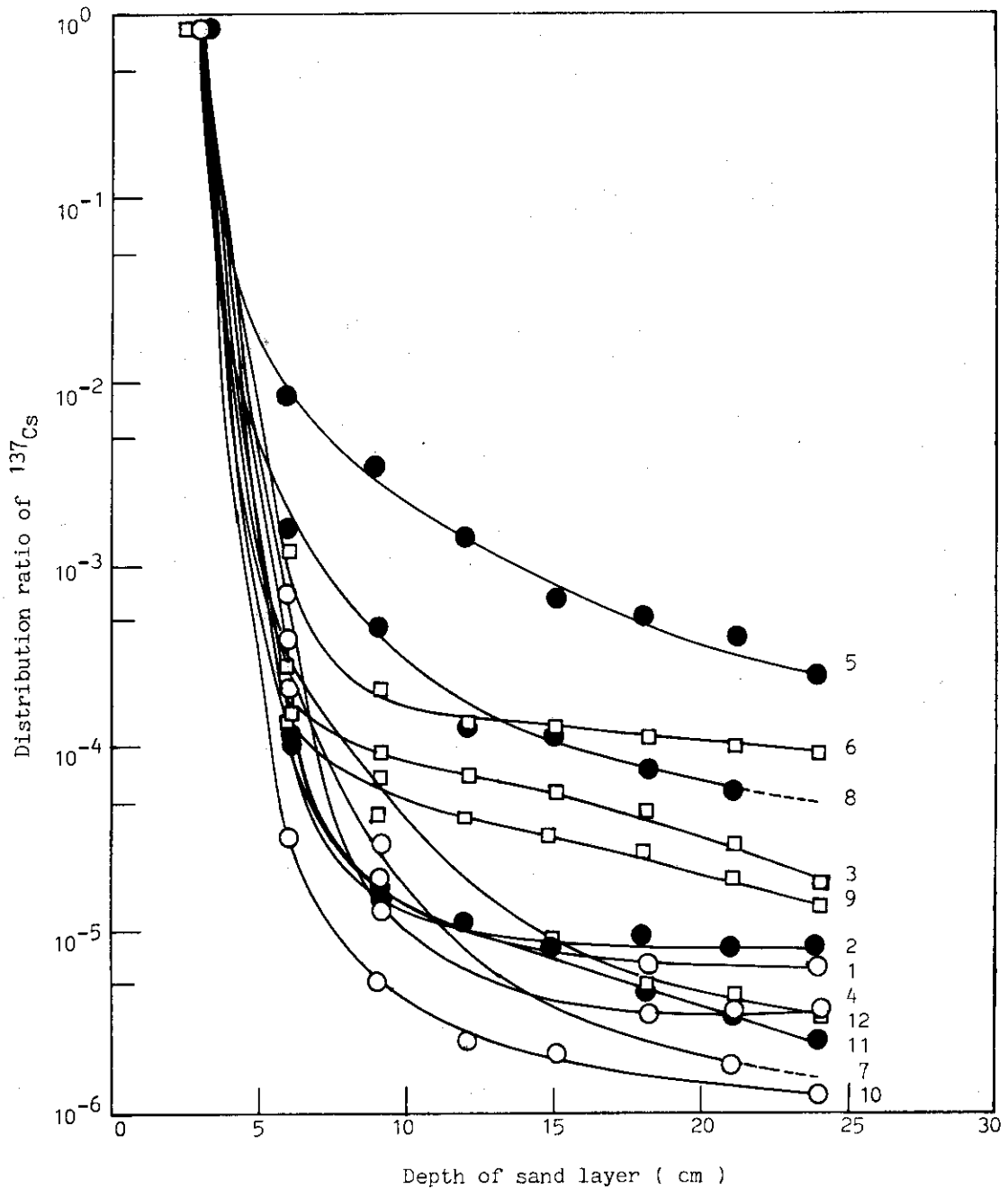


Fig. 7 Distribution ratio of ^{137}Cs in the center of the sand layer.
Following to the experimental number and experimental condition.

- 1; (○), 0.5 , Ac , 2; (●), 0.5 , N , 3; (□), 0.5 , Al ;
 4; (○), 1.0 , Ac , 5; (●), 1.0 , N , 6; (□), 1.0 , Al ,
 7; (○), 2.0 , Ac , 8; (●), 2.0 , N , 9; (□), 2.0 , Al ,
 10; (○), 4.0 , Ac , 11; (●), 4.0 , N , 12; (□), 4.0 , Al .
 Ac; Acidic (pH 3), N; (pH 7), Al; Alkaline (pH 12).

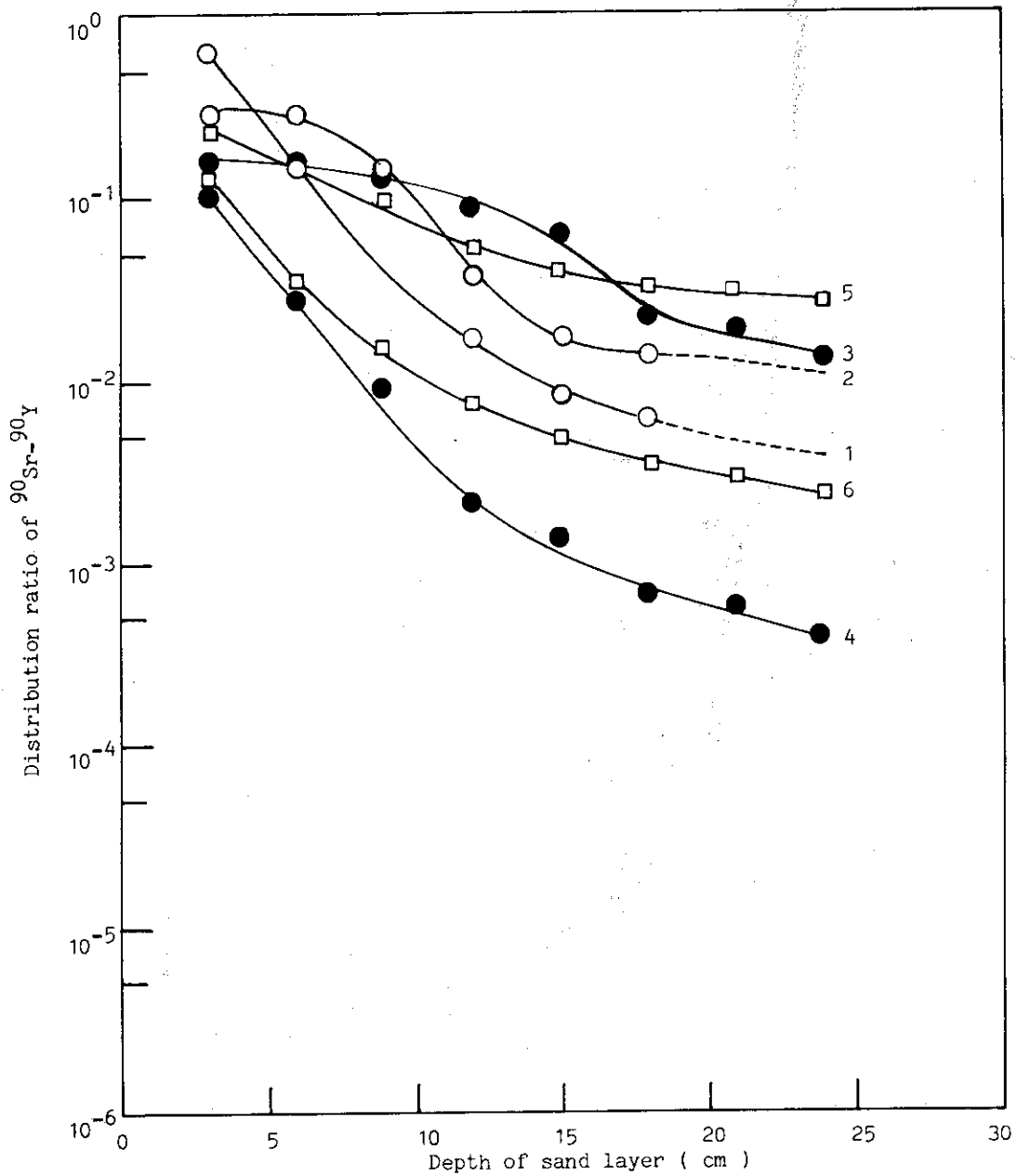


Fig. 8 Distribution ratio of ^{90}Sr - ^{90}Y in the bulk sand layer.

Following to the experimental number and experimental condition.

- 1; (○), Acidic, *, 2; (○), Acidic, **,
 3; (●), Neutral, *, 4; (●), Neutral, **,
 5; (□), Alkaline, *, 6; (□), Alkaline, **.

* before radioactive equilibrium

** after radioactive equilibrium

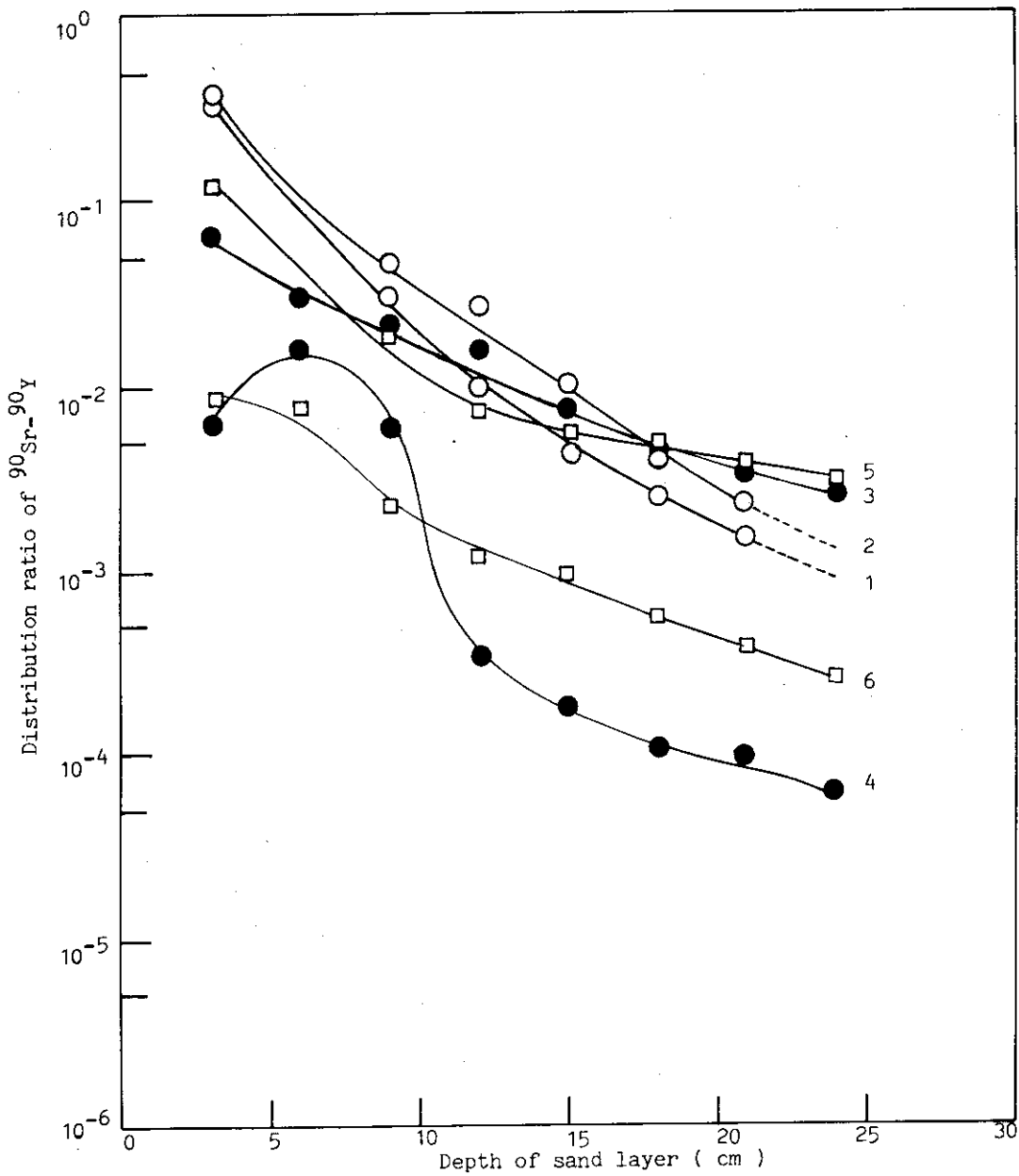


Fig. 9 Distribution ratio of $^{90}\text{Sr}-^{90}\text{Y}$ in the center of the sand layer.

Following to the experimental number and experimental condition.

- 1; (○), Acidic , * , 2; (○), Acidic , ** ,
 3; (●), Neutral , * , 4; (●), Neutral , ** ,
 5; (□), Alkaline, * , 6; (□), Alkaline, ** .

* before radioactive equilibrium

** after radioactive equilibrium