

JAERI-M  
88-038

浅地層土壤と合成地下水系における  
プルトニウムの分配係数の測定

1988年2月

妹尾 宗明・白橋 浩一・坂本 義昭  
小西 正郎\*・森山 昇

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城  
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1988

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 山田軽印刷所

浅地層土壤と合成地下水系におけるプルトニウムの分配係数の測定

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

妹尾 宗明・白橋 浩一・坂本 義昭

小西 正郎\*・森山 昇

(1988年1月29日受理)

低レベル放射性廃棄物の浅地層処分の安全性評価に用いるデータの妥当性検討の一環として青森県上北郡六ヶ所村で採取したローム、中砂、凝灰岩風化部及びモルタル成分について、合成地下水との間のプルトニウムの分配係数をバッチ法で測定した。また、モルタル成分からのプルトニウムの溶出挙動を調べるため、モルタル成分と中砂を用いたカラム試験を行い、プルトニウムの溶出量の測定を行った。

その結果、ローム、中砂、凝灰岩風化部については、地下水との分配係数は、 $10^3$  ml/g のオーダーであり、モルタル成分については、 $10^4$  ml/g のオーダーであった。

また、溶出性に関する実験では、プルトニウムの溶出はほとんど見られなかった。この結果は、バッチ法によるモルタル成分の分配係数、 $10^4$  ml/g から予想される結果と一致した。

The Measurement of Distribution Coefficients of Plutonium  
between Subsurface Soils and Simulated Groundwater

Muneaki SENOO, Koichi SHIRAHASHI, Yoshiaki SAKAMOTO  
Masao KONISHI\* and Noboru MORIYAMA

Department of Environmental Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 29, 1988)

Distribution coefficients of plutonium were measured by batch method between simulated groundwater and mortar or subsurface soils (loam, medium sand, weathered tuff) which were sampled at ROKKASHO-MURA KAMIKITA-GUN AOMORI Pref. in order to evaluate whether the data are reasonable or not which are to be used for safety assessment of shallow-land disposal of low level radioactive wastes. Column experiment was also carried out to investigate the releasing behavior of plutonium from plutonium adsorbed mortar into groundwater.

The results obtained from batch experiment showed that the distribution coefficients were of the order of  $10^3$  ml/g for loam, medium sand and weathered tuff and of  $10^4$  ml/g for mortar. Plutonium released from the mortar was scarcely detected. This result is in good accord with expectations based on the measured distribution coefficient of  $10^4$  ml/g for mortar by batch method.

Keywords: Subsurface Soil, Loam, Medium Sand, Tuff, Mortar, Distribution Coefficient, Batch Method, Column Method, Plutonium, Site-specific Data

---

\* On leave from OKUMURA Corp.

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実 験 .....	1
2.1 対象とした土壌及びモルタル成分 .....	1
2.2 測定方法 .....	1
3. 結果及び考察 .....	2
4. 結 論 .....	3
謝 辞 .....	4
引用文献 .....	4

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimentals .....	1
2.1 Materials .....	1
2.2 Measurement Method .....	1
3. Results and Discussion .....	2
4. Conclusion .....	3
Acknowledgement .....	4
References .....	4

## 1. はじめに

プルトニウム等のTRU核種を含む廃棄物に主に再処理工程及びMOX燃料製造工程から発生するが、原子炉の運転にともなう廃棄物（いわゆる低レベル廃棄物）中にも、燃料製造工程で燃料ピンの表面に付着したウラン等を起源とするTRU核種がわずかに含まれており、このため、低レベル放射性廃棄物の処分の安全性評価においてもプルトニウム等を含めて評価する必要がある。また、低レベル放射性廃棄物の浅地層処分の安全性評価に際しては、核種の地層中での移行挙動の評価を行うため、処分場の土壌等による放射性核種の吸着・脱着挙動に関するデータが重要である。

本研究においては、低レベル放射性廃棄物処理場予定地におけるサイト固有の移行挙動に関するデータを求めることを目的として、青森県上北郡六ヶ所村で採取した土壌、及び付近の砂を細骨材としたモルタル成分と同地における地下水を模擬した合成地下水との間のプルトニウムの分配係数の測定を行った。また、コンクリートからのプルトニウムの脱着挙動を調べる試験方法の予備的検討として、プルトニウムを吸着させたモルタル成分と砂を用いてカラムを作成し、合成地下水を流して、モルタル成分からのプルトニウムの溶出性を調べた。

## 2. 実 験

### 2.1 対象とした土壌及びモルタル成分

土壌には、六ヶ所村処分場予定地内の通気層より採取したローム（深さ1～1.5 m）、中砂（同2.6～3 m）及び凝灰岩風化部（同3～3.2 m）を分配係数測定対象とし、ふるい分けにより500  $\mu\text{m}$ 以下のものを測定試料とした。

また、モルタル成分については円柱状コンクリート供試体を粗砕し、このうちから粗骨材を取り除きモルタル成分のみを取り出してふるい分けにより105  $\mu\text{m}$ ～250  $\mu\text{m}$ に調整したものを試料として用いた。コンクリート供試体の使用材料及び配合表をTable 1に示す。

また、使用した合成地下水の組成をTable 2に示す（但し、プルトニウムの原液は10 N硝酸であり、pH調整のための10 NのNaOHを使用したため実験に使用した溶液のイオン強度は約0.4である）。

### 2.2 測定方法

上記のローム、中砂及び凝灰岩風化部1 gをガラス製の栓付き遠心沈澱管に取り、これにpH 7に調整した0.02  $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ のPu( $10^{-6}\text{M}$ )を含む合成地下水10 mlを加えて、水温30°Cに

## 1. はじめに

プルトニウム等の TRU 核種を含む廃棄物に主に再処理工程及び MOX 燃料製造工程から発生するが、原子炉の運転にともなう廃棄物（いわゆる低レベル廃棄物）中にも、燃料製造工程で燃料ピンの表面に付着したウラン等を起源とする TRU 核種がわずかに含まれており、このため、低レベル放射性廃棄物の処分の安全性評価においてもプルトニウム等を含めて評価する必要がある。また、低レベル放射性廃棄物の浅地層処分の安全性評価に際しては、核種の地層中での移行挙動の評価を行うため、処分場の土壌等による放射性核種の吸着・脱着挙動に関するデータが重要である。

本研究においては、低レベル放射性廃棄物処理場予定地におけるサイト固有の移行挙動に関するデータを求めることを目的として、青森県上北郡六ヶ所村で採取した土壌、及び付近の砂を細骨材としたモルタル成分と同地における地下水を模擬した合成地下水との間のプルトニウムの分配係数の測定を行った。また、コンクリートからのプルトニウムの脱着挙動を調べる試験方法の予備的検討として、プルトニウムを吸着させたモルタル成分と砂を用いてカラムを作成し、合成地下水を流して、モルタル成分からのプルトニウムの溶出性を調べた。

## 2. 実 験

### 2.1 対象とした土壌及びモルタル成分

土壌には、六ヶ所村処分場予定地内の通気層より採取したローム（深さ 1～1.5 m）、中砂（同 2.6～3 m）及び凝灰岩風化部（同 3～3.2 m）を分配係数測定対象とし、ふるい分けにより 500  $\mu\text{m}$  以下のものを測定試料とした。

また、モルタル成分については円柱状コンクリート供試体を粗砕し、このうちから粗骨材を取り除きモルタル成分のみを取り出してふるい分けにより 105  $\mu\text{m}$ ～250  $\mu\text{m}$  に調整したものを試料として用いた。コンクリート供試体の使用材料及び配合表を Table 1 に示す。

また、使用した合成地下水の組成を Table 2 に示す（但し、プルトニウムの原液は 10 N 硝酸であり、pH 調整のための 10 N の NaOH を使用したため実験に使用した溶液のイオン強度は約 0.4 である）。

### 2.2 測定方法

上記のローム、中砂及び凝灰岩風化部 1 g をガラス製の栓付き遠心沈澱管に取り、これに pH 7 に調整した 0.02  $\mu\text{Ci/ml}$  の Pu ( $10^{-6}\text{M}$ ) を含む合成地下水 10 ml を加えて、水温 30°C に

保った恒温水槽中で所定時間連続振とうした。

上記遠心沈澱管を1週間後及び3週間後に恒温水槽より取り出し、遠心分離により固液分離を行い、上澄み液の放射能濃度を測定した。また、3週間後の試料の測定においては、壁面に吸着したプルトニウム量を評価するため10 N硝酸10 mlで遠心沈澱管を洗浄し、その溶液中の放射能も併せて測定した。遠心分離条件は約3,000 G、30分とした。放射能の測定は、Aloka製 $2\pi$ ガスフローカウンターを用いた。

また、プルトニウムの加水分解による沈澱物の量を測定し、分配係数算出の妥当性を検討するため、ブランク試料として、プルトニウムを添加しpH8及び11に調整した合成地下水のみを入れた遠心沈澱管を同様に恒温水槽中で振とうし、遠心分離前後の水溶液の放射能濃度及び10 N硝酸による壁面洗浄液の濃度を測定した。

カラム法によるモルタル成分からのプルトニウムの溶出挙動に関する実験では、あらかじめプルトニウムを吸着させたモルタル成分5 gを上記と同様の方法で作成し、これに洗浄した中砂20 gを加えて均一に混合し、Fig. 1に示すカラムに充填して測定用カラムとした。このようなカラムを2本用意し、Table 2に示す合成地下水をそれぞれ1 ml/h及び10 ml/hで流し、流出液を一定時間毎に採取し、そのpH及び放射能濃度を測定した。

### 3. 結果及び考察

バッチ法による1週間後、2週間後および3週間後の測定結果をTable 3に示す。また、ブランク試料の測定結果をTable 4およびFig. 2に示す。ここで、 $C_0$ は初期放射能濃度、 $C$ は壁面上、液相中あるいは沈澱中の放射能濃度を表す。Fig. 2(a)から中性～アルカリ領域でガラス容器への吸着量が多いこと及びpHの増加にともない遠心分離により溶液から分離される沈澱物量が増加することが分った。

一方、ポリプロピレン容器では、pHの増加にともない沈澱物量は増加するが、容器壁への吸着量は減少することが分った。

イオン強度の高い系においては、プルトニウムは酸性～中性領域で吸着量が増加し、中性～アルカリ領域で急激に遠心沈澱物が増加することや<sup>1)</sup>、アニオンの作用により酸性領域でもかなりの量のプルトニウムが遠心沈澱物として生じることが報告されている<sup>2)</sup>。

これらのことから、本実験で用いたガラス容器系内でも、加水分解反応により生じたプルトニウムのヒドロキソ錯体 ( $\text{Pu}(\text{OH})_3^-$  など)の容器壁面やコロイド状不純物への吸着あるいは重合体が生じた結果、遠心沈澱物を生じたものと推測される。またFig. 3に、Table 3及びTable 4の結果から求めたガラス容器の単位表面積当りのプルトニウムの吸着量と平衡に存在する溶液中のプルトニウム濃度の比 ( $K_d(s)$ )を示す。但し、 $K_d(s)$ は次式により求めた。

$$K_d(s) = \frac{\text{容器の単位表面積当りのPu量}}{\text{溶液中のPu濃度}} \quad (\text{ml} / \text{cm}^2)$$



保った恒温水槽中で所定時間連続振とうした。

上記遠心沈澱管を1週間後及び3週間後に恒温水槽より取り出し、遠心分離により固液分離を行い、上澄み液の放射能濃度を測定した。また、3週間後の試料の測定においては、壁面に吸着したプルトニウム量を評価するため10 N硝酸10 mlで遠心沈澱管を洗浄し、その溶液中の放射能も併せて測定した。遠心分離条件は約3,000 G、30分とした。放射能の測定は、Aloka製 $2\pi$ ガスフローカウンターを用いた。

また、プルトニウムの加水分解による沈澱物の量を測定し、分配係数算出の妥当性を検討するため、ブランク試料として、プルトニウムを添加しpH8及び11に調整した合成地下水のみを入れた遠心沈澱管を同様に恒温水槽中で振とうし、遠心分離前後の水溶液の放射能濃度及び10 N硝酸による壁面洗浄液の濃度を測定した。

カラム法によるモルタル成分からのプルトニウムの溶出挙動に関する実験では、あらかじめプルトニウムを吸着させたモルタル成分5 gを上記と同様の方法で作成し、これに洗浄した中砂20 gを加えて均一に混合し、Fig. 1に示すカラムに充填して測定用カラムとした。このようなカラムを2本用意し、Table 2に示す合成地下水をそれぞれ1 ml/h及び10 ml/hで流し、流出液を一定時間毎に採取し、そのpH及び放射能濃度を測定した。

### 3. 結果及び考察

バッチ法による1週間後、2週間後および3週間後の測定結果をTable 3に示す。また、ブランク試料の測定結果をTable 4およびFig. 2に示す。ここで、 $C_0$ は初期放射能濃度、 $C$ は壁面上、液相中あるいは沈澱中の放射能濃度を表す。Fig. 2(a)から中性～アルカリ領域でガラス容器への吸着量が多いこと及びpHの増加にともない遠心分離により溶液から分離される沈澱物量が増加することが分った。

一方、ポリプロピレン容器では、pHの増加にともない沈澱物量は増加するが、容器壁への吸着量は減少することが分った。

イオン強度の高い系においては、プルトニウムは酸性～中性領域で吸着量が増加し、中性～アルカリ領域で急激に遠心沈澱物が増加することや<sup>1)</sup>、アニオンの作用により酸性領域でもかなりの量のプルトニウムが遠心沈澱物として生じることが報告されている<sup>2)</sup>。

これらのことから、本実験で用いたガラス容器系内でも、加水分解反応により生じたプルトニウムのヒドロキソ錯体 ( $\text{Pu}(\text{OH})_3^-$  など)の容器壁面やコロイド状不純物への吸着あるいは重合体が生じた結果、遠心沈澱物を生じたものと推測される。またFig. 3に、Table 3及びTable 4の結果から求めたガラス容器の単位表面積当りのプルトニウムの吸着量と平衡に存在する溶液中のプルトニウム濃度の比 ( $K_d(s)$ )を示す。但し、 $K_d(s)$ は次式により求めた。

$$K_d(s) = \frac{\text{容器の単位表面積当りのPu量}}{\text{溶液中のPu濃度}} \quad (\text{ml} / \text{cm}^2)$$

Fig. 3から、pH 7以上の範囲においては、pHの増加と共に、ガラス容器壁面への分配係数が増大している。

ガラス表面はpH 3以上の溶液中でマイナス電荷を帯びていることが知られているが<sup>3)</sup>、ポリプロピレン表面では電荷は生じていないものと考えられる。Fig. 2(a), (b)の壁面吸着量の差は、この表面状態の違いによるものと推測される。すなわち、ガラス壁面に付着したプルトニウムはプラスの電荷を有するものと考えられる。しかし、Kimら<sup>4)</sup>によれば、低炭酸イオン濃度の場合、プルトニウムの主要な化学形は加水分解の結果pHの増加とともに $\text{Pu}(\text{OH})_2^{2+}$ 、 $\text{Pu}(\text{OH})_3^+$ 、 $\text{Pu}(\text{OH})_4^0$ と進みpH 7以上では、 $\text{Pu}(\text{OH})_5^-$ が主として溶液中に存在することを報告している。このことから、pHの増加にともないガラス壁面への付着が減少することが予測されるが、本実験で得られた結果と一致しておらず今後、アルカリ側における存在形とその吸着挙動等について検討する必要がある。

分配係数の算出に当たっては、これらの影響の考慮が必要であり、壁面への吸着量は、遠心沈澱管を硝酸で洗浄した液の放射能濃度から求め、これを用いて補正を行った。しかし、沈澱等による溶液中のプルトニウムの固相への移行については、土壤等の試料を入れた系での沈澱物の挙動が不明なため分配係数算出に当たっての補正を行っていない。従って、Table 3における分配係数は、いわば見かけの分配係数である（溶液の濃度変化分は容器への吸着を除き、すべて土壤等に吸着されたものとして算出した）。

これらの値は、ローム、中砂、凝灰岩風化部とも、ほぼ $10^3 \text{ ml/g}$ という値を示した。

カラム法によるモルタル成分からの脱着挙動の測定結果をFig. 4に示す。1ml/h及び10ml/hで合成地下水を流出させた両者の結果とも、初期においてカラム中の微粒子の流出に起因するものと思われるわずかな放射能の増加がみられるものの、1週間の流出期間を通してプルトニウムの流出はほとんど観察されなかった。また流出液中のpHは初期12.2から1ml/hカラム及び10ml/hカラムについて、1週間後にはそれぞれ12.0及び11.2まで変化した。

バッチ試験の結果から、これらのpH範囲では溶液と中砂あるいはモルタル成分との間のプルトニウムの分配係数は $10^4 \text{ ml/g}$ 程度である。本実験において合理的に放出係数が測定できる程度のプルトニウムの流出が見られなかった理由は、中砂—モルタル成分系の十分な吸着保持能力によるものと言える。

長期に亘り処分場に存在したモルタル成分については、炭酸ガス等による中性化が進行しpHの低下とともにその性質も変化することから、プルトニウムの分配係数に影響を及ぼすことが予測される。そのため、今後、モルタル成分の中性化の加速試験等が必要である。

## 4. 結 論

青森県上北郡六ヶ所村で採取したローム、中砂、凝灰岩風化部及びモルタル成分について、プルトニウムの合成地下水との分配係数をバッチ法で測定すると共に、カラム法による放出係数測定に関する予備的検討を行った。

Fig. 3から、pH 7以上の範囲においては、pHの増加と共に、ガラス容器壁面への分配係数が増大している。

ガラス表面はpH 3以上の溶液中でマイナス電荷を帯びていることが知られているが<sup>3)</sup>、ポリプロピレン表面では電荷は生じていないものと考えられる。Fig. 2(a), (b)の壁面吸着量の差は、この表面状態の違いによるものと推測される。すなわち、ガラス壁面に付着したプルトニウムはプラスの電荷を有するものと考えられる。しかし、Kimら<sup>4)</sup>によれば、低炭酸イオン濃度の場合、プルトニウムの主要な化学形は加水分解の結果pHの増加とともに $\text{Pu}(\text{OH})_2^{2+}$ 、 $\text{Pu}(\text{OH})_3^+$ 、 $\text{Pu}(\text{OH})_4^0$ と進みpH 7以上では、 $\text{Pu}(\text{OH})_5^-$ が主として溶液中に存在することを報告している。このことから、pHの増加にともないガラス壁面への付着が減少することが予測されるが、本実験で得られた結果と一致しておらず今後、アルカリ側における存在形とその吸着挙動等について検討する必要がある。

分配係数の算出に当たっては、これらの影響の考慮が必要であり、壁面への吸着量は、遠心沈澱管を硝酸で洗浄した液の放射能濃度から求め、これを用いて補正を行った。しかし、沈澱等による溶液中のプルトニウムの固相への移行については、土壤等の試料を入れた系での沈澱物の挙動が不明なため分配係数算出に当たっての補正を行っていない。従って、Table 3における分配係数は、いわば見かけの分配係数である（溶液の濃度変化分は容器への吸着を除き、すべて土壤等に吸着されたものとして算出した）。

これらの値は、ローム、中砂、凝灰岩風化部とも、ほぼ $10^3 \text{ ml/g}$ という値を示した。

カラム法によるモルタル成分からの脱着挙動の測定結果をFig. 4に示す。1ml/h及び10ml/hで合成地下水を流出させた両者の結果とも、初期においてカラム中の微粒子の流出に起因するものと思われるわずかな放射能の増加がみられるものの、1週間の流出期間を通してプルトニウムの流出はほとんど観察されなかった。また流出液中のpHは初期12.2から1ml/hカラム及び10ml/hカラムについて、1週間後にはそれぞれ12.0及び11.2まで変化した。

バッチ試験の結果から、これらのpH範囲では溶液と中砂あるいはモルタル成分との間のプルトニウムの分配係数は $10^4 \text{ ml/g}$ 程度である。本実験において合理的に放出係数が測定できる程度のプルトニウムの流出が見られなかった理由は、中砂—モルタル成分系の十分な吸着保持能力によるものと言える。

長期に亘り処分場に存在したモルタル成分については、炭酸ガス等による中性化が進行しpHの低下とともにその性質も変化することから、プルトニウムの分配係数に影響を及ぼすことが予測される。そのため、今後、モルタル成分の中性化の加速試験等が必要である。

## 4. 結 論

青森県上北郡六ヶ所村で採取したローム、中砂、凝灰岩風化部及びモルタル成分について、プルトニウムの合成地下水との分配係数をバッチ法で測定すると共に、カラム法による放出係数測定に関する予備的検討を行った。

その結果、ローム、中砂、及び凝灰岩風化部については、合成地下水と3週間接触させた後のpHは5.0から6.3のほぼ中性領域にあり、それらの系における分配係数は、いずれも $10^3$  ml/gのオーダーであった。また、モルタル成分については、pHは12.3となり、分配係数は $10^4$  ml/gのオーダーであった。

モルタル成分からのプルトニウムの放出係数を調べるために行ったモルタル成分と中砂を用いたカラム試験の結果、本実験条件では、プルトニウムの溶出はほとんど認められなかった。

## 謝 辞

ローム、中砂及び凝灰岩風化部の試料については、環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室から提供を受けた環境シミュレーション試験用土壌試料の一部を使用した。謝意を表します。

## 引 用 文 献

- 1) Olofsson U., et al.: "Formation and properties of actinide colloids", KBS-TR 83-08, 20 (1983).
- 2) Weigel F., et al.: "Plutonium" in "The Chemistry of the Actinide Elements", Katz J. J., et al. eds., Chapman and Hall, London, Vol. 1, 790 (1986).
- 3) 例えば、ユー・ベー・ダビドフ著、阪上正信、市川富士男共訳、"溶液中の放射性核種の存在状態", 現代工学社, 87 (1985).
- 4) Kim J. I., et al.: "Complexation of the Plutonium (IV) Ion in Carbonate-Bicarbonate Solutions", in "Plutonium Chemistry", Carnell W. T., et al. eds., ACS Symp. Series No. 216, 317 (1983).

その結果、ローム、中砂、及び凝灰岩風化部については、合成地下水と3週間接触させた後のpHは5.0から6.3のほぼ中性領域にあり、それらの系における分配係数は、いずれも $10^3$  ml/gのオーダーであった。また、モルタル成分については、pHは12.3となり、分配係数は $10^4$  ml/gのオーダーであった。

モルタル成分からのプルトニウムの放出係数を調べるために行ったモルタル成分と中砂を用いたカラム試験の結果、本実験条件では、プルトニウムの溶出はほとんど認められなかった。

## 謝 辞

ローム、中砂及び凝灰岩風化部の試料については、環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室から提供を受けた環境シミュレーション試験用土壌試料の一部を使用した。謝意を表します。

## 引 用 文 献

- 1) Olofsson U., et al.: "Formation and properties of actinide colloids", KBS-TR 83-08, 20 (1983).
- 2) Weigel F., et al.: "Plutonium" in "The Chemistry of the Actinide Elements", Katz J. J., et al. eds., Chapman and Hall, London, Vol. 1, 790 (1986).
- 3) 例えば、ユー・ペー・ダビドフ著、阪上正信、市川富士男共訳、"溶液中の放射性核種の存在状態", 現代工学社, 87 (1985).
- 4) Kim J. I., et al.: "Complexation of the Plutonium (IV) Ion in Carbonate-Bicarbonate Solutions", in "Plutonium Chemistry", Carnell W. T., et al. eds., ACS Symp. Series No. 216, 317 (1983).

その結果、ローム、中砂、及び凝灰岩風化部については、合成地下水と3週間接触させた後のpHは5.0から6.3のほぼ中性領域にあり、それらの系における分配係数は、いずれも $10^3$  ml/gのオーダーであった。また、モルタル成分については、pHは12.3となり、分配係数は $10^4$  ml/gのオーダーであった。

モルタル成分からのプルトニウムの放出係数を調べるために行ったモルタル成分と中砂を用いたカラム試験の結果、本実験条件では、プルトニウムの溶出はほとんど認められなかった。

## 謝 辞

ローム、中砂及び凝灰岩風化部の試料については、環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室から提供を受けた環境シミュレーション試験用土壌試料の一部を使用した。謝意を表します。

## 引 用 文 献

- 1) Olofsson U., et al. : "Formation and properties of actinide colloids", KBS-TR 83-08, 20 (1983).
- 2) Weigel F., et al. : "Plutonium" in "The Chemistry of the Actinide Elements"; Katz J. J., et al. eds., Chapman and Hall, London, Vol. 1, 790 (1986).
- 3) 例えば、ユー・ベー・ダビドフ著、阪上正信、市川富士男共訳、"溶液中の放射性核種の存在状態", 現代工学社, 87 (1985).
- 4) Kim J. I., et al. : "Complexation of the Plutonium (IV) Ion in Carbonate-Bicarbonate Solutions", in "Plutonium Chemistry", Carnell W. T., et al. eds., ACS Symp. Series No. 216, 317 (1983).

Table 1 Component materials and mix propotion of concrete specimen\*

Component material		Mix propotion (Kg/m <sup>3</sup> )	Remarks
Cement	normal Portland cement	300	Onoda cement Co. Gs (specific gravity)=3.16
Fine aggregate	inland sand (produced at Aisakagawa and Hamadai district)	750	Gs (saturated surface)=2.59
Coarse aggregate	crushed stone (produced at Uchidooshi)	1100	Gs (saturated surface)=2.66
Admixture	AE water-reducing agent	1.2	Plastokuliito
Water	groundwater	160	

\* from the report of Noheji ready mixed concrete Co.

Table 2 Constituents of synthetic groundwater (simulated groundwater at soil sampling area)

Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	7.54 mg/l
NaHCO <sub>3</sub>	19.69 mg/l
NaCl	8.56 mg/l
KCl	1.52 mg/l
CaCl <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O	12.02 mg/l
MgCl <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O	17.56 mg/l
ionic strength	6 x 10 <sup>-4</sup>

Table 3 Change of radioactivity concentration of liquid phase and distribution coefficients obtained by batch method

Sample	Dry weight (g)	Initial value	1 week		2 weeks		3 weeks			Kd(ml/g) <sup>*3</sup>
			pH	A1 <sup>*1</sup> in solution	pH	A2 <sup>*1</sup> in solution	pH	A3 <sup>*1</sup> in solution	A4 <sup>*2</sup> on the vessel wall	
Loam	0.999	Radioactivity conc. = A <sup>*1</sup> 12,560 ± 1,096 (±8.72%)	5.1	59 ± 18	5.2	16 ± 4	5.0	53 ± 10	67 ± 10	2.4 × 10 <sup>3</sup>
	0.999		4.9	26 ± 7	5.0	11 ± 3	5.1	27 ± 7	62 ± 7	4.6 × 10 <sup>3</sup>
Weathered tuff	1.006	pH 6.52	6.3	104 ± 15	6.2	49 ± 12	6.2	34 ± 9	110 ± 11	3.7 × 10 <sup>3</sup>
	1.005		6.3	104 ± 10	5.3	51 ± 3	6.3	34 ± 3	136 ± 7	3.6 × 10 <sup>3</sup>
Medium sand	0.999	Solution 10ml	5.9	61 ± 52	5.7	22 ± 3	5.7	65 ± 26	452 ± 49	1.9 × 10 <sup>3</sup>
	0.998		5.9	25 ± 3	5.7	137 ± 34	5.8	125 ± 77	426 ± 23	9.7 × 10 <sup>2</sup>
Mortar part	1.006		12.2	335 ± 79	12.4	13 ± 8	12.3	2 ± 1	1489 ± 54	6.1 × 10 <sup>4</sup>
	0.995		12.2	5 ± 2	12.4	1 ± 3	12.3	3 ± 2	1004 ± 18	3.9 × 10 <sup>4</sup>

\*1 average radioactivity concentration of liquid phase calculated from several samples' (cpm/0.1ml)

\*2 radioactivity concentration in solution washed vessel wall by 10N HNO<sub>3</sub> (cpm/0.1ml)

\*3 Kd =  $\frac{(A-A3-A4)}{\text{dry weight of sample}}$

A5/10



Table 4 The results of blank test

Sample	Initial value		1 week		2 weeks			3 weeks		
	pH	A <sup>1</sup> in solution (cpm/0.1ml)	pH	A1 <sup>1</sup> in solution (cpm/0.1ml)	pH	A2 <sup>1</sup> in solution before and after centrifugation	A4 <sup>2</sup> on the vessel wall	pH	A3 <sup>1</sup> in solution before and after centrifugation	A4 <sup>2</sup> on the vessel wall
No.1	6.52	12,560 ± 1,096 【100%】	7.0	4,035 ± 161 【31.1%】	6.9	3,656 ± 115 【29.1%】	—	7.2	3,396 ± 319 【27.0%】	4,168 ± 859 【33.2%】
			7.6	4,585 ± 988 【36.5%】	7.0	2,898 ± 84 【21.7%】	—	7.2	3,438 ± 74 【27.4%】	4,827 ± 384 【38.4%】
No.2	9.58	9,861 ± 473 【100%】	9.0	1,820 ± 113 【18.5%】	8.6	3,100 ± 228 【31.4%】	6,098 ± 384 【61.9%】	—	—	—
			9.0	2,319 ± 171 【23.5%】	8.1	2,643 ± 146 【26.8%】	8,056 ± 376 【81.7%】	—	—	—
No.3	10.80	10,534 ± 589 【100%】	10.3	270 ± 70 【 2.6%】	10.0	2,696 ± 516 【25.6%】	7,482 ± 324 【71.0%】	—	—	—
			10.3	575 ± 107 【 5.5%】	10.2	3,030 ± 849 【28.8%】	8,683 ± 380 【82.4%】	—	—	—

\*1 average radioactivity concentration of liquid phase calculated from several samples\* (cpm/0.1ml)

\*2 radioactivity concentration in solution washed vessel wall by 10N HNO<sub>3</sub> (cpm/0.1ml)

【\*\*】 means ratio of radioactivity after aging to initial value

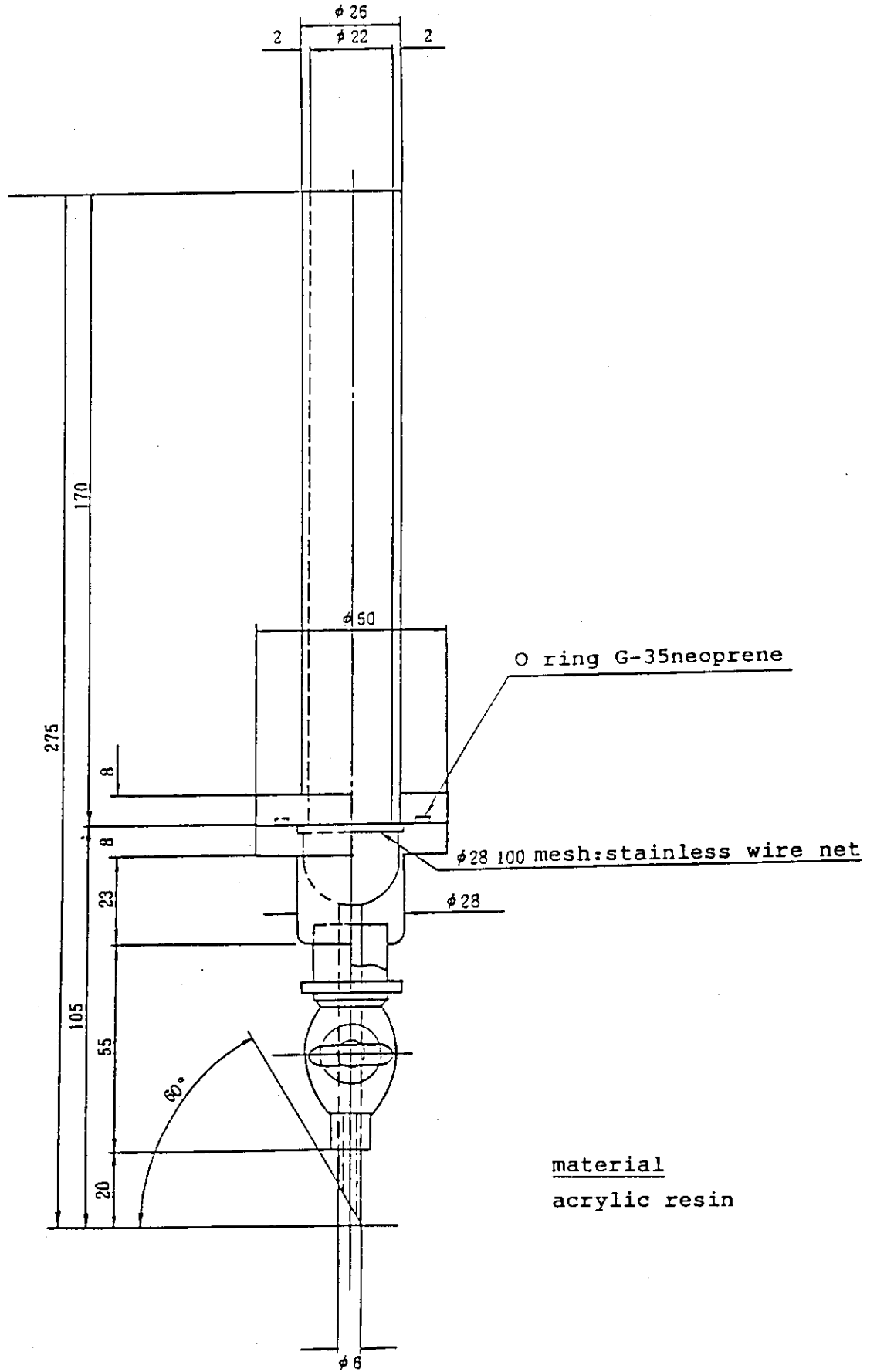


Fig.1 Apparatus used for column experiment

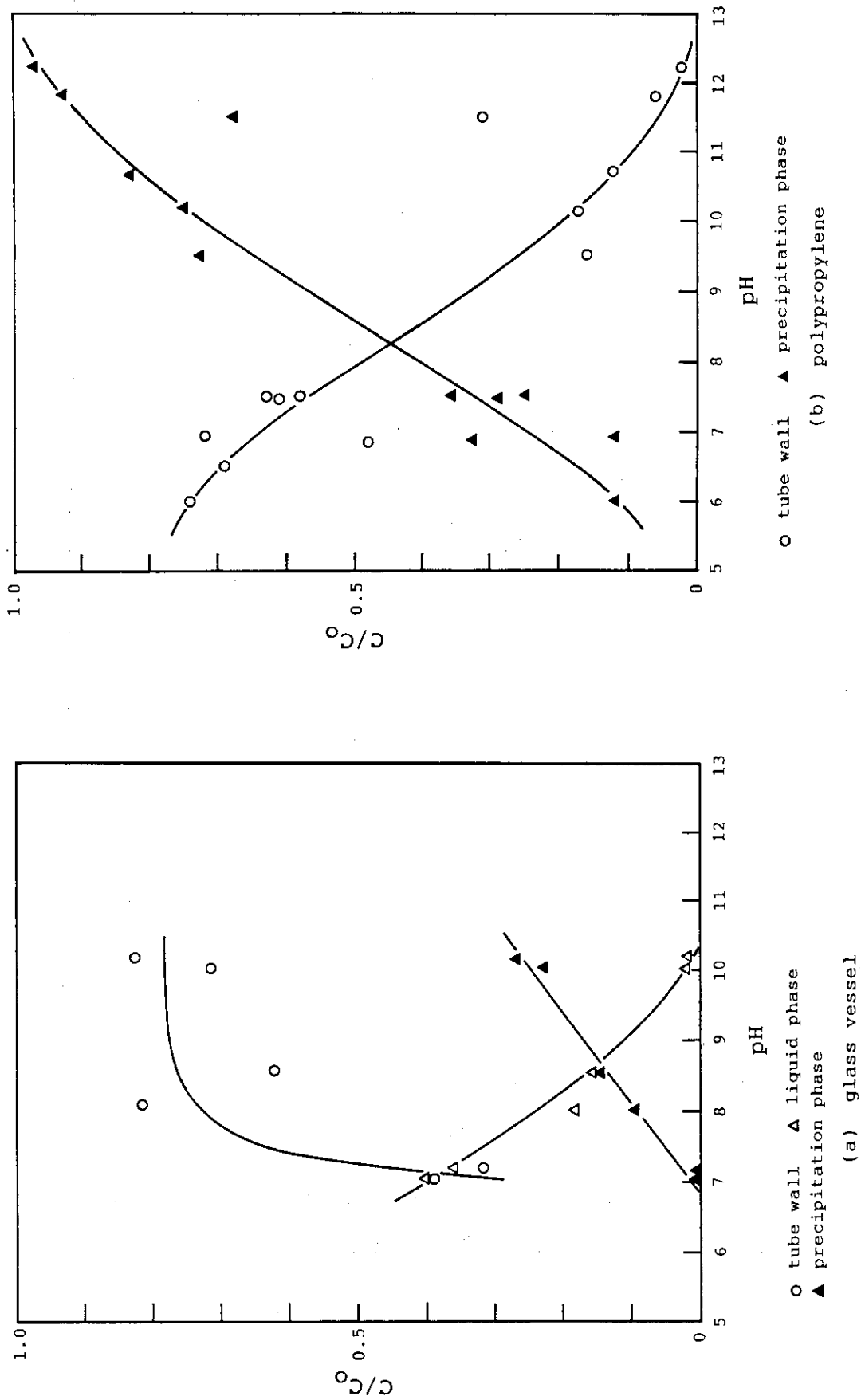


Fig.2 Distribution of plutonium in blank solution using  
 (a) glass vessel and (b) polypropylene vessel by  
 batch method

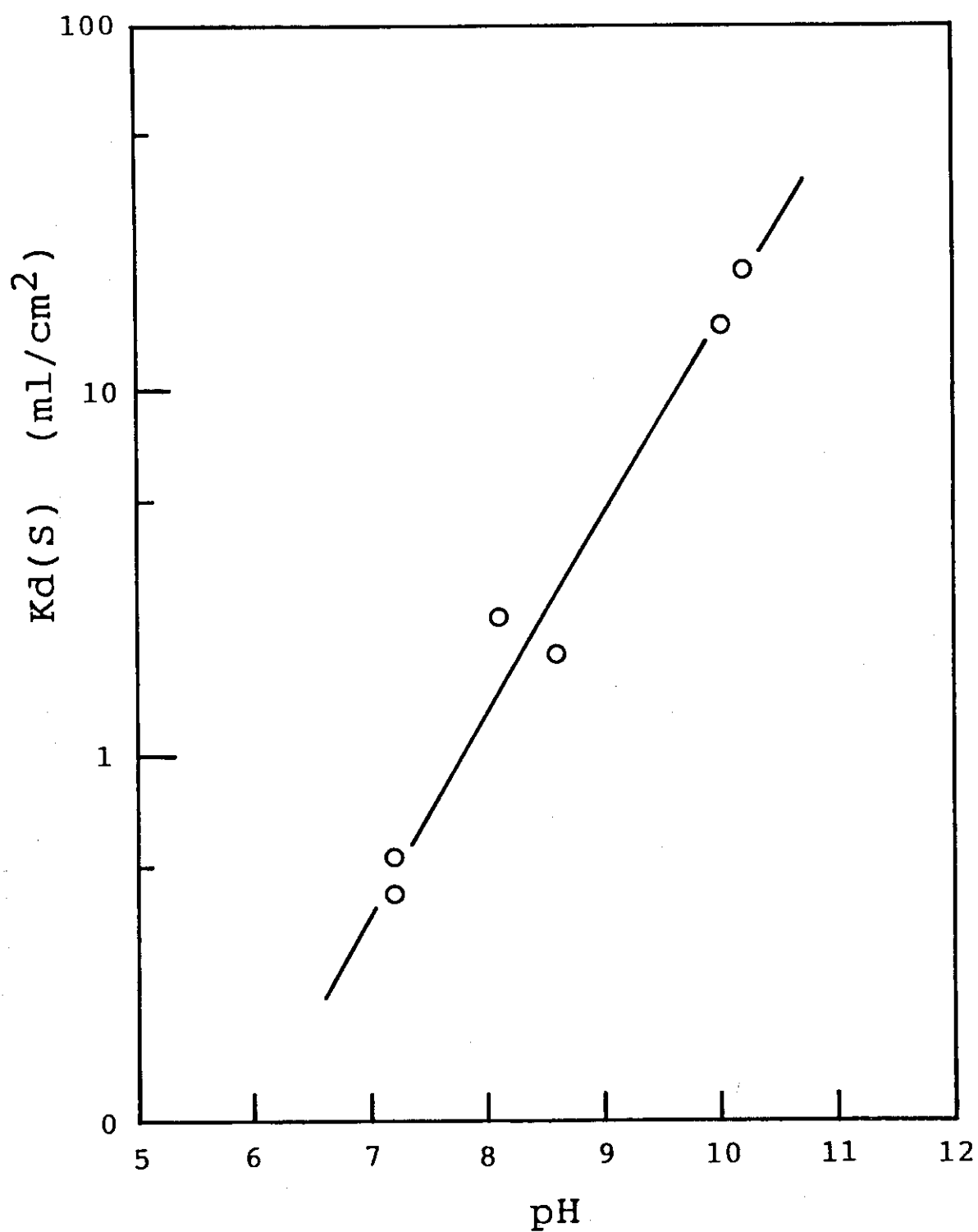


Fig.3 Distribution coefficients between glass surface and liquid phase in blank solution

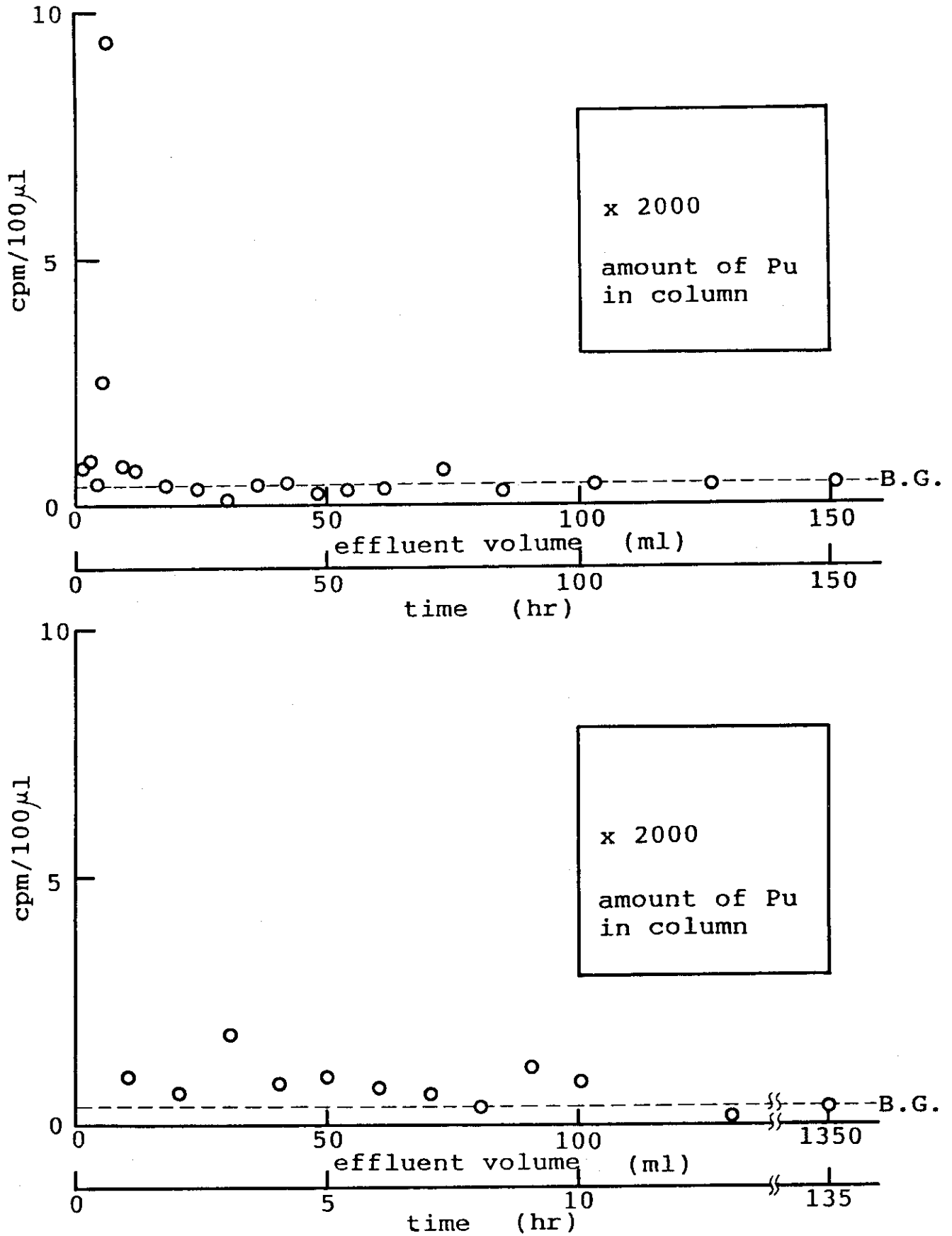


Fig.4 Plutonium concentration in effluent from column