

JAERI - M
89-011

各酸性度における放射性核種の砂層中移動

1989年2月

武部 慎一・山本 忠利

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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 (株)高野高速印刷

各酸性度における放射性核種の砂層中移動

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

武部 慎一・山本 忠利

(1989年1月17日受理)

通気砂層中における放射性核種の移動特性を各酸性度、すなわち、酸性、中性およびアルカリ性の条件下で通気層モデル装置を用いて調べた。放射性核種の流出状況については、流出比は酸性および中性で小さく、アルカリ性で大きくなった。放射性核種の砂層中移動状況については、酸性の場合、 ^{137}Cs の濃度比は指数関数的に減少し、深部において緩やかな減少を示した。 ^{60}Co および ^{85}Sr の濃度比は砂層表面より高い値を深さ数 cm のところに現われた。中性の場合は核種間の違いはほとんどなく、アルカリ性の場合はいずれの核種も中性の場合と似た移動状況を示した。さらに、各核種の移動速度と pH の関係は、 ^{85}Sr の場合、イオン交換反応に基づき pH による分配係数(K_d)の変化と対応した移動速度の変化を示したが、 ^{60}Co および ^{137}Cs の場合は、希薄な濃度部分でアルカリ性において移動速度が大きくなることが明らかとなった。

Migration of Multiradionuclides in Sandy Soil Layer
at Different Acidities

Shinichi TAKEBE and Tadatoshi YAMAMOTO

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

(Received January 17, 1989)

The migration characteristics of multinuclides in a sandy soil layer were examined with an aerated soil layer mode apparatus under acidic, neutral and alkaline inflow conditions. The effluent ratios of each radionuclide were small under acidic and neutral condition, but large under alkaline condition. The migration of each radionuclide obtained were as follows: (1) In acidic condition, the adsorption ratio of ^{137}Cs in vertical direction of the sand layer decreased exponentially from the surface of sand layer, and more slowly with increase in the depth of the sand layer. However, ^{60}Co and ^{85}Sr were observed a peak of adsorption distribution at the distance of several centimeters from the surface. (2) In neutral condition, three radionuclides were all similar in the adsorption distribution. (3) In alkaline condition, the migration of each radionuclide was the same as that in neutral condition. Relationships between pH of inflow solution and migration velocity of radionuclide were further examined and some results were obtained: The migration velocity of ^{85}Sr varied with pH, which corresponded to the variation of distribution coefficient (K_d) with pH, on the basis of ion exchange reaction. The migration velocity of ^{60}Co and ^{137}Cs at low concentration was very large under alkaline condition.

Keywords: Sandy Soil Layer, Migration, Distribution, Effluent Ratio
Audity, Adsorption Ratio, Migration Velocity, Cobalt-60,
Strontium-85, Cesium-137

目 次

1. 緒 言	1
2. 実験方法	2
3. 実験結果および考察	3
3.1 砂層からの溶離イオン	3
3.2 放射性核種の流出特性および移動特性	3
3.3 pHによる核種移動速度の変化	5
4. 結 言	6
参考文献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental method	2
3. Results and discussion	3
3.1 Desorption ions from sandy soil layer	3
3.2 Effluent and migration of radionuclides	3
3.3 Effect of pH on migration velocity	5
4. Conclusions	6
References	7

1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物の安全性評価上重要な放射性核種の地中移動に関して、地中モデル装置による実験を行い、基礎データの集積を図ってきた^{1)~9)}。通気層における放射性核種の移動と分布に関しては、通気層モデル装置を用いて、通気砂層中における⁶⁰Co、⁸⁵Srおよび¹³⁷Csの単一放射性核種の移動と分布について調べ、輸送拡散方程式により計算した予測濃度分布と比較検討し、次のような結果を得た⁵⁾。

すなわち、1) 放射性核種の移動状況については、いずれの核種も、濃度比は砂層表面から指数関数的に急激に減少するが、深くなるに従って緩やかな減少を示すこと。2) 放射性核種の分布状況については、いずれの核種も、水の流下分布を反映して、砂層中心部に移動が顕著に現われる分布傾向を示すこと。3) ⁸⁵Srの移動分布は、輸送拡散方程式に基づき予測できること、等である。

本報は、前記通気層モデル装置を用いて、各酸性度における放射性核種の砂層中移動について検討を行ったものであり、放射性廃棄物パッケージから地中に放射性核種が漏出する場合に、漏出液のpHによって通気砂層内の核種移動がどのような影響を受けるかを知ること重点を置いた。通気層における放射性核種の移動に及ぼすpHの影響については、すでに次のような研究が行われている。

岩井ら¹⁰⁾は、pH 2以下の強酸性の硝酸模擬廃液(⁹⁰Sr、¹³⁷Cs)を砂層に流入させ、交換容量の50倍量のCa²⁺が滲液に検出されること、⁹⁰Srは地下水とほぼ同じ動きを示し、¹³⁷Csは地下水よりも約50~60倍遅れることを見出ししている。森澤ら¹¹⁾はpH 3.3, 7.7および10.1の⁹⁰Y水溶液を流下させ、イオン状の⁹⁰Yおよび非イオン状の⁹⁰Yの一部は砂に吸着されるため、砂層中を移動する速度は遅いが、残りの非イオン状の⁹⁰Yは砂層中をほぼ水と同じ速度で移動することを報告している。福井ら¹²⁾は放射性核種を混合した模擬廃液を用いて、pHをパラメーターとして砂層(豊浦砂)内の核種の挙動を検討した結果、2価イオン状核種はpHが大きくなるにつれて吸着分布フロントの移動は小さくなり、pH変化に伴うフロント移動の変化の大きさの順位は⁶⁵Zn > ¹⁰⁹Cd > ⁶⁰Co > ⁵⁴Mn ~ ⁸⁵Srであることを報告している。しかしながら、⁶⁰Co、⁸⁵Srおよび¹³⁷Csの3核種を混合した水溶液を用い、同一実験条件の下でpHの変化に伴う通気層内の移動特性を検討したものはない。

そこで、筆者らはpHをパラメーターにして、通気砂層中における混合放射性核種の移動を詳しく検討した。実験は、砂層から流出する液中の溶離イオンと酸性度との関係を調べ、さらに各酸性度下における放射性核種の流出特性ならびに移動特性を調べ、各酸性度による放射性核種の移動速度を比較した。

2. 実 験 方 法

本実験に用いた通気層モデル装置は、Fig. 1に示すように、通気層カラム部、放射性水溶液の流入部と流出部および土壌コンデショニング部から構成されている。通気層カラム部は、通気層カラムと濾過器から成る。通気層カラムは、透明の硬質塩化ビニル製であり、大きさが30 cmφ × 10 cmhのユニットカラムを9段積み重ねたものである。濾過器はガラスペレット（サイズ10 mmφ）の充填層にステンレス製の金網（48 mesh）を敷いたものである。放射性水溶液流入部はRIタンク（100 ℓ）、送液ポンプ（最大流量15 ℓ/h）、スプリンクラーから成る。スプリンクラー（長さ200 mm、穴0.5 mmφ）の回転数は0～100 rpmの範囲内で調節できる。放射性水溶液流出部は、カラムからの流出液を採取するフラクシオンコレクターに接続されている。土壌コンデショニング部は、水タンク（50 ℓ）と送液ポンプ（流量50 ℓ/h）から成る。

実験に用いた砂は、日本原子力研究所東海研究所敷地内で深さ約3 mのところより採取した海岸砂（モード径350 μm、密度2.63 g/cm³）である。実験に使用した砂の化学的性質をTable 1に示す。実験にあたっては、洗浄調整した砂100 kgを約40%の空隙率でカラムに充填し、イオン交換水を通した後、2日間水抜きを行い通気状態の砂層を形成させた。

放射性水溶液の流下は、砂層体積とほぼ同量の80 ℓをスプリンクラーにより砂層表面に散布させて行った。この場合、スプリンクラーの回転速度は30 rpm、給水速度は70 ml/minになるように維持した。使用した放射性水溶液は3核種を混合したpH 3、pH 7およびpH 11の溶液で、放射能濃度は⁶⁰Co、⁸⁵Srおよび¹³⁷Csの各々について37 Bq/ml（1 × 10⁻³ μCi/ml）である。pHの調整には0.1 N HClあるいは0.1 N NaOHを用いた。

実験中はカラム下部からの流出液をフラクシオンコレクターにより、一定時間間隔で1 ℓずつポリエチレン瓶に採取した。実験終了後、2日間放置し、カラム内の砂を表面から水平および垂直方向に所定の間隔で分取した。これらの試料を放射能濃度測定に供した。

砂層からの溶離イオンは、5 cmφの小カラムに充填した砂層（高さ15 cm）に所定のpHに調整した溶離液（流入液）2.0 ℓを流下させ、カラム下部から流出した液を250 mlごとにサンプリングして調べた。流出液中のNa⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺およびFe³⁺の濃度測定は、原子吸光分析器（島津製、AA-650型）を用いて行った。一方、実験に使用した砂に対する放射性核種の分配係数は、バッチ法により測定した¹³。各酸性度下における⁶⁰Co、⁸⁵Srおよび¹³⁷Csの分配係数値をTable 2に示す。混合核種の放射能測定は、Ge(Li)γ線波高選別装置（ORTEC製、8011-2521-S型）を使用して行った。

3. 実験結果および考察

3.1 砂層からの溶離イオン

放射性核種の通気砂層内移動に及ぼす酸性度の影響を検討するにあたり、あらかじめ砂層から流出してくる液中の溶離イオン（交換性陽イオン）の種類と濃度を把握しておく必要がある。そこで、5 cm φ × 15 cm hの小カラムを用いて、所定のpHに調整した溶液2.0 ℓ(砂層体積の6.8倍)を砂層に流下させ、カラム下部から流出した液中の溶離イオン濃度を調べた。Figs. 2~4は各pH条件下における流出液中の溶離イオン濃度を示したものである。H⁺ およびOH⁻については、流出液のpHによって示した。その結果をFig. 5に示す。

酸性条件下(pH3)では、Fig. 2に見られるごとく、Ca²⁺、K⁺、およびMg²⁺の濃度は流出液量に依存せずほぼ一定の値を示した。特に、Ca²⁺の濃度は約40 ppmと高い値を示した。一方、Na⁺の濃度は流出液量の増加とともに減少した。また、流出液のpHは、流出液量の増加に従って徐々に減少し、その差はpH~0.8と緩やかである(Fig. 5参照)。すなわち、酸性溶液を砂層に流入すると、流入液中のH⁺と砂中のCa²⁺、K⁺、Mg²⁺、Na⁺、Fe³⁺等とのイオン交換反応が起こり、その結果、流出液のpHの減少が抑制される。

中性条件下(pH7)では、Fig. 3のごとく、いずれの溶離イオンも、流出液量の増加に従って溶離イオン濃度は減少した。特にCa²⁺濃度は、酸性条件下での濃度に比べて約1桁小さい値を示した。さらに、流出液のpHは流出液量の増加とともに多少増える傾向を示し、その差はpH~0.7と緩やかである(Fig. 5参照)。したがって、中性溶液を砂層に流入すると、砂中のイオンとのイオン交換反応は酸性溶液の場合に比べて緩やかなものとなることが分る。

アルカリ性条件下(pH11)では、Fig. 4のごとく、Ca²⁺、K⁺、Mg²⁺およびFe³⁺の濃度は流出液量の増加に従って徐々に減少したが、Na⁺のみは流出液量が増加するほど大きくなる。さらに、流出液のpHは流出液量の増加とともに増える傾向を示し、その差はpH~1.5と大きい(Fig. 5参照)。これは、NaOHによりpHを調整したためNa⁺が多量に存在することによって起きた現象である。

以上のように、砂層から流出した液中の溶離イオン濃度は、流入液のpHによる影響を受け、酸性、中性およびアルカリ性の各条件に対応して砂層との反応形態をそれぞれ変えることが示される。

3.2 放射性核種の流出特性および移動特性

放射性核種の流出特性に及ぼす酸性度の影響について調べた。Fig. 6はカラム下部から流出した液中の放射能比の変化、すなわち流出比の変化を示したものである。この図から明らかなように、酸性の場合には、いずれの核種も流出比は流出液量に依存せず、ほぼ一定の低い値(10⁻⁴~10⁻⁵オーダー)を示し、核種間の流出傾向は¹³⁷Cs > ⁸⁵Sr > ⁶⁰Coの順となる。中性の

場合には、 ^{60}Co および ^{137}Cs は流入後約20ℓから流出を開始し、その後増大を続けて約80ℓで流出比は、 ^{60}Co では 2×10^{-5} 、 ^{137}Cs では 8×10^{-5} を示した。それに対して、 ^{85}Sr は初期より流出が認められ、酸性の場合と同様に、その流出比は流出液量に依存せず、ほぼ一定の低い値(2×10^{-5})を示す。アルカリ性の場合には、いずれの核種も初期より流出が認められ、流出液量の増加とともに増大し、80ℓ流出した時点で流出比は、 ^{60}Co では 1×10^{-1} 、 ^{85}Sr では 3×10^{-3} 、 ^{137}Cs では 5×10^{-3} を示し、酸性および中性の場合に比べて2~3桁高い値であった。特に ^{60}Co では顕著な流出が認められる。核種間の流出傾向は $^{60}\text{Co} > ^{137}\text{Cs} > ^{85}\text{Sr}$ の順となる。

つぎに、砂層中心部における放射性核種の垂直方向への移動特性に及ぼす酸性度の影響について調べた。Figs. 7~9は砂層中における放射能比の変化、すなわち濃度比 *1 の変化を示したものである。これらの図から明らかのように、酸性の場合には、 ^{137}Cs の濃度比は砂層表面から約10cmまでは指数関数的に急激に減少するが、より深部になるに従って緩やかな減少を示す。しかしながら、 ^{60}Co および ^{85}Sr の濃度比は砂層表面より多少高い値を深度2~3cmのところ与え、その後指数関数的に急激に減少し、より深部になるに従って緩やかな減少を示す。

このような移動状況は、イオン交換体への金属イオンの吸着等で一般に見られる現象^{14),15)}であり、また筆者らも小型カラム(5cmφおよび10cmφ)を用いてこれら核種の酸性溶液を流下したカラム実験において認めており^{1),2)}、核種イオンの砂層への吸着、脱離反応が繰り返し行われるため生じたものと考えられる。核種間の移動傾向は $^{60}\text{Co} > ^{85}\text{Sr} > ^{137}\text{Cs}$ の順となる。中性の場合には、いずれの核種も濃度比は、単一放射性核種の砂層中移動実験⁵⁾で得られたパターンと同じく砂層表面から約10cmまでは指数関数的に急激に減少し、より深部になるに従って緩やかな減少を示し、核種間の移動性の違いはほとんど認められない。アルカリ性の場合には、中性の場合における移動と似た様相を呈し、核種間の移動傾向は $^{60}\text{Co} \gg ^{85}\text{Sr} \sim ^{137}\text{Cs}$ の順となる。特に ^{60}Co の移動が顕著に認められるのは、アルカリ性において ^{60}Co は加水分解を受けて難溶性の水酸化物($^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$)を形成し、吸着し難く水とともに砂層深部へ移動したためである。

Figs. 10~12は、砂層周辺部における放射性核種の垂直方向の移動に関する結果を中心部におけるそれら(Figs. 7~9)と合わせて、それぞれの放射性核種について砂層全体の垂直断面内の分布を各酸性度ごとに示したものである。図中の数値は放射能濃度($\mu\text{Ci/g}$)で表わしている。酸性の場合には、いずれの核種も、砂層全体にはほぼ均一に減少し、中性およびアルカリ性の場合には、周辺部に比べて中心部の移動が顕著に現われる分布傾向を示す。

以上のような酸性度による放射性核種の流出特性および移動特性の違いは次のように説明することができる。すなわち、 ^{137}Cs は広いpH範囲において陽イオンとして挙動し、砂層表面に大部分が強くイオン交換吸着し、その中でシルトに吸着した ^{137}Cs は水とともに押し流される。アルカリ性においては、流入液中の Na^+ によってイオン吸着が抑制されるので、全体として砂層中移動が大きくなるものと考えられる。一方、 ^{60}Co は中性およびアルカリ性において、 ^{60}Co

* 1: 砂層表面の放射能濃度 q_i (Bq/g または $\mu\text{Ci/g}$) に対する各砂層部分の放射能濃度 q_o (Bq/g または $\mu\text{Ci/g}$) との比 (q_i/q_o) で現わされる。

が加水分解を受け、電荷を有しない水酸化物 ($^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$) を一部分形成する¹⁶⁾。この $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ は砂層に吸着し難く水とともに移動しやすい。特にアルカリ性では、 ^{60}Co の移動が大きくなり、砂層深部まで見受けられるものと考えられる。

^{85}Sr は広い pH 範囲において陽イオンとして挙動し、 ^{137}Cs と同様に砂層表面に大部分が強くイオン交換吸着するが、酸性では流入液中の H^+ によって溶離した Ca^{2+} 、アルカリ性では流入液中の OH^- の影響を強く受けることが考えられる。すなわち、 Ca^{2+} については流入液によって砂から溶離した Ca^{2+} の濃度増加に伴い、 Ca^{2+} とのイオン交換反応により ^{85}Sr の吸着能の低下が起こる^{17), 18)} ため、一方、 OH^- については $\text{Sr}(\text{OH})_2$ を砂層表面に形成し、それが水により押し流されるため¹⁹⁾、 ^{85}Sr が水とともに砂層中を移動するものと考えられる。

3.3 pHによる核種移動速度の変化

通気砂層における放射性核種の移動速度 V_a は、帯水層を対象とする井上の数学モデル²⁰⁾ を拡張して適用すると、水の移動速度 V_w との比である遅延係数 (Retardation factor) により、次式で表わされる²¹⁾。

$$V_a = V_w / K_f \quad (1)$$

K_f は (2) 式で定義されるものである。

$$K_f \equiv 1 + \frac{1-f}{fs} \rho K_d \quad (2)$$

ここに、 f : 砂層の空隙率

ρ : 砂の密度 (g/cm^3)

K_d : 分配係数 (ml/g)

s : 砂層の飽和度

したがって、 V_w 、 f 、 ρ および s は、本実験条件において一定なもの ($V_w = 3.91 \text{ cm}/\text{min}$ 、 $f = 0.40$ 、 $\rho = 2.63 \text{ g}/\text{cm}^3$ および $s = 0.573$) であるので、 V_a は K_d の関数として (3) 式で表わされる。

$$V_a = V_w / \left(1 + \frac{1-f}{fs} \rho K_d \right) \quad (3)$$

それゆえ、Table 2 に示した K_d を (3) 式に代入することにより、pH による核種移動速度の変化が予測できる。しかしながら、(3) 式で示される放射性核種の移動速度 V_a は、放射性核種全体の移動速度であり、土壤に吸着される放射性核種が吸着されない物質、すなわち水そのものに一定の割合で遅れて移動し、その際地層内での放射性核種の固液間反応が平衡に達していると思なせるときに意味のあるものである。

ところが、大塚ら⁹⁾ は帯水層中における ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の移動性を調べたところ、核種間における移動性の大小関係については、濃厚な濃度部分において分配係数の大小関係と同じであるが、希薄な濃度部分において分配係数の大小関係と異なる結果を得ている。その原因としては、 ^{137}Cs はその一部が土壤微細粒子に吸着して微細粒子とともに移動したこと、 $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$

を形成して移動しやすくなったことを指摘している。そこで、通気砂層についても、同様な現象が起きていることが考えられるので、pHによる放射性核種の移動速度の変化について移動部分を $37 \sim 370 \text{ Bq/g}$ ($10^{-3} \sim 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$)の濃厚な部分および $0.37 \sim 3.7 \text{ Bq/g}$ ($10^{-5} \sim 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$)の希薄な部分に分けて検討を加えた。

Figs. 13~15は砂層中心部における放射性核種の垂直方向への移動速度とpHとの関係を示したものである。核種移動速度は指標濃度が移動した砂層深度を流下時間1143 minで除して求めた。 ^{60}Co の移動速度については、Fig. 13により、核種濃度の濃厚な部分はpH変化に対して K_d に対応した形状を示すが、希薄な部分はpH 11における移動速度がpH 3におけるそれに比べてきわめて大きいことが言える。これは核種濃度とは無関係にアルカリ性領域で水酸化物が移動していることを示唆している。

^{85}Sr の移動速度については、Fig. 14により、いずれの濃度部分についても、pH変化に対して K_d と対応した形状を表わすことがわかる。これはイオン交換反応に基づいて移動していることを示唆している。

一方、 ^{137}Cs の移動速度については、Fig. 15により、核種濃度の濃厚な部分はpH変化に対して K_d と対応した形状を示すが、希薄な部分はpHが大きくなるほどきわめて速く移動することがわかる。 ^{137}Cs がアルカリ性領域で移動しやすくなるのは、流入液中の Na^+ によって砂層への吸着が多少抑制されていることを示唆している。

以上のことから、 ^{85}Sr の核種についてはpHによる K_d の変化と対応した移動速度の変化を示すが、 ^{60}Co および ^{137}Cs の核種については希薄な濃度部分でpHが大きくなると移動速度が増大して、 K_d の大小関係でpHの影響を説明できないことが明かとなった。特にアルカリ性領域において希薄な濃度部分はイオン交換反応に基づく数学モデルだけによって核種移動を予測することが困難であると考えられる。したがって、廃棄物パッケージからの漏出液のpH状態を考慮に入れた移動方程式による核種の解析方法を今後検討する必要がある。

4. 結 言

各酸性度における放射性核種 (^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs) の通気砂層中での移動について調べ、次の結果が得られた。

- (1) 酸性の場合は、いずれの核種も、流出比は流出液量に依存せず、ほぼ一定の低い値を示す。 ^{137}Cs の吸着比は砂層表面から指数関数的に急激に減少するが、より深部になるに従って緩やかな減少を示す。しかしながら、 ^{60}Co および ^{85}Sr の吸着比は砂層表面より多少高い値を深さ2~3 cmのところで与える。
- (2) 中性の場合には、 ^{85}Sr の流出比は酸性の場合と同様であるが、 ^{60}Co および ^{137}Cs の流出比は流出液量の増加とともに増大する。吸着比は核種間の違いは認められず、砂層表面から約10 cmまでは指数関数的に急激に減少し、さらに深部になるに従って緩やかな減少を示す。
- (3) アルカリ性の場合は、いずれの核種も初期より流出が認められ、流出液量の増加とともに増大する。吸着比は中性の場合と似ているが、特に ^{60}Co の移動が顕著に認められる。

を形成して移動しやすくなったことを指摘している。そこで、通気砂層についても、同様な現象が起きていることが考えられるので、pHによる放射性核種の移動速度の変化について移動部分を $37 \sim 370 \text{ Bq/g}$ ($10^{-3} \sim 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$)の濃厚な部分および $0.37 \sim 3.7 \text{ Bq/g}$ ($10^{-5} \sim 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$)の希薄な部分に分けて検討を加えた。

Figs. 13~15は砂層中心部における放射性核種の垂直方向への移動速度とpHとの関係を示したものである。核種移動速度は指標濃度が移動した砂層深度を流下時間1143 minで除して求めた。 ^{60}Co の移動速度については、Fig. 13により、核種濃度の濃厚な部分はpH変化に対して K_d に対応した形状を示すが、希薄な部分はpH 11における移動速度がpH 3におけるそれに比べてきわめて大きいことが言える。これは核種濃度とは無関係にアルカリ性領域で水酸化物が移動していることを示唆している。

^{85}Sr の移動速度については、Fig. 14により、いずれの濃度部分についても、pH変化に対して K_d と対応した形状を表わすことがわかる。これはイオン交換反応に基づいて移動していることを示唆している。

一方、 ^{137}Cs の移動速度については、Fig. 15により、核種濃度の濃厚な部分はpH変化に対して K_d と対応した形状を示すが、希薄な部分はpHが大きくなるほどきわめて速く移動することがわかる。 ^{137}Cs がアルカリ性領域で移動しやすくなるのは、流入液中の Na^+ によって砂層への吸着が多少抑制されていることを示唆している。

以上のことから、 ^{85}Sr の核種についてはpHによる K_d の変化と対応した移動速度の変化を示すが、 ^{60}Co および ^{137}Cs の核種については希薄な濃度部分でpHが大きくなると移動速度が増大して、 K_d の大小関係でpHの影響を説明できないことが明かとなった。特にアルカリ性領域において希薄な濃度部分はイオン交換反応に基づく数学モデルだけによって核種移動を予測することが困難であると考えられる。したがって、廃棄物パッケージからの漏出液のpH状態を考慮に入れた移動方程式による核種の解析方法を今後検討する必要がある。

4. 結 言

各酸性度における放射性核種 (^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs) の通気砂層中での移動について調べ、次の結果が得られた。

- (1) 酸性の場合は、いずれの核種も、流出比は流出液量に依存せず、ほぼ一定の低い値を示す。 ^{137}Cs の吸着比は砂層表面から指数関数的に急激に減少するが、より深部になるに従って緩やかな減少を示す。しかしながら、 ^{60}Co および ^{85}Sr の吸着比は砂層表面より多少高い値を深さ2~3 cmのところで与える。
- (2) 中性の場合には、 ^{85}Sr の流出比は酸性の場合と同様であるが、 ^{60}Co および ^{137}Cs の流出比は流出液量の増加とともに増大する。吸着比は核種間の違いは認められず、砂層表面から約10 cmまでは指数関数的に急激に減少し、さらに深部になるに従って緩やかな減少を示す。
- (3) アルカリ性の場合には、いずれの核種も初期より流出が認められ、流出液量の増加とともに増大する。吸着比は中性の場合と似ているが、特に ^{60}Co の移動が顕著に認められる。

(4) さらに、各核種間の移動速度と pH との関係については、 ^{85}Sr の場合にはイオン交換反応に基づき pH による K_d の変化と対応した移動速度の変化を示すが、 ^{60}Co の場合には希薄な濃度部分でアルカリ性における移動速度が酸性におけるそれに比べて大きく、 ^{137}Cs の場合は希薄な濃度部分で pH が大きくなるほど速く移動することがわかる。

参 考 文 献

- 1) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: JARERI-M 7642 (1978).
- 2) 武部慎一, 和達嘉樹: JAERI-M 8044 (1979).
- 3) 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: JAERI-M 8824 (1980).
- 4) 山本忠利, 武部慎一, 和達嘉樹: 保健物理, 17, 3 (1982).
- 5) 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: 同上, 17, 437 (1982).
- 6) 大貫敏彦, 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: 同上, 18, 11 (1983).
- 7) 大貫敏彦, 大塚芳郎, 小川弘道, 山本忠利, 鷲尾方一, 和達嘉樹: 保健物理, 19, 13 (1984).
- 8) 武部慎一, 山本忠利: Radioisotopes, 35, 70 (1986).
- 9) T. Ohtsuka, S. Takebe, T. Yamamoto and Y. Wadachi: J. N. Sci. Tec., 25, 165 (1988).
- 10) 岩井重久, 井上頼輝, 西牧研壯: 日本原子力学会誌, 10, 435 (1968).
- 11) 井上頼輝, 森澤真輔: 宮武法善: 同上, 18, 445 (1976).
- 12) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 13, 93 (1978).
- 13) 山本忠利, 武部慎一, 和達嘉樹: Radioisotopes, 29, 373 (1980).
- 14) R. K. Schulz: Health Phys., 11, 1317 (1965).
- 15) S. W. Mayer and E. R. Tompkins: J. Amer. Chem. Soc., 69, 2866 (1947).
- 16) S. M. Hasany and M. A. Qureshi: Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32, 747 (1981).
- 17) 筒井天尊, 西牧研壯: 保健物理, 10, 79 (1975).
- 18) K. Nilsson: "The Migration of Long-Lived Radionuclides in the Geosphere", p289 (1979), OECD, Paris.
- 19) S. M. Hasany and M. H. Chaudhary: Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32, 899 (1981).
- 20) Y. Inoue and W. J. Kaufman: Health Phys., 9, 705 (1963).
- 21) 井上頼輝, 赤木文行: 土木学会第26回年次学術講演会講演集, p633 (1971).

(4) さらに、各核種間の移動速度と pH との関係については、 ^{85}Sr の場合にはイオン交換反応に基づき pH による K_d の変化と対応した移動速度の変化を示すが、 ^{60}Co の場合には希薄な濃度部分でアルカリ性における移動速度が酸性におけるそれに比べて大きく、 ^{137}Cs の場合は希薄な濃度部分で pH が大きくなるほど速く移動することがわかる。

参 考 文 献

- 1) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: JARERI-M 7642 (1978).
- 2) 武部慎一, 和達嘉樹: JAERI-M 8044 (1979).
- 3) 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: JAERI-M 8824 (1980).
- 4) 山本忠利, 武部慎一, 和達嘉樹: 保健物理, 17, 3 (1982).
- 5) 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: 同上, 17, 437 (1982).
- 6) 大貫敏彦, 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: 同上, 18, 11 (1983).
- 7) 大貫敏彦, 大塚芳郎, 小川弘道, 山本忠利, 鷲尾方一, 和達嘉樹: 保健物理, 19, 13 (1984).
- 8) 武部慎一, 山本忠利: Radioisotopes, 35, 70 (1986).
- 9) T. Ohtsuka, S. Takebe, T. Yamamoto and Y. Wadachi: J. N. Sci. Tec., 25, 165 (1988).
- 10) 岩井重久, 井上頼輝, 西牧研壯: 日本原子力学会誌, 10, 435 (1968).
- 11) 井上頼輝, 森澤真輔: 宮武法善: 同上, 18, 445 (1976).
- 12) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 13, 93 (1978).
- 13) 山本忠利, 武部慎一, 和達嘉樹: Radioisotopes, 29, 373 (1980).
- 14) R. K. Schulz: Health Phys., 11, 1317 (1965).
- 15) S. W. Mayer and E. R. Tompkins: J. Amer. Chem. Soc., 69, 2866 (1947).
- 16) S. M. Hasany and M. A. Qureshi: Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32, 747 (1981).
- 17) 筒井天尊, 西牧研壯: 保健物理, 10, 79 (1975).
- 18) K. Nilsson: "The Migration of Long-Lived Radionuclides in the Geosphere", p289 (1979), OECD, Paris.
- 19) S. M. Hasany and M. H. Chaudhary: Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32, 899 (1981).
- 20) Y. Inoue and W. J. Kaufman: Health Phys., 9, 705 (1963).
- 21) 井上頼輝, 赤木文行: 土木学会第26回年次学術講演会講演集, p633 (1971).

Table 1 Chemical characterization of sand.

Chemical characterization	Value
Chemical composition* ¹ (wt%)	SiO ₂ ; 78.20 , TiO ₂ ; 0.36 Al ₂ O ₃ ; 8.31 , FeO ; 2.49 MnO ; 0.07 , MgO ; 0.98 CaO ; 1.95 , K ₂ O ; 2.70 Na ₂ O ; 2.55 , Carbon ; 0.15 H ₂ O ; 1.04 , Total 98.77
Cation exchange capacity* ² pH	1.24 (meq/100g) pH(H ₂ O) 8.21 , pH(KCl) 7.95

Analytical methods ; *1 X-ray fluorescence spectrometric method ,

*2 Ion(NH₄-N) selective electrode method .

Table 2 Distribution coefficient of radionuclides for sand with different pH condition.

Radionuclide	Distribution coefficient K _d (ml/g)		
	pH 3	pH 7	pH 11
⁶⁰ Co	5.4	51.5	4.0
⁸⁵ Sr	83.4	90.2	83.5
¹³⁷ Cs	157.7	202.1	158.1

Condition ; contact time:24 h , solution volume:800 ml , soil weight :20 g
temperature : 25±2°C , atmosphere : air .

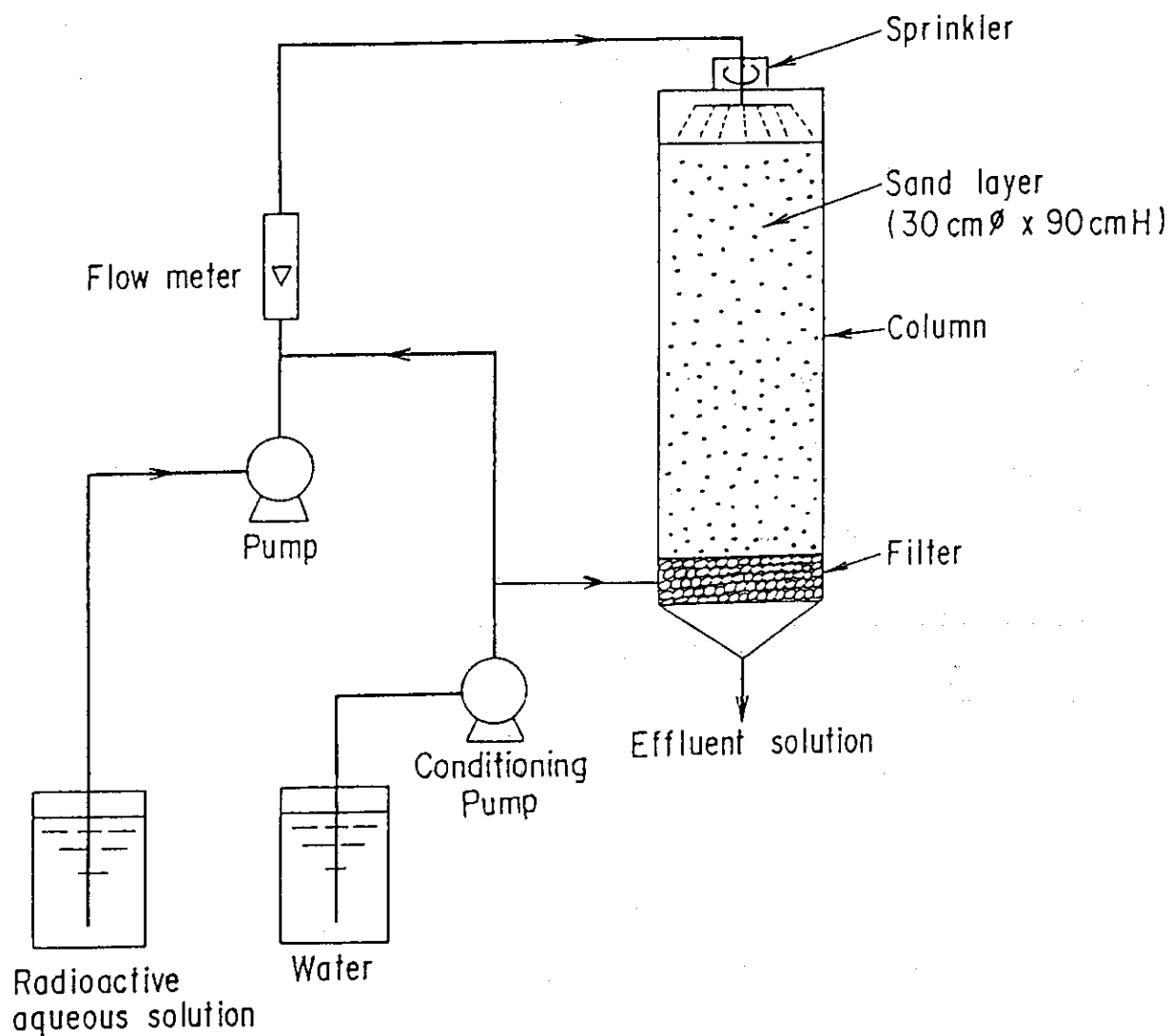


Fig. 1 Schematic diagram of soil layer model apparatus for radionuclides migration.

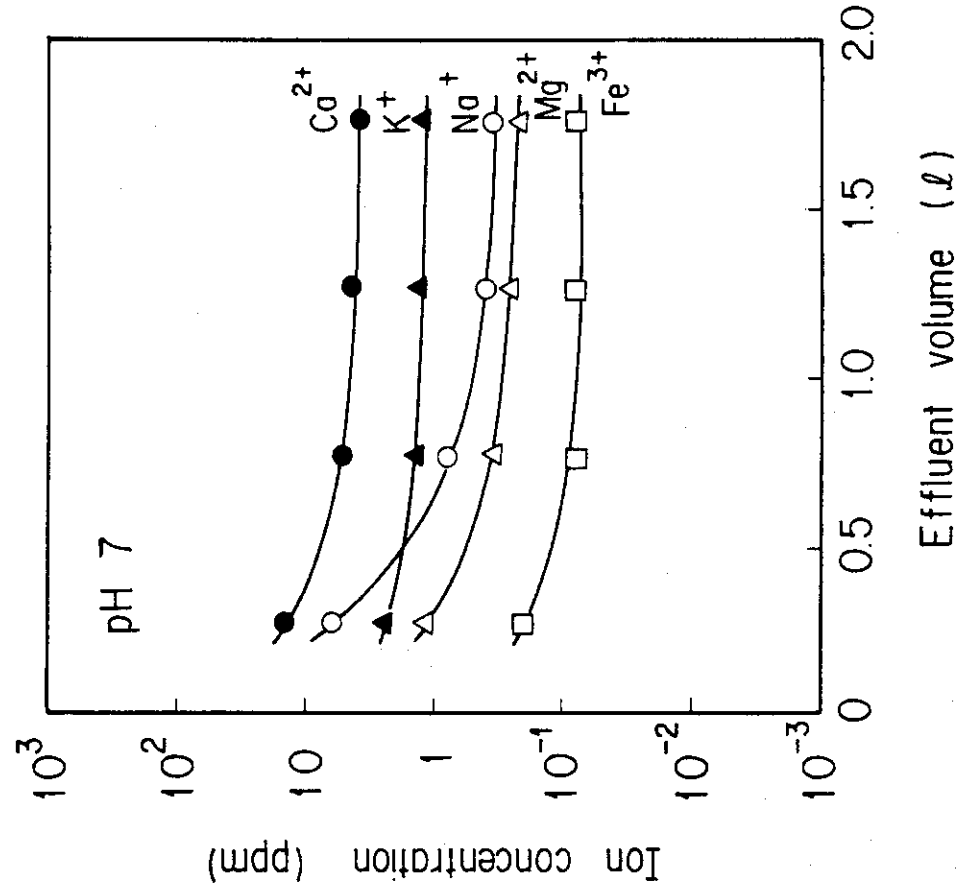


Fig. 3 Effluent curve of cation through aerated sand layer at inflow solution of pH 7.

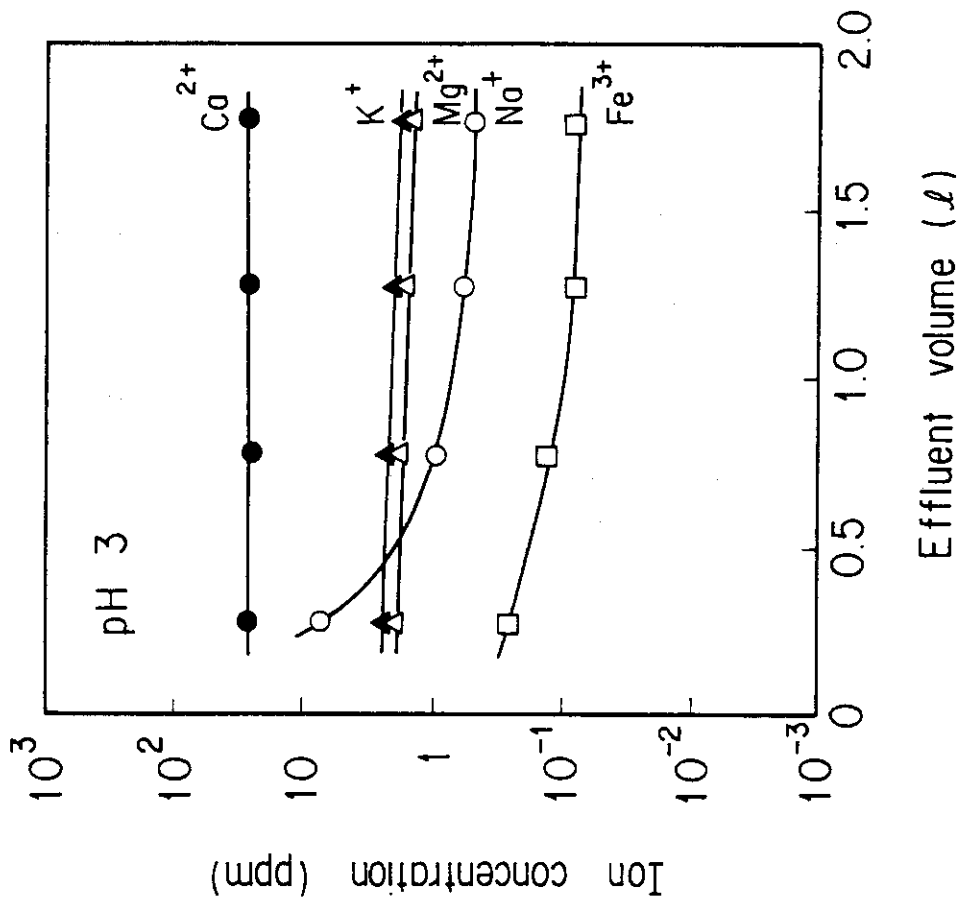


Fig. 2 Effluent curve of cation through aerated sand layer at inflow solution of pH 3.

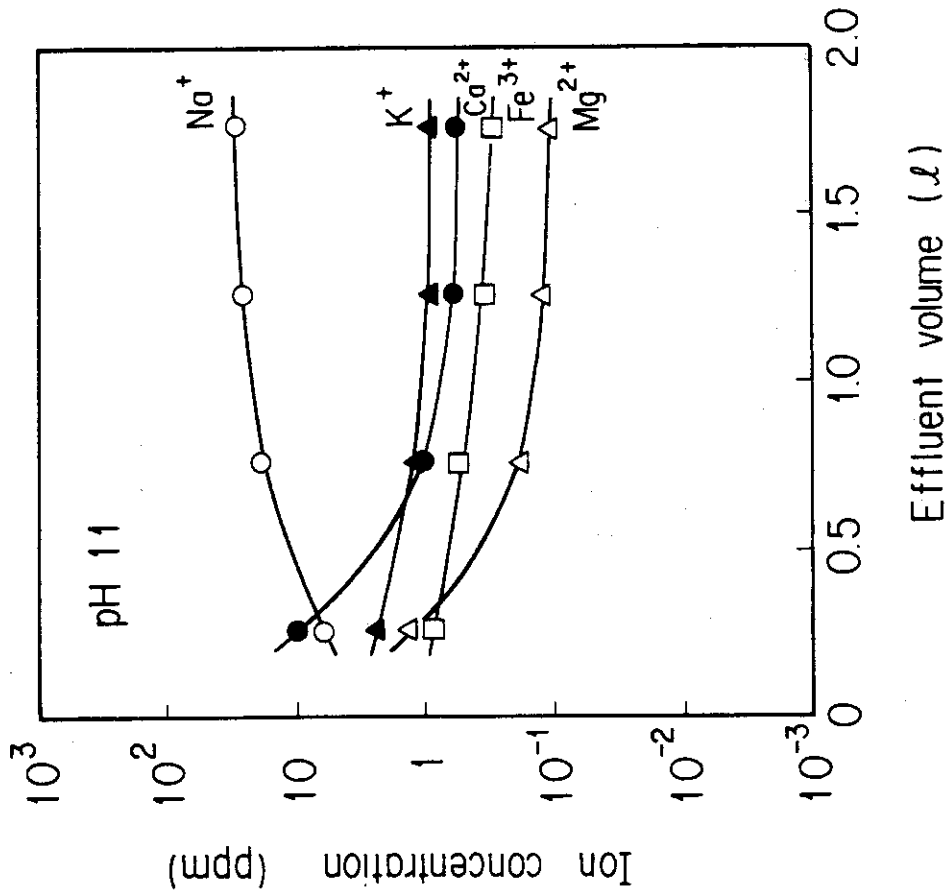


Fig. 4 Effluent curve of cation through aerated sand layer at inflow solution of pH 11.

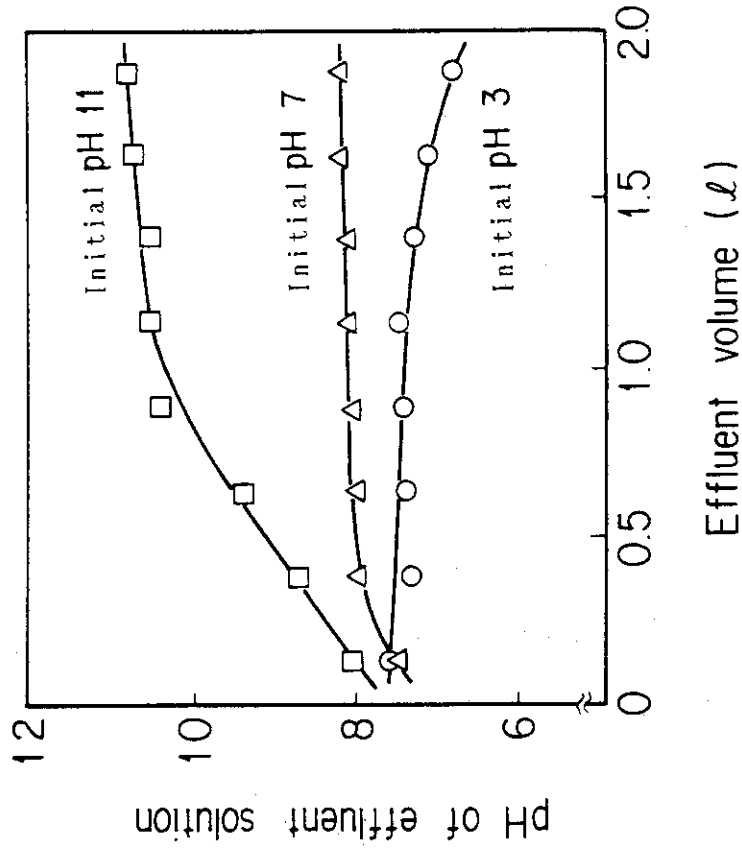


Fig. 5 Variation of pH of effluent solution from aerated sand layer at inflow solutions of acidic, neutral and alkaline.
 O; Initial pH 3, Δ ; Initial pH 7, \square ; Initial pH 11

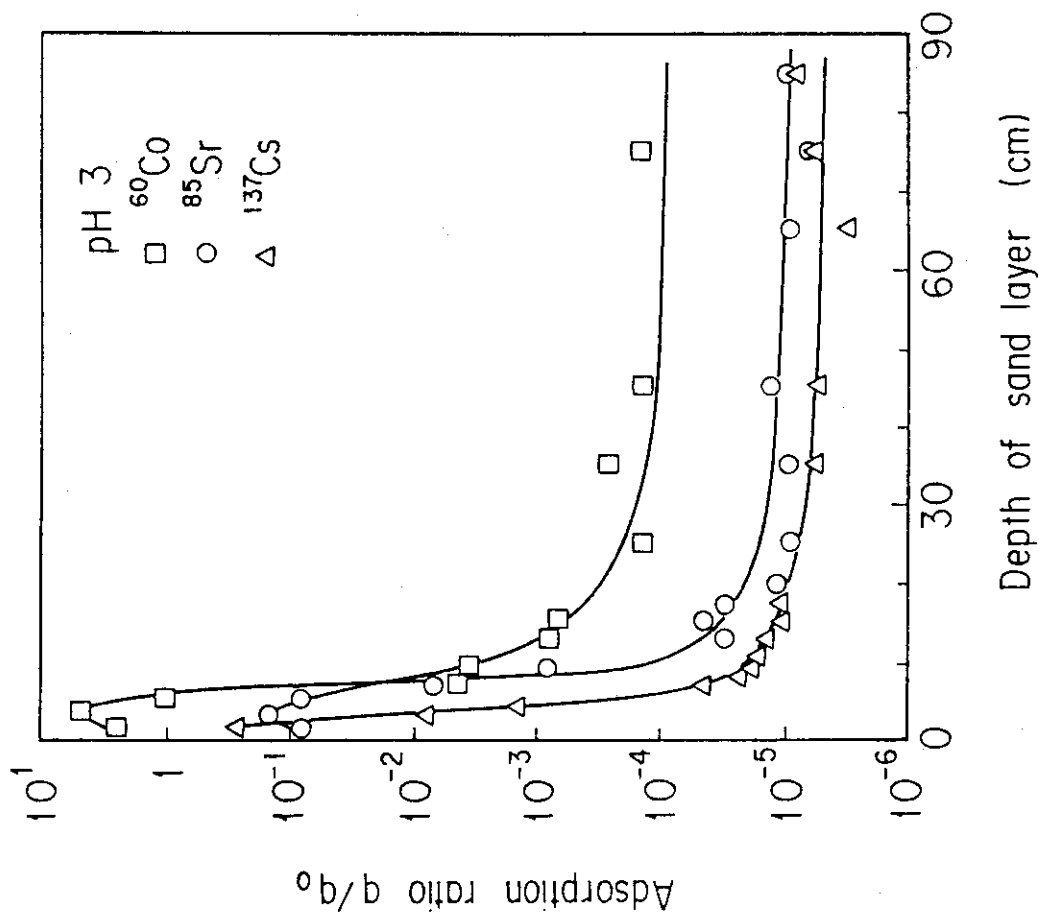


Fig. 7 Vertical distribution of ⁶⁰Co, ⁸⁵Sr and ¹³⁷Cs in aerated sand layer at inflow solution of pH 3.

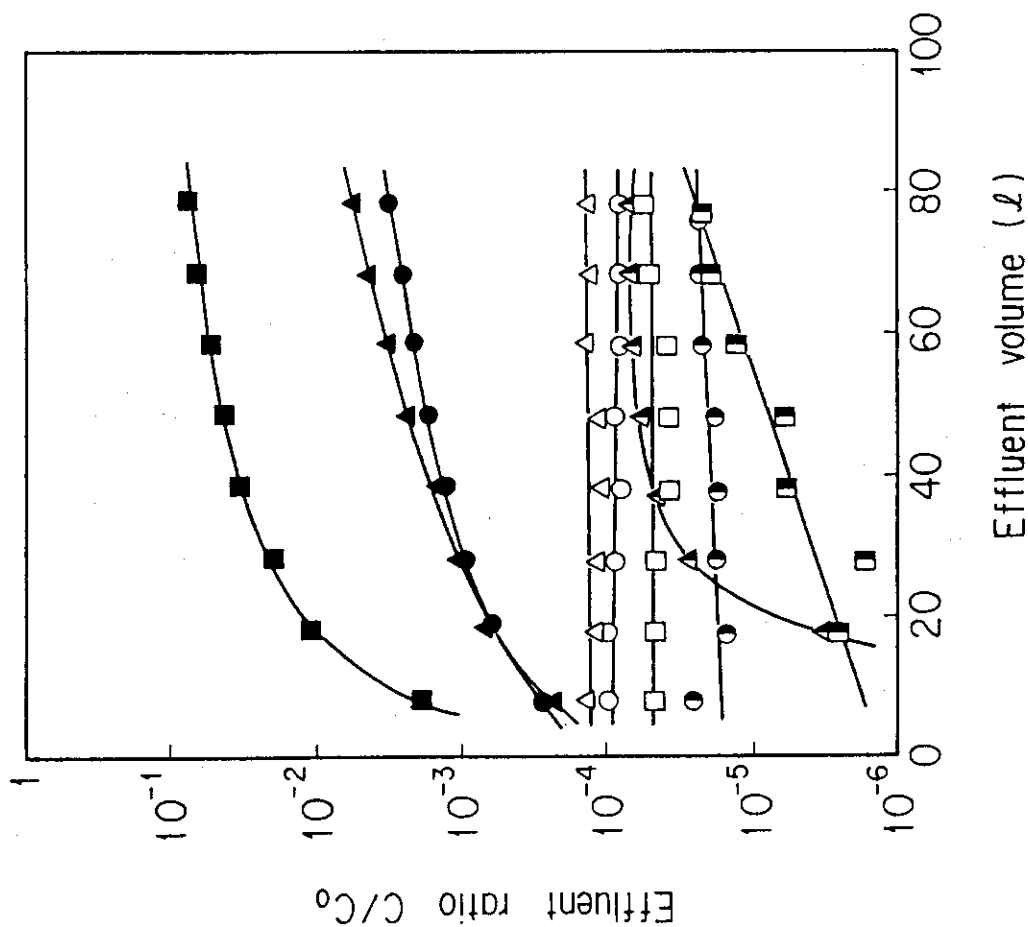


Fig. 6 Effluent curve of ⁶⁰Co, ⁸⁵Sr and ¹³⁷Cs through aerated sand layer at inflow solution of acidic, neutral and alkaline.

⁶⁰Co: □ pH 3, ■ pH 7, ■ pH 11
⁸⁵Sr: ○ pH 3, ● pH 7, ● pH 11
¹³⁷Cs: △ pH 3, ▲ pH 7, ▲ pH 11

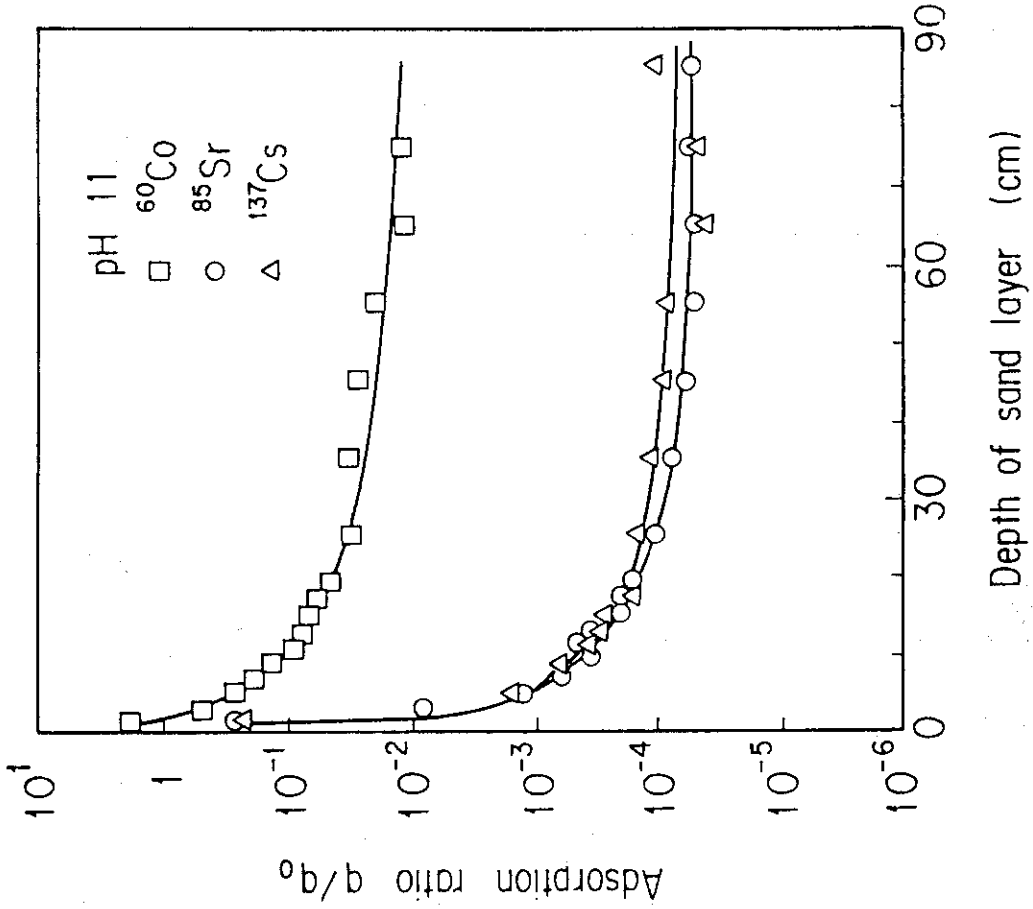


Fig. 9 Vertical distribution of ^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs in aerated sand layer at inflow solution of pH 11.

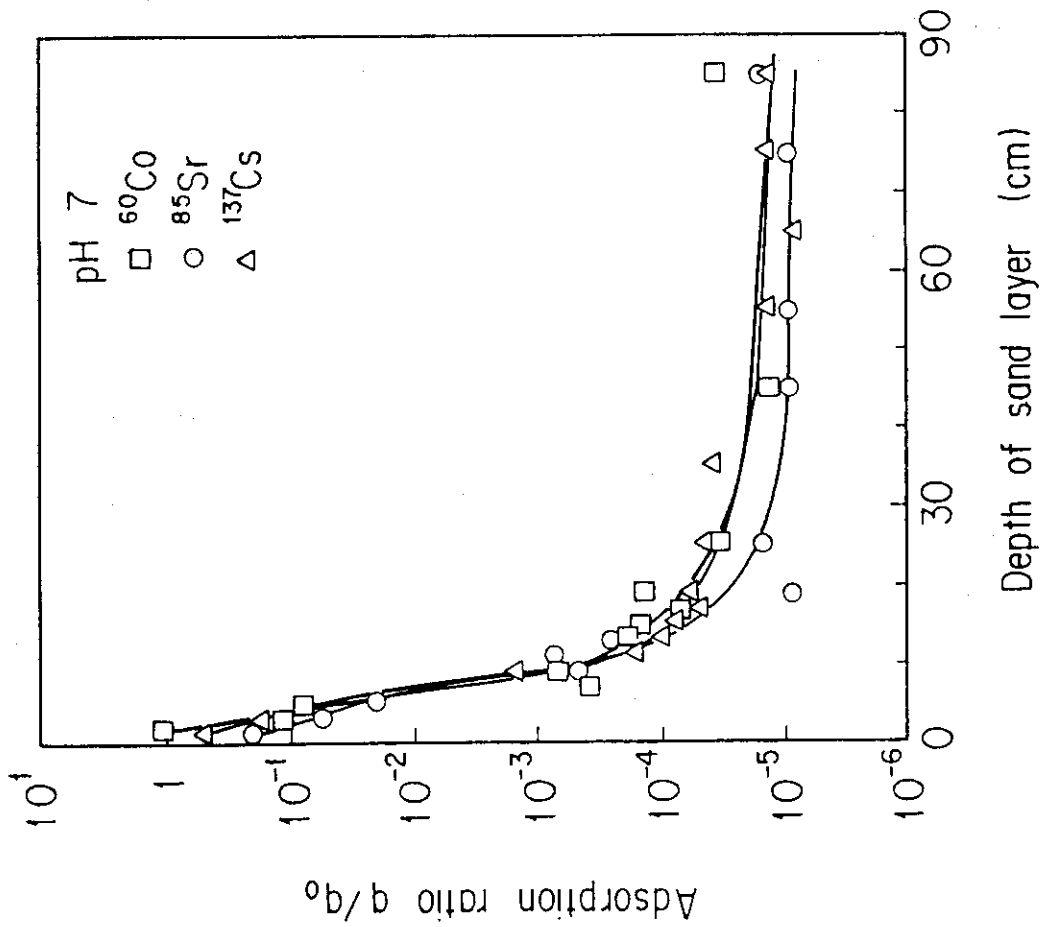


Fig. 8 Vertical distribution of ^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs in aerated sand layer at inflow solution of pH 7.

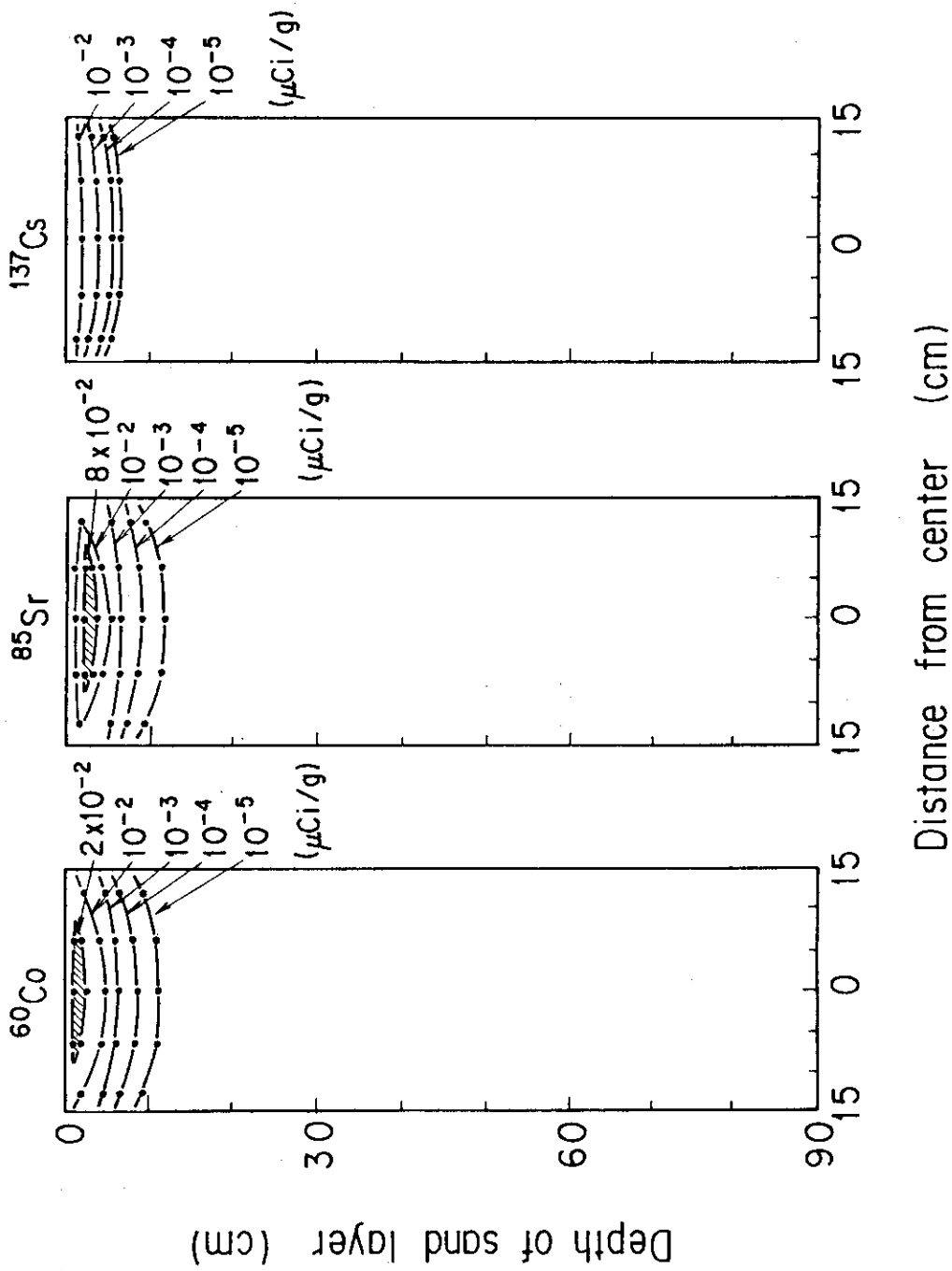


Fig. 10 Adsorption distribution of ^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs at central axis of aerated sand layer at inflow solution of pH 3. ($1 \mu\text{Ci} = 3.7 \times 10^4 \text{Bq}$)

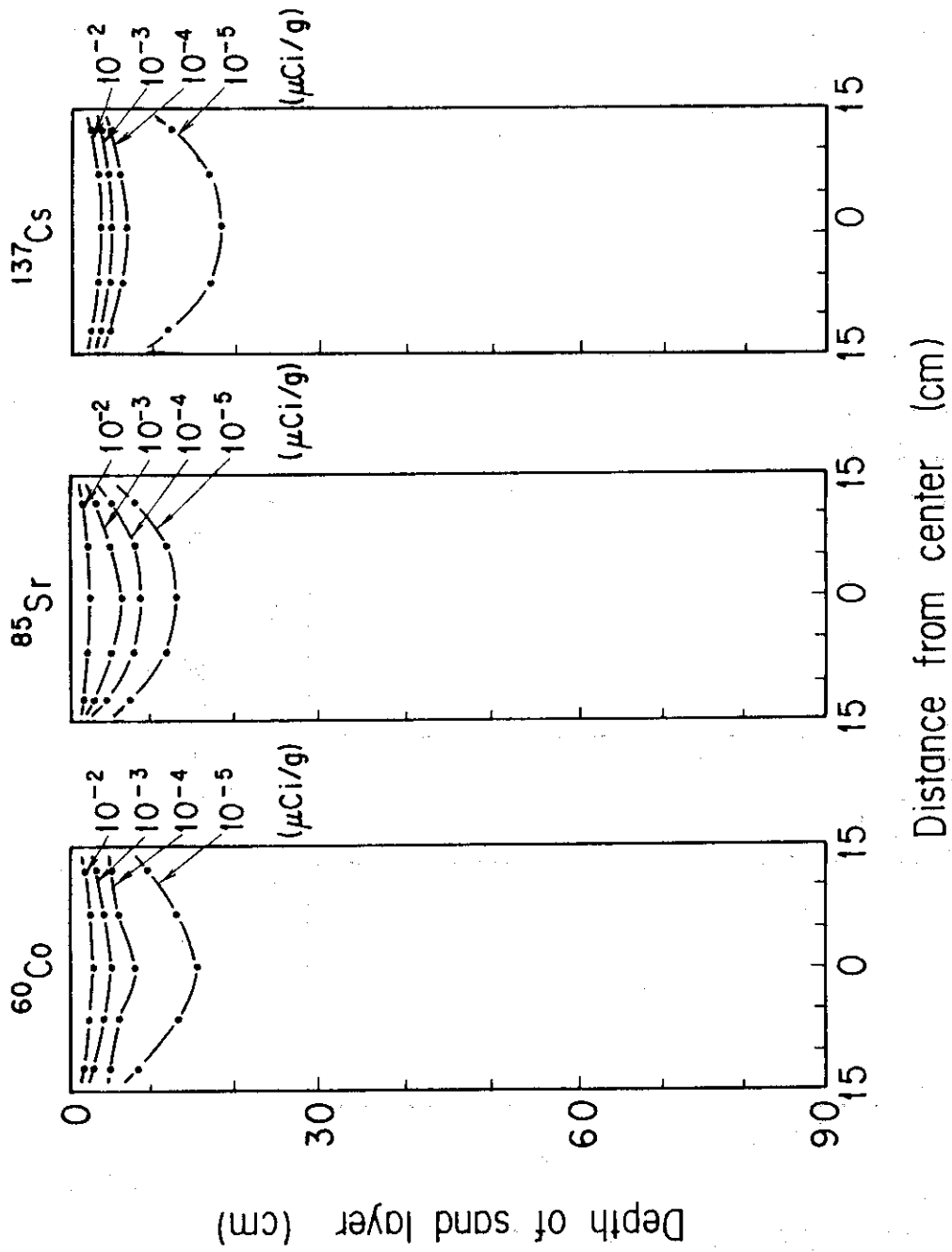


Fig. 11 Adsorption distribution of ^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs at central axis of aerated sand layer at inflow solution of pH 7. ($1 \mu\text{Ci}=3.7 \times 10^4 \text{Bq}=37\text{kBq}$)

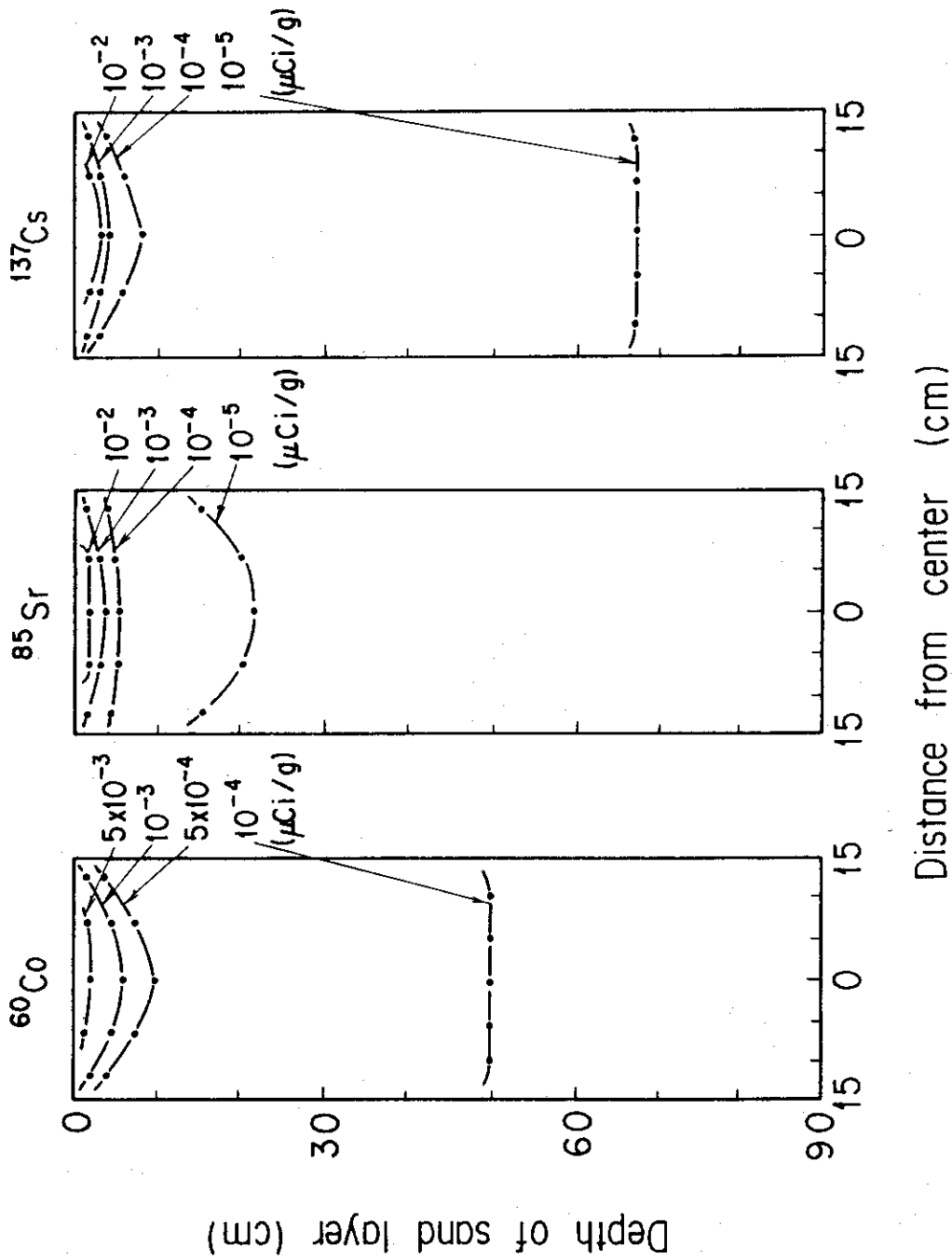


Fig. 12 Adsorption distribution of ^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs at central axis of aerated sand layer at inflow solution of pH 11. ($1 \mu\text{Ci} = 3.7 \times 10^4 \text{Bq} = 37 \text{kBq}$)

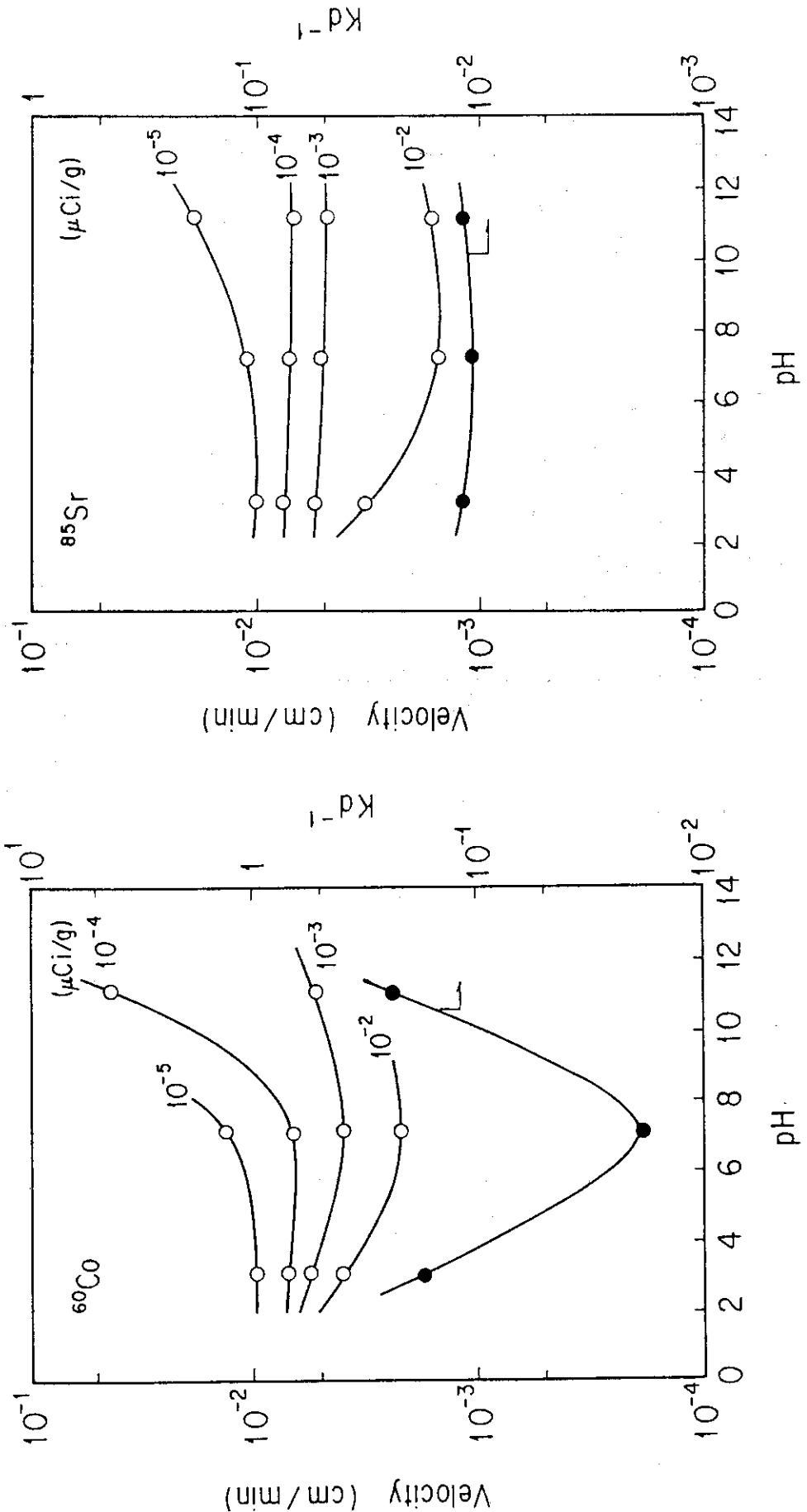


Fig. 13 Effect of pH on migration velocity of ^{60}Co in aerated sand layer.

Fig. 14 Effect of pH on migration velocity of ^{85}Sr in aerated sand layer.

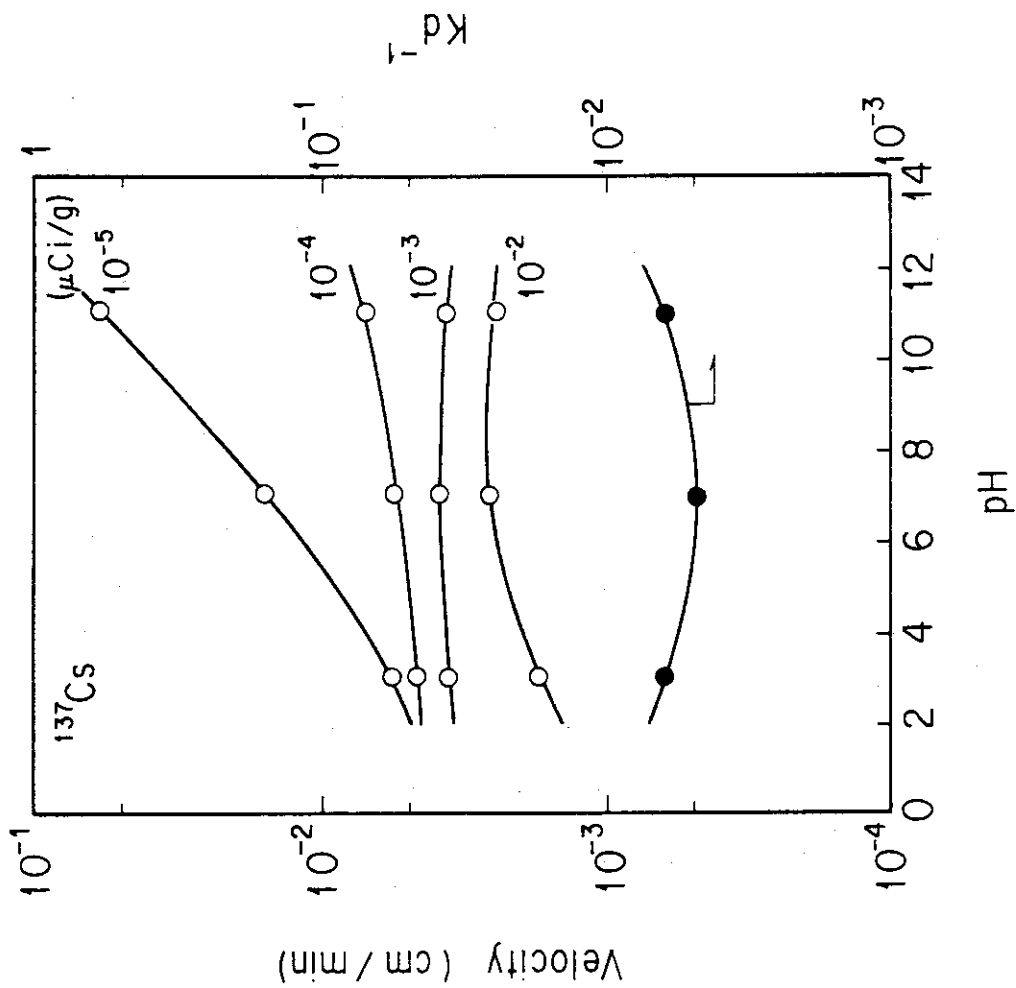


Fig. 15 Effect of pH on migration velocity of ^{137}Cs in aerated sand layer.