

JAERI - M
91-118

TRU核種の移行評価を目的とした
分配係数の実験的取得手法

1991年8月

田中 忠夫・神山 秀雄

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。
入手の間合わせは、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, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

TRU核種の移行評価を目的とした
分配係数の実験的取得手法

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
田中 忠夫・神山 秀雄

(1991年7月4日受理)

青森県下北地方の代表的である砂岩、凝灰岩および砂質土壌を用いて、アメリカシウムおよびプルトニウムのバッチ法による分配係数測定実験を行った。

アメリカシウムおよびプルトニウムの分配係数は、吸着反応開始時の人工地下水のpHおよび固液分離条件によって影響を受けることを見出した。これに基づき、地層中を移行できる化学種は地層の間隙径、浸透水のpHなどによって異なるので、分配係数は地層間における核種の移行経路によって変化することを示した。

天然バリア中における TRU核種の移行評価に用いるのに妥当な分配係数を得るためには、地層構造、各地層の物理化学的特性および移行経路を考慮した実験条件を選定することが必要であると結論した。

Experimental Method for Determining Distribution Coefficients
of TRU Nuclides for Evaluating Their Migration Behaviors

Tadao TANAKA and Hideo KAMIYAMA

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

(Received July 4, 1991)

Distribution coefficients of americium and plutonium were measured by batch experiments for typical geological formations at Shimokita area in Aomori prefecture, sand stone, tuff rock and sandy soil.

The distribution coefficients of both nuclides were largely affected by pH of the used synthetic ground water as well as by the separating condition of solid-liquid phase. It has been shown that their distribution coefficients are varied by their transfer route among geological formations, since their chemical species, which can move through a certain geological formation, are depending on its pore size and the pH of infiltrating water in it.

It was concluded that consideration on the structure of geological formations and their physico-chemical properties should be taken in the measurement of effective distribution coefficients for evaluating the migration behavior of TRU nuclides.

Keywords: Distribution Coefficient, Americium, Plutonium, Batch Experiment, Sand Stone, Tuff Rock, Sandy Soil, pH, Separation, Transfer Route, Geological Formation

目 次

1. 緒 言	1
2. 実 験	1
2.1 測定実験対象試料および使用水	1
2.2 実験方法	2
3. 結 果	3
3.1 ^{241}Am の吸着実験	3
3.2 ^{238}Pu の吸着実験	3
4. 考 察	4
4.1 ^{241}Am および ^{238}Pu の吸着特性	4
4.2 分配係数の評価方法	5
4.3 移行評価に用いる分配係数選定について	6
5. 結 言	7
謝 辞	7
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1 Materials	1
2.2 Experimental Method	2
3. Results	3
3.1 Sorption of ^{241}Am	3
3.2 Sorption of ^{238}Pu	3
4. Discussion	4
4.1 Properties of ^{241}Am and ^{238}Pu on Sorption Experiment	4
4.2 Method for Evaluating Distribution Coefficient	5
4.3 Illustration of Determining Effective Distribution Coefficient	6
5. Conclusion	7
Acknowledgement	7
References	7

1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物を地中へ最終貯蔵あるいは処分する場合、その安全性を長期にわたり確保することが必要である。低レベル放射性廃棄物中にはプルトニウム等の TRU核種は極微量しか含まれていないが、その半減期が極めて長いので、低レベル放射性廃棄物陸地処分の長期安全評価において重要な役割を占める可能性がある。このことから、TRU核種の人間社会への接近に対する最終的バリアとなる浅地層が有する TRU核種移行阻止能力の評価が重要な研究課題として注目されている。

TRU核種の浅地層中での移動性は、地中水と地層との間における吸着現象に支配されており、主として分配係数に依存するところが大きい。したがって、浅地層が有するTRU核種移行阻止能力を正確に評価するためには、信頼性の高い TRU核種分配係数を取得する手法を確立することが要求される。

一般に固・液相間における化学種 X の分配平衡に係る分配係数は、固相中の化学種濃度 $[X]_{\text{solid}}$ と液相中の化学種濃度 $[X]_{\text{liquid}}$ との比で定義される。しかしながら、TRU核種の化学形は pH, Eh, 錯生成物質等の影響を強く受けるので、環境中における TRU核種の存在状態は種々の化学種が混在した系になっている。

このような TRU核種の移行を総合的に評価するため用いる分配係数としては、固相中の各化学種濃度、 $[X_i]_{\text{solid}}$ の総和と液相中の同一化学種濃度、 $[X_i]_{\text{liquid}}$ の総和との比、すなわち、 $K_d \equiv \sum [X_i]_{\text{solid}} / \sum [X_i]_{\text{liquid}}$ で定義される値がより現実的であると考えられる。

ここで、 $\sum [X_i]_{\text{solid}}$ と $\sum [X_i]_{\text{liquid}}$ との比は、移行評価の対象および環境により異なってくる。本研究では、青森県上北郡六ヶ所村から採取した土壌および岩石を対象として、固液分離条件および初期設定 pH を変えたバッチ法によるアメリシウムおよびプルトニウムの吸着実験を行い、浮遊性微粒子を含む核種の化学的存在状態の固液分配比への影響を調べた。さらに、得られた固液分配比から、堆積岩等中での移行を評価するために用いる分配係数として、より信頼性の高い値を選定する手法について検討した。

本報告では、これらの実験および検討の結果について述べる。

2. 実 験

2.1 測定実験対象試料および使用水

実験に用いた試料は、青森県上北郡六ヶ所村から採取した砂岩（深度76m）、凝灰岩（深度6m）

1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物を地中へ最終貯蔵あるいは処分する場合、その安全性を長期にわたり確保することが必要である。低レベル放射性廃棄物中にはプルトニウム等の TRU核種は極微量しか含まれていないが、その半減期が極めて長いため、低レベル放射性廃棄物陸地処分の長期安全評価において重要な役割を占める可能性がある。このことから、TRU核種の人間社会への接近に対する最終的バリアとなる浅地層が有する TRU核種移行阻止能力の評価が重要な研究課題として注目されている。

TRU核種の浅地層中での移動性は、地中水と地層との間における吸着現象に支配されており、主として分配係数に依存するところが大きい。したがって、浅地層が有するTRU核種移行阻止能力を正確に評価するためには、信頼性の高い TRU核種分配係数を取得する手法を確立することが要求される。

一般に固・液相間における化学種 X の分配平衡に係る分配係数は、固相中の化学種濃度 $[X]_{\text{solid}}$ と液相中の化学種濃度 $[X]_{\text{liquid}}$ との比で定義される。しかしながら、TRU核種の化学形は pH, Eh, 錯生成物質等の影響を強く受けるので、環境中における TRU核種の存在状態は種々の化学種が混在した系になっている。

このような TRU核種の移行を総合的に評価するため用いる分配係数としては、固相中の各化学種濃度、 $[X_i]_{\text{solid}}$ の総和と液相中の同一化学種濃度、 $[X_i]_{\text{liquid}}$ の総和との比、すなわち、 $K_d \equiv \sum [X_i]_{\text{solid}} / \sum [X_i]_{\text{liquid}}$ で定義される値がより現実的であると考えられる。

ここで、 $\sum [X_i]_{\text{solid}}$ と $\sum [X_i]_{\text{liquid}}$ との比は、移行評価の対象および環境により異なってくる。本研究では、青森県上北郡六ヶ所村から採取した土壌および岩石を対象として、固液分離条件および初期設定 pH を変えたバッチ法によるアメリシウムおよびプルトニウムの吸着実験を行い、浮遊性微粒子を含む核種の化学的存在状態の固液分配比への影響を調べた。さらに、得られた固液分配比から、堆積岩等中での移行を評価するために用いる分配係数として、より信頼性の高い値を選定する手法について検討した。

本報告では、これらの実験および検討の結果について述べる。

2. 実 験

2.1 測定実験対象試料および使用水

実験に用いた試料は、青森県上北郡六ヶ所村から採取した砂岩（深度 76m）、凝灰岩（深度 6m）

および砂質土壌（深度4m）である。各試料の物理化学的特性をTable 1にまとめて示した。凝灰岩および砂岩は粉碎し1~3mmにふるい分けた後風乾した粗粒試料、土壌はそのまま風乾したものを測定用試料とした。細かく粉碎した試料(粒径50 μ m以下)では、岩石を構成する鉱物粒子間の接合部分をも破壊して吸着に寄与させてしまう可能性が考えられるので、本実験においては岩石試料として粗粒試料を用いた。

分配係数測定に使用した水は、試料採取地点近傍の帯水層から採取した地下水の K^+ 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、 HCO_3^- 、および SO_4^{2-} 濃度を模擬した合成地下水である。使用した合成地下水の組成をTable 2に示す。

2.2 実験方法

実験手法のフローチャートをFig. 1に示す。

分配係数測定実験に用いたTRU核種とその原子価は、 $^{238}Pu(IV)$ と $^{241}Am(III)$ である。 $^{238}Pu(IV)$ は、実験の前にTTA-Xylene抽出法⁽¹⁾によってプルトニウム原液からプルトニウム(IV)のみを選択的に抽出したものである。これらの1N硝酸水溶液を合成地下水で希釈し、0.1Nの水酸化ナトリウムによりpHを5（イオン強度： 8.6×10^{-4} ）および9（イオン強度： 8.6×10^{-4} ）に調節した後24時間静置したものを実験に使用した。

吸着実験は、試料10gを入れた500mlのガラス製三角フラスコに ^{238}Pu または ^{241}Am 水溶液200mlを加え、10 $^{\circ}C$ の恒温水槽中で4週間振盪攪拌して行った。吸着率を調べるため、1日後、1、2、3および4週間後に振盪を停止し、1時間静置した後の上澄み液1mlの計数率をAloka製液体シンチレーション・カウンター(LSC-702)で測定した。なお、4週間後の場合については、液相10mlを3000Gで30分間遠心分離して浮遊物を除去した後の液の計数率もあわせて測定した。また、吸着反応期間中における ^{241}Am および ^{238}Pu 水溶液の濃度変動を調べるため、ブランク試験（試料を入れない実験）を吸着実験と並行して行った。ブランク試験では、振盪停止直後ならびに1時間静置後の両方の計数率を測定した。

実験中の容器壁への ^{238}Pu および ^{241}Am の付着量を調べるため、吸着実験終了後1N硝酸50mlでフラスコ壁を洗浄した液の計数率も測定した。また、吸着反応前後のpHおよびEhの変化を堀場製作所製pH、Ehメーター(E-8DP)で確認した。

これら一連の操作は実験雰囲気調整を特に行わず、空気開放系で行った。

3. 結 果

3.1 ^{241}Am の吸着実験

初期設定pHが5および9で行った ^{241}Am の吸着実験ならびに並行して行ったブランク試験での液相の計数率(cpm/ml), 遠心分離後の液相の計数率および容器壁に付着した ^{241}Am の計数率をTable 3に示す。容器壁に付着した ^{241}Am の計数率は, 容器壁へ付着した ^{241}Am の全計数率を液量(200ml)で除することにより, 1ml当りに換算した。

ブランク試験において, 反応開始時の ^{241}Am 水溶液の計数率は, 初期設定pHが5および9のいずれの場合も3900cpmであった。1日目以降の計数率は, pH5の場合は振盪攪拌停止直後約2700cpm, 1時間後約2500cpmに減少した。遠心分離後は2000cpmとさらに500cpm減少した。一方, pH9の場合は, 振盪攪拌停止直後が約1500cpm, 1時間後約300cpm, さらに遠心分離後は110cpm, と固液分離条件による著しい違いが確認された。このように, ブランク試験での計数率が固液分離条件により変化する原因としては, ^{241}Am の容器壁への付着が考えられる⁽²⁾⁽³⁾。容器壁への付着量をみると, 4週間後における ^{241}Am の付着量はpH5の場合が42cpm, pH9の場合が2500cpmであり, pH9の場合は容器壁への ^{241}Am 付着量が全 ^{241}Am の64%にも達することが明かとなった。同様な傾向が吸着実験の場合も観察される。

反応時間に伴う液相の計数率の変化をみると, 試料の種類およびpHの値によらず1週間で吸着反応が概ね平衡に到達しており, 4週間の固液接触時間は分配係数測定のための吸着反応時間として十分であることが分かる。

吸着反応前後のpH, EhをTable 5に示す。吸着反応中のpHおよびEhの変化をみると, 実験雰囲気調整を特に行わなかったにも係わらず, 初期設定pHが5および9のいずれの場合でも, 平衡時には砂岩がpH: 9.3, Eh: 90, 凝灰岩がpH: 7.4 ~ 7.5, Eh: 170 ~ 180, 砂質土壌pH: 6.5 ~ 6.9, Eh: 200となり, 初期設定pHによる差はみられなかった。

3.2 ^{238}Pu の吸着実験

^{238}Pu の吸着実験における液相の計数率, pHおよびEh測定結果を ^{241}Am の場合と同様にTable 4に示す。ブランク試験において, 反応開始時の ^{238}Pu の液相計数率は, pH5の場合が30000cpm, pH9の場合が32000cpmであった。1日目以降の液相計数率は ^{241}Am と同様に, 振盪攪拌停止直後, 1時間後, 遠心分離後の順に減少するものの, 液相計数率が日数の経過とともに徐々に減少する傾向, あるいはpH9の場合の液相計数率がpH5の場合より高い傾向等, ^{241}Am の場合と異なる結果が得られた。

容器壁への付着量を測定した結果も ^{241}Am の場合と異なり, ブランク試験および吸着実験のいず

れにおいてもpH 5の方がpH 9の場合より容器壁への付着量が多いことが観察された。

反応時間にもなう液相の計数率の変化をみると、各試料ごとの計数率のバラツキが大きいものの、初期設定pHおよび試料によらず1～2週間で吸着反応はほぼ平衡に到達したものとみなせる。

Table 5から、平衡時におけるpHおよびEhは、 ^{241}Am の場合と同様に初期設定pHによる差がほとんどみられなかった。

4. 考 察

4.1 ^{241}Am および ^{238}Pu 吸着特性

Table 3および4における反応時間にもなう液相計数率の変化は、初期設定pHおよび試料によらず1～2週間で ^{241}Am および ^{238}Pu の吸着反応がほぼ平衡に達することを示している。このように、容器壁への ^{241}Am および ^{238}Pu の付着がかなり生じる条件であるにも係わらず、 ^{241}Am および ^{238}Pu の吸着反応が1～2週間で平衡に到達するという事実は、 ^{241}Am および ^{238}Pu の各試料への吸着が試料内部への拡散等によるものではなく、主として表面反応であることを示唆するものである。

Table 5のpHおよびEhの測定結果は、液相のpHおよびEhが、初期設定pH(5および9)に関係しないで、Table 1に与えられている砂岩、凝灰岩、砂質土壌にそれぞれ固有のpH、Ehに近づくことを示している。この結果は各地層試料の有するpH、Eh緩衝作用に起因するものと考えられる⁽⁴⁾。したがって、地層中の水は、pH、Eh緩衝作用により常に各地層試料固有のpH、Ehを呈することになる。しかしながら、Table 3および4から明らかなように、初期に設定したpHによって吸着反応がかなりの影響を受けるので、 ^{241}Am および ^{238}Pu が化学的性質の異なる地層間を移行する場合、pH、Ehの変動方向を考慮することが必要となるであろう。

Table 3および4で、ブランク試験における液相計数率がpHや固液分離条件によって変化する原因としては、 ^{241}Am や ^{238}Pu の容器壁への付着の他に、以下に述べるような粒子性化学種の生成が考えられる。

Table 4について ^{238}Pu のブランク試験における液相計数率をみると、pH 5の場合がpH 9の場合より高い傾向を示すにも係わらず、容器壁への付着量もpH 5の場合がpH 9の場合より高い傾向を示すという一見矛盾しているような結果がみられる。また、pH 5のブランク試験での ^{238}Pu の収支を調べるため、反応開始時(30000cpm)と4週間後(23000cpm；4週間後の液相計数率(6000cpm)と容器壁付着量(17000cpm)との和)の液相計数率を比較すると、4週間後の ^{238}Pu の計数率は反応開始時に比べ7000cpm低くなる。すなわち、7000cpmに相当する ^{238}Pu が4週間の間に見掛け上減少したこととなる。

プルトニウムは、炭酸イオンとの反応ならびに加水分解反応によりコロイド状化学種を生成する

れにおいてもpH 5の方がpH 9の場合より容器壁への付着量が多いことが観察された。

反応時間にもなう液相の計数率の変化をみると、各試料ごとの計数率のバラツキが大きいものの、初期設定pHおよび試料によらず1～2週間で吸着反応はほぼ平衡に到達したものとみなせる。

Table 5から、平衡時におけるpHおよびEhは、 ^{241}Am の場合と同様に初期設定pHによる差がほとんどみられなかった。

4. 考 察

4.1 ^{241}Am および ^{238}Pu 吸着特性

Table 3および4における反応時間にもなう液相計数率の変化は、初期設定pHおよび試料によらず1～2週間で ^{241}Am および ^{238}Pu の吸着反応がほぼ平衡に達することを示している。このように、容器壁への ^{241}Am および ^{238}Pu の付着がかなり生じる条件であるにも係わらず、 ^{241}Am および ^{238}Pu の吸着反応が1～2週間で平衡に到達するという事実は、 ^{241}Am および ^{238}Pu の各試料への吸着が試料内部への拡散等によるものではなく、主として表面反応であることを示唆するものである。

Table 5のpHおよびEhの測定結果は、液相のpHおよびEhが、初期設定pH(5および9)に関係しないで、Table 1に与えられている砂岩、凝灰岩、砂質土壌にそれぞれ固有のpH、Ehに近づくことを示している。この結果は各地層試料の有するpH、Eh緩衝作用に起因するものと考えられる⁽⁴⁾。したがって、地層中の水は、pH、Eh緩衝作用により常に各地層試料固有のpH、Ehを呈することになる。しかしながら、Table 3および4から明らかなように、初期に設定したpHによって吸着反応がかなりの影響を受けるので、 ^{241}Am および ^{238}Pu が化学的性質の異なる地層間を移行する場合、pH、Ehの変動方向を考慮することが必要となるであろう。

Table 3および4で、ブランク試験における液相計数率がpHや固液分離条件によって変化する原因としては、 ^{241}Am や ^{238}Pu の容器壁への付着の他に、以下に述べるような粒子性化学種の生成が考えられる。

Table 4について ^{238}Pu のブランク試験における液相計数率をみると、pH 5の場合がpH 9の場合より高い傾向を示すにも係わらず、容器壁への付着量もpH 5の場合がpH 9の場合より高い傾向を示すという一見矛盾しているような結果がみられる。また、pH 5のブランク試験での ^{238}Pu の収支を調べるため、反応開始時(30000cpm)と4週間後(23000cpm；4週間後の液相計数率(6000cpm)と容器壁付着量(17000cpm)との和)の液相計数率を比較すると、4週間後の ^{238}Pu の計数率は反応開始時に比べ7000cpm低くなる。すなわち、7000cpmに相当する ^{238}Pu が4週間の間に見掛け上減少したこととなる。

プルトニウムは、炭酸イオンとの反応ならびに加水分解反応によりコロイド状化学種を生成する

ことが知られている^{(5) (6)}。さらに、このコロイド状化学種が重合して成長し、50 μm 以上もの粒径を持つ巨大粒子を形成するという事実も報告されている⁽⁷⁾。これらのことから、見掛け上減少した計数率(7000cpm)に相当する ^{238}Pu は、4週間に比重の大きな巨大粒子を形成し、容器底に沈降したと推測される。

^{241}Am と ^{238}Pu との結果を比較すると、ブランク試験での液相計数率のpH依存性、容器壁への吸着傾向等異なる傾向がいくつか見出された。これは、以上に述べた化学的存在状態の変化が生じる条件(例えば、PuはpHが1の溶液中でさえ加水分解して重合体を形成する^{(5) (7)})が、元素ごとにそれぞれ異なる⁽⁸⁾ためであると考えられる。

本実験では、上述したように液相中の粒子性化学種および容器壁への付着に相当する計数率がかなり高いので、液相計数率から ^{241}Am および ^{238}Pu の分配係数を算出する場合、得られる分配係数値に無視できないほど大きい影響を与えることになる。

4.2 分配係数の評価方法

本実験結果から分配係数を計算する場合、浮遊性微粒子を $[X_i]_{\text{solid}}$ とみなすか、あるいは $[X_i]_{\text{liquid}}$ とみなすかで、得られる分配係数値は異なってくる。すなわち、遠心分離によってはじめて沈降するフラクションを堆積岩中の液相に存在して堆積岩の細孔中を移行できる物質とみなすと、(1)式で表されるように4週後の上澄液の計数率、 C_0 (cpm/ml)を液相の濃度として計算した Kd_1 が得られる。

$$Kd_1 = \frac{C_0 - (C_e + C_w)}{C_e} \times \frac{200\text{ml}}{10\text{g}} \quad (1)$$

ここで、 C_0 : 反応開始時の液相計数率(cpm/ml)

C_w : 容器壁への付着量(cpm/ml)

これに対して、遠心分離によって沈降するフラクションを堆積岩の細孔中を移行できずに固相に捕集される物質とみなすと、(2)式で表されるように遠心分離後の液の計数率、 C_s (cpm/ml)を液相の濃度として計算した Kd_2 が得られる。

$$Kd_2 = \frac{C_0 - (C_s + C_w)}{C_s} \times \frac{200\text{ml}}{10\text{g}} \quad (2)$$

これら Kd_1 、 Kd_2 のどちらが堆積岩中の移行評価に用いる分配係数として妥当であるかは、試料採取地点の地層構造等に基づいて検討する必要がある。

本測定実験の結果について算出した Kd_1 、および Kd_2 の2種類の分配係数値をTable 6に示す。全ての場合において Kd_2 は Kd_1 より1.5倍~1.9倍大きい値となり、遠心分離によって沈降するフラクションの取扱い方で分配係数の値にかなりの違いが生じた。

初期設定pHの影響をみると、 ^{241}Am の分配係数は、反応前に設定したpHが9より5の場合の方が大きな値となった。一方、 ^{238}Pu の分配係数は、凝灰岩および砂岩では設定したpHによらずほぼ同じ値

であったが、砂質土壌では設定したpHが5より9のときの方が大きな値となった。このように、反応開始時のpHの違いも分配係数に無視できない影響を与えることが明らかとなった。

4.3 移行評価に用いる分配数選定について

吸着反応開始時のpHおよび固液分離条件を変えて測定した ^{241}Am と ^{238}Pu の分配係数を移行評価のために用いる場合の妥当性について考察した。このため、Fig. 2に示すような貯蔵施設（コンクリートピット）から砂質土壌層、凝灰岩層、砂岩層へ移行するケース、砂質土壌層を経てより深部の砂岩層あるいは凝灰岩層への移行するケースならびに凝灰岩層・砂岩層間相互に移行するケースをTRU核種の移行経路として想定した。

砂質土壌は土壌粒子間の間隙が大きく、遠心分離によって沈降する浮遊性微粒子は間隙中を移行する可能性がある。したがって、移行評価に用いる分配係数としては、 Kd_1 のように浮遊性微粒子は液相に存在するものとみなした場合の分配係数を用いることがより現実的であると考えられる。一方、砂岩および凝灰岩層は構造がより緻密であるため細孔径が小さく、遠心分離によって沈降する浮遊性微粒子は固相に捕集されやすいと考えられる。したがって、 Kd_2 のように浮遊性微粒子は固相に存在するものとみなした場合の分配係数を用いる方がより現実的であると思われる。

各地層の有する緩衝pHの値は、砂質土壌層が約6.5、凝灰岩層が約7.5、砂岩層が約9.0である。これに対し、コンクリートピットから漏洩する水は塩基性でpH11~12程度⁽⁹⁾であることが推定されるので、調製液のpHを塩基性側に設定して測定した分配係数を用いるべきであろう。したがって、ピットからの漏洩水を対象とした場合、砂質土壌層については初期設定pH9の場合の Kd_1 のような分配係数、凝灰岩層および砂岩層には初期設定pH9の場合の Kd_2 のような分配係数を移行評価に用いる分配係数として採用することが、TRU核種の化学形および地層構造を考慮した分配係数の選定であると考えられる。

砂質土壌層から凝灰岩層へ浸透する水のpHは6.5から7.5へ、また砂質土壌層から砂岩層へ浸透する水のpHは6.5から9.0へと共にpH6.5からより塩基性側に変化する。したがって、砂質土壌層からの浸透水を対象とした場合、砂岩層および凝灰岩層では初期設定pH5の場合の Kd_2 のような分配係数を用いることが、地層構造を反映した分配係数の選定といえるであろう。

凝灰岩層・砂岩層間相互の移行も同様に考えると、凝灰岩層からの浸透水を対象とした場合の砂岩層では初期設定pH5の場合の Kd_2 のような分配係数を、逆に砂岩層からの浸透水を対象とした場合の凝灰岩層では初期設定pH9の場合の Kd_2 のような分配係数を用いることが、地層構造を反映した分配係数の選定であると考えられる。

5. 結 言

青森県下北地方の代表的地層を用いてTRU核種の分配係数をバッチ法で測定し、TRU核種の地層中移行評価に用いる適切な分配係数を得るための実験結果の取扱い方を検討した結果、以下のことが明らかになった。

(1) 核種の固液分配比の値は、吸着反応開始時のpHおよび固液分離法によって無視できない影響を受けることが見出された。

(2) 移行評価を行う上で用いる分配係数としては、地層構造および各地層の物理化学的特性を考慮した測定条件において得られた固液分配比に基づく値を用いる必要がある。

また、移行評価に用いる適切な分配係数をバッチ法で得る手法を確立するためには、今後次のような研究課題に取り組む必要があると考えられる。

(1) TRU核種のカラム移行実験を行って得られる遅延係数と今回のバッチ実験で得られた結果とを比較して、今回考察した選定基準の妥当性を検討する必要がある。

(2) 液相中の浮遊性微粒子を、堆積岩中を移行できる成分と固相に留る成分のいずれに区分すべきか判断する方法を確立する必要がある。

(3) 岩石試料については、粗粒試料で測定した分配係数値を岩石層中での移行評価に適用する妥当性についてさらに検討を要する。

謝 辞

本研究をとおして、貴重な御助言を頂いた環境安全研究部の和達嘉樹次長に深く感謝の意を表します。また、本報告をまとめるに際して多大な御協力を頂いた環境安全研究部浅地処分研究室武部慎一氏ならびに小川弘道氏に謝意を表します。

5. 結 言

青森県下北地方の代表的地層を用いてTRU核種の分配係数をバッチ法で測定し、TRU核種の地層中移行評価に用いる適切な分配係数を得るための実験結果の取扱い方を検討した結果、以下のことが明らかになった。

(1) 核種の固液分配比の値は、吸着反応開始時のpHおよび固液分離法によって無視できない影響を受けることが見出された。

(2) 移行評価を行う上で用いる分配係数としては、地層構造および各地層の物理化学的特性を考慮した測定条件において得られた固液分配比に基づく値を用いる必要がある。

また、移行評価に用いる適切な分配係数をバッチ法で得る手法を確立するためには、今後次のような研究課題に取り組む必要があると考えられる。

(1) TRU核種のカラム移行実験を行って得られる遅延係数と今回のバッチ実験で得られた結果とを比較して、今回考察した選定基準の妥当性を検討する必要がある。

(2) 液相中の浮遊性微粒子を、堆積岩中を移行できる成分と固相に留る成分のいずれに区分すべきか判断する方法を確立する必要がある。

(3) 岩石試料については、粗粒試料で測定した分配係数値を岩石層中での移行評価に適用する妥当性についてさらに検討を要する。

謝 辞

本研究をとおして、貴重な御助言を頂いた環境安全研究部の和達嘉樹次長に深く感謝の意を表します。また、本報告をまとめるに際して多大な御協力を頂いた環境安全研究部浅地処分研究室武部慎一氏ならびに小川弘道氏に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) Moore F.L. and Hudgens, Jr J.E.; Anal. Chem., 29, 1767 (1957).
- 2) 妹尾 宗明, 他; JAERI-M 88-038, (1988).
- 3) Weiss A.J. and Colombo P.; NUREG/CR-1289, BNL-NUREG-51143, (1979).
- 4) 高井 康雄, 三好 洋; “土壤通論”, 44 (1977), 朝倉書店.
- 5) Sanchez A.L., Schell W.R. and Sibley T.H.; “Environmental Migration of Long-lived radionuclides”, IAEA-SM-257/90P, p.188 (1982), Vienna.
- 6) Andersson K., Torsténfelt B. and Allard B.; ibid, IAEA -SM-257/20, p.111 (1982), Vienna.
- 7) 青柳 寿夫, 他; 日化誌, 1249 (1984).
- 8) Poubaix M.; “Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions”, 210 (1966), Pergamon Press.
- 9) 松鶴 秀夫, 他; JAERI-M 6361, (1976).

Table 1 Physico-chemical properties of sample.

	Sand stone	Tuff rock	Sandy soil
Density (g/ml)	2.81	2.57	2.65
Mineral composition			
Quartz	Minor	Medium	Major
Stilbite	-	-	-
Smectite	Minor	Medium	-
Chlorite	-	-	Trace
Plagioclase	Major	Major	Major
K-feldspar	-	Trace	Trace
Amphibopar	Trace	Trace	-
Clinopyroxene	Medium	-	-
Orthopyroxene	Minor	-	-
Calcite	Minor	-	-
Amorphous	-	Major	-
Cation extracted by distilled water (meq/100g)			
K ⁺	12	3.8	0.8
Na ⁺	209	26	9.6
Mg ²⁺	1.6	4.9	1.9
Ca ²⁺	4.0	4.4	2.8
CEC (meq/100g)	24.8	16.5	1.8
pH value of contacted water			
pH(H ₂ O)	9.6	8.5	8.2
pH(KCl)	7.3	5.5	5.8
Specific surface area (m ² /g)	41.4	30.0	23.8

Table 2 Ion composition of synthetic ground water.

Ion species	Concentration (ppm)
K ⁺	0.84
Na ⁺	8.6
Mg ²⁺	1.9
Ca ²⁺	2.0
Cl ⁻	15.2
HCO ₃ ⁻	6.2
SO ₄ ²⁻	6.2

Table 3 ^{241}Am concentration of liquid phase.

(a) Initial pH 5

		Concentration (cpm)							
		[Initial]	[1 d]	[1 w]	[2 w]	[3 w]	[4 w]	[Centrifuge]	[Container]
Blank test	Shaker stop	3900	2700	2900	2700	2600	2600	2000	42
	1 hr after	3900	-	2600	2500	2500	2500		
Sorption experiment	Sand stone	3900	1100	490	500	460	350	100	30
	Tuff rock	3900	110	110	120	130	140	33	37
	Sandy soil	3900	64	8	6	7	8	<1.8	78

(b) Initial pH 9

		Concentration (cpm)							
		[Initial]	[1 d]	[1 w]	[2 w]	[3 w]	[4 w]	[Centrifuge]	[Container]
Blank test	Shaker stop	3900	1500	1700	1700	1100	1600	110	2500
	1 hr after	3900	-	370	310	200	1000		
Sorption experiment	Sand stone	3900	950	370	620	470	470	97	2500
	Tuff rock	3900	440	280	210	220	270	50	1300
	Sandy soil	3900	94	17	14	6	14	<1.8	1300

Shaker stop: sampling at the stop time of shaker.

1 hr after: sampling after 1 hr from the stop time of shaker.

[Centrifuge]: after centrifugation.

[Container]: on container wall.

Table 4 ^{238}Pu concentration of liquid phase.

(a) Initial pH 5

		Concentration (cpm)							
		[Initial]	[1 d]	[1 w]	[2 w]	[3 w]	[4 w]	[Centrifuge]	[Container]
Blank test	Shaker stop	30000	20000	9900	7400	6100	6000	4300	17000
	1 hr after	30000	14000	6200	4900	4500	4400		
Sorption experiment	Sand stone	30000	12000	13000	13000	12000	10000	1700	190
	Tuff rock	30000	11000	8700	7300	8300	11000	2100	2700
	Sandy soil	30000	880	540	630	390	610	380	1400

(b) Initial pH 9

		Concentration (cpm)							
		[Initial]	[1 d]	[1 w]	[2 w]	[3 w]	[4 w]	[Centrifuge]	[Container]
Blank test	Shaker stop	32000	31000	25000	24000	21000	11000	7700	10000
	1 hr after	32000	22000	19000	19000	16000	14000		
Sorption experiment	Sand stone	32000	20000	19000	15000	15000	17000	1900	1700
	Tuff rock	32000	17000	15000	11000	12000	13000	28000	1700
	Sandy soil	32000	1500	330	230	290	280	130	660

Shaker stop: sampling at the stop time of shaker.

1 hr after: sampling after 1 hr from the stop time of shaker.

[Centrifuge]: after centrifugation.

[Container]: on container wall.

Table 5 pH and Eh of liquid phase after 4 weeks.

		pH		Eh (mV)		
		Initial pH	pH 5	pH 9	pH 5	pH 9
^{241}Am	Blank test		5.8	7.2	215	202
	Sand stone		9.3	9.3	92	91
	Tuff rock		7.5	7.4	182	168
	Sandy soil		6.5	6.9	206	196
^{238}Pu	Blank test		5.5	7.3	247	177
	Sand stone		9.4	9.4	101	101
	Tuff rock		7.0	7.5	195	185
	Sandy soil		6.3	6.9	230	211

Table 6 Distribution coefficient of ^{241}Am and ^{238}Pu .

Radionuclide		^{241}Am		^{238}Pu		
		Initial pH	pH 5	pH 9	pH 5	pH 9
sand stone	Kd ₁		200	40	36	16
	Kd ₂		750	270	310	300
Tuff rock	Kd ₁		530	170	30	27
	Kd ₂		2300	1000	240	200
Sandy soil	Kd ₁		9500	3700	920	2200
	Kd ₂		>42000	>29000	1500	4800

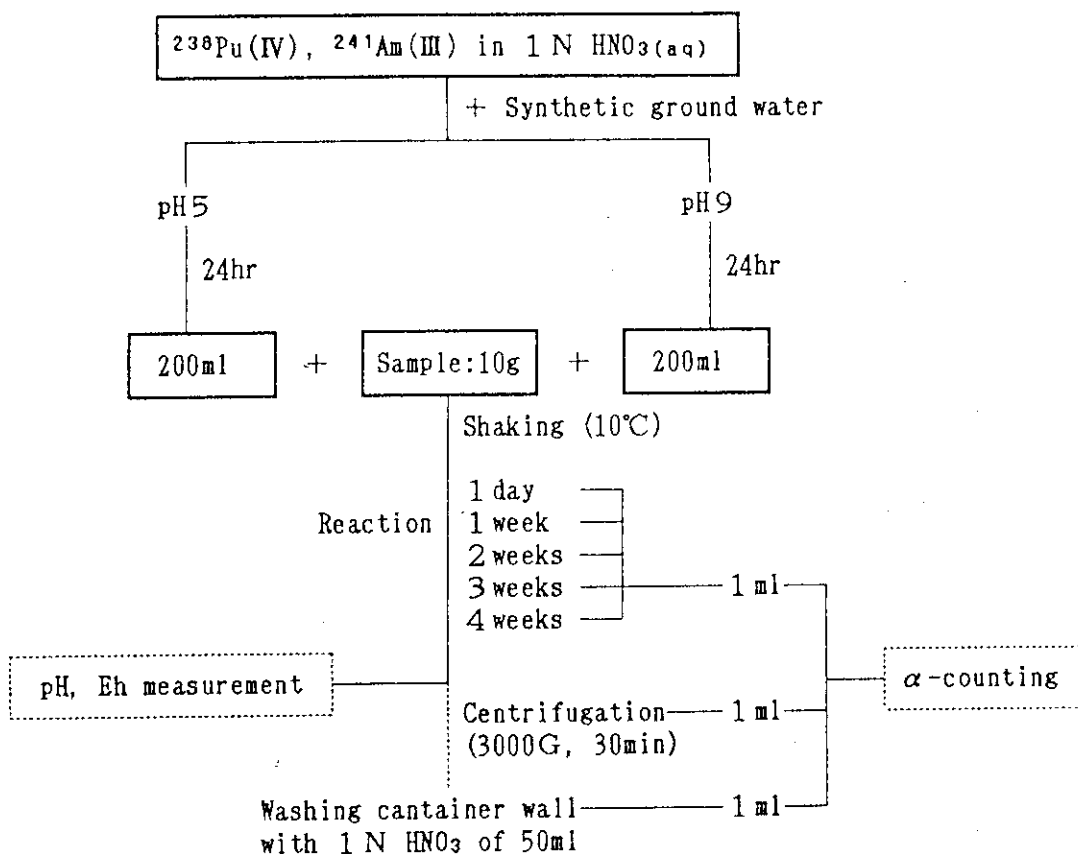


Fig. 1 Flow chart of experimental method.

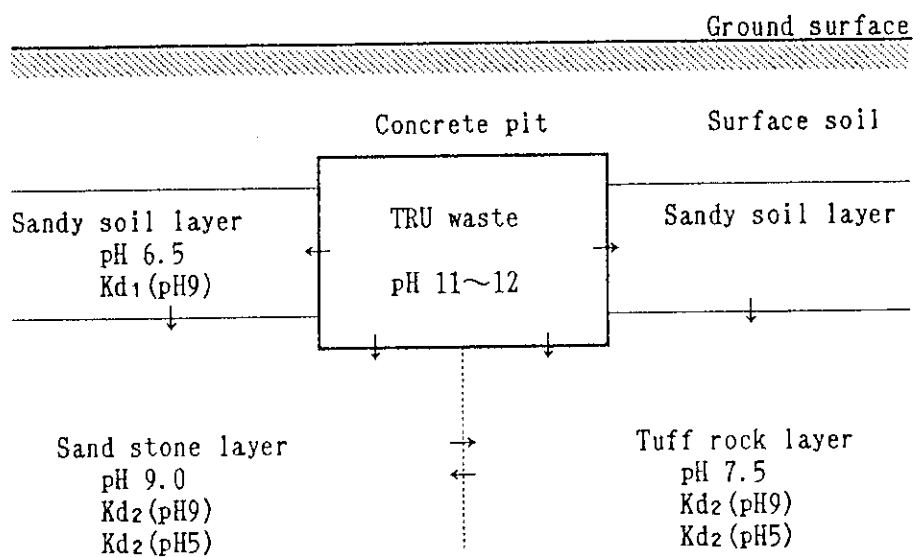


Fig. 2 Schematic diagram of TRU nuclide transfer route.