

JAERI- M

9 4 3 2

花崗岩と水におけるセシウムの分配係数  
に関する研究 (速報)

1981年4月

山形 茂\*・下岡謙司・妹尾宗明・荒木邦夫・天野 恕

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.

## 花崗岩と水におけるセシウムの分配係数に関する研究（速報）

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

山形 茂\*・下岡 謙司・妹尾 宗明

荒木 邦夫・天野 恕

（1981年3月3日受理）

地層処分の総合的安全評価の一環として、花崗岩と水におけるセシウムの分配係数を測定した。その結果溶液中のセシウム濃度が一定のときは、花崗岩の試料粒度にかかわらず単位重量当りの花崗岩へのセシウム吸着量はほぼ一定の値を取り、この値から計算される分配係数の値もほぼ一定の値を取ることが明らかになった。

また、花崗岩へのセシウム吸着量には濃度依存性があることが明らかとなり、少くとも約  $5 \mu\text{g}/\text{ml}$  から  $1000 \mu\text{g}/\text{ml}$  のセシウム濃度範囲では、花崗岩単位重量当りのセシウム吸着量は約  $50 \mu\text{g}/\text{g}$  から約  $500 \mu\text{g}/\text{g}$  まで変化し、フロイドリッヒの吸着式が成立することが明らかとなった。これより低い濃度範囲では、ヘンリーの吸着式が成立するものと推定される。以上の結果から、比較的高濃度のセシウム溶液中では、分配係数の値は約  $20 \sim 1 \text{ ml}/\text{g}$  まで変化し濃度依存性が認められるが、一方、比較的低濃度のセシウム溶液中では分配係数の値は約  $20 \text{ ml}/\text{g}$  と濃度依存性が認められなくなると推定される。

\*) 外来研究員；住友セメント（株）

Study on distribution coefficient for cesium between granite and water (Note)

Shigeru YAMAGATA\*, Kenji SHIMOOKA, Muneaki SENOO  
Kunio ARAKI and Hiroshi AMANO

Division of Environmental Safety Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received March 3, 1981)

As a part of safety evaluation of geological disposal, distribution coefficient,  $K_d$  has been measured in the laboratory. The  $K_d$  for Cs between solution and granite which is one of the candidates of igneous rocks for repository, has been measured by typical batch method.

The weight of Cs adsorbed on the unit weight of granite is constant in the case that the concentration of Cs in solution is constant. There is no dependancy of the weight of Cs adsorbed on the unit weight of granite on the surface gross area of granite at equilibrium condition. Consequently it appears that the  $K_d$ , which is calculated from the weight of Cs adsorbed on granite, is constant in the case that the concentration of Cs in solution is constant.

The value of  $K_d$  at equilibrium condition varies from 20(ml/g) to 1(ml/g) in the range of high Cs concentration solution. On the other hand in the range of low Cs concentration, it seems that the value of  $K_d$  is almost constant, independently of the Cs concentrations.

Keywords; Distribution Coefficient, Cesium, Granite, Geological Disposal, Repository, Batch Method, Adsorption, Radioactive Wastes Disposal, Concentration

---

\* On leave from Sumitomo Cement Co. Ltd.

## 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 実験方法 .....	1
3. 結果及び考察 .....	2
3.1 核種移行評価の前提 .....	2
3.2 平衡吸着量及び分配係数の求め方 .....	4
3.3 分配係数 .....	5
(1) 粒度依存性 .....	5
(2) 温度依存性 .....	5
(3) 濃度依存性 .....	6
3.4 環境影響 .....	7
4. 結 言 .....	8
謝 辞 .....	9
引用文献 .....	9

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental methods .....	1
3. Results and discussion .....	2
3.1 Premise for measurement of nuclide migration .....	2
3.2 Method for measurement of distribution coefficient .....	4
3.3 Distribution coefficient .....	5
(1) Granite sample size .....	5
(2) Solution temperature .....	5
(3) Cesium concentration .....	6
3.4 Influence to environment .....	7
4. Conclusion .....	8
Acknowledgement .....	9
Reference .....	9

## 1. 緒 言

原子力発電の使用済み核燃料再処理から発生する高レベル放射性廃棄物の処分法の一つに地下深部岩体中の処分施設に放射性廃棄物を永久処分する方法がある。<sup>13)14)</sup>

この処分施設への地下水の浸入を想定すると、その地下水が廃棄物から放射性核種を溶出させさらに地層中や岩体中の割れ目などを通り人間環境に放射性核種を移動させる可能性がある。

この漏出してくる比較的半減期の長い放射性核種による生物圏への影響を推定するために種々の核種の地層中や岩体中での移動速度を知る必要がある。

放射性核種の地層中や岩体中での移動速度に地下水の流速、岩石の間隙率、割れ目（フィッシャー及びクラック）の存在及び岩石への吸着に起因する地層中や岩体中での放射性核種の保持が影響を与える。

現在、処分岩体としては種々のものが考えられているが、広範囲に大きな岩体が存在し、浸透率、間隙率が小さく強度も大きいなどの理由で本実験では花崗岩を対象岩とし、また核種の方は半減期が比較的長寿命であり高レベル放射性廃棄物中に多量に含まれていることや吸着量が比較的 pH 条件に影響を受けないなどの理由でセシウムとした。<sup>8)~11)</sup>

花崗岩と水におけるセシウムの分配係数測定に関して Nork と Fenske 1970<sup>17)</sup> の報告がある。また土壌及び砂中における核種移動の研究は比較的多いが<sup>1)3)~6)8)~11)15)16)</sup> 花崗岩と水におけるセシウムの分配係数の測定資料は非常に少い。<sup>2)7)15)</sup> また国内では未だ報告されていない。

そこで今回、花崗岩としては原研東海研究所の近くに分布する稲田産の花崗岩を、セシウムとしては非放射性の硝酸セシウムを使用し花崗岩と水におけるセシウムの分配係数 (Kd) を測定し、吸着に吸ばず花崗岩の粒度、溶液の温度、溶液中のセシウム濃度の影響の検討を簡単に行った。

## 2. 実験方法

### <測定操作>

長時間後の平衡状態における分配係数 (Kd) を求めるため簡便なバッチ法により測定を行った。装置の概念を図 1 に示す。

共栓付フラスコ (300 ml) に一定粒度の花崗岩 (20 g) と所定の濃度の硝酸セシウム溶液 (200 ml) を入れ、栓とフラスコ間のシーリング処置をしてから、インキュベーター装置により温度制御と攪拌を行い、一定時間ごとに溶液の採取を行った。

採取した溶液は、遠心分離機により花崗岩の微粉を沈殿させ上澄液を採取した後、溶液中のセシウム濃度を原子吸光法で測定し、この測定値から花崗岩へのセシウム吸着量を求めた。

## 1. 緒 言

原子力発電の使用済み核燃料再処理から発生する高レベル放射性廃棄物の処分法の一つに地下深部岩体中の処分施設に放射性廃棄物を永久処分する方法がある。<sup>13)14)</sup>

この処分施設への地下水の浸入を想定すると、その地下水が廃棄物から放射性核種を溶出させさらに地層中や岩体中の割れ目などを通り人間環境に放射性核種を移動させる可能性がある。

この漏出してくる比較的半減期の長い放射性核種による生物圏への影響を推定するために種々の核種の地層中や岩体中での移動速度を知る必要がある。

放射性核種の地層中や岩体中での移動速度に地下水の流速、岩石の間隙率、割れ目（フィッシャー及びクラック）の存在及び岩石への吸着に起因する地層中や岩体中での放射性核種の保持が影響を与える。

現在、処分岩体としては種々のものが考えられているが、広範囲に大きな岩体が存在し、浸透率、間隙率が小さく強度も大きいなどの理由で本実験では花崗岩を対象岩とし、また核種の方は半減期が比較的長寿命であり高レベル放射性廃棄物中に多量に含まれていることや吸着量が比較的 pH 条件に影響を受けないなどの理由でセシウムとした。<sup>8)~11)</sup>

花崗岩と水におけるセシウムの分配係数測定に関して Nork と Fenske 1970<sup>17)</sup> の報告がある。また土壌及び砂中における核種移動の研究は比較的多いが<sup>1)3)~6)</sup> 花崗岩と水におけるセシウムの分配係数の測定資料は非常に少ない。<sup>2)7)15)</sup> また国内では未だ報告されていない。

そこで今回、花崗岩としては原研東海研究所の近くに分布する稲田産の花崗岩を、セシウムとしては非放射性的の硝酸セシウムを使用し花崗岩と水におけるセシウムの分配係数 (Kd) を測定し、吸着に吸ばず花崗岩の粒度、溶液の温度、溶液中のセシウム濃度の影響の検討を簡単に行った。

## 2. 実験方法

### <測定操作>

長時間後の平衡状態における分配係数 (Kd) を求めるため簡便なバッチ法により測定を行った。装置の概念を図 1 に示す。

共栓付フラスコ (300 ml) に一定粒度の花崗岩 (20 g) と所定の濃度の硝酸セシウム溶液 (200 ml) を入れ、栓とフラスコ間のシーリング処置をしてから、インキュベーター装置により温度制御と攪拌を行い、一定時間ごとに溶液の採取を行った。

採取した溶液は、遠心分離機により花崗岩の微粉を沈殿させ上澄液を採取した後、溶液中のセシウム濃度を原子吸光法で測定し、この測定値から花崗岩へのセシウム吸着量を求めた。

### ＜硝酸セシウム＞

セシウム溶液は、シカ印の市販1級の硝酸セシウムとイオン交換水を使用し希釈法により調製した。

セシウムの初期濃度範囲は、吸着量の濃度依存性を見るために1～1,000 ppm に設定した。今回測定に使用した原子吸光測定装置のセシウム検出範囲は約0.2～20 ppm であるため、20 ppm 以上の高濃度測定時にはイオン交換水によって数倍に希釈を行い、その後に濃度測定を行った。尚、測定に使用した原子吸光測定装置は島津製作所のAA-620型である。

花崗岩と接触させた溶液中には、花崗岩からの微粒子が少量混入しているため、濃度測定の前処理として、遠心分離機により約4000 rpm、5分間の沈殿分離操作を行い上澄液を採取した後に溶液中セシウム濃度を測定した。

### ＜花崗岩＞

花崗岩の産地は茨城県、稲田町内の石切場である。主成分鉱物は、石英、カリ長石、斜長石、黒雲母である。組織は、等粒状、完晶質でいわゆる花崗岩組織を示し、鉱物結晶の粒度は約1～4 mm であり、斜長石、黒雲母は自形～半自形のものが多く、石英、カリ長石は他形のものが多い。斜長石の黒帯構造は認められない。(写真1)

実験に用いた花崗岩の試料サイズは、4.0～2.0 mm、2.0～1.19 mm、0.5～0.25 mm の3種類で、これらは鉄製乳鉢によって破碎し、各種メッシュとバイブレータによって粒径を揃えた。試料の各鉱物の組成比は、石英が約39%、長石類が約44%、黒雲母が約17%である。

## 3. 結果及び考察

### 3.1 核種移行評価の前提

放射性核種の移動速度は、地下水が均一な地層中又は岩体中を移動する場合と、フィッシャー等の特定の通路を通る場合の2つのケースに分けて考えられる。

すなわち、第1のケースとしては以下の仮定が用いられる。

- i) 地層や岩体は均質、一連であり断層、割れ目(フィッシャー、クラック)が存在しないこと。
- ii) 核種を含む地下水は地層中又は岩体中を均一に移動すること。
- iii) 地下水の流速は、岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が十分に拡散できるほど遅いこと。

以上の仮定が成立する場合には、核種の地層中における移動速度は一般的に以下の式で示される。

$$V_{n_i} = \frac{V_w}{1 + Kd_i \cdot \rho / \epsilon}$$



### ＜硝酸セシウム＞

セシウム溶液は、シカ印の市販1級の硝酸セシウムとイオン交換水を使用し希釈法により調製した。

セシウムの初期濃度範囲は、吸着量の濃度依存性を見るために1～1,000 ppm に設定した。今回測定に使用した原子吸光測定装置のセシウム検出範囲は約0.2～20 ppm であるため、20 ppm 以上の高濃度測定時にはイオン交換水によって数倍に希釈を行い、その後に濃度測定を行った。尚、測定に使用した原子吸光測定装置は島津製作所のAA-620型である。

花崗岩と接触させた溶液中には、花崗岩からの微粒子が少量混入しているため、濃度測定の前処理として、遠心分離機により約4000 rpm、5分間の沈殿分離操作を行い上澄液を採取した後に溶液中セシウム濃度を測定した。

### ＜花崗岩＞

花崗岩の産地は茨城県、稲田町内の石切場である。主成分鉱物は、石英、カリ長石、斜長石、黒雲母である。組織は、等粒状、完晶質でいわゆる花崗岩組織を示し、鉱物結晶の粒度は約1～4 mm であり、斜長石、黒雲母は自形～半自形のものが多く、石英、カリ長石は他形のものが多い。斜長石の黒帯構造は認められない。(写真1)

実験に用いた花崗岩の試料サイズは、4.0～2.0 mm、2.0～1.19 mm、0.5～0.25 mm の3種類で、これらは鉄製乳鉢によって破碎し、各種メッシュとパイプレータによって粒径を揃えた。試料の各鉱物の組成比は、石英が約39%、長石類が約44%、黒雲母が約17%である。

## 3. 結果及び考察

### 3.1 核種移行評価の前提

放射性核種の移動速度は、地下水が均一な地層中又は岩体中を移動する場合と、フィッシャー等の特定の通路を通る場合の2つのケースに分けて考えられる。

すなわち、第1のケースとしては以下の仮定が用いられる。

- i) 地層や岩体は均質、一連であり断層、割れ目(フィッシャー、クラック)が存在しないこと。
- ii) 核種を含む地下水は地層中又は岩体中を均一に移動すること。
- iii) 地下水の流速は、岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が十分に拡散できるほど遅いこと。

以上の仮定が成立する場合には、核種の地層中における移動速度は一般的に以下の式で示される。

$$Vn_i = \frac{V_w}{1 + Kd_i \cdot \rho / \epsilon}$$

$V_{n_i}$  :  $i$  核種の移動速度 ( m / yr. )

$V_w$  : 地下水の移動速度 ( m / yr. )

$Kd_i$  :  $i$  核種の分配係数 ( ml / g )

$\rho$  : 岩石の密度 ( g / cm<sup>3</sup> )

$\epsilon$  : 岩石の有効間隙率

$Kd_i$  は一つの平衡状態の閉じた系の中における岩石と地下水における  $i$  核種の分配係数を示すものであり、次式で示される。

$$Kd_i = \frac{N_r / W_r}{N_w / W_w}$$

$N_r$  : 系内の岩石に吸着している  $i$  核種の量

$N_w$  : 系内の地下水中の  $i$  核種の量

$W_r$  : 系内の岩石の重量 ( g )

$W_w$  : 系内の地下水の量 ( ml )

次に放射性核種を溶存した地下水が特定通路を通る第 2 のケースとしては以下の仮定が用いられる。

i) 地層中又は岩体中に、地下水を通過させる断層、割れ目 ( フィッシャー、クラック ) が存在すること。

ii) 核種を含んだ地下水は、地層中又は岩体中の断層や割れ目だけを通して移動すること。

iii) 地下水の流速は、岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が拡散しないほど速いこと。

以上の仮定が成立する場合は、核種の地層中における移動速度は一般に以下の式で示される。

$$V_{n_j} = \frac{V_w}{1 + Kd_j \cdot s / v}$$

$V_{n_j}$  :  $j$  核種の移動速度 ( m / yr. )

$V_w$  : 地下水の移動速度 ( m / yr. )

$Kd_j$  :  $j$  核種の岩石表面の分配係数 ( ml / cm<sup>2</sup> )

$s$  : 岩石表面の面積 ( cm<sup>2</sup> )

$v$  : 岩石と接触する地下水の体積 ( ml )

分配係数は、同様に次式で示される。

$$Kd_j = \frac{N_r / S_r}{N_w / V_w}$$

$N_r$  : 系内の岩石表面に吸着している核種の量

$N_w$  : 系内の地下水中の核種の量

$S_r$  : 系内の岩石表面の面積 ( cm<sup>2</sup> )

$V_w$  : 系内の地下水の体積 ( ml )

どちらのケースにおいても分配係数 (  $Kd$  ) を求めれば放射性核種の移動速度を計算するこ

とができる。その他に、多孔質岩石中を核種が移動する時の式として第1のケースと同様の式を、結晶質岩石中の割れ目を核種が移動する時の式として第2のケースと同様の式が提案されている。<sup>12)</sup>

今回の実験では、第1のケースを想定して、花崗岩へのセシウム吸着量を求め、その値から分配係数 (Kd) を計算し、さらに地層中での核種の移動速度 (Vn) の評価を行った。

### 3.2 平衡吸着量及び分配係数の求め方

花崗岩への <sup>237</sup>Pu, <sup>241</sup>Am の吸着速度式として

$$A_r = A_f \{ 1 - \exp [ - ( t / t_r ) ] \}$$

A<sub>r</sub> : 岩石に吸着される放射性核種の量

A<sub>f</sub> : 岩石への最終吸着量

t : 岩石と水溶液の接触時間

t<sub>r</sub> : 反応に関する定数

が報告されているが、<sup>7)</sup> 今回の実験結果は、この式で整理することはできなかった。

最終吸着量が一定の値に収束するという仮定のもとに実験値を整理すると次式に良く一致する。(図2, 図4)

$$V_t = V_e ( 1 - a e^{-k \sqrt{t}} ) \quad \text{..... ①}$$

V<sub>t</sub> : t 時間後の花崗岩へのセシウム吸着量 ( μg/g )

V<sub>e</sub> : 平衡状態の花崗岩へのセシウム吸着量 ( μg/g )

t : 花崗岩とセシウム溶液の接触時間 ( hr )

a : 定数

k : 定数

また、第①式は第①'式の直線式に変形することができる。(図3, 図5)

$$\ln \{ V_e / ( V_e - V_t ) \} = k \sqrt{t} - \ln a \quad \text{..... ①'}$$

分配係数 (Kd) の求め方は以下の手法に従った。各種長さの時間後の花崗岩へのセシウム吸着量を数点測定し、この測定値に最少自乗法を使って第①式を一致させ、V<sub>e</sub>, a, k, の値を決めこの平衡時吸着量 (V<sub>e</sub>) から第②式により分配係数 (Kd<sub>e</sub>) を求める。

$$Kd_e = \frac{V_e}{C_e} \quad \text{..... ②}$$

Kd<sub>e</sub> : 平衡時分配係数

V<sub>e</sub> : 平衡時吸着量 ( μg/g )

C<sub>e</sub> : 平衡時の溶液のセシウム濃度 ( μg/ml )

### 3.3 分配係数

#### (1) 粒度依存性

図4, 図6, 図7, 図8にセシウム初期濃度10 ppmにおける, 花崗岩へのセシウム吸着量の実測値と吸着速度曲線を示す。測定実験の方法は第2章で述べた方法に従い, 花崗岩の粒度は0.5~0.25 mm, 2.0~1.19 mm, 4.0~2.0 mm, の3種類, 温度は40℃と室温とした。

図7に示す実測値で, 吸着後期の測定値の3点は, フラスコの栓のシールド処置の不完全さにより水がフラスコ内に混入したと推定されるために, 実際の値より大きな吸着量となっている可能性がある。従って最少自乗法より計算された平衡吸着量( $V_e$ )は, 実際より高めに出ていると推定されるため, 以下このデータだけは議論から除外する。

図4, 図6, 図8を表1にそれぞれシリーズNo(同一実験条件における各時間ごとの一連の測定値をシリーズとして表現する)として, No2, No3, No5, として一括して示す。

シリーズNo3とNo5は測定条件として花崗岩の粒度だけが異っているが, 一定時間経過後のセシウム吸着量測定値から計算される単位グラム重量当りの花崗岩への飽和吸着量( $V_e$ )は各々, 54.0 ( $\mu\text{g/g}$ ), 58.3 ( $\mu\text{g/g}$ )であり, 粒度に左右されずほぼ一定して来ることが注目される。またシリーズNo2も40℃とシリーズNo3とNo5とは条件がやや異っているが, 飽和吸着量( $V_e$ )は53.8 ( $\mu\text{g/g}$ )であり, これもほぼ同一の値を取る。

この事実から, ごく短時間の吸着初期における花崗岩へのセシウム吸着量は, みかけの表面積つまり粒度に大きく左右されるだろうが, 長時間後の吸着量は真の表面積つまり, 鉱物内部の微細な空間などに代表される有効間隙を含んだ表面積に影響されるため, 花崗岩単位グラム重量当りの吸着量がほぼ一定値に収束して来ると推定される。このことは, 花崗岩の薄片を顕微鏡で観察すると鉱物と鉱物の境界面や, 鉱物内部に微細な空間の存在が認められることなどからもうなづけることである。(写真1)

表2に, 同一の花崗岩で鉱物組成比のまったく同じ0.1 mm径以下の花崗岩の粉体を硝酸セシウム溶液に接触させた時のセシウム吸着量( $V_t$ )を示す。この中でセシウム初期濃度( $C_0$ )が10 ppmの時の値は58 ( $\mu\text{g/g}$ , ただし  $t=768$ )と61 ( $\mu\text{g/g}$ , ただし  $t=1560$ ), また1 ppmの時は8.0 ( $\mu\text{g/g}$ , ただし  $t=768$ )と8.0 ( $\mu\text{g/g}$ , ただし  $t=1560$ )と測定されており, 表1に示したセシウム初期濃度( $C_0$ )が10 ppmと1 ppmの時のセシウム吸着量( $V_e$ )の値に各々比較的良く一致することは, 上述した論拠の一つになると考えられる。

#### (2) 温度依存性

表1に示す数値で, 測定条件として温度だけが異っているシリーズNo2とNo5を比較する。シリーズNo2の花崗岩単位グラム重量当りの平衡吸着量は, 53.8 ( $\mu\text{g/g}$ ), シリーズNo5のそれは58.3 ( $\mu\text{g/g}$ )であり温度条件の高いシリーズNo2の方がやや小さい値となっている。しかし, これだけのデータから温度依存性を論ずることは危険であり, この点を明確にするためには今後, 温度以外の条件を統一して測定実験を行う必要がある。

次に, 吸着量の粒度依存性と温度依存性が吸着速度式である第①式の定数aとkにどの様

に影響するのかを検討する。表1のシリーズNo.2とNo.5を比較すると、この2つは測定条件として温度だけが異っている。この場合、定数aの値には大きな変化はないが、定数kの値は、シリーズNo.5の方が小さくなっている。つまり、温度が高くなると定数kが大きくなる傾向が認められる。このことは、温度が高くなることによりセシウムイオンが花崗岩の有効間隙へ拡散しやすくなったためではないかと推定される。

次に、表1のシリーズNo.3と、No.5を比較する。この2つは、測定条件として温度、セシウム初期濃度が同一で粒度だけが異っているが、この場合も定数aの値には大きな変化は認められないが、定数kの値は、シリーズNo.3の方が小さくなっている。つまり、粒度が小さくなれば、定数kが大きくなる傾向が認められた。このことは、粒度が細くなることにより、セシウムイオンの花崗岩内部の有効間隙率への拡散がしやすくなったためではないかと推定される。

また、定数aは今のところ単なる補正係数であるのか岩石固有の値であるのか推定することはできない。

(3) 濃度依存性

図2 (セシウム初期濃度;  $C_0 = 1 \mu\text{g}/\text{ml}$ )、図4 (セシウム初期濃度;  $C_0 = 10 \mu\text{g}/\text{ml}$ )、図6 (セシウム初期濃度;  $C_0 = 10 \mu\text{g}/\text{ml}$ )、図8 (セシウム初期濃度;  $C_0 = 10 \mu\text{g}/\text{ml}$ )、図9 (セシウム初期濃度;  $C_0 = 20 \mu\text{g}/\text{ml}$ )、図10 (セシウム初期濃度;  $C_0 = 50 \mu\text{g}/\text{ml}$ )、図11 (セシウム初期濃度;  $C_0 = 100 \mu\text{g}/\text{ml}$ ) に各種類のセシウム初期濃度における、花崗岩へのセシウム吸着量の実測値と吸着速度曲線を示す。また各測定実験条件における実測値から計算される平衡時セシウム吸着量を表1に一括して示す。さらに、表1の平衡時セシウム吸着量 ( $V_e$ ) 平衡時溶液中セシウム濃度 ( $C_e$ ) との関係を示したものが図12である。この図中で平衡時溶液中セシウム濃度 ( $C_e$ ) が約1000 ppm ( $= \mu\text{g}/\text{ml}$ ) での実測値は花崗岩と溶液との接触時間 ( $t$ ) が96 (hr.) の時の吸着量 ( $V_t$ ) であり、飽和吸着量 ( $V_e$ ) では若干移動すると考えられるが、あわせて参考数値として示すものである。

図12、では、温度、粒度等の測定条件が完全には統一されていないので若干問題は残るが、平衡時溶液中セシウム濃度 ( $C_e$ ) が約5~1,000 ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ ) の範囲では、フロイドリッヒの吸着式 (第③式) :

$$V = k_1 \cdot C^{\frac{1}{n}} \quad \text{..... ③}$$

- V ; 吸着量
- C ; 濃度
- $k_1$  ; 定数
- n ; 定数 ( $n > 1$ )

第③式より

$$\ln V = \ln k_1 + \frac{1}{n} \ln C \quad \dots\dots\dots ③'$$

が比較的良く成立する。しかし、それ以下の濃度すなわち、約 5 (  $\mu\text{g}/\text{ml}$  ) 以下の平衡時溶液中セシウム濃度範囲では、むしろヘンリーの吸着式 ( 第④式 )

$$V = k_2 \cdot C \quad \dots\dots\dots ④$$

V : 吸着量

C : 濃度

$k_2$  : 定数

第④式より

$$\ln V = \ln k_2 + \ln C \quad \dots\dots\dots ④'$$

が成立するのではないかと推定される。

以上のことをまとめると次のことが推定される。

第②式を第③式に代入すると、フロイドリッヒの式は、

$$\ln Kd = \ln k_1 + \left( \frac{1-n}{n} \right) \ln C \quad \dots\dots\dots ⑤$$

となり、また、

第②式を第④式に代入すると、ヘンリーの式は、

$$\ln Kd = \ln k_2 \quad \dots\dots\dots ⑥$$

となり、濃度が低くなれば平衡時分配係数 (  $Kd$  ) は、一定値を取ると推定される。( 図 13 )

しかし、どの値の濃度以下の溶液から一定値を取るのか、これだけのデータで確定することはできない。従ってこの点について明確にすることは、今後の課題として残される。

花崗岩から溶出するイオンについては、表 3 に示す。

### 3.4 環境評価

第 3 章 1 節で述べた、第 1 のケース、すなわち核種が地下水と共に均一な地層中又は岩体中を移動する場合、核種の地下水の移動速度に対する速度比は次式

$$K_i = \frac{V_n}{V_w} = \frac{\epsilon}{\epsilon + \rho \cdot Kd}$$

で表わすことができた。

次に、以下の様な条件の成立する岩体を仮定し移動速度比 (  $K_i$  ) を計算する。すなわち、

- i) 岩体は花崗岩から成り、比重 (  $\rho$  ) は 2.7、有効間隙率 (  $\epsilon$  ) は 1/100 である。
- ii) 花崗岩は均一、一連であり、断層、割れ目 ( フィッシャー、クラック ) が存在しないこと。
- iii) 核種を含む地下水は、地層内を均一に移動すること。

IV) 地下水の流速は、岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が十分に拡散できるほど遅いと。

以上の仮定が成立する場合、セシウムの分配係数 ( $K_d$ ) が 10 の時、核種の地下水に対する移動速度比 ( $K_i$ ) は約  $3.7 \times 10^{-4}$ 、20 の時は約  $1.9 \times 10^{-4}$  となり、地下水の流速に比較してセシウムの移動速度は  $1/1,000 \sim 1/10,000$  になることがわかる。

## 4. 結 言

i) 硝酸セシウム溶液中での花崗岩へのセシウム吸着量のバッチ法による、定容状態の測定実験を行った。この場合、セシウム吸着量の測定値は吸着速度式として  $V_t = V_e (1 - a e^{-k\sqrt{t}})$  に良く一致する。ただしこの式は実験式である。今後、吸着機構の検討と合わせて吸着速度式そのものの再検討が必要である。

ii) 花崗岩の周囲の溶液中のセシウム濃度が同一であれば、単位重量当りの花崗岩に吸着するセシウムの量は粒度、つまり見かけの表面積に関係せずに一定した値を取る。このことを確定するためには、今後表面積の明確な形状、例えば花崗岩の立方体を作成し吸着量を測定してみる必要がある。

また吸着機構を知るためにセシウムの吸着した花崗岩の薄片を作成し、EPMA (Electron Probe Micro Analyzer) 等で薄片表面を分析してセシウムの吸着する位置を調べたり、ガス吸着法を応用して花崗岩の表面積を測定し、吸着量と表面積の関係を定量的に調べる必要がある。

iii) 今回の測定実験の温度範囲では、花崗岩のセシウム吸着量に温度依存性の存在を確認することはできない。しかし、この点については未だ測定値が少いためさらに広い温度範囲で吸着量を測定する必要がある。

iv) 花崗岩へのセシウム吸着量には、溶液中セシウム濃度に対する依存性が認められる。セシウム濃度、約 5 ppm から約 1,000 ppm の範囲では、フロイドリッヒの吸着式  $V = k_1 C^{\frac{1}{n}}$ 、が約 5 ppm 以下の濃度範囲ではむしろヘンリーの吸着式  $V = k_2 C$ 、が成立するのではないかと推定される。このことは、低濃度のセシウム溶液中において花崗岩と水との間のセシウムの分配係数が一定して来るということであり、このことを明確にするためにはさらに低濃度におけるトレーサーレベルでの吸着量測定実験の必要性が認められる。

v) 次の 4 条件が成立する岩体、すなわち

- (1) 岩体は花崗岩から成り、比重は 2.7、有効間隙率は  $1/100$  である。
- (2) 花崗岩は均一、一連であり、断層、割れ目 (フィッシャー、クラック) が存在しない。
- (3) 核種を含む地下水は地層内を均一に移動する。

IV) 地下水の流速は、岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が十分に拡散できるほど遅いこと。

以上の仮定が成立する場合、セシウムの分配係数 ( $K_d$ ) が10の時、核種の地下水に対する移動速度比 ( $K_i$ ) は約  $3.7 \times 10^{-4}$ 、20の時は約  $1.9 \times 10^{-4}$  となり、地下水の流速に比較してセシウムの移動速度は  $1/1,000 \sim 1/10,000$  になることがわかる。

## 4. 結 言

i) 硝酸セシウム溶液中での花崗岩へのセシウム吸着量のバッチ法による、定容状態の測定実験を行った。この場合、セシウム吸着量の測定値は吸着速度式として  $V_t = V_e (1 - a e^{-k\sqrt{t}})$  に良く一致する。ただしこの式は実験式である。今後、吸着機構の検討と合わせて吸着速度式そのものの再検討が必要である。

ii) 花崗岩の周囲の溶液中のセシウム濃度が同一であれば、単位重量当りの花崗岩に吸着するセシウムの量は粒度、つまり見かけの表面積に関係せずに一定した値を取る。このことを確認するためには、今後表面積の明確な形状、例えば花崗岩の立方体を作成し吸着量を測定してみる必要がある。

また吸着機構を知るためにセシウムの吸着した花崗岩の薄片を作成し、EPMA (Electron Probe Micro Analyzer) 等で薄片表面を分析してセシウムの吸着する位置を調べたり、ガス吸着法を応用して花崗岩の表面積を測定し、吸着量と表面積の関係を定量的に調べる必要がある。

iii) 今回の測定実験の温度範囲では、花崗岩のセシウム吸着量に温度依存性の存在を確認することはできない。しかし、この点については未だ測定値が少いためさらに広い温度範囲で吸着量を測定する必要がある。

iv) 花崗岩へのセシウム吸着量には、溶液中セシウム濃度に対する依存性が認められる。セシウム濃度、約 5 ppm から約 1,000 ppm の範囲では、フロイドドリッヒの吸着式  $V = k_1 C^{1/n}$ 、が約 5 ppm 以下の濃度範囲ではむしろヘンリーの吸着式  $V = k_2 C$ 、が成立するのではないかと推定される。このことは、低濃度のセシウム溶液中において花崗岩と水との間のセシウムの分配係数が一定して来るということであり、このことを明確にするためにはさらに低濃度におけるトレーサーレベルでの吸着量測定実験の必要性が認められる。

v) 次の4条件が成立する岩体、すなわち

- (1) 岩体は花崗岩から成り、比重は2.7、有効間隙率は  $1/100$  である。
- (2) 花崗岩は均一、一連であり、断層、割れ目 (フィッシャー、クラック) が存在しない。
- (3) 核種を含む地下水は地層内を均一に移動する。



(4) 地下水の流速は岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が十分に拡散できるほど遅いこと。  
 以上の仮定が成立する場合、セシウムの分配係数が10~20の時、地下水の流速に対するセシウムの移動速度は $1/1,000 \sim 1/10,000$ になると計算された。

## 謝 辞

本報告の終りにあたり、多くの便宜を与えて下さった住友セメント(株)の堀 晴雄氏と、高レベル廃棄物処理処分研究室の皆様にご心より感謝申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 会川英昭, 古平 登: JAERI-memo 3218 (公開)(1968)
- 2) B. ALLARD, G. W. BEALL, T. KRAJEWSKI NUCLEAR TECHNOLOGY, VOL. 49,
- 3) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 105~113 (1976)
- 4) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 193~200 (1976)
- 5) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 275~283 (1976)
- 6) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 13 P. 93~101 (1978)
- 7) M. G. SEITZ, P. G. RICKERT, S. FRIED, A. M. FRIEDMAN, M. J. STEINDLER: NUCLEAR TECHNOLOGY, VOL. 44, JULY 1979
- 8) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: 私信
- 9) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: 私信
- 10) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: JAERI-M 7642 (1978)
- 11) 武部慎一, 和達嘉樹: JAERI-M 8044 (1979)
- 12) O. LANDSTROM, C-E KLOCKARS, K-E HOLMBERG, S. WESTERBERG :KBS TEKNISK RAPPORT, 110, JULY 1978
- 13) OECD/NEA, IAEA OECD-PARIS, 27 NOVEMBER 1972
- 14) OECD/NEA, IAEA OECD/NEA AND HELD IN VIENNA, 22-26 MARCH 1976
- 15) 筒井天尊, 西牧研社: 保健物理, 10 P. 79~86 (1975)
- 16) 筒井天尊, 西牧研社: 保健物理, 10 P. 203~210 (1975)
- 17) UANA ISHERWOOD: Lawrence Livermore Laboratory, UCID-17551 AUG. 1977,

(4) 地下水の流速は岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が十分に拡散できるほど遅いこと。  
以上の仮定が成立する場合、セシウムの分配係数が10～20の時、地下水の流速に対するセシウムの移動速度は $1/1,000 \sim 1/10,000$ になると計算された。

## 謝 辞

本報告の終りにあたり、多くの便宜を与えて下さった住友セメント(株)の堀 晴雄氏と、高レベル廃棄物処理処分研究室の皆様にご心より感謝申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 会川英昭, 古平 登: JAERI-memo 3218 (公開)(1968)
- 2) B. ALLARD, G. W. BEALL, T. KRAJEWSKI NUCLEAR TECHNOLOGY, VOL. 49,
- 3) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 105~113(1976)
- 4) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 193~200(1976)
- 5) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 275~283(1976)
- 6) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 13 P. 93~101(1978)
- 7) M. G. SEITZ, P. G. RICKERT, S. FRIED, A. M. FRIEDMAN, M. J. STEINDLER: NUCLEAR TECHNOLOGY, VOL. 44, JULY 1979
- 8) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: 私信
- 9) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: 私信
- 10) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: JAERI-M 7642(1978)
- 11) 武部慎一, 和達嘉樹: JAERI-M 8044(1979)
- 12) O. LANDSTROM, C-E KLOCKARS, K-E HOLMBERG, S. WESTERBERG :KBS TEKNISK RAPPORT, 110, JULY 1978
- 13) OECD/NEA, IAEA OECD-PARIS, 27 NOVEMBER 1972
- 14) OECD/NEA, IAEA OECD/NEA AND HELD IN VIENNA, 22-26 MARCH 1976
- 15) 筒井天尊, 西牧研社: 保健物理, 10 P. 79~86(1975)
- 16) 筒井天尊, 西牧研社: 保健物理, 10 P. 203~210(1975)
- 17) UANA ISHERWOOD: Lawrence Livermore Laboratory, UCID-17551 AUG. 1977,

(4) 地下水の流速は岩石を構成する鉱物内部へ放射性核種が十分に拡散できるほど遅いこと。  
 以上の仮定が成立する場合、セシウムの分配係数が10~20の時、地下水の流速に対するセシウムの移動速度は $1/1,000 \sim 1/10,000$ になると計算された。

## 謝 辞

本報告の終りにあたり、多くの便宜を与えて下さった住友セメント(株)の堀 晴雄氏と、高レベル廃棄物処理処分研究室の皆様にご心より感謝申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 会川英昭, 古平 登: JAERI-memo 3218 (公開)(1968)
- 2) B. ALLARD, G. W. BEALL, T. KRAJEWSKI NUCLEAR TECHNOLOGY, VOL. 49.
- 3) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 105~113 (1976)
- 4) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 193~200 (1976)
- 5) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 11 P. 275~283 (1976)
- 6) 福井正美, 桂山幸典: 保健物理, 13 P. 93~101 (1978)
- 7) M. G. SEITZ, P. G. RICKERT, S. FRIED, A. M. FRIEDMAN, M. J. STEINDLER: NUCLEAR TECHNOLOGY, VOL. 44, JULY 1979
- 8) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: 私信
- 9) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: 私信
- 10) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: JAERI-M 7642 (1978)
- 11) 武部慎一, 和達嘉樹: JAERI-M 8044 (1979)
- 12) O. LANDSTROM, C-E KLOCKARS, K-E HOLMBERG, S. WESTERBERG : KBS TEKNISK RAPPORT, 110, JULY 1978
- 13) OECD/NEA, IAEA OECD-PARIS, 27 NOVEMBER 1972
- 14) OECD/NEA, IAEA OECD/NEA AND HELD IN VIENNA, 22-26 MARCH 1976
- 15) 筒井天尊, 西牧研社: 保健物理, 10 P. 79~86 (1975)
- 16) 筒井天尊, 西牧研社: 保健物理, 10 P. 203~210 (1975)
- 17) UANA ISHERWOOD: Lawrence Livermore Laboratory, UCID-17551 AUG. 1977.

Table 1  
Distribution coefficient for cesium between granulated Granite  
and water

Series No.	Sample size	Temp. (°C)	C <sub>0</sub> (ppm)	V <sub>e</sub> (μg/g)	C <sub>e</sub> (ppm)	Kd <sub>e</sub> (ml/g)	Equation for the adsorption rate of Cs
1	0.25~0.5	40	1	643	0.357	18.01	$V_t = 6.43(1 - 0.533e^{-0.190 \sqrt{t}})$
2	0.25~0.5	40	10	538	4.62	11.65	$V_t = 53.8(1 - 0.449e^{-0.170 \sqrt{t}})$
3	2.0 ~ 4.0	Room t.	10	54.0	4.6	11.7	$V_t = 54.0(1 - 0.396e^{-0.062 \sqrt{t}})$
4	1.19~2.0	Room t.	10	64 ?	3.6 ?	17.8 ?	_____
5	0.25~0.5	Room t.	10	58.3	4.17	13.98	$V_t = 58.3(1 - 0.400e^{-0.100 \sqrt{t}})$
6	0.25~0.5	Room t.	20	87.0	11.3	7.70	$V_t = 87.0(1 - 0.250e^{-0.069 \sqrt{t}})$
7	0.25~0.5	Room t.	50	154	34.6	4.45	$V_t = 154(1 - 0.539e^{-0.117 \sqrt{t}})$
8	0.25~0.5	Room t.	100	256	74.4	3.44	$V_t = 256(1 - 0.427e^{-0.112 \sqrt{t}})$

Table 2  
Distribution coefficient for cesium between powdered Granite  
and water

Sample size (mm)	Temp. (°C)	C <sub>0</sub> (ppm)	t (hr)	V <sub>t</sub> (μg/g)	C <sub>t</sub> (ppm)	Kd <sub>t</sub> (ml/g)
0 ~ 0.1	40	1	768	8	0.2	40.0
0 ~ 0.1	40	1	1560	8	0.2	40.0
0 ~ 0.1	40	10	768	58	4.2	13.8
0 ~ 0.1	40	10	1560	61	3.9	15.6

Table 3 Concentration of various cations leached from Granite

Na	1,2	ppm
Al	less than detectable value	
Si	1,1	ppm
Ca	4,7	ppm
Fe	0,1	ppm
Cs	0,35	ppm
Mg	not measured	
K	not measured	

measured by the atomic adsorption/flame spectrophotometer AA-620 of Shimazu seisakusho Co. Ltd.

Weight of Granite sample	20 g
Sample size of Granite	0,5 - 0,25 mm
Volume of solution	200 ml
Initial concentration of cesium	1 ppm
Contact time	529 hr.
Temperature	Room t.

(Experimental condition)

Erlenmeyer flask with a stopper	300 ml
Sample weight of granulated Granite	20 g
Sample size of granulated Granite	4.0-2.0 mm 2.0-1.19 mm 0.5-0.25 mm
Temperature	Room t. 40 °C
Concentration of cesium	1 - 1000 µg/ml
Volume of solution	200 ml

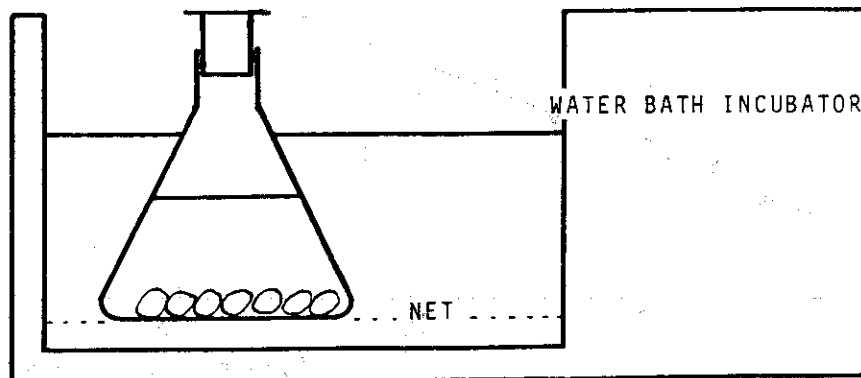


Fig. 1 Experimental apparatus

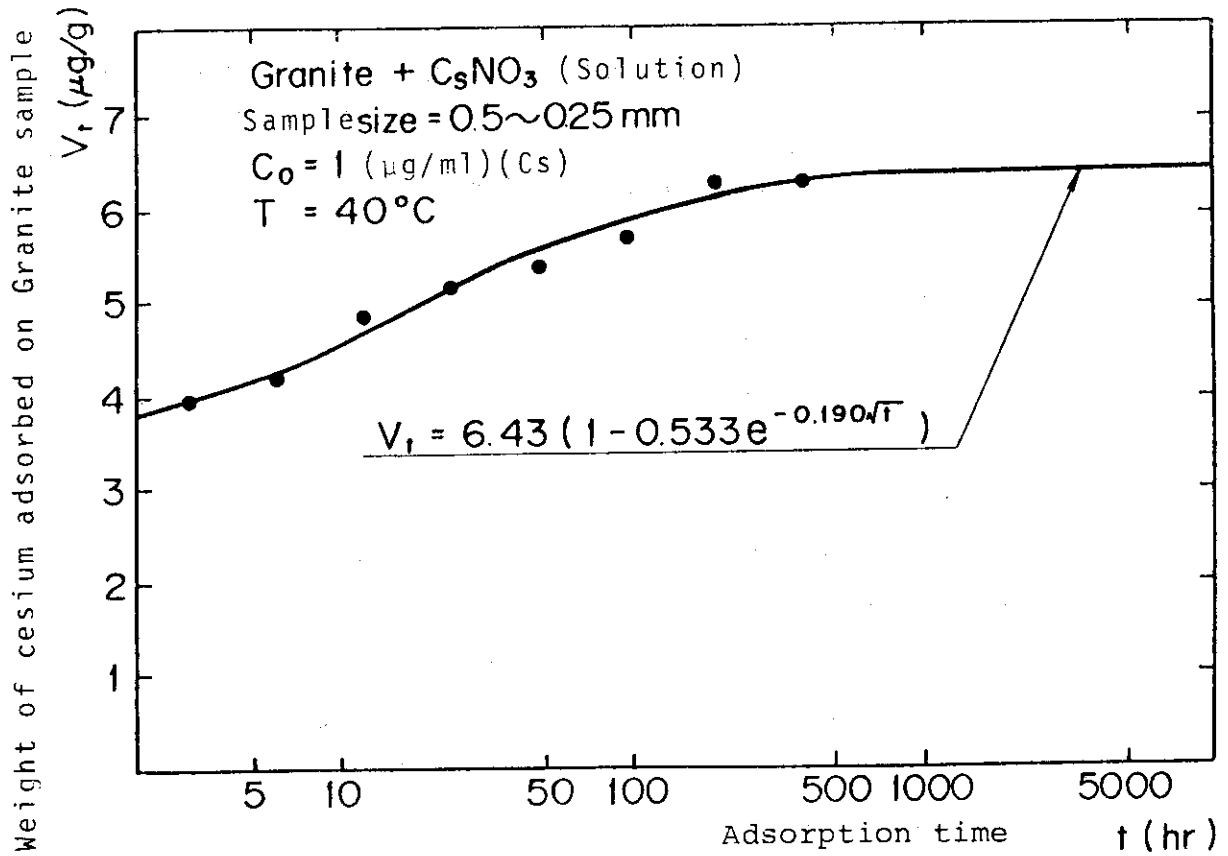


Fig. 2  
 Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time

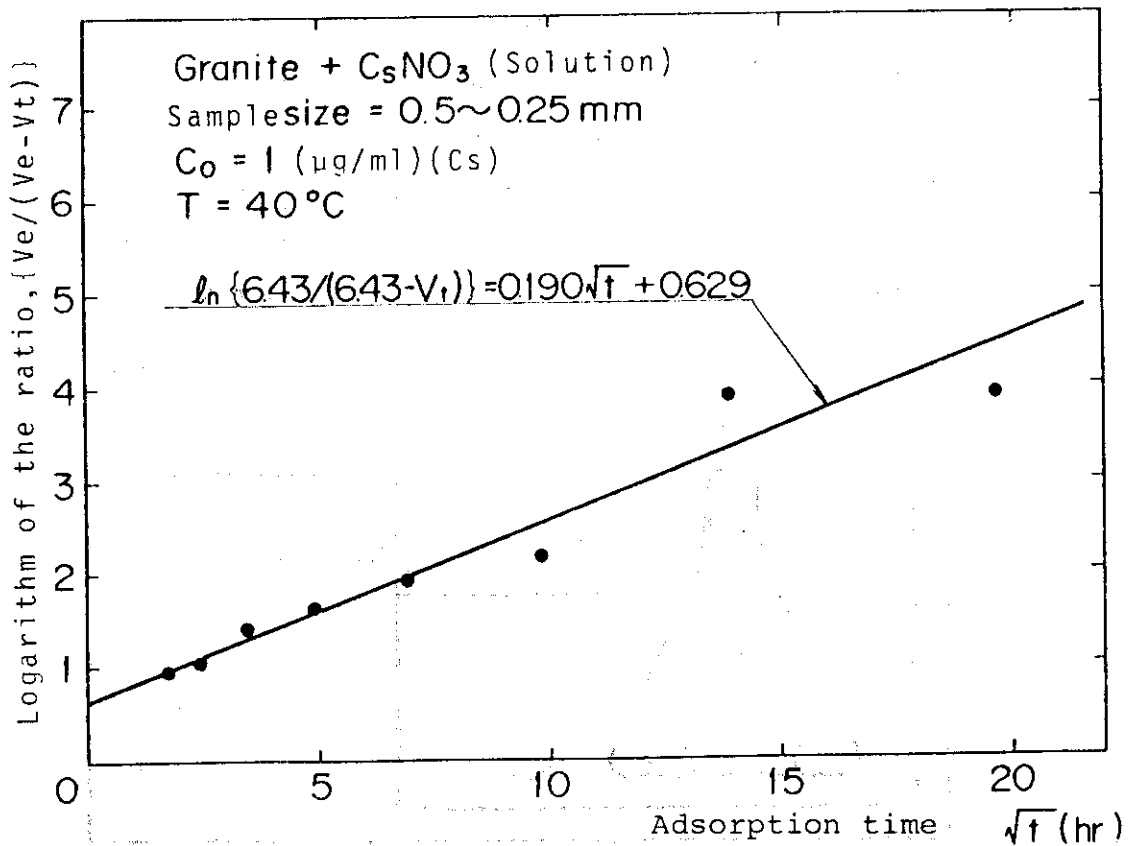


Fig. 3  
 Relation between logarithm of {Ve/(Ve-Vt)} and square root of t(hr)

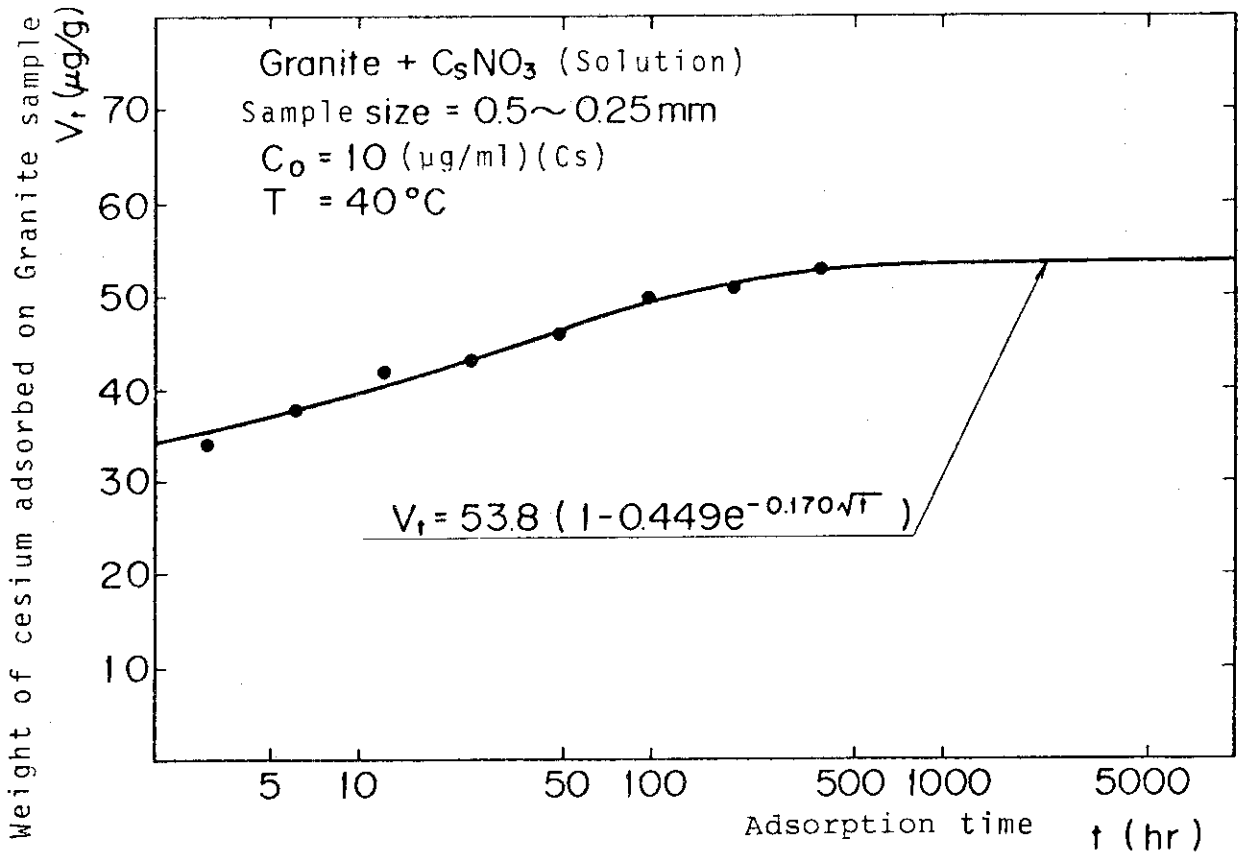


Fig. 4  
 Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time

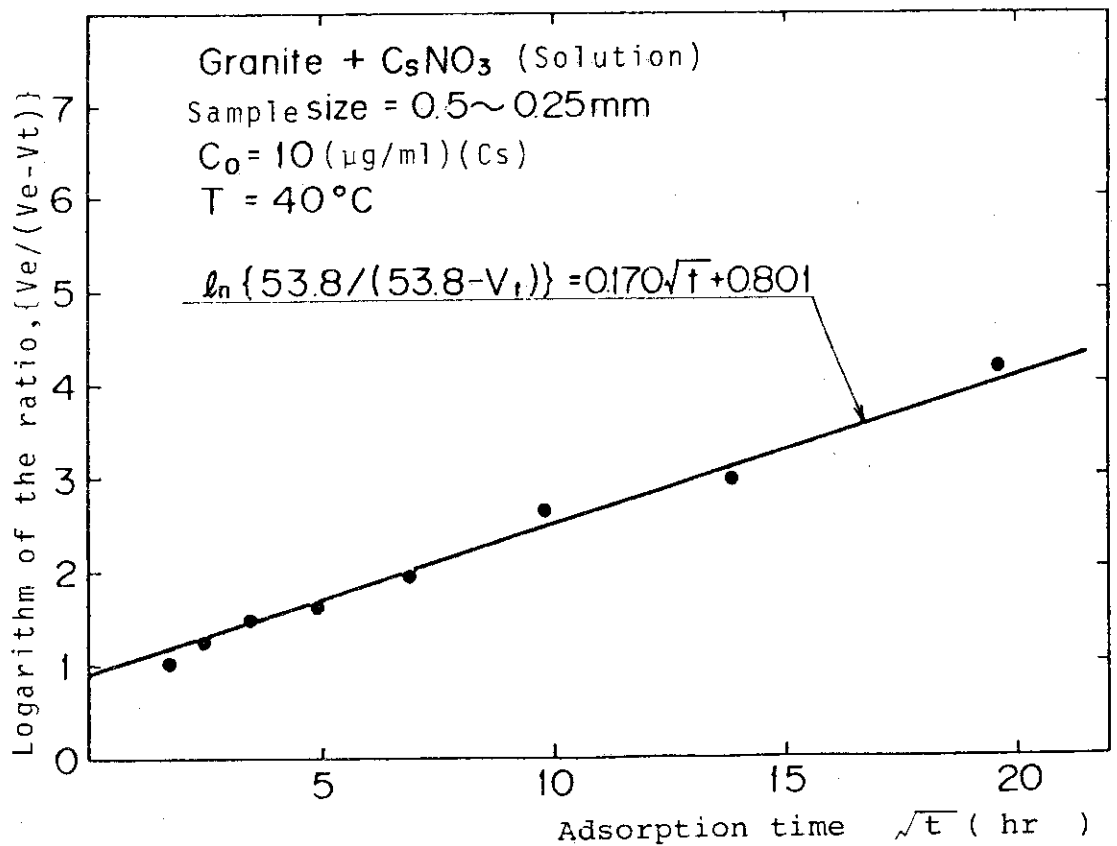


Fig. 5  
 Relation between logarithm of {Ve/(Ve-Vt)} and square root of t(hr)

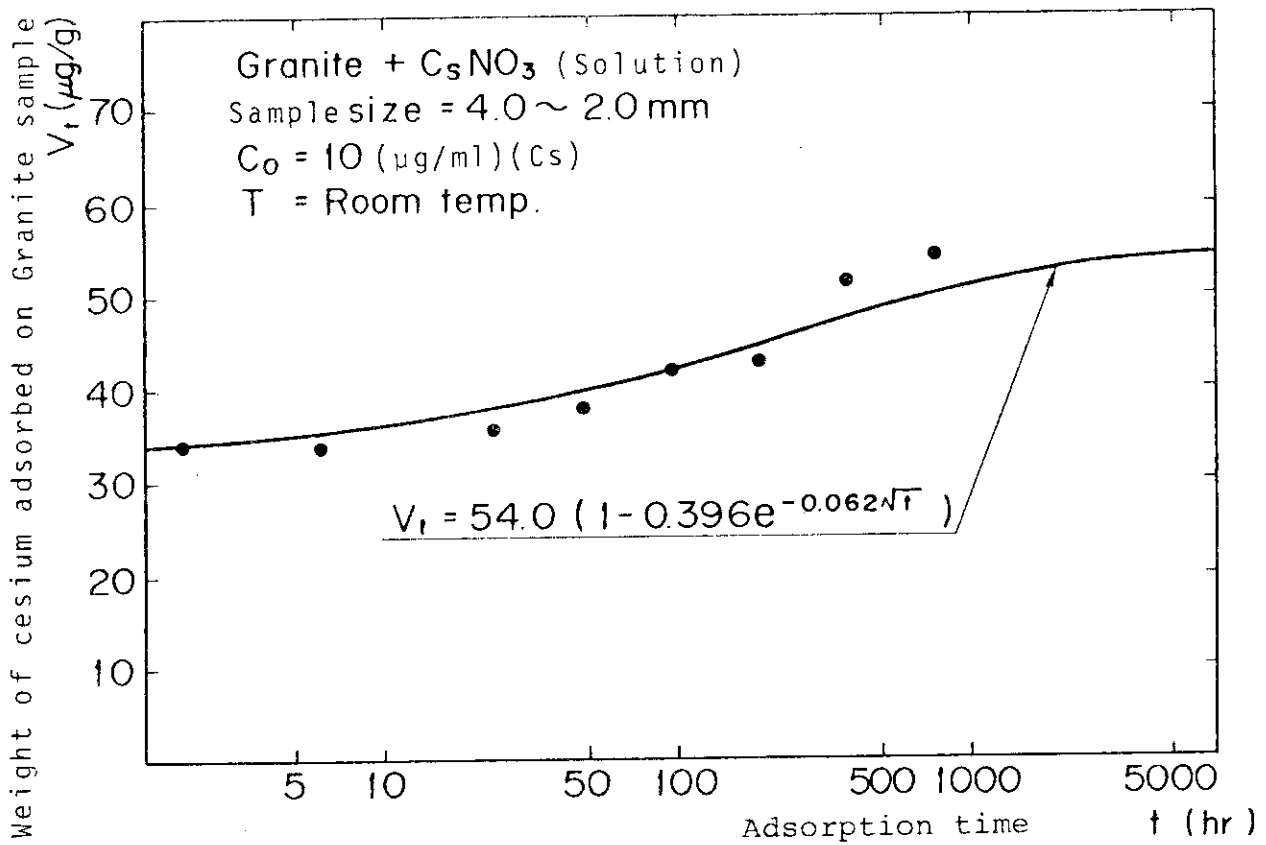


Fig. 6  
 Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time

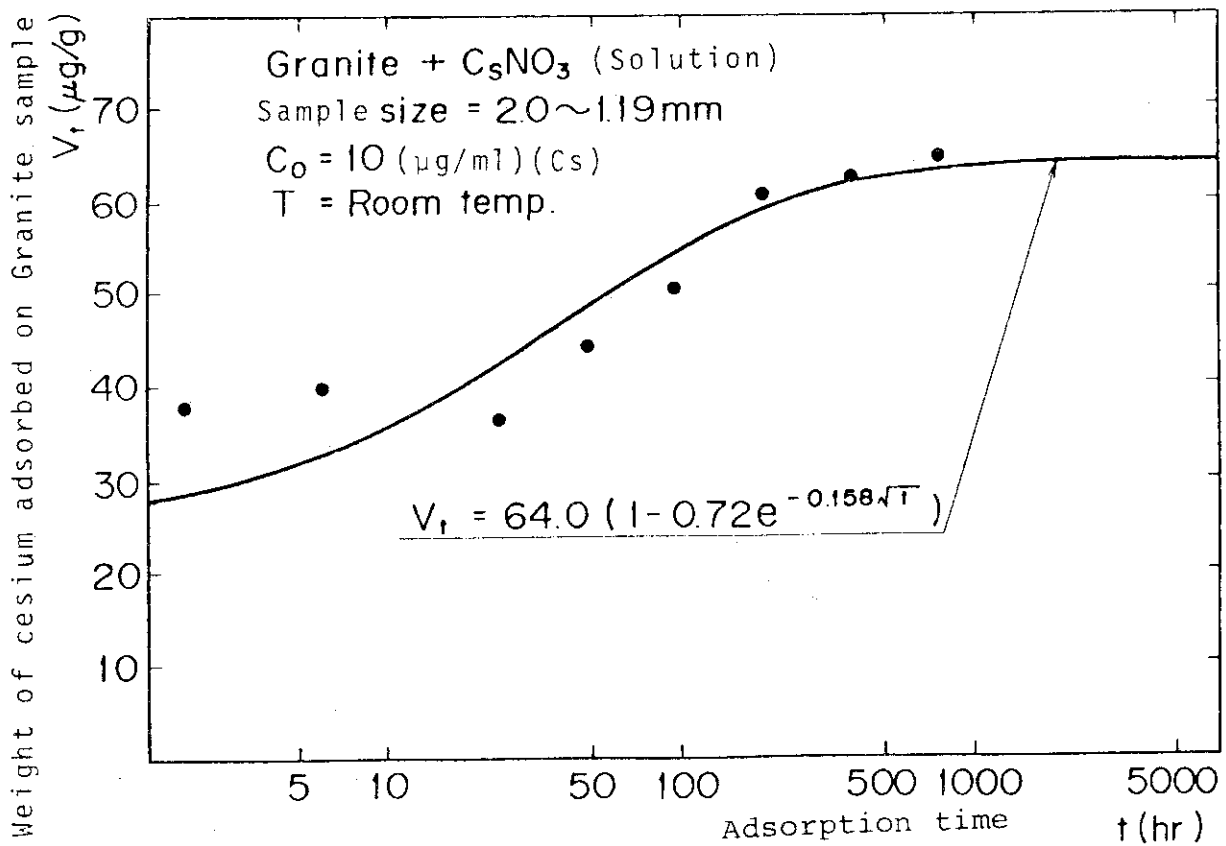


Fig. 7  
 Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time



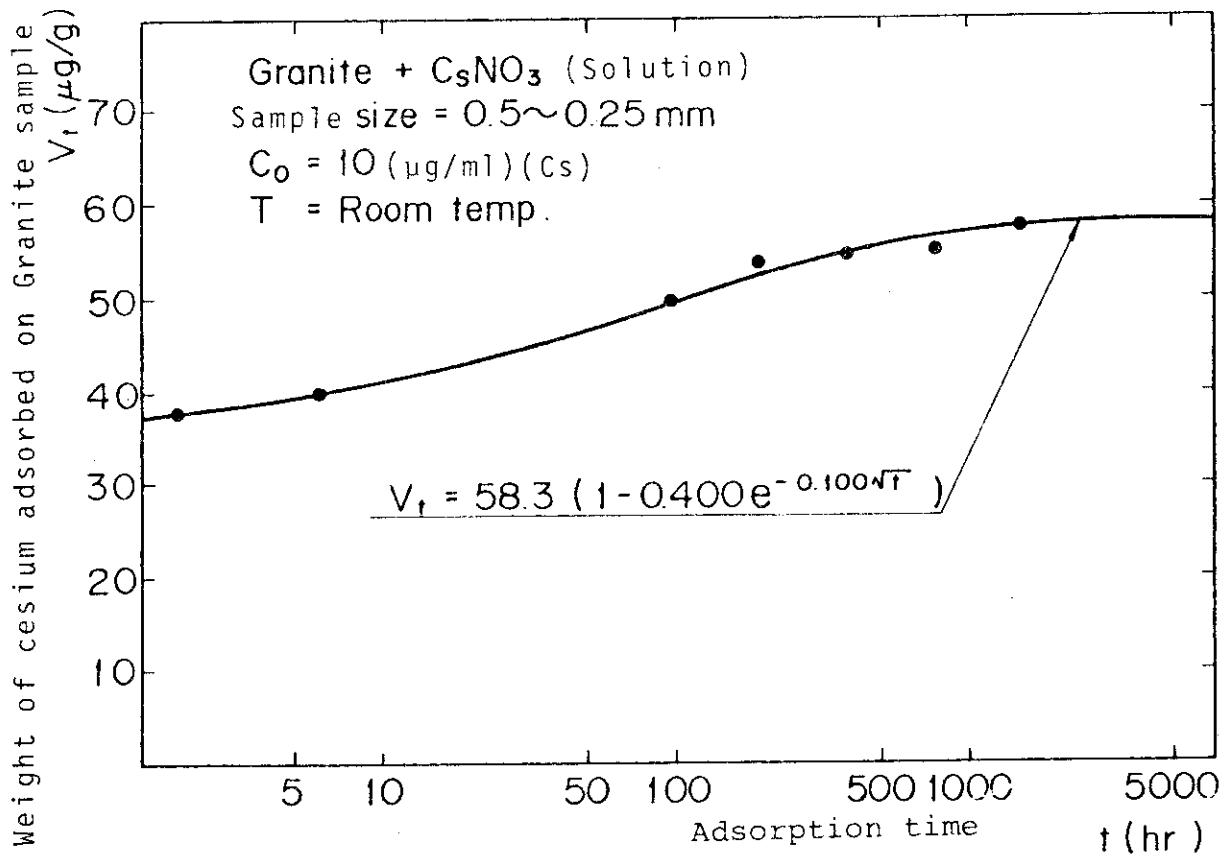


Fig. 8

Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time

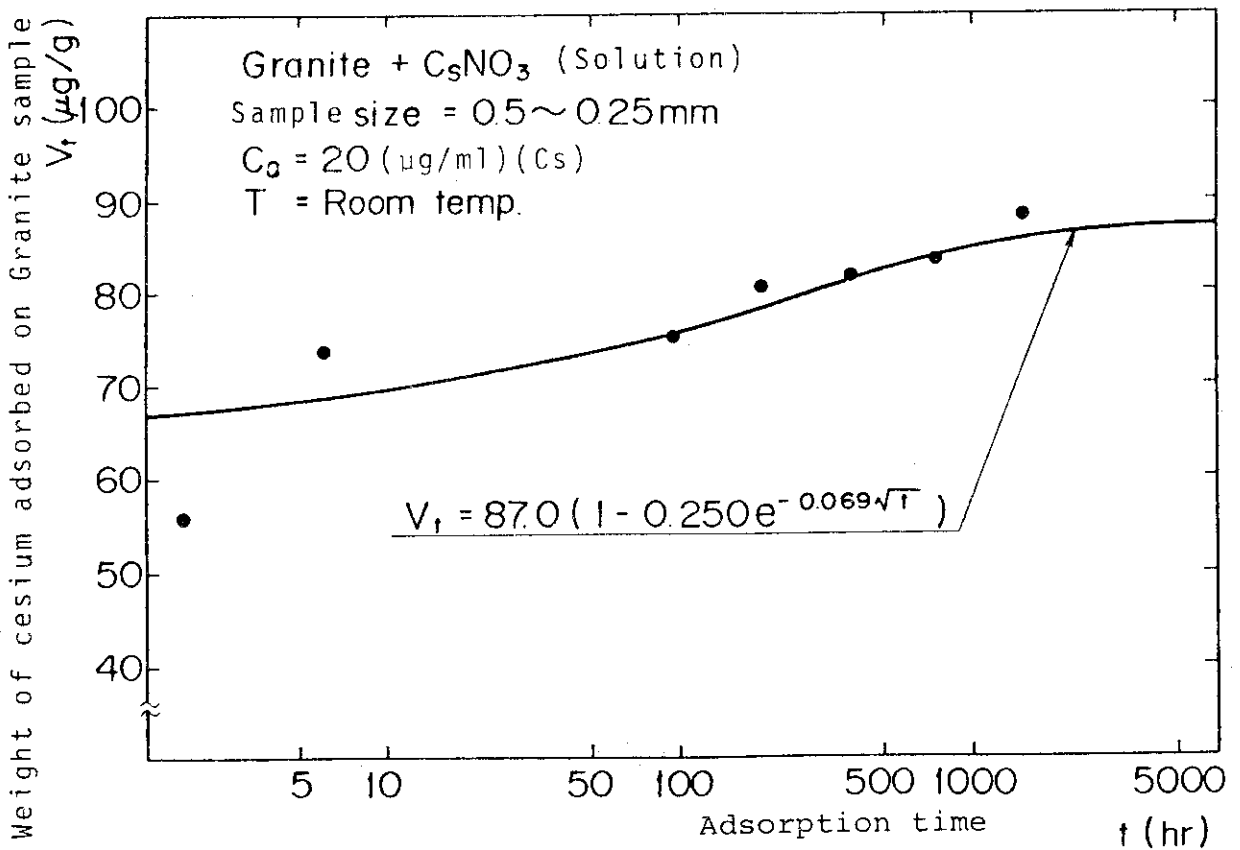


Fig. 9

Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time

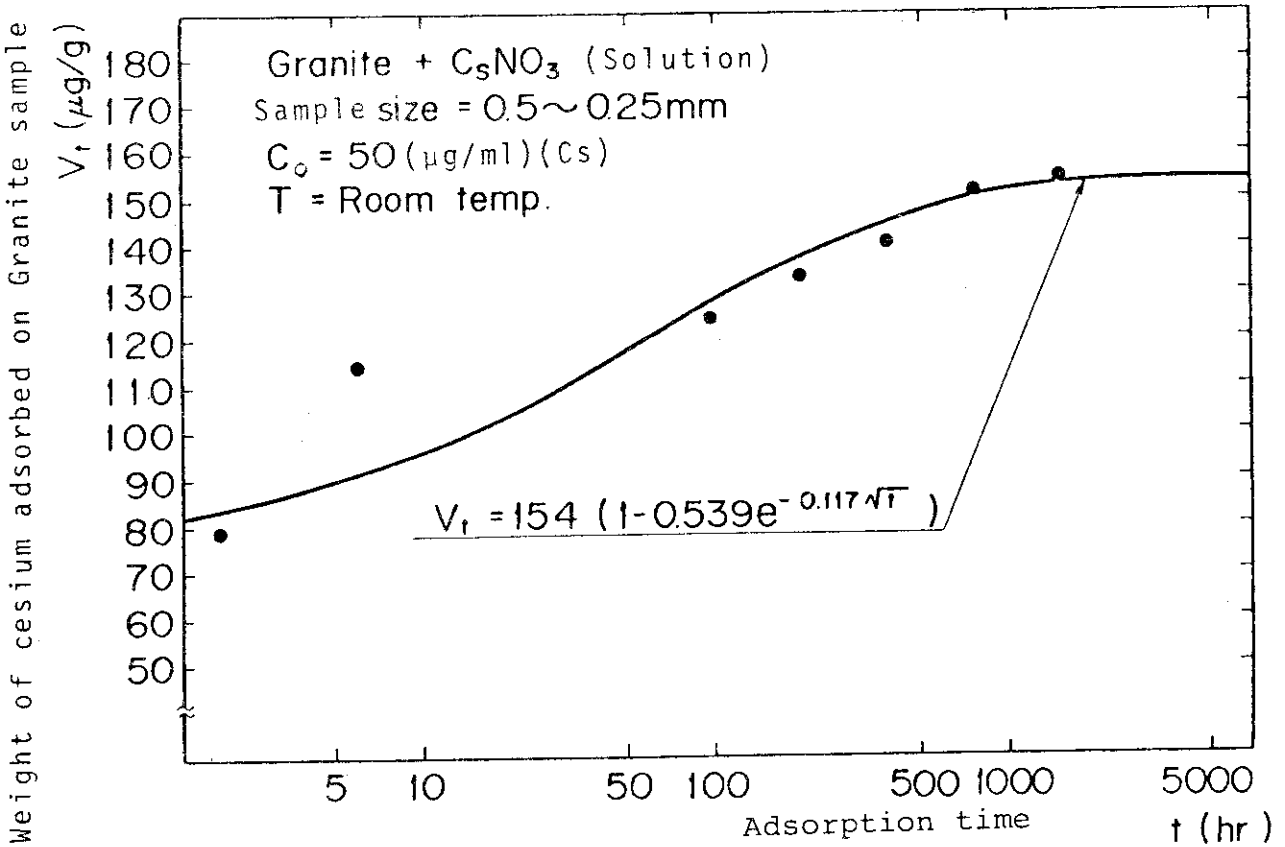


Fig. 10  
 Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time

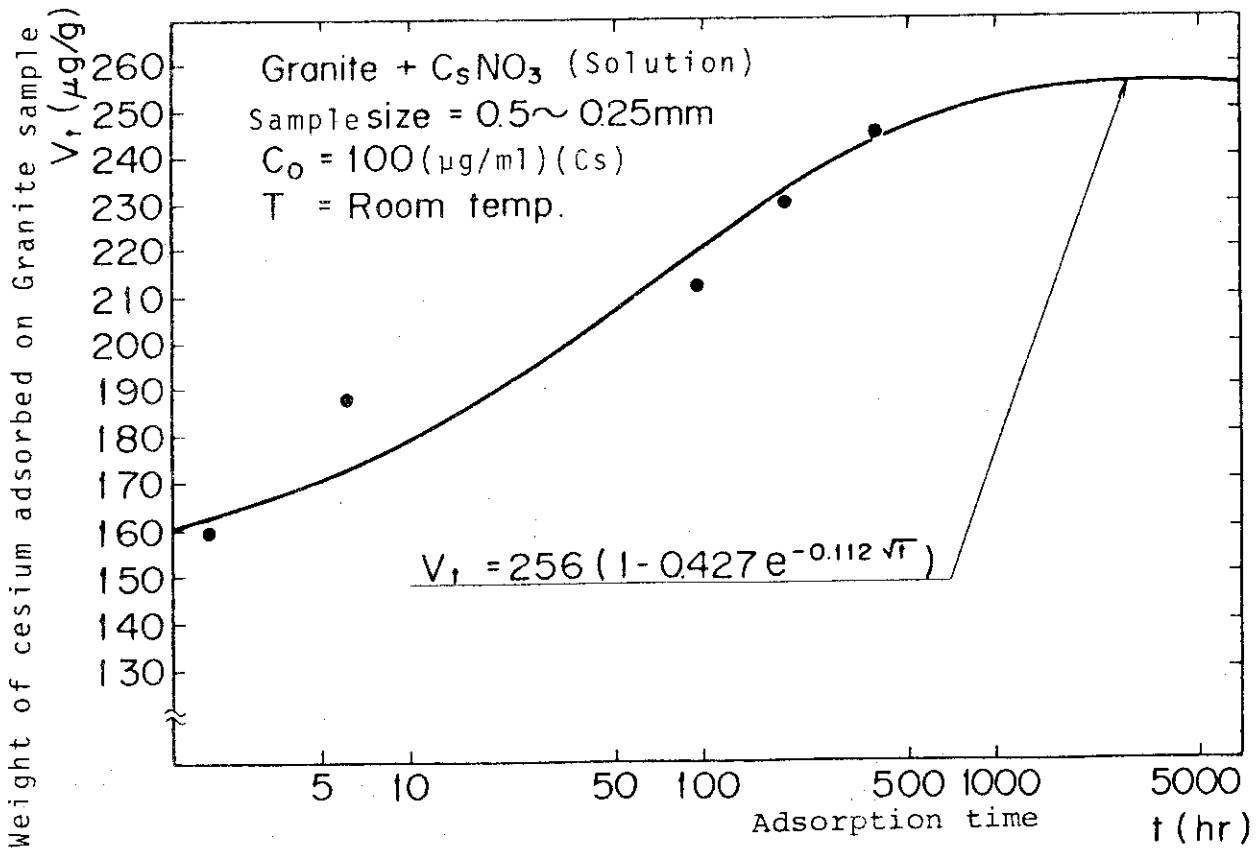


Fig. 11  
 Weight of cesium adsorbed on Granite at various adsorption time

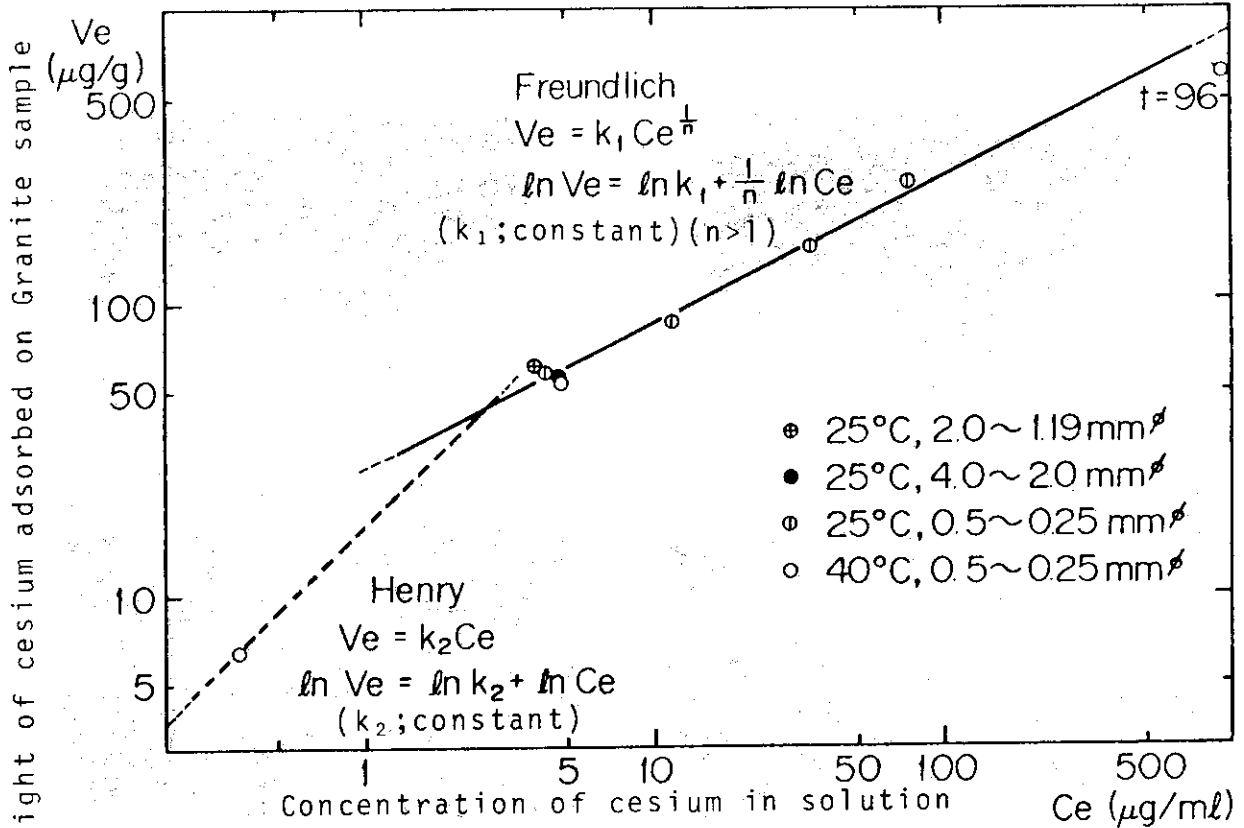


Fig. 12 Relation between weight of cesium adsorbed on Granite sample and concentration of cesium in solution at equilibrium condition

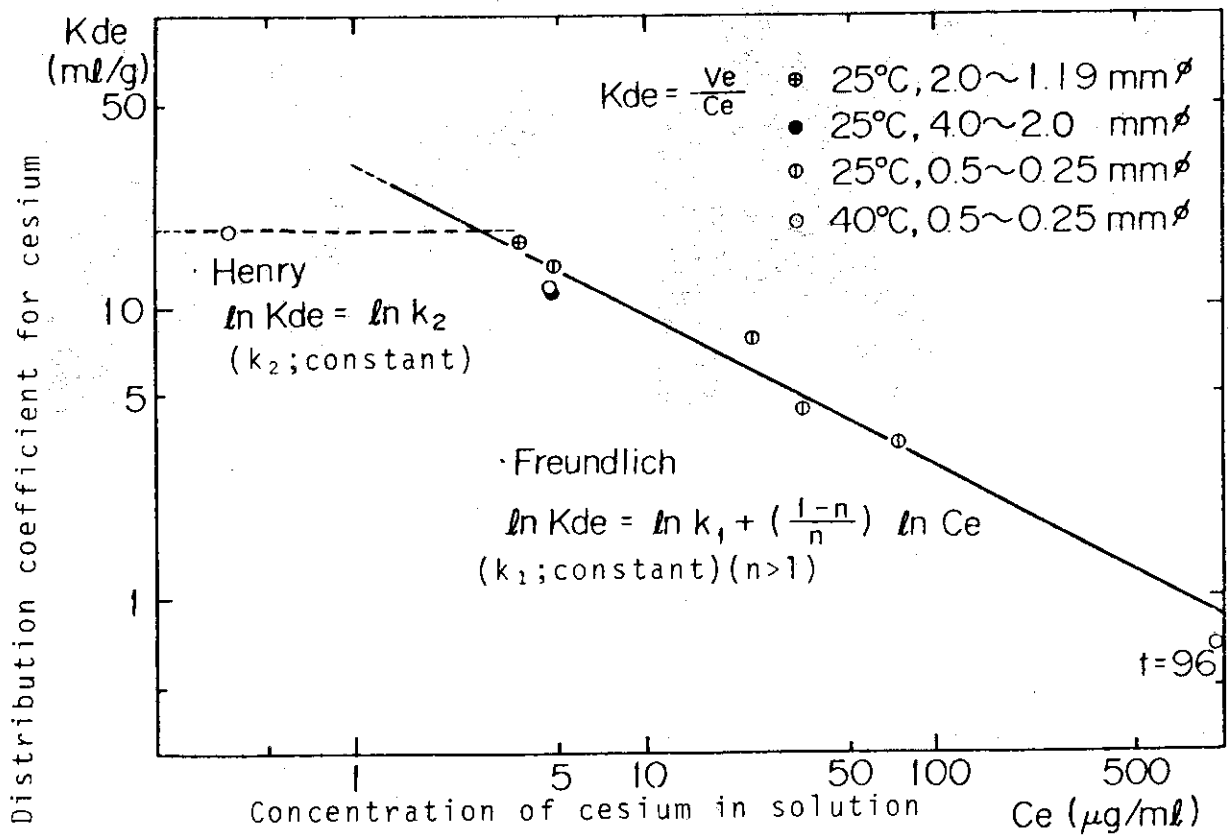


Fig. 13 Relation between distribution coefficient for cesium and concentration of cesium in solution at equilibrium condition

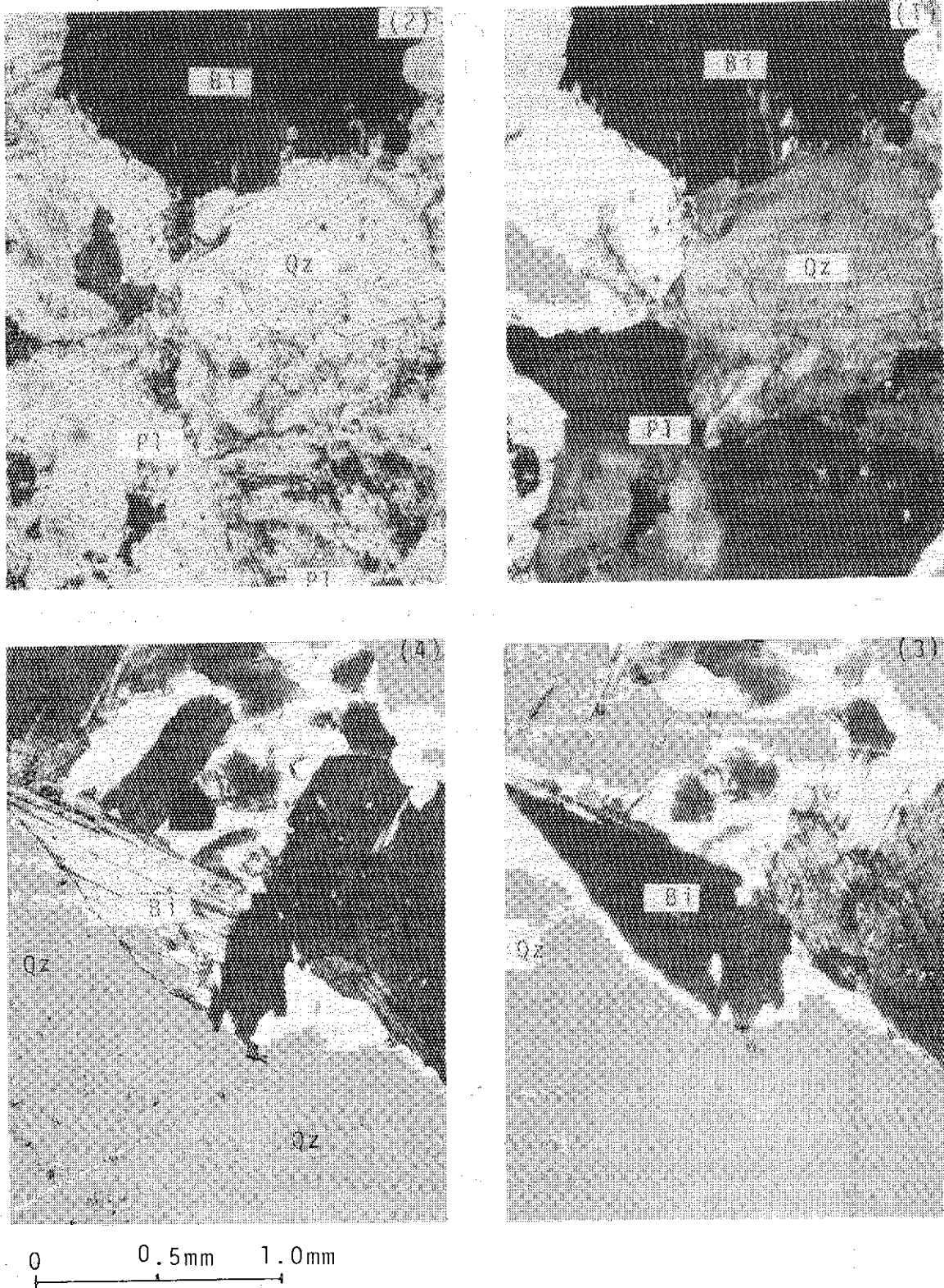


Photo. 1 Photographs of thin sections of Granite

(1) (3); closed polarizer  
(2) (4); parallel polarizer  
Qz; Quartz Pl; Plagioclase Bi; Biotite