

JAERI-Research  
96-004



六ヶ所土壌における無機形<sup>14</sup>Cの分配係数の測定

1996年2月

小川弘道・長尾誠也・妹尾宗明\*

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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、お申し越してください。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。

This report is 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, 1996

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 いばらき印刷(株)

六ヶ所土壌における無機形 $^{14}\text{C}$ 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

小川 弘道・長尾 誠也・妹尾 宗明\*

(1996年1月9日受理)

$^{14}\text{C}$ の天然バリア中での移行挙動に関する基礎データを収集するため、低レベル放射性廃棄物の浅地層処分が進められている青森県六ヶ所村で採取した土壌試料(砂、ローム及び粘土)を対象として、無機形 $^{14}\text{C}$  ( $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ )の分配係数を測定した。その結果、砂試料で60~90 ( $\text{m l} / \text{g}$ )、ローム試料で20 ( $\text{m l} / \text{g}$ )程度、粘土試料で3 ( $\text{m l} / \text{g}$ )程度の分配係数を得た。また、篩い分けた砂試料及びローム試料について吸着実験を行った結果、砂試料の粒径が小さい部分( $74\mu\text{m}$ 以下)の分配係数が400~700 ( $\text{m l} / \text{g}$ )と非常に大きく、この部分に含まれる成分に無機形 $^{14}\text{C}$ が選択的に吸着されていることが分かった。

Measurement of Distribution Coefficient of Inorganic  $^{14}\text{C}$   
on Soil Samples Collected at Rokkasho-mura

Hiromichi OGAWA, Seiya NAGAO and Muneaki SENOO\*

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

(Received January 9, 1996)

To collect fundamental data on the migration behavior of  $^{14}\text{C}$  through a natural barrier, the distribution coefficients of inorganic  $^{14}\text{C}$  ( $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ ) were determined for soil samples (sand, loam and clay) collected at Rokkasho-mura, Aomori-ken, where the shallow land disposal facility of low level radioactive wastes is under operation. The distribution coefficients were obtained to be approximately 60~90 (ml/g) for sand, 20 (ml/g) for loam and 3 (ml/g) for clay sample. And, the sorption experiment for the sieved sand and loam samples indicated that the smaller grain fraction (<74  $\mu\text{m}$  in diameter) of the sand sample has a large distribution coefficient of 400~700 (ml/g). This suggested that inorganic  $^{14}\text{C}$  was selectively sorbed on components contained in the smaller grain fraction.

Keywords: Inorganic  $^{14}\text{C}$ ,  $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ , Natural Barrier, Soil, Adsorption, Distribution Coefficient

---

\* Radioactive Waste Management Center

## 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 実験方法 .....	2
3. 結果および考察 .....	5
4. 結 言 .....	11
参考文献 .....	11

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Method of Experiment .....	2
3. Results and Discussion .....	5
4. Conclusion .....	11
References .....	11

## 1. 緒 言

原子力委員会が定めた「原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画」では、我が国は放射性廃棄物の海洋投棄は行わない<sup>1)</sup>としており、陸地処分が放射性廃棄物の処分に対する事実上の基本方針となっている。この方針の下、青森県六ヶ所村では、原子力発電所の運転により発生した低レベル放射性廃棄物を浅地層処分するため、当該廃棄物の受け入れが進められている。

六ヶ所村で行われる放射性廃棄物の浅地層処分は、比較的浅い地層（浅地層）中に構築した処分構造物中に放射性廃棄物を収納し、主要な放射性核種が減衰するまでの約300年間徐々に管理を軽減していくものであり、処分場としての管理が終了した後は、敷地は新たな利用のため解放されることとなっている<sup>2)</sup>。

このような処分方式では、主要な放射性核種が減衰するまでの管理期間中、処分場外への放射性核種の移行をどのように押さえるかが重要であり、処分施設などの人工構築物（人工バリア）と周辺の地層（天然バリア）との組み合わせにより放射性核種の移行を抑制し、管理期間中の安全を確保することとなっている。このシステムでは、初期の数十年間の安全確保は人工バリアの移行阻止効果に期待できるものの、その後の数百年間にわたっては、人工バリアの健全性が確実に維持されるかどうかを断定することは難しく、長期の安全性を確保するためには、天然バリアの役割が特に重要となってくる。

原子力発電所の運転により発生する低レベル放射性廃棄物では、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ などが主要放射性核種とされているが、これらの核種の天然バリア中における吸着移行挙動については、すでに、多くのデータが蓄積されており、加えて、半減期が比較的短いため、浅地層処分の長期安全性確保上重大な影響を及ぼさないことが分かっている<sup>3)</sup>。一方、原子力発電所の運転等により発生する放射性廃棄物中には、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ などの長寿命核種も含まれており、これらについては、量的には少ないものの、減衰を期待できないことから、長期的な安全性評価のためには、天然バリア中での吸着移行挙動に関するデータの蓄積が短寿命核種以上に重要となる。また、今後処分が想定されるTRU廃棄物、RI廃棄物などではこれらの長寿命核種が主要核種となり、天然バリア中での吸着移行挙動に関する研究を効果的に推進することは、今後の我が国の廃棄物対策を進める上でも重要な課題である。

上記の長寿命核種のうち、 $^{14}\text{C}$ は生体を構成する炭素の同位体であるため、安全評価上重要な核種のひとつであるが、有機形、無機形と多様な化学形を取り得るほか、ガス化し易く実験が困難であるなどから、天然バリア中での吸着移行挙動に関する研究は、短寿命核種ほど進んでいない<sup>4~7)</sup>。

以上のような状況の下に、 $^{14}\text{C}$ の天然バリア中での吸着移行挙動を明らかにするための基礎実験として、現在、低レベル放射性廃棄物の浅地層処分が進められている青森県六ヶ所村で採取した4種類の土壌試料に対して、無機形 $^{14}\text{C}$ の分配係数を測定したので、その結果について報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 土壌試料

対象とした4種類の土壌試料は、青森県上北郡六ヶ所村で採取した土壌試料であり、参考として、原研東海研の敷地内で採取した砂試料についても測定を行った。全く同一の試料の分析結果ではないものの、試料採取位置近傍の土壌の乾燥密度と粒径分布、化学組成、3相分布（固相、液層及び気相）及び同定鉱物一覧をTable 1～4に示す。なお、乾燥密度は「土粒子の比重試験方法」（JIS A1202-1978）に従って測定し、粒径分布は「土の粒度試験方法（案）」（JIS A1204T-1980）に準拠して、湿潤状態のまま測定した。3相分布は、密度の測定結果と含水比（「土の含水量試験方法」（JIS A1203-1978）に従って測定）及び湿潤密度（成型法及び非成型法<sup>8)</sup>に従って測定）から決定した。また、化学組成は、「ケイ酸塩岩石の完全分析方法及び迅速分析方法」<sup>9)</sup>に従って測定し、鉱物の同定は、「粉末法X線回折」<sup>10)</sup>により行った。

Table 1に示すように、六ヶ所の土壌試料のうち、砂と呼ばれている2種類の土壌試料は、米国道路局三角座標分類によれば、粒径的にも砂に分類されるが、色が異なるため、褐色の砂をA、灰白色の砂をBと区別して取り扱った。また、ロームと呼ばれている土壌試料（褐色）は、粒径的には粘土に、粘土と呼ばれている土壌試料（灰白色）は、粒径的にはロームに分類されるが、以下では、特に粒径に着目せず、ローム及び粘土と呼ぶ。なお、原研東海研の敷地内で採取した砂試料は、粒径的にも典型的な砂であった。

いずれの土壌試料も地表から数mの深さの通気層で採取した土壌試料であり、風乾した後、特別な調整を行わずそのまま実験に使用したほか、六ヶ所の砂及びロームについては、JIS標準篩を用いて $297\mu\text{m}$ 以上及び $74\mu\text{m}$ 以下に篩分けたものも実験に使用した。

Table 1 Density and size distribution of soil samples.

	Rokkasho soil				JAERI sand
	Sand-A	Sand-B	Loam	Clay	
Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	2.67	2.67	2.76	2.58	2.68
Gravel (%)	0.0	6.5	0.0	0.5	0.0
Sand (%)	87.5	75.5	8.5	48.5	99.5
Silt (%)	7.5	13.5	30.5	35.0	} 0.5
Clay (%)	5.0	4.5	61.5	16.0	

Gravel:  $> 2000\mu\text{m}$ , Sand:  $74\mu\text{m} \sim 2000\mu\text{m}$ , Silt:  $2 \sim 74\mu\text{m}$ , Clay:  $< 2\mu\text{m}$

Table 2 Chemical composition of soil samples (Weight %).

	Rokkasho soil				JAERI
	Sand-A	Sand-B	Loam	Clay	sand
SiO <sub>2</sub>	77.95	76.30	51.17	55.29	78.20
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11.23	11.92	21.16	23.77	8.31
TiO <sub>2</sub>	0.21	0.30	0.97	0.57	0.36
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.93	2.03	6.83	4.62	2.46
CaO	2.55	1.80	0.52	2.60	1.95
MgO	0.76	0.64	1.27	1.73	0.98
FeO	0.90	0.58	1.81	0.51	—
Na <sub>2</sub> O	1.83	1.54	0.88	1.61	2.55
K <sub>2</sub> O	0.50	0.53	1.45	0.53	2.70
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.07	0.06	0.15	0.06	—
MnO	0.03	0.03	0.08	0.08	0.07
H <sub>2</sub> O	2.39	3.62	13.53	11.25	2.04

Table 3 Solid, liquid and gaseous phase of soil samples (%).

	Rokkasho soil				JAERI
	Sand-A	Sand-B	Loam	Clay	sand
Solid	57.1	55.1	30.9	28.7	57.3
Liquid	39.3	31.6	62.7	70.3	10.5
Gaseous	3.6	13.3	6.4	1.0	32.2



Table 4 Identified mineral by X-ray diffraction.

	Rokkasho soil				JAERI sand
	Sand-A	Sand-B	Loam	Clay	
Quartz	◎	◎	◎	△	◎
Plagioclase	◎	◎	△	◎	◎
K-feldspar			▲		○
Clinopyroxene	△			▲	
Cristbalite					
Amphibole		▲			
Orthopyroxene		△			
Horndlende			▲		△
Gibbsite					
Smectite				△	
Sericite		▲	▲		△
Chlorite					△
Halloysite		▲		△	
Kaolinite			▲		▲
Sericite +Smectite				▲	
Chlorite +Smectite			△		

Peak area of X-ray diffraction: ◎ > ○ > △ > ▲

## 2.2 無機形<sup>14</sup>C水溶液の調整及び<sup>14</sup>C濃度の測定

実験に使用した無機形<sup>14</sup>C水溶液は、Amersham社から購入したpH 11.5、化学濃度0.036mol/lのNa<sub>2</sub><sup>14</sup>CO<sub>3</sub>溶液(約7.4×10<sup>7</sup>Bq/ml)をpH 12のNaOH溶液で希釈し、約1×10<sup>5</sup>Bq/mlに調整したものをを用いた。

試料液の<sup>14</sup>C濃度の測定は、PACKARD社製液体シンチレーションカウンターMODEL 2500TRにより行い、試料液1mlと液体シンチレーター(PACKARD社製INSTAGEL)15mlを20ml低カリガラスバイアル内に封入し、十分に混合した後、液体シンチレーションカウンティングにより<sup>14</sup>C濃度を決定した。

## 2.3 無機形<sup>14</sup>C発散量の測定

解放系の実験では、無機形<sup>14</sup>Cは空気中のCO<sub>2</sub>ガスとの交換などにより、実験系から失われることが知られている。本実験では、試料液の採取など、一部実験系が解放されるため、分配係数の測定に先立ち、試料液中からの無機形<sup>14</sup>Cの発散量を測定した。

脱イオン水にHClを添加した酸性液(pH4.3)及びNaOHを添加したアルカリ性液(pH10.1)、さらに、中性液(pH6.1、脱イオン水を使用)各々30mlをスクリーキャップ付遠沈管(内径28mm、パイレックスガラス製)内に無機形 $^{14}\text{C}$ 水溶液0.3mlとともに封入した。約5時間後、スクリーキャップをはずし、一定時間経過後の試料液を1mlずつ採取して、 $^{14}\text{C}$ 濃度測定用試料とした。

## 2.4 分配係数の測定

分配係数の測定はバッチ法で行った。土壌試料5gと脱イオン水50mlをスクリーキャップ付遠沈管に封入し、十分に攪拌した。約24時間静置した後、スクリーキャップを外して無機形 $^{14}\text{C}$ 水溶液0.5mlを添加し、再度密封して吸着反応を開始させた。反応時間は1週間、2週間、3週間及び4週間とし、それぞれの反応時間に対して試料を準備し、密封した状態で1日に数回程度の攪拌を行った。1週間後、2週間後、3週間後及び4週間後に、遠沈管に封入したまま、遠心分離操作による固液分離(3000rpmで約20min)を行い、その後、スクリーキャップを外して上澄み液1mlを採取し、 $^{14}\text{C}$ 濃度測定用試料液とした。さらに、上澄み液約10mlを0.45 $\mu\text{m}$ のミリポアフィルターにより濾過し、pH電極により平衡時pHを測定した。なお、それぞれの試料については、土壌を含まないブランク試料を作成し、その $^{14}\text{C}$ 濃度から、吸着反応開始時の $^{14}\text{C}$ 濃度(約 $9.5 \times 10^2 \text{Bq/ml}$ )を決定した。

分配係数 $K_d$ (ml/g)は、以上の測定値を用いて次式から算出した。

$$K_d = \frac{V}{M} \left( \frac{C_0}{C} - 1 \right)$$

ここで、 $C_0$  : 反応開始時の試料液中 $^{14}\text{C}$ 濃度 (Bq/ml)

$C$  : 反応終了時の試料液中 $^{14}\text{C}$ 濃度 (Bq/ml)

$V$  : 試料液の体積 (ml)

$M$  : 土壌の重量 (g)

## 3. 結果および考察

### 3.1 無機形 $^{14}\text{C}$ 発散量

発散量の測定結果をFig.1に示す。

アルカリ性液では、発散量測定実験中における $^{14}\text{C}$ 濃度の減少は観察されず、スクリーキャップを外して実験系を解放した状態でも、約72時間にわたって投入時の $^{14}\text{C}$ 濃度が維持できた。したがって、アルカリ性条件では、実験中の無機形 $^{14}\text{C}$ の発散に特に注意する必要はないとの結論が得られた。中性液では、スクリーキャップを外して5時間程度は $^{14}\text{C}$ 濃度の減少がほとんど観察されないものの、72時間後には投入時の約1/10にまで $^{14}\text{C}$ 濃度が減少した。したがって、中性条件では、短時間の解放では無機形 $^{14}\text{C}$ の発散は極少量であり、今回の実験のように数分程度の解放であれば、 $^{14}\text{C}$ の発散の影響は無視できると考えられる。

脱イオン水にHClを添加した酸性液(pH4.3)及びNaOHを添加したアルカリ性液(pH10.1)、さらに、中性液(pH6.1、脱イオン水を使用)各々30mlをスクリーキャップ付遠沈管(内径28mm、パイレックスガラス製)内に無機形 $^{14}\text{C}$ 水溶液0.3mlとともに封入した。約5時間後、スクリーキャップをはずし、一定時間経過後の試料液を1mlずつ採取して、 $^{14}\text{C}$ 濃度測定用試料とした。

#### 2.4 分配係数の測定

分配係数の測定はバッチ法で行った。土壌試料5gと脱イオン水50mlをスクリーキャップ付遠沈管に封入し、十分に攪拌した。約24時間静置した後、スクリーキャップを外して無機形 $^{14}\text{C}$ 水溶液0.5mlを添加し、再度密封して吸着反応を開始させた。反応時間は1週間、2週間、3週間及び4週間とし、それぞれの反応時間に対して試料を準備し、密封した状態で1日に数回程度の攪拌を行った。1週間後、2週間後、3週間後及び4週間後に、遠沈管に封入したまま、遠心分離操作による固液分離(3000rpmで約20min)を行い、その後、スクリーキャップを外して上澄み液1mlを採取し、 $^{14}\text{C}$ 濃度測定用試料液とした。さらに、上澄み液約10mlを0.45 $\mu\text{m}$ のミリポアフィルターにより濾過し、pH電極により平衡時pHを測定した。なお、それぞれの試料については、土壌を含まないブランク試料を作成し、その $^{14}\text{C}$ 濃度から、吸着反応開始時の $^{14}\text{C}$ 濃度(約 $9.5 \times 10^2 \text{Bq/ml}$ )を決定した。

分配係数 $K_d$ (ml/g)は、以上の測定値を用いて次式から算出した。

$$K_d = \frac{V}{M} \left( \frac{C_0}{C} - 1 \right)$$

ここで、 $C_0$ : 反応開始時の試料液中 $^{14}\text{C}$ 濃度(Bq/ml)

$C$ : 反応終了時の試料液中 $^{14}\text{C}$ 濃度(Bq/ml)

$V$ : 試料液の体積(ml)

$M$ : 土壌の重量(g)

### 3. 結果および考察

#### 3.1 無機形 $^{14}\text{C}$ 発散量

発散量の測定結果をFig.1に示す。

アルカリ性液では、発散量測定実験中における $^{14}\text{C}$ 濃度の減少は観察されず、スクリーキャップを外して実験系を解放した状態でも、約72時間にわたって投入時の $^{14}\text{C}$ 濃度が維持できた。したがって、アルカリ性条件では、実験中の無機形 $^{14}\text{C}$ の発散に特に注意する必要はないとの結論が得られた。中性液では、スクリーキャップを外して5時間程度は $^{14}\text{C}$ 濃度の減少がほとんど観察されないものの、72時間後には投入時の約1/10にまで $^{14}\text{C}$ 濃度が減少した。したがって、中性条件では、短時間の解放では無機形 $^{14}\text{C}$ の発散は極少量であり、今回の実験のように数分程度の解放であれば、 $^{14}\text{C}$ の発散の影響は無視できると考えられる。

一方、酸性液では、スクリーキャップを閉じていれば $^{14}\text{C}$ 濃度が維持できるものの、スクリーキャップを外した状態での $^{14}\text{C}$ の発散は非常に大きく、解放後約40時間で投入時の約1/100にまで $^{14}\text{C}$ 濃度が減少した。加えて、 $^{14}\text{C}$ 水溶液を投入した時点ですでに、約50%の $^{14}\text{C}$ が空气中に失われていた。したがって、酸性条件では、実験操作中の $^{14}\text{C}$ の発散に十分に注意を払う必要があり、試料液の採取も含め、全実験期間中密封状態を保たなければならないことが分かった。

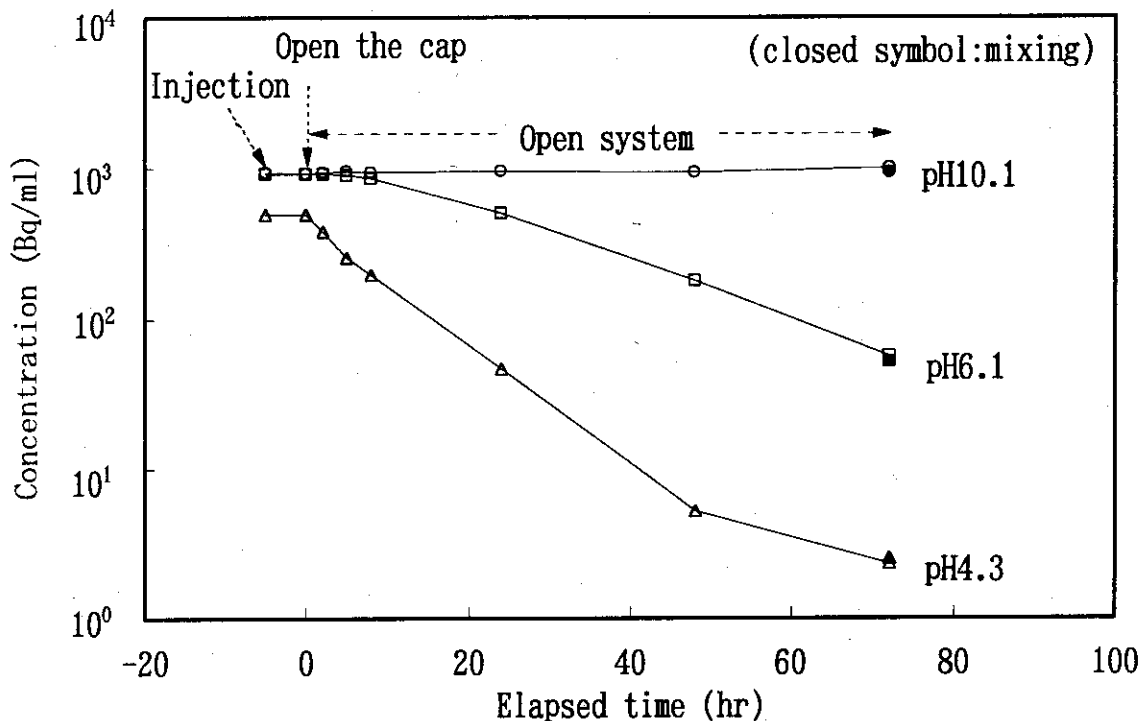


Fig.1 Decrease of  $^{14}\text{C}$  concentration in the open system.

### 3.2 分配係数

分配係数の測定結果をFig. 2～6に示すが、得られた分配係数は反応時間によらずほぼ一定であり、吸着反応は1週間以下で平衡に達することが分かった。また、同時に測定した試料液のpHは、いずれの場合もほぼ中性であり、試料液の採取等の実験系の解放による $^{14}\text{C}$ の発散はなかったものと考えられる。

原研の砂の分配係数が1 (ml/g)程度であるのに対し、六ヶ所の土壌の分配係数は比較的大きく、砂の場合、Sand-Aで90 (ml/g)程度、Sand-Bで60 (ml/g)程度、ロームでは20 (ml/g)程度、粘土では3 (ml/g)程度となっている。

篩分けの効果について見ると、六ヶ所の砂では、74 $\mu\text{m}$ 以下の成分の分配係数がSand-Aで700 (ml/g)程度、Sand-Bでも400 (ml/g)程度と、篩分けしてないものに比べて、はるかに大きくなっている。一方、ロームでは篩分けによる顕著な影響が見られず、篩分けても篩分けなくても、分配係数は20～30 (ml/g)程度である。このことから、ローム及び粘土には少なく、かつ、Sand-A及びSand-Bの粒径が小さい部分に含まれる成分が、無機形 $^{14}\text{C}$ を吸着していると考えられる。

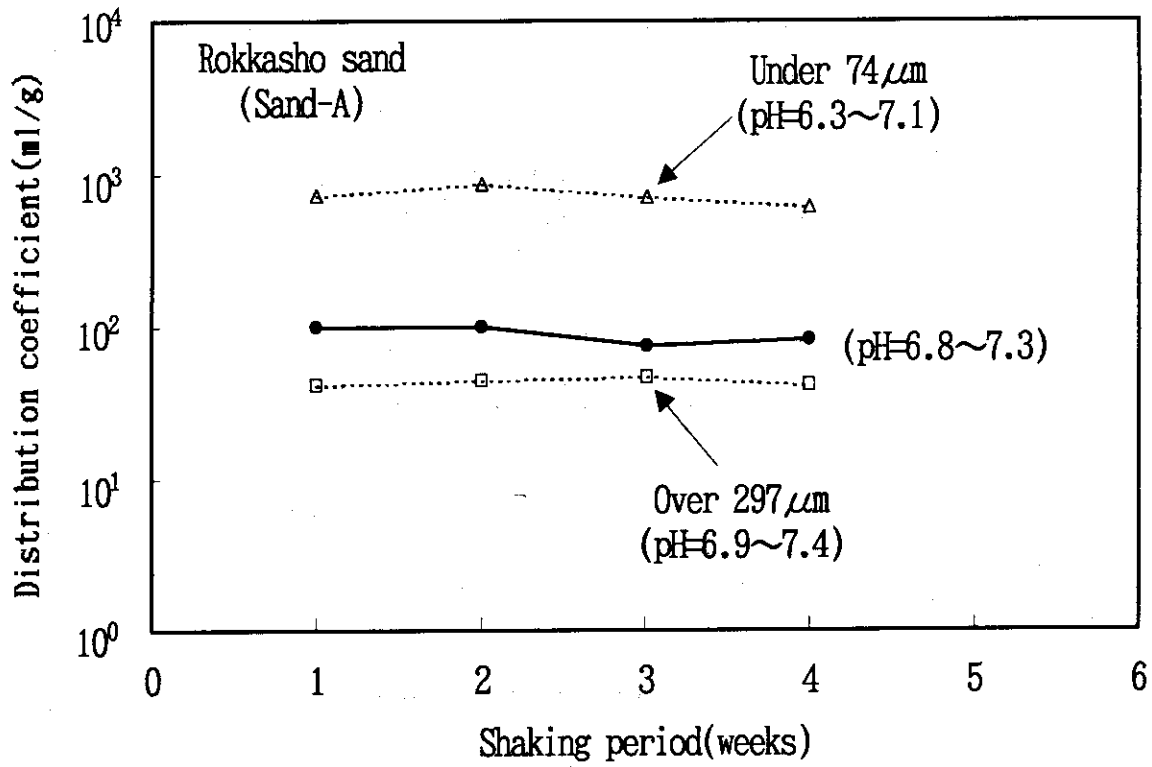


Fig.2 Distribution coefficient of Rakkasho sand-A.

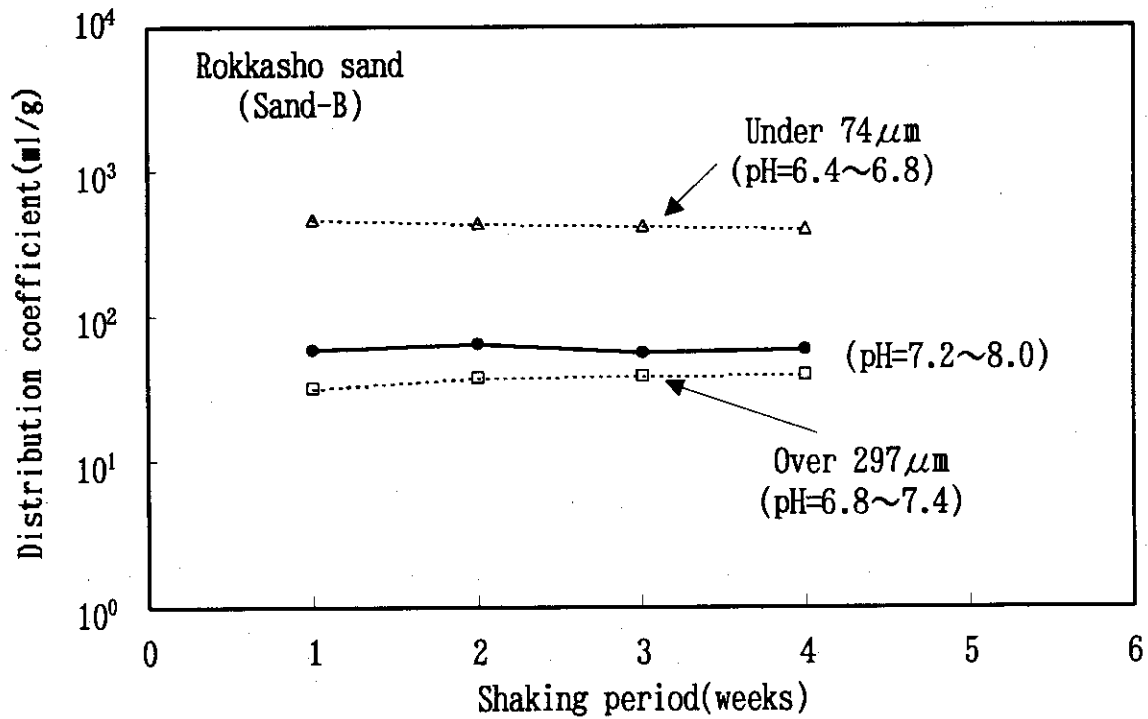


Fig.3 Distribution coefficient of Rakkasho sand-B.

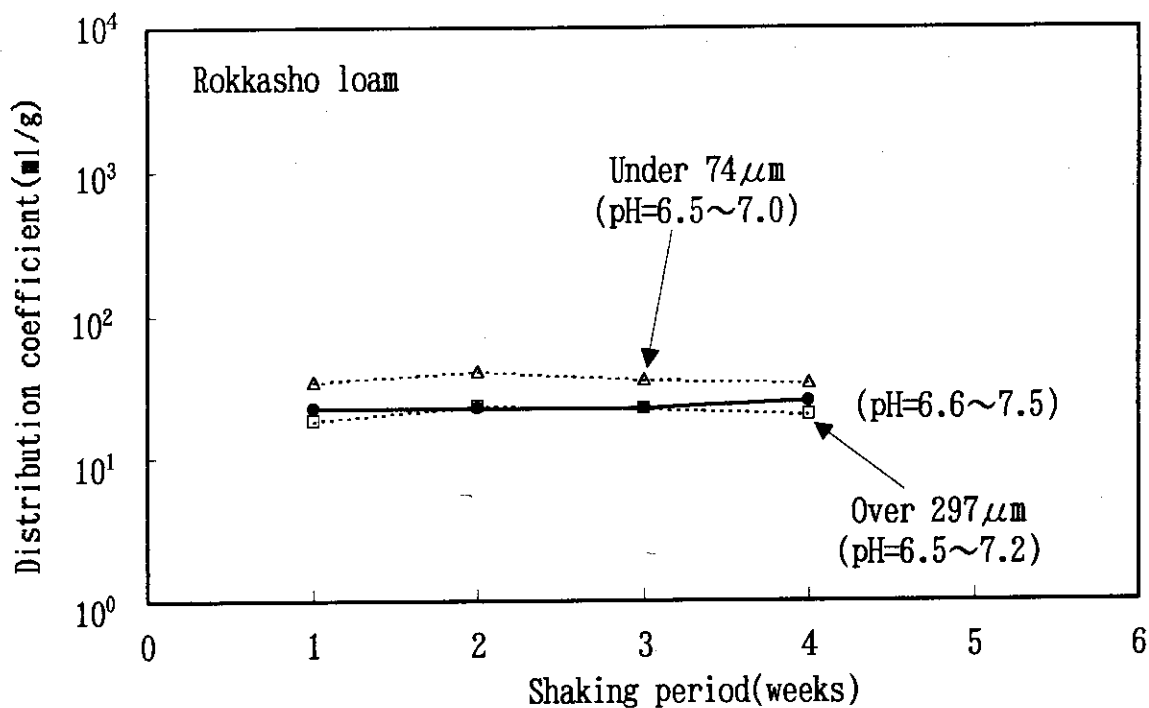


Fig.4 Distribution coefficient of Rokkasho loam.

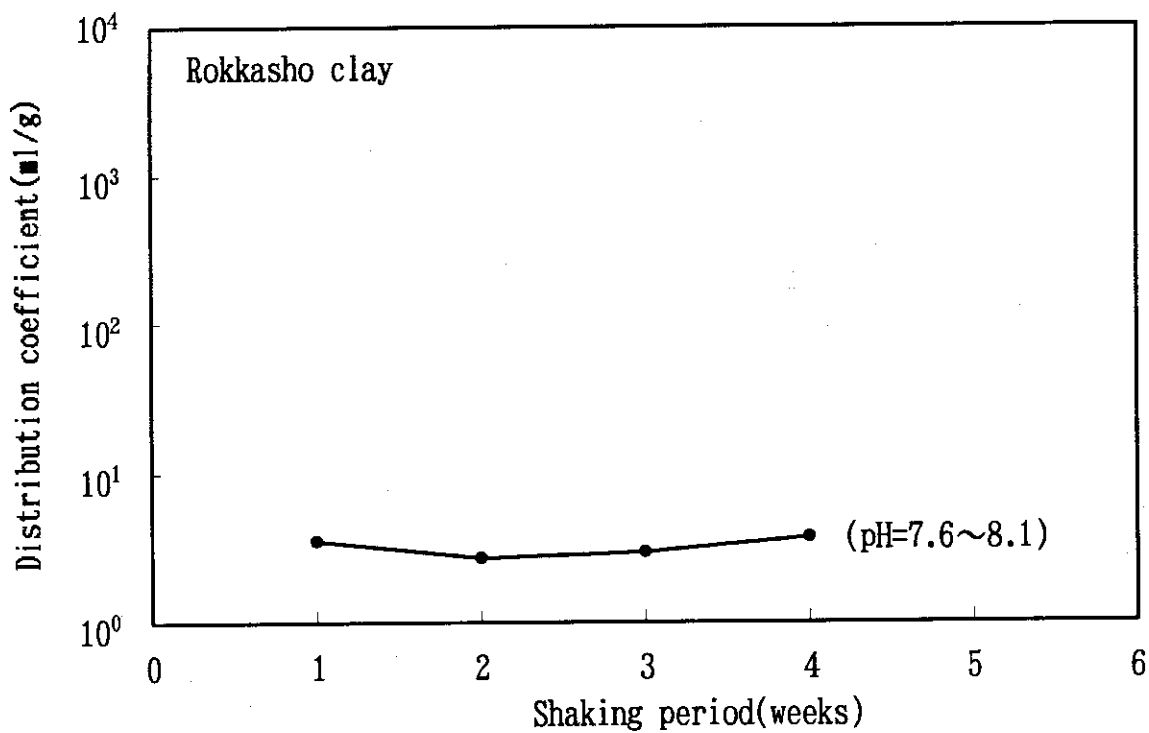


Fig.5 Distribution coefficient of Rokkasho clay.

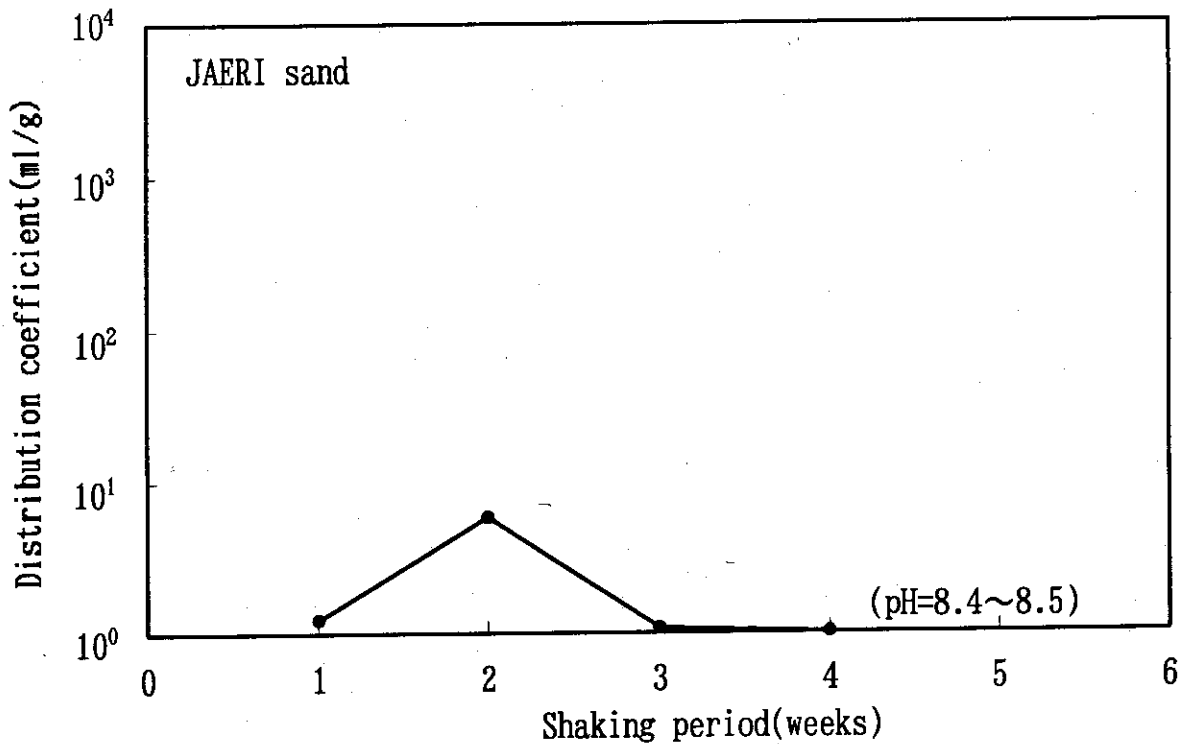


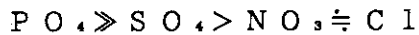
Fig.6 Distribution coefficient of JAERI sand.

本実験で用いた無機形<sup>14</sup>Cは、炭酸ナトリウム形であり、本実験のような溶液のpHが中性条件では1価の重炭酸イオンとして存在することが知られているが、こうした陰イオンの吸着現象について、一般的には、Fe、Al酸化物・水酸化物などの表面及び粘土鉱物の末端破壊面などで起こる現象であるとされている<sup>11)</sup>。本実験の結果では、六ヶ所の砂の粒径74 $\mu$ m以下のものに無機形<sup>14</sup>Cを吸着しやすい成分が含まれていることが明らかとなったが、各土壌の化学組成を示すTable 2では、六ヶ所の土壌では、砂の方がローム及び粘土に比べてFe、Alの含有量が少なく、見かけ上は、Fe、Al酸化物・水酸化物などの関与が小さいようにも見える。しかしながら、化学組成を決定した「珪酸塩岩石の完全分析方法及び迅速分析方法」は、元素組成の測定であり、Fe、Al酸化物・水酸化物などの厳密な指標とはなり得ず、Fe、Al酸化物・水酸化物の関与を否定することはできない。一方、粘土鉱物についても、Table 4に示した含有鉱物の一覧からは、どの鉱物が関与しているのか断定できず、さらに、アロフェンなど比較的陰イオン交換容量が大きく、X線回折で同定し難い非晶質粘土も存在する<sup>12)</sup>。したがって、今後の研究の方向付けのひとつとして、吸着に関与している成分（Fe、Al酸化物・水酸化物あるいは粘土鉱物）の同定を行い、吸着メカニズムを解明するためのデータを収集することが挙げられる。

次に、本実験では結果的にほぼ中性条件での分配係数であったが、水溶液中におけるCO<sub>2</sub>の化学形は、pHにより、CO<sub>2</sub>-HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>-CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>系の無機形炭素と

変動する。さらに、吸着に関与すると考えられる粘土鉱物の陽荷電は変異荷電であり、粘土鉱物の陰イオン交換容量自体がpHの変動により影響を受ける<sup>13)</sup>。このような点も、<sup>14</sup>Cの天然バリア中での移行挙動の解明を困難にしており、pHの影響の定量化は吸着メカニズムとも関連する今後の研究課題である。

陰イオンの土壌への吸着現象では、共存陰イオンの影響について、一般的に、次のような選択性があることが知られている<sup>11)</sup>が、炭酸イオンの選択性については、報告例がほとんどない。



本実験条件における共存イオン濃度は、分配係数の測定と同一の溶液条件で別途測定したが、Table 5に示す通り、無機形<sup>14</sup>Cの吸着現象への影響が考えられる陰イオン濃度は、同じ六ヶ所の土壌でも、10倍程度変動している。したがって、土壌間隙水中に一般的に存在する重炭酸イオン、硫酸イオン、塩素イオン等の変動が無機形<sup>14</sup>Cの移行挙動にどのような影響を及ぼすかについて、今後、検討を進め、炭酸イオンの選択性を明らかにする必要がある。なお、リン酸イオンなどでは、粘土鉱物表面などにイオンが配位子として吸着され、塩素イオンなどでは交換されない強い吸着（特異吸着）を示すことが知られている<sup>12)</sup>が、無機形<sup>14</sup>Cで特異吸着が観察されれば、吸着メカニズムを解明する上でも重要なデータとなることから、データの蓄積が望まれる。

Table 5 Ion composition of equilibrated water with sample soil.  
(mg/l)

	Rokkasho soil				JAERI sand
	Sand-A	Sand-B	Loam	Clay	
Mg <sup>2+</sup>	0.12	0.10	0.20	0.17	0.3
Ca <sup>2+</sup>	0.23	0.17	2.13	0.34	5.0
Na <sup>+</sup>	1.32	4.15	2.97	3.78	0.9
K <sup>+</sup>	0.25	0.20	0.26	0.93	0.9
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.5	1.1	8.1	2.9	1.6
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	2.7	10.9	1.6	6.8	16
Cl <sup>-</sup>	0.60	0.57	3.63	2.65	1.0

Soil weight/Water volume = 5 g/50ml



## 4. 結 言

$^{14}\text{C}$ の天然バリア中での移行挙動を明らかにするための予備実験として、低レベル放射性廃棄物の浅地層処分が進められている青森県六ヶ所村で採取した土壌試料（砂、ローム及び粘土）を対象として、無機形 $^{14}\text{C}$ の分配係数を測定し、砂の粒径の小さい部分に含まれる成分への吸着が主であることなどが示唆された。

天然バリア中における $^{14}\text{C}$ の移行挙動については、報告例が少なく、本実験により測定した六ヶ所の土壌についての無機形 $^{14}\text{C}$ の分配係数値は、現実に低レベル放射性廃棄物の浅地層処分が行われる六ヶ所の土壌のデータであり、データ自体の持つ重要性もあって本報告をまとめたものであるが、今後は、本検討を基に、無機形 $^{14}\text{C}$ を吸着する成分の同定と吸着メカニズムの解明、pH及び共存イオンの影響等についての研究を進めていく予定である。

## 参 考 文 献

- 1) 原子力委員会：“原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画”，(1994)。
- 2) 原子力安全委員会：“放射性廃棄物埋設施設の安全審査の基本的考え方”，(1988)。
- 3) 日本原子力研究所：“低レベル放射性廃棄物陸地処分安全性実証試験【総合安全性実証試験】報告書”，(1987)。
- 4) B.Allard, B.Torstenfelt and K.Andersson: "Scientific Basis for Nuclear Waste Management 3", p.465(1980), Plenum Press, New York.
- 5) J.M.Gruhlke, J.Neiheisel and L.Battist: "Estimates of the Quantities, Form and Transport of Carbon-14 in Low-Level Radioactive Waste", EPA 520/1-86-019(1986)。
- 6) L.Z.Liepins and K.W.Thomas: "Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, Vol.10, No.4, p.357(1988)。
- 7) 馬原保典, 五十嵐敏文, 松岡信明, 平井英治: 日本原子力学会「92'秋の大会」(名古屋), F38(1992)。
- 8) 土質工学会編：“土質試験法(第2回改訂版)”，p.2-4-1(1979)。
- 9) 地質調査所編：“地球科学的試料の化学分析法2”，p.269(1978)。
- 10) 日本粘土学会編：“粘土ハンドブック”，p.427(1967), 技報堂出版。
- 11) G.H.ボルト他編著(岩田進午他訳)：“土壌の化学”，p.99, p.103(1980), 学会出版センター。
- 12) 岩生周一, 長沢敬之助他編著：“粘土の辞典”，p.27(1985), 朝倉書店。
- 13) 日本化学会編：“季刊 化学総説 4 土の化学”，p.59(1989), 学会出版センター。