

JAERI-Research
98-018



段丘堆積層における²³⁷Np及び²⁴¹Amの分配係数

1998年3月

田中忠夫・武部慎一・小川弘道・村岡 進

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。
入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 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（〒319-1195 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 Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 印 しばらき印刷(株)

段丘堆積層における ^{237}Np 及び ^{241}Am の分配係数

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター環境安全研究部

田中 忠夫・武部 慎一・小川 弘道・村岡 進

(1998年2月19日受理)

青森県六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物貯蔵センター周辺の段丘堆積層から採取した凝灰質砂、砂岩、凝灰岩を対象として、 $^{237}\text{Np}(\text{V})$ 及び $^{241}\text{Am}(\text{III})$ の吸着及び脱離実験を実施し、分配係数を測定するとともに吸着メカニズムについて検討した。

^{237}Np の分配係数は、pHが高くなるに従って増大する傾向を示したが、共存するNa及びCaイオンの濃度の影響はみられなかった。また、 ^{237}Np の試料への吸着は主として可逆的な吸着メカニズムに支配されているため、 ^{237}Np の移行挙動は分配係数を適用した吸着モデルで予測可能であることを示した。一方、 ^{241}Am の分配係数は ^{237}Np に比べて3桁も大きく、pH7~8で最も大きな値となる傾向を示した。また、凝灰質砂及び凝灰岩では水溶液中のNa及びCaイオン濃度が高くなるに従って ^{241}Am の分配係数は徐々に減少した。 ^{241}Am の吸着には非可逆的な吸着メカニズムが支配的であることが分かった。この結果から、 ^{241}Am の移行挙動を高い精度で予測するためには、非可逆的な反応を考慮した吸着モデルの適用が必要であることが示唆された。

Distribution Coefficients of ^{237}Np and ^{241}Am in Sedimentary Geological Formation

Tadao TANAKA, Shinichi TAKEBE, Hiromichi OGAWA and Susumu MURAOKA

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

(Received February 19, 1998)

Adsorption and desorption experiments of $^{237}\text{Np(V)}$ and $^{241}\text{Am(III)}$ onto sedimentary materials: tuffaceous sand, sandstone and tuff had been performed by a batch method, to obtain distribution coefficient and to examine adsorption mechanisms.

The distribution coefficient of ^{237}Np increased with pH, while it was not affected by Na^+ and Ca^{2+} concentration. Migration behavior of ^{237}Np in geological formations is able to be estimated by the conventional adsorption model using distribution coefficient, since adsorption mechanism of ^{237}Np is dominated by reversible reactions. On the other hand, the distribution coefficient of ^{241}Am was three order larger than that of ^{237}Np , and it showed maximum value in a pH range between 7 and 8. The distribution coefficient of ^{241}Am for tuffaceous sand and tuff gradually decreased with increasing Na^+ and Ca^{2+} concentration. Adsorption mechanism of ^{241}Am is dominated by irreversible reactions. This suggests that application of an adsorption model taking account of the irreversible reaction is necessary to estimate exact migration behavior of ^{241}Am in geological formations.

Keywords: Adsorption, $^{237}\text{Np(V)}$, $^{241}\text{Am(III)}$, Adsorption Mechanisms, Coexistent Ion, pH, Tuffaceous Sand, Sandstone, Tuff, Distribution Coefficient.

目 次

1. 緒 言	1
2. 実 験	2
2.1 堆積物試料及び ^{237}Np 、 ^{241}Am 水溶液の調製	2
2.2 吸着実験方法	2
2.3 脱離実験方法	3
3. 結果及び考察	4
3.1 吸着過程及び脱離過程における分配係数	4
3.2 分配係数に及ぼすpHの影響	4
3.3 分配係数に及ぼす共存するNa及びCaイオンの影響	5
3.4 吸着メカニズム	6
3.5 移行予測のための分配係数の妥当性と適用性	7
4. 結 言	7
謝 辞	8
参考文献	9

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Preparation of Sedimentary Samples and ^{237}Np and ^{241}Am Solutions	2
2.2 Method for Adsorption Experiments	2
2.3 Method for Desorption Experiments	3
3. Results and Discussion	4
3.1 Distribution Coefficient on Adsorption and Desorption Processes	4
3.2 Influence of pH on Distribution Coefficient	4
3.3 Influence of Na and Ca Ions on Distribution Coefficient	5
3.4 Adsorption Mechanisms	6
3.5 Validity and Applicability of Distribution Coefficient Estimating TRU-nuclides Migration	7
4. Conclusions	7
Acknowledgement	8
References	9

This is a blank page.

1. 緒 言

我が国の原子力発電所からは、施設の運転にともなって放射能レベルが低い“低レベル放射性廃棄物”が200リットルドラム缶換算で年間2.5万本以上発生している⁽¹⁾。このような、原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物については、すでに青森県六ヶ所村で浅地層への埋設が事業として開始されたところである⁽²⁾。一方、現在青森県に建設中の大型再処理施設の運転と回収したプルトニウムの利用に伴い、TRU核種を含む低レベル廃棄物の発生量が今後増大するものと考えられる⁽³⁾。さらに、電力各社が海外に委託している使用済燃料の再処理に伴って発生する高レベル放射性廃棄物ガラス固化体の我が国への返還に続き、同じく再処理過程で発生する雑固化体廃棄物等の低レベル放射性廃棄物の返還も実施される可能性がある⁽⁴⁾。平成3年に原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会から発表された「TRU核種を含む放射性廃棄物の処理処分について」においては、再処理施設やMOX燃料加工施設から発生する“TRU核種を含む廃棄物”についても、 α 放射能濃度が区分目安値(1 GBq/t)よりも低く且つ β , γ 核種の放射能濃度も比較的低いもの(以下、低レベルTRU廃棄物)は浅地層への処分が可能であるとしている⁽⁵⁾。このような情勢の下、日本原子力研究所では燃料サイクル安全工学研究施設(NUCEF)において、低レベルTRU廃棄物を地層中(浅地層も含めた土壌及び堆積岩からなる比較的浅い地層)に処分する場合の安全評価手法の高度化に寄与することを目指した試験研究を進めている^{(6)~(8)}。本報は、NUCEFで実施している地質媒体とTRU核種との相互作用に関する研究から得られた成果の一部をまとめたものである。

低レベルTRU廃棄物には、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウム等、半減期が長く生態への毒性が強い α 線を放出するアクチニドが高い割合で含まれている(Table 1参照)⁽⁹⁾。また、安全評価上問題となる¹²⁹Iや¹⁴Cなどの低吸着性元素が含まれる、廃棄物の形態が雑多である等、原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物及び再処理後の高レベル放射性廃棄物とは異なった特性を持っている⁽⁹⁾。このような低レベルTRU廃棄物を地層中に埋設処分する場合、半減期の長いアクチニドの人間社会への接近に対して、土壌や岩石などの“天然バリア”が有する移行抑止効果が期待される。土壌や堆積岩層など多孔質媒体中における放射性核種の移行は、地下水の移流拡散現象と地質媒体/地下水間での反応とによって主に制御される。実際の環境中で生じる地質媒体/地下水間での反応は、吸着・脱離、溶解・沈殿、固定、錯形成などの反応機構やイオン、コロイド、錯体などの化学形態が多様多様に混在した非常に複雑な系にある。しかし、青森県の六ヶ所村で現在進められている原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物の浅地層中への埋設事業の安全審査など⁽²⁾、現在の地層処分の安全評価に係る地下水シナリオ⁽¹⁰⁾においては、放射性核種の地層中移行を定量的に評価するため、地質媒体/地下水間で生じる全ての反応が一定の平衡定数の下で瞬時に成り立つことを仮定した反応、すなわち分配係数で記述される反応が多くで採用されている。したがって、低レベルTRU廃棄物を地層処分する場合の安全性を評価する

際、分配係数を採用した移行評価モデルが水溶液中で多様な化学形態で存在するアクチニドの移行評価に妥当なモデルであるか否かを確認するとともに、必要に応じより信頼性の高い吸着モデルや移行モデルを提案にすることは重要な研究課題の一つである。

本研究では、青森県六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物貯蔵センター周辺の段丘堆積層から採取した凝灰質砂、砂岩、凝灰岩を対象として、浅地層中で支配的な酸化状態⁽¹⁾である $^{237}\text{Np}(\text{V})\text{O}_2^+$ 及び $^{241}\text{Am}(\text{III})^{3+}$ の吸着・脱離実験を実施し、吸着の可逆性、分配係数のpHや共存イオン濃度依存性及び支配的な吸着メカニズムを調べるとともに、水溶液中で多様な化学形態で存在するアクチニドの移行挙動を予測するために分配係数を採用した移行評価モデルの妥当性についての検討した。

2. 実験

2.1 堆積物試料及び ^{237}Np 、 ^{241}Am 水溶液の調製

本実験に用いた堆積物試料は、青森県上北郡六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物貯蔵センター周辺の段丘堆積層から採取した凝灰質砂、砂岩及び凝灰岩である。これら堆積物試料の物理化学的性質をTable 2に示す。凝灰質砂は風乾した後1mm以上の粗砂を除去してから実験に使用した。砂岩及び凝灰岩は1mm以下のサイズに粉碎して使用した。Table 3は各試料を脱イオン水と接触させ、溶出するイオン、腐植物質の濃度等をまとめたものである。

実験に使用した ^{237}Np 及び ^{241}Am はフランスLMRIから購入した $^{237}\text{NpO}_2\text{NO}_3$ (Code No.: LMRI-NP237-ELSA45) 及び $^{241}\text{Am}(\text{NO}_3)_3$ (Code No.: LMRI-AM241-ELSA45) の硝酸酸性水溶液である。これらを脱イオン水で約 $10^4\text{Bq}/\text{cm}^3$ に希釈したものを ^{237}Np 及び ^{241}Am の原液として実験に供した。原液のpHは $1\text{mol}/\text{dm}^3$ のNaOHで4程度に調整した。

2.2 吸着実験方法

放射性核種の試料への吸着実験はバッチ法で行った。吸着実験の概略図をFig. 1に示す。土壌または粉碎した堆積岩0.5gと脱イオン水 7cm^3 とを 50cm^3 テフロン容器に入れ、 25°C の恒温槽内で平衡に至らせた。その間pH依存性を調べる試験では、土壌や岩石がpH緩衝作用を有するので $1\text{mol}/\text{dm}^3$ のNaOH及び $1\text{mol}/\text{dm}^3$ のHClを用いて所定のpHへの調節と温槽内での平衡化を繰り返し行った。平衡時の液相が所定のpHに到達した後、水溶液量が 10cm^3 となるよう脱イオン水を添加した。また、共存イオン濃度の影響を調べる試験では、 $1\text{mol}/\text{dm}^3$ 及び $0.01\text{mol}/\text{dm}^3$ のNaClまたは CaCl_2 を適量添加し、液相中の Na^+ 及び Ca^{2+} を所定の濃度に調節した。この平衡に至らしめた混合物に液相中の ^{237}Np または ^{241}Am 濃度が $10^3\text{Bq}/\text{cm}^3$ (化学濃度： ^{237}Np が $2 \times 10^{-4}\text{mol}/\text{dm}^3$ 、 ^{241}Am が $8 \times 10^{-8}\text{mol}/\text{dm}^3$) となるよう ^{237}Np または ^{241}Am の原液を添加して吸着反応を開始させた。吸着反応は 25°C の恒温槽内で振とうしながら168時間行った。なお、反応開始から3、24、48、120及び168時間後の上澄み液を 0.1cm^3

採取し、固液間における ^{237}Np 及び ^{241}Am の吸着が概ね平衡に達していることを確認した (Fig. 2 参照)。

168時間後の上澄み液については、MILLIPORE製の孔径 $0.45\ \mu\text{m}$ のメンブランフィルターでろ過し、フィルター透過液 $5\ \text{cm}^3$ 中の ^{237}Np 及び ^{241}Am 濃度を測定した。 ^{237}Np 及び ^{241}Am の濃度はORTEC製 γ 線スペクトロメーターを用いて測定した。また、pH及びEhをHORIBA製pHメーター：F-22を用いて測定した。

吸着過程における試料と水溶液の間における ^{237}Np 及び ^{241}Am の分配係数は、フィルター透過液中の ^{237}Np 及び ^{241}Am の濃度から(1)式を用いて計算した。

$$K_d^{ads} = \frac{C_0 - C_e^{ads}}{C_e^{ads}} \cdot \frac{V}{W} \quad (1)$$

ここで、 K_d^{ads} は C_e^{ads} を平衡後の濃度として計算した吸着過程における分配係数(cm^3/g)、 C_0 は液相中における ^{237}Np または ^{241}Am の初期濃度(Bq/cm^3)、 C_e^{ads} はフィルターを透過したろ液中の ^{237}Np または ^{241}Am 濃度(Bq/cm^3)、 V は水溶液の体積(cm^3)、 W は試料の重量(g)である。

2.3 脱離実験方法

2.2の吸着実験に引き続いて、各試料に吸着した ^{237}Np 及び ^{241}Am の脱離実験をバッチ法で実施した。脱離実験の概略図をFig. 3に示す。 ^{237}Np 及び ^{241}Am を吸着させた各試料は、 $50\ \text{cm}^3$ テフロン容器内で、予めおのおのの試料と脱イオン水とを168時間接触させて調製した試料平衡水 $10\ \text{cm}^3$ と混合し、 25°C の恒温槽内で振とうしながら168時間の脱離を行った。168時間後の上澄み液をMILLIPORE製の孔径 $0.45\ \mu\text{m}$ のメンブランフィルターでろ過した後、 ^{237}Np 及び ^{241}Am 濃度を測定した。

脱離過程における試料と水溶液の間における ^{237}Np 及び ^{241}Am の分配係数は、フィルター透過液中の ^{237}Np 及び ^{241}Am の濃度から(2)式を用いて計算した。

$$K_d^{des} = \frac{C_0 - C_e^{des} - C_e^{ads}}{C_e^{des}} \cdot \frac{V}{W} \quad (2)$$

ここで、 K_d^{des} は脱離過程における分配係数(cm^3/g)、 C_e^{des} は脱離実験の液相中における ^{237}Np 及び ^{241}Am の平衡濃度(Bq/cm^3)である。

平衡水による脱離実験の後の試料に残存する ^{237}Np 及び ^{241}Am の吸着メカニズムを調べるため、次に示す4種類の抽出試薬を用いて試料に吸着した ^{237}Np 及び ^{241}Am の逐次抽出を行った(12)~(16)。

- ・ 1段目の抽出： Ca^{2+} と交換可能な吸着形態にある ^{237}Np 及び ^{241}Am フラクションを脱離させるため、 $0.5\ \text{mol}/\text{dm}^3$ の CaCl_2 水溶液による 25°C で24時間の抽出を2回

- ・ 2段目の抽出： K^+ と交換可能な吸着形態にある ^{237}Np 及び ^{241}Am フラクションを脱離させるため、 0.5mol/dm^3 の KCl 水溶液による 25°C で24時間の抽出を1回
- ・ 3段目の抽出：マンガン及び鉄の水酸化・酸化物と結合している ^{237}Np 及び ^{241}Am フラクションを脱離させるため、 pH 2に調節した 0.1mol/dm^3 の $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ と 0.2mol/dm^3 のシュウ酸カリウム水溶液（ K-oxalate ）の混合溶液を用いて 25°C で24時間の抽出を2回
- ・ 4段目の抽出：有機態や Calcite を溶解し、これらと結合している ^{237}Np 及び ^{241}Am フラクションを脱離させるため、 pH 2に調節した30w%の H_2O_2 と 60°C で6時間反応

おのこの抽出液中の ^{237}Np 及び ^{241}Am 濃度及び一連の抽出操作後の試料に残存する ^{237}Np 及び ^{241}Am 濃度を測定し、各抽出フラクション及び試料に固定された ^{237}Np 及び ^{241}Am の割合を求めた。

3. 結果及び考察

3.1 吸着過程及び脱離過程における分配係数

吸着実験から得られた各試料に対する ^{237}Np 及び ^{241}Am の吸着過程における分配係数 K_d^{ads} 、脱離過程における分配係数 K_d^{des} 、及び pH 、 E_h の値をTable 4に示す。吸着過程における分配係数については、 ^{237}Np の K_d^{ads} は2.3~7.4と試料による違いは小さいことが分かった。この傾向は K_d^{des} でも同様にみられた。 ^{241}Am の K_d^{ads} は ^{237}Np より3桁大きい値が得られた。

吸着と脱離の両過程における分配係数を比較すると、 ^{237}Np の K_d^{des} は K_d^{ads} より3~6倍大きな値となった。一方、 ^{241}Am はいずれの試料についても平衡水による ^{241}Am の脱離は検出されず、これら試料による ^{241}Am の保持能力が著しく大きいことが分かった。このように、脱離過程における分配係数が吸着過程から得られる値より大きくなるという事実は、土壌や堆積岩への ^{237}Np 及び ^{241}Am の吸着に非可逆的な吸着メカニズム、言い換えると脱離速度が非常に遅い反応が関与していることを示唆する。

3.2 分配係数に及ぼす pH の影響

^{237}Np 及び ^{241}Am の分配係数と液相の pH との関係をFig. 4の(a)、(b)にそれぞれ示す。

pH の変動範囲は、凝灰質砂が4.7~9.7、砂岩は7.8~10.2、凝灰岩が4.1~9.9であった。

大きな pH 緩衝作用を有するため、 pH の変動範囲が塩基性領域のみと小さかった砂岩についての ^{237}Np の分配係数は、 pH 変動による有意な影響を受けなかった。凝灰岩の場合は、 pH が高くなるに従って分配係数の増大はみられたものの増加率は小さいものであった。これに対して凝灰質砂の場合は、塩基性領域で pH が高くなるのに伴う顕著な分配係数の増大が認められた。

土壌や岩石の固相表面電荷密度は、表面のOH基の酸解離定数とpHに依存する変異荷電密度とpHに依存しない永久荷電密度との和として現れる。変異荷電は、土壌を構成する鉱物の末端の破碎端が水溶液中において次のような解離を起こすことによって生じる⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾。



一方永久荷電は、鉱物構成する Si^{4+} の一部が原子価が異なる Fe^{3+} と置換するなどによって発生する内部構造に起因する電荷である。したがって、液相のpHが高くなるに従って固相表面の負電荷密度は高くなるので、陽イオンの吸着性は一般に大きくなる⁽¹⁹⁾。

^{237}Np は酸性領域からpH 7付近まで安定な $^{237}\text{NpO}_2^+$ として存在するが、塩基性領域では $^{237}\text{NpO}_2\text{OH}$ や $^{237}\text{NpO}_2\text{CO}_3^-$ の非陽イオン性化学種を形成する⁽²⁰⁾⁽²¹⁾。 $^{237}\text{NpO}_2\text{OH}$ は塩基性領域で固相表面の水酸基と表面錯体を形成するため吸着率を増大させるが、 $^{237}\text{NpO}_2\text{CO}_3^-$ は負電荷を有するため固相に吸着されにくく吸着率を減少させるよう作用する⁽²⁰⁾。Table 3から、実験に用いた土壌及び堆積岩から溶出する HCO_3^- の濃度は砂岩で $136\text{mg}/\text{dm}^3$ と著しく高く、凝灰質砂で最も低い値を示すことが分かる。したがって、吸着性の小さな $^{237}\text{NpO}_2\text{CO}_3^-$ の形成率が最も少ないと推定される凝灰質砂の場合、塩基性領域でpHが高くなるのに伴い顕著な分配係数の増大がみられたものと推察される。

^{241}Am の分配係数は、いずれの試料についても酸性領域ではpHが高くなるに従って徐々に増大し、pH 7~8で最も大きな値をとり、塩基性領域ではpHが高くなるに従って減少する傾向を示した。 ^{241}Am は酸性水溶液中では $^{241}\text{Am}^{3+}$ として存在するが、pH 5.5付近から加水分解及び炭酸錯体形成により $^{241}\text{Am}(\text{OH})^{2+}$ 、 $^{241}\text{Am}(\text{CO}_3)^+$ 形成し始め、さらにpHが高くなると $^{241}\text{Am}(\text{OH})_2^+$ や吸着性が小さな $^{241}\text{Am}(\text{OH})_3$ 、ヒドロキシ炭酸錯体($^{241}\text{Am}(\text{OH})_2\text{CO}_3^-$ 等)等を形成する⁽²²⁾⁽²³⁾。これら化学種は凝集してコロイド状化学種を形成する⁽²⁴⁾。したがって、pHが高くなるとともに固相表面の負電荷密度が大きくなるにも係わらず分配係数はpH 7~8で最大となり、塩基性領域では小さくなったものと推察される。

本実験に使用した堆積物試料採取地点付近の帯水層から採取した地下水のpH (5.8~7.1)をFig. 4に示した。このpH付近において ^{241}Am の分配係数は大きな値を示すことが分かる。

3.3 分配係数に及ぼす共存するNa及びCaイオンの影響

^{237}Np 及び ^{241}Am の分配係数と水溶液中の共存Na及びCaイオン濃度との関係をFig. 5の(a), (b), Fig. 6の(a), (b)にそれぞれ示す。Na及びCaイオン濃度は、実験に使用した土壌及び堆積岩からのNa及びCaの溶出濃度 (Table 3を)を最低濃度として2~3桁の範囲で変動させた。

^{237}Np の分配係数は、いずれの試料についてもNa及びCaイオン濃度の影響をほとんど受けなかった。一方 ^{241}Am の分配係数は、凝灰質砂と凝灰岩については水溶液中のNa及びCaイオン濃度が高くなるに従って徐々に減少する傾向を示した。しかし、砂岩については有意な差

がみられなかった。砂岩の場合、共存イオンの影響を調べた系のpHが8.5~8.9と塩基性領域であったため、 ^{241}Am の吸着挙動に及ぼす液性の影響は共存イオンとの吸着の競合に比べて $^{241}\text{Am}(\text{OH})_3$ の形成など ^{241}Am の化学形態が支配的であるためと考えられる。

本実験に使用した堆積物試料採取地点付近の帯水層から採取した地下水中のNaイオン濃度($3.5 \times 10^{-4} \sim 7.8 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$)及びCaイオン濃度($4.0 \times 10^{-5} \sim 7.0 \times 10^{-5} \text{ mol/dm}^3$)をFigs. 5及び6に示した。実験結果との比較から、地下水中のNa及びCaイオン濃度の変動範囲内で ^{237}Np 及び ^{241}Am の分配係数は共存するNa及びCaイオンの影響をほとんど受けないことが分かる。

3.4 吸着メカニズム

凝灰質砂、凝灰岩及び砂岩に吸着した ^{237}Np 及び ^{241}Am の各種抽出試薬で抽出される割合をTable 5及びFig. 7に示す。

^{237}Np については、凝灰質砂に吸着した ^{237}Np の66%が、また砂岩では73%及び凝灰岩では76%の ^{237}Np が、土壤平衡水、 CaCl_2 及び KCl 水溶液によって抽出された。これは、 ^{237}Np の吸着がイオン交換などに基づく可逆的な吸着メカニズムに支配されていることを示す。しかし、これら試料に吸着した ^{237}Np の約10%は $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl} + \text{K-oxalate}$ によって抽出される成分であり、またいずれの抽出試薬によっても脱離しない成分も20%前後存在する。 $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl} + \text{K-oxalate}$ によって抽出される成分は、鉄やマンガンの水酸化・酸化物と選択的に化学結合した成分とみなすことができる。天然に存在する主要な鉱物を構成する鉄やマンガン水酸化・酸化物は一般の環境条件下で地下水に容易に溶解することなく安定に存在するため、環境中ではこれら水酸化・酸化物と化学結合した ^{237}Np は非可逆的に吸着した成分とみなすことができる。したがって、試料に吸着した ^{237}Np の20%程度は非可逆的な吸着メカニズムに基づいているものと推察される。

一方、各種抽出試薬によって脱離される ^{241}Am の割合は試料によって大きく異なることが分かった(Table 7(b))。凝灰質砂については、吸着した ^{241}Am の約50%が土壤平衡水、 CaCl_2 及び KCl 水溶液によって抽出される可逆的な吸着メカニズムに支配され、残り50%が $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl} + \text{K-oxalate}$ によって抽出される鉄やマンガン水酸化・酸化物との化学結合成分(約30%)及びいずれの抽出試薬によっても脱離しない固定成分(約20%)からなる非可逆的な吸着メカニズムに支配されていることが分かった。砂岩については、土壤平衡水、 CaCl_2 及び KCl 水溶液によって脱離する割合は僅か3%程度であり、60%以上がいずれの抽出試薬によっても抽出されない固定された成分であった。凝灰岩に吸着した ^{241}Am は土壤平衡水、 CaCl_2 及び KCl 水溶液によって30%が、また $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl} + \text{K-oxalate}$ によって20%程度が抽出され、いずれの抽出試薬によっても脱離しない成分は約50%であった。これらの結果は、堆積物試料に対する ^{241}Am の吸着メカニズムは一様ではないことを示している。

以上の結果から、土壌や堆積岩への ^{237}Np 及び ^{241}Am の吸着には、可逆的な吸着と非可逆的な吸着の両方が関与していることが見出された。したがって、 ^{237}Np 及び ^{241}Am の吸着には脱離しにくい吸着メカニズムが含まれるため、Table 4でみられたように脱離過程おける分配

係数 K_d^{241Am} が吸着過程から得られる値 K_d^{237Np} より大きくなったものと考えられる。また、 ^{241}Am の場合、非可逆吸着とみなせる吸着メカニズムが50~95%あり、吸着形態が ^{237}Np に比べ脱離されにくいことが明らかとなった。このような ^{241}Am の吸着の非可逆性が、Table 4において ^{237}Np に比べて3桁も大きな分配係数を与えた一因といえる。

3.5 移行予測のための分配係数の妥当性と適用性

本実験に使用した土壌及び堆積岩についての ^{237}Np の分配係数は低レベル放射性廃棄物に含まれる主要陽イオン核種である ^{60}Co 、 ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の分配係数（安全審査では70~1,000 cm^3/g が用いられている⁽²⁾）に比べても著しく小さい値であった（Table 4）。したがって、使用済み燃料中に含まれる主要核種でもあり半減期が214万年と長い ^{237}Np は、地下水シナリオにおいて種々の陽イオン核種に先行する重要な移行評価対象核種の一つであると判断できる。一方、 ^{241}Am の分配係数はいずれの試料についても2,000 cm^3/g 以上と大きく、さらにその吸着は非可逆的な吸着メカニズムが支配的であることから、段丘堆積層中における ^{241}Am の移行は天然バリアによる大きな移行抑止作用を受けることが予測される。また、 ^{237}Np 及び ^{241}Am の吸着に非可逆的な吸着メカニズムが含まれるという事実は、従来から地下水シナリオに基づく安全評価に適用されている固液間の反応として分配係数を適用した吸着モデルが保守的な評価を導くものであることを支持する。

土壌や堆積岩への ^{237}Np の吸着は非可逆的な吸着メカニズムが一部含まれるものの、主として可逆吸着に基づいていることから、可逆的な瞬時反応を仮定した分配係数で移行挙動を概ね評価可能であると推察される。一方、 ^{241}Am の吸着には可逆吸着と非可逆的な吸着メカニズムの両方が関与している（砂岩では96%が非可逆的な吸着メカニズムに支配されている）。非可逆的な吸着が支配的な元素の地層中移行挙動を可逆吸着を仮定した分配係数による記述で予測することは、上述のように安全評価においては保守的な評価結果を与えられるが、論理的に満足できる移行予測とは認められない。例えば移行性を不当に過大評価していることになる。このような評価は、例えば地層処分安全審査に係る基準値の策定などにおいて、安全裕度を大きく確保するため埋設濃度上限値を過剰に低く設定しなければならないなどの非合理的な措置を必要とするだけでなく、延いては処分費用の増大にもつながる。したがって、論理的でかつ合理的な安全評価を行ううえで ^{241}Am の移行予測を信頼性高く行うためには、可逆的な瞬時平衡を仮定した分配係数で記述可能な速い平衡反応と非可逆的な非常に遅い反応とを混成させた新たな吸着モデルが必要である。

4. 結 言

青森県六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物の最終貯蔵センター周辺の段丘堆積層から採取した凝灰質砂、砂岩、凝灰岩を対象として、 $^{237}Np(V)$ 及び $^{241}Am(III)$ の吸着及び脱離実験を実

施し、分配係数を測定するとともに吸着メカニズムについて検討した。

^{237}Np の分配係数はpHが高くなるに従って増大する傾向を示したが、共存するNa及びCaイオンの濃度の影響はみられなかった。一方、 ^{241}Am の分配係数は酸性領域ではpHが高くなるに従って徐々に増大し、pH7~8で最も大きな値をとり、塩基性領域ではpHが高くなるに従って減少する傾向を示した。また、凝灰質砂及び凝灰岩では水溶液中のNa及びCaイオン濃度が高くなるに従って ^{241}Am の分配係数は徐々に減少した。

^{237}Np の試料への吸着は主として可逆的な吸着メカニズムに支配されているため、 ^{237}Np の移行挙動は分配係数を適用した吸着モデルで予測可能であることを示した。一方、 ^{241}Am の吸着は非可逆的な吸着メカニズムが支配的であることが分かった。この結果から、 ^{241}Am の移行挙動を高い精度で予測するためには、非可逆的な反応を考慮した吸着モデルの適用が必要であることを指摘した。また、対象とした土壌及び堆積岩についての ^{241}Am の分配係数は、非可逆的な吸着メカニズムのために ^{237}Np に比べて3桁も大きな値を与えることが分かった。しかし、本実験で適用した逐次抽出法では、吸着メカニズムに関する情報を間接的にしか得られない。得られた知見を理論的に証明するためには、アクチニドがどのような化学形態で、どんなサイトと、どのように反応しているのか、といった微視的な固液界面での吸着現象の解明が必要であると考え⁽²⁵⁾。

六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物貯蔵センターにおける第一期埋設事業の安全審査では、原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物に含まれる α 核種の濃度が低いこともあり、TRU核種の埋設濃度上限値は全 α 濃度で1.11GBq/tと設定されている⁽¹⁾。また、安全評価においては全 α 核種を ^{241}Am または ^{239}Pu で代表させている⁽¹⁾。しかし、本実験結果から明らかのようにTRU核種の種類によって分配係数の大きさは著しく異なることが明らかとなった。さらに、吸着のメカニズムも異なることが見出された。したがって、再処理施設やMOX燃料加工施設などから発生するTRU核種を主要核種として含む廃棄物の基準値の策定においては、低レベルな廃棄物であっても核種ごとに基準値を設定する方が合理的であると考え⁽²⁶⁾。

また、多くのアクチニドイオンは、加水分解、地下水コロイドへの吸着等によってコロイド状化学種を形成する⁽²⁶⁾⁽²⁷⁾。このような吸着性の小さなコロイド状化学種の形成が、地層中におけるTRU核種の吸着移行挙動に大きな影響を及ぼす可能性も指摘されている^{(28)~(30)}。

以上のことから、低レベルTRU廃棄物は浅地層中に処分可能であるとしても、その安全評価に原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物の場合と同じ手法が適用可能であるかどうかは慎重に議論すべきであることを提言するものである。

謝 辞

本報をまとめるにあたり貴重なご助言を頂きました環境安全研究部天然バリア研究室の向井雅之氏に深く感謝の意を表します。

参考文献

- (1) 原子力環境整備センター：放射性廃棄物データブック，(1995)。
- (2) 日本原燃産業株式会社：六ヶ所低レベル放射性廃棄物貯蔵センター廃棄物埋設事業許可申請書，(1988)。
- (3) 原子力環境整備センター：原環センタートピックス No.25，(1993)。
- (4) 日本原子力産業会議：放射性廃棄物管理ガイドブック，(1988)。
- (5) 原子力委員会：TRU核種を含む放射性廃棄物の処理処分について，(1991)。
- (6) NUCF実験計画検討グループ：JAERI-M 94-066，(1994)。
- (7) 内藤俣孝，他：原子力工業，40，13 (1994)。
- (8) 藤根幸夫，久保田益充，村岡進，荒克之：ibid.，43，26 (1997)。
- (9) TRU廃棄物検討委員会平成2年度報告書：TRU廃棄物処理・処分のあり方(その3)，(1991)。
- (10) 原子力環境整備センター：原環センタートピックス No.21，(1991)。
- (11) 中山慎一：原子力誌，32，970 (1988)。
- (12) T.Tanaka, K.Sriyotha and H.Kamiyama: Proc. 3rd Int.Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (RECOD'91), Sendai, Japan, pp.1011 (1991)。
- (13) J.L.Means, D.A.Crerar and M.P.Borcsik: Geochim.Cosmochim.Acta, 42, 1763 (1978)。
- (14) T.T.Chao: Soil Sci.Soc.Amer.Proc., 36, 764 (1972)
- (15) U.Schwertmann: Can.J.Soil Sci., 53, 244 (1973)。
- (16) A.Tessier P.G.C.Campbell and M.Bisson: Anal.Chem., 51, 844 (1979)。
- (17) 白水晴雄：粘土鉱物学—粘土科学の基礎—，pp.37，(1988)，朝倉書店。
- (18) Gast,R.G.: Minerals in Soil Environments (ed. by Dixon,J.B., Weed,S.B.)，pp.35，(1977)，Soil Sci.Soc.Am..
- (19) Sakamoto,Y., Konishi,M., Shirahashi,K., Senoo,M., Moriyama,N.: Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, 15, 13 (1990)。
- (20) 坂本義昭：放射性廃棄物研究，1，107 (1994)。
- (21) V.Moulin, P.Robouch, P.Vitorge and B.Allard: Radiochim.Acta, 44/45, 33 (1988)。
- (22) J.I.Kim, G.Buckau, E.Bryant and R.Klenze: ibid., 48, 135 (1985)。
- (23) 山口徹治，中山真一：放射性廃棄物研究，3，49 (1996)。
- (24) 長崎晋也，田中知，鈴木篤之：ibid., 1, 91 (1994)。
- (25) 班目春樹，他：原子力誌，39，821 (1997)。
- (26) S.Nagasaki, S.Tanaka and A.Suzuki: J.Nucl.Sci.Technol., 31, 141 (1994)。
- (27) A.Saltelli, A.Avogadro and G.Bidoglio: Nucl.Technol., 67, 245 (1984)。
- (28) J.F.MacCarthy and J.M.Zachara: Environ.Sci.Technol.: 23, 496 (1989)。
- (29) 鎮守浩史，他：日本原子力学会「1997年秋の大会」予稿集，pp.693 (1997)。
- (30) 田中忠夫，村岡進：JAERI-Research, in print.

Table 1 Radionuclides contained in LLW and TRU wastes.

Radionuclide	Radioactivity	
	LLW* (Bq)	TRUW** (Bq/m ³)
³ H (12.3y)	1.22×10 ¹⁴	
¹⁴ C (5.7×10 ³ y)	3.37×10 ¹²	5.5×10 ²
⁶⁰ Co (5.27y)	1.11×10 ¹⁵	5.1×10 ⁷
⁵⁹ Ni (7.5×10 ⁴ y)	3.48×10 ¹²	2.7×10 ⁴
⁶³ Ni (100y)	4.44×10 ¹⁴	4.1×10 ⁶
⁹⁰ Sr (28.8y)	6.66×10 ¹²	4.7×10 ⁸
⁹⁴ Nb (2.0×10 ⁴ y)	3.33×10 ¹⁰	
⁹⁹ Tc (2.14×10 ⁵ y)	7.40×10 ⁹	8.7×10 ⁴
¹⁰⁶ Ru (366.5d)		2.1×10 ⁸
¹²⁹ I (1.6×10 ⁷ y)	1.11×10 ⁸	2.1×10 ²
¹³⁴ Cs (2.06y)		3.2×10 ⁸
¹³⁷ Cs (30.2y)	4.07×10 ¹³	6.5×10 ⁸
¹⁴⁴ Ce (284.5d)		2.0×10 ⁸
¹⁵⁴ Eu (8.5y)		5.6×10 ⁷
²³⁷ Np (2.14×10 ⁶ y)		3.7×10 ³
²³⁸ Pu (87.7y)		3.2×10 ⁷
²⁴¹ Pu (14.4y)		6.8×10 ⁸
²⁴¹ Am (433y)		8.7×10 ⁶
²⁴⁴ Cm (18.1y)		2.4×10 ⁷
α-nuclides	2.33×10 ¹¹	7.3×10 ⁷

*: LLW (Low level radioactive waste),
total storage plan in Rokkasho site⁽²⁾

** : TRUW (Combustible low level miscellaneous solid TRU waste),
Estimated concentration⁽⁹⁾

Table 2 Physico-chemical properties of the sedimentary samples.

	Tuffaceous sand	Sandstone	Tuff
Specific gravity	2.65- 2.75	2.81	2.57
Cation exchange capacity (meq/100g)	1.8 - 3.4	24.8	16.5
Chemical composition (%)			
SiO ₂	73.88-74.83	38.48	62.89
Al ₂ O ₃	10.85-12.37	14.63	14.15
TiO ₂	0.23- 0.30	0.77	0.34
Fe ₂ O ₃	1.47- 3.80	18.71	4.99
CaO	2.31- 2.43	9.65	3.20
MgO	0.86- 1.82	5.24	1.68
FeO	1.12- 1.72	2.88	1.29
Na ₂ O	1.58- 1.72	2.22	2.56
K ₂ O	0.40- 0.42	0.87	2.18
P ₂ O ₅	0.05- 0.06	0.13	0.05
MnO	0.05- 0.07	0.08	0.06
H ₂ O	3.35- 4.07	3.53	6.34
Humic substance (mgC/100g)	33 - 37	2	2
Humic acid (mgC/100g)	1 - 2	<1	<1

Table 3 Physico-chemical properties of the equilibrated solution.

	Tuffaceous sand	Sandstone	Tuff
pH	6.4 - 6.5	8.6	6.8
Eh (mV)	420 -470	320	450
K ⁺ (mg/dm ³)	0.17- 0.32	4.7	1.5
Na ⁺ (mg/dm ³)	2.2 - 3.0	48.2	5.9
Mg ²⁺ (mg/dm ³)	0.13- 0.23	0.19	0.60
Ca ²⁺ (mg/dm ³)	0.15- 0.55	0.79	0.87
HCO ₃ ⁻ (mg/dm ³)	2.8 - 3.6	136	8.3
SiO ₂ (mg/dm ³)	5.9 - 7.4	34.8	35.4
Fe (mg/dm ³)	<0.05	<0.05	<0.05
Al (mg/dm ³)	<0.5	<0.5	<0.5
Humic substance (mgC/dm ³)	<1	16.4	6.1
Humic acid (mgC/dm ³)	<1	<1	<1

Table 4 Distribution coefficients in adsorption and desorption processes and pH and Eh of solution .

Distribution coefficient (cm ³ /g)	Tuffaceous sand		Sandstone		Tuff	
	K _d ^{ads}	K _d ^{des}	K _d ^{ads}	K _d ^{des}	K _d ^{ads}	K _d ^{des}
²³⁷ Np	2.3	13	7.4	21	4.1	17
²⁴¹ Am	5400	>10000	2900	>10000	2000	>10000
pH	6.4		9.0		7.2	
Eh (mV)	340		220		310	

Table 5 Percentage of ^{237}Np and ^{241}Am desorbed from the sedimentary samples by the sequential chemical extraction procedure.

Radionuclide	Sample	Equilibrated solution	CaCl_2	KCl	$\text{NH}_2\text{OH}+\text{K-oxalate}$	H_2O_2	Residue
^{237}Np	Tuffaceous sand	48.9	15.2	2.1	5.8	2.5	25.5
	Sandstone	58.1	12.6	2.3	6.0	6.4	14.6
	Tuff	57.6	17.2	1.3	4.2	6.1	13.6
^{241}Am	Tuffaceous sand	<0.1	36.6	10.8	14.4	16.6	21.6
	Sandstone	1.3	1.6	0.6	2.0	32.4	62.1
	Tuff	0.8	14.4	14.1	2.9	14.6	53.2

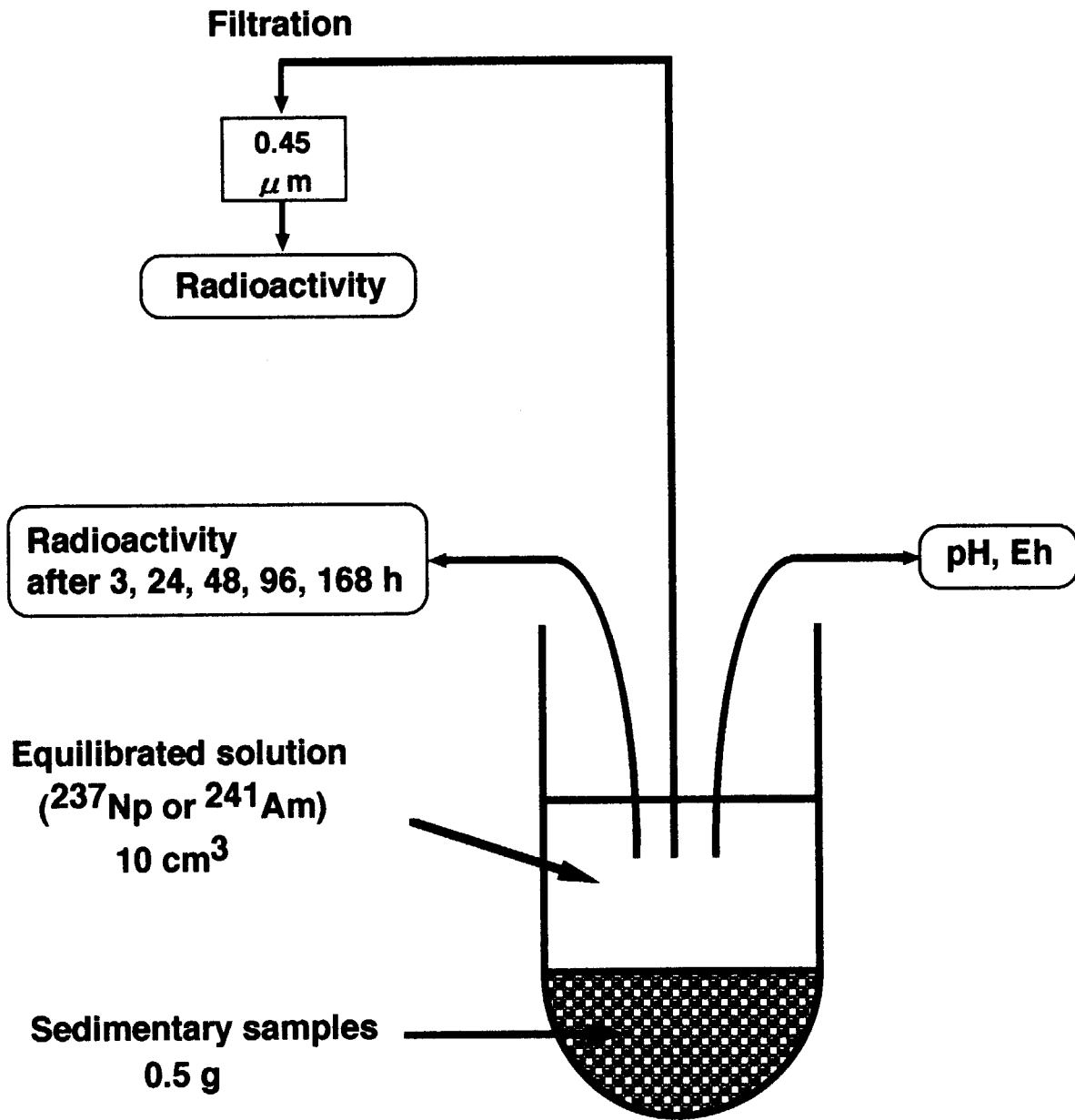
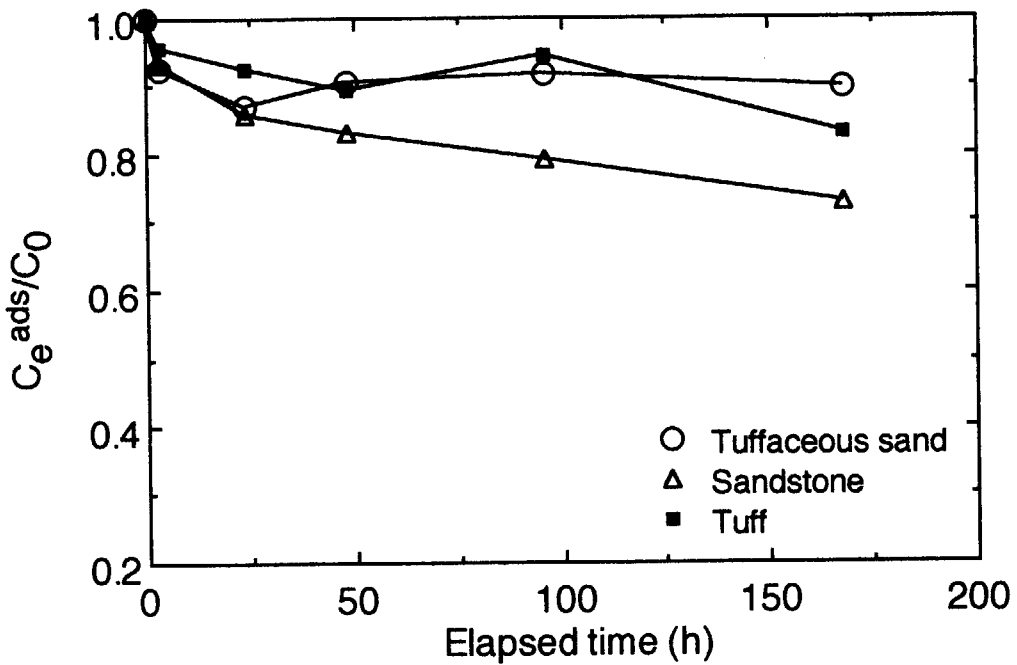
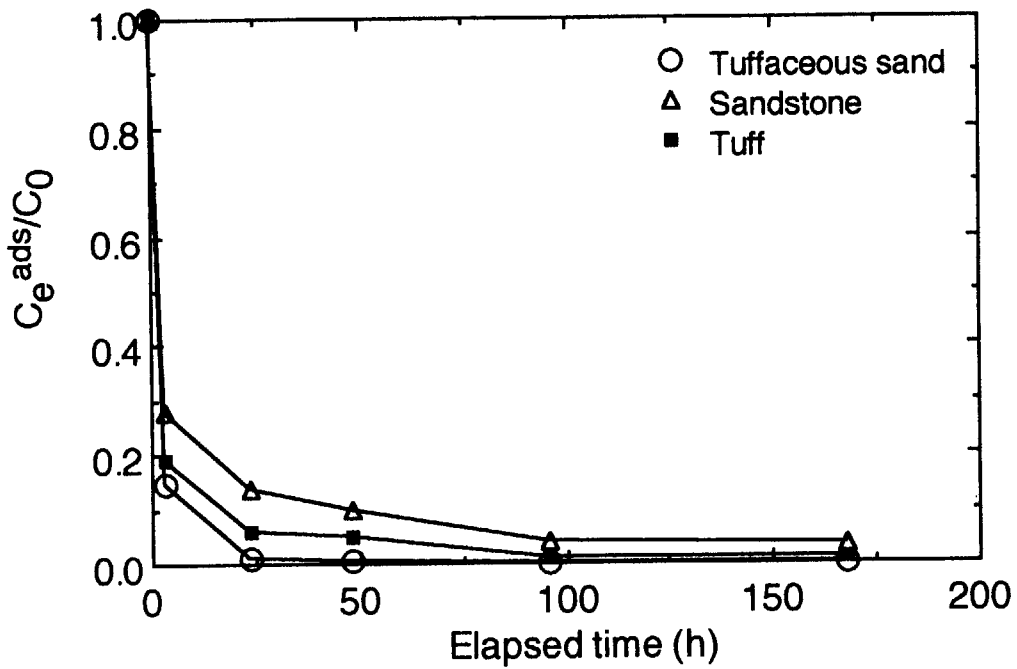


Fig.1 Schematical flow diagram of adsorption experiment.



(a) ^{237}Np



(b) ^{241}Am

Fig.2 Time course of ^{237}Np and ^{241}Am concentration in supernatant; the concentration is normalized to the initial on C_0

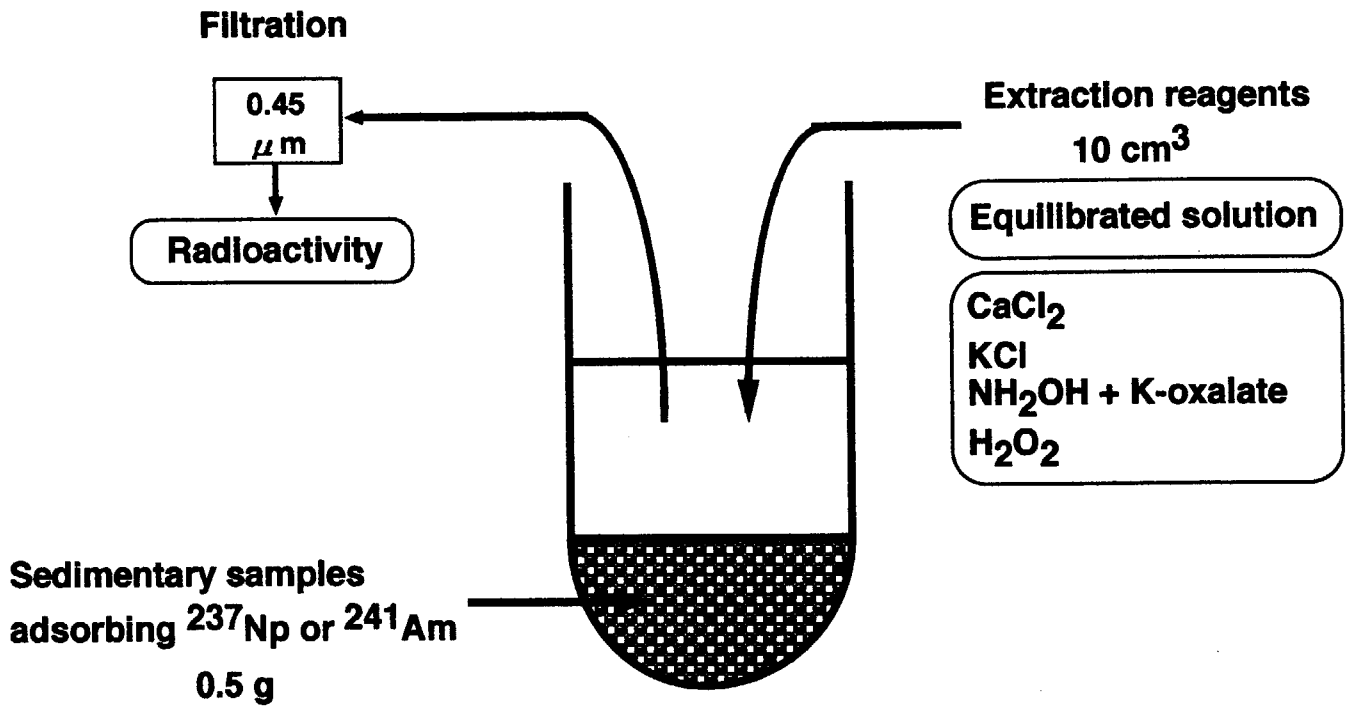
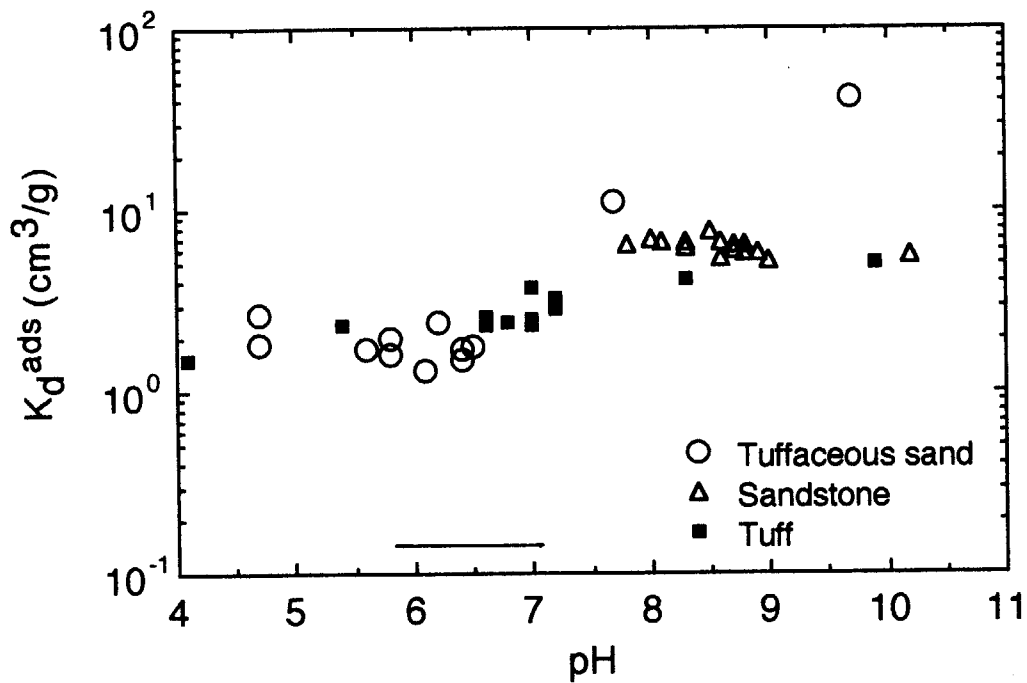
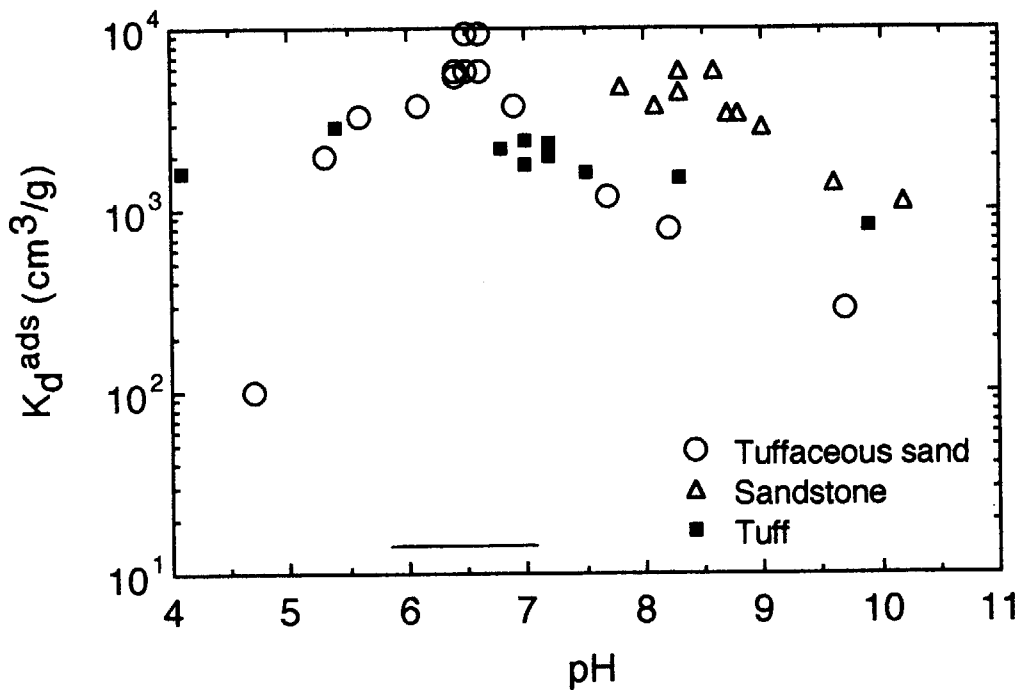


Fig.3 Schematical flow diagram of desorption experiment.

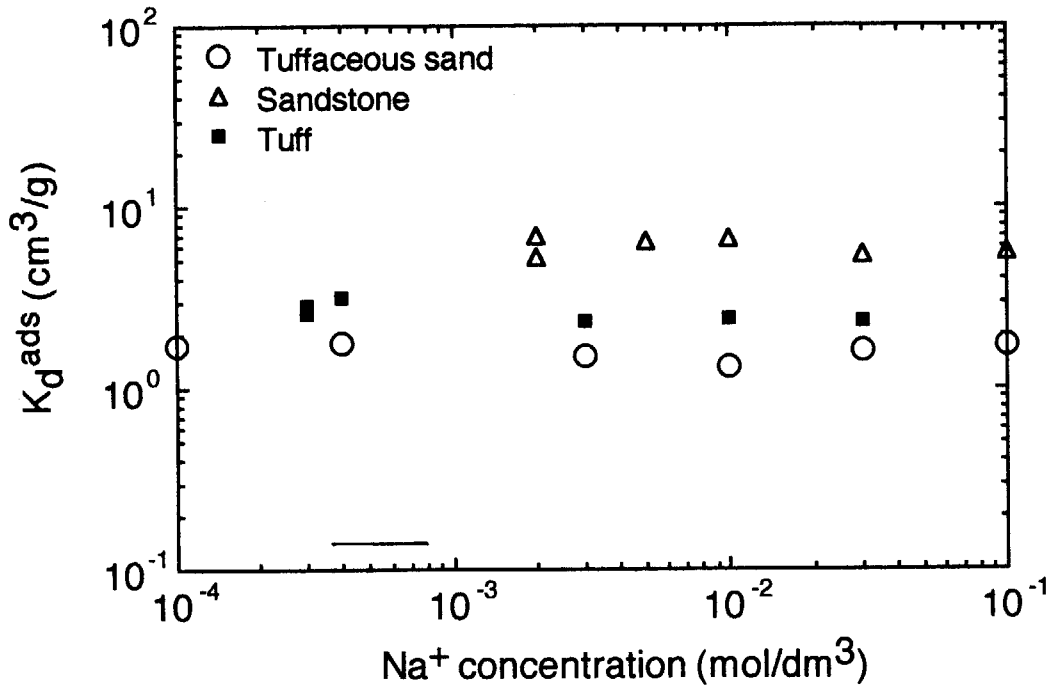


(a) ²³⁷Np

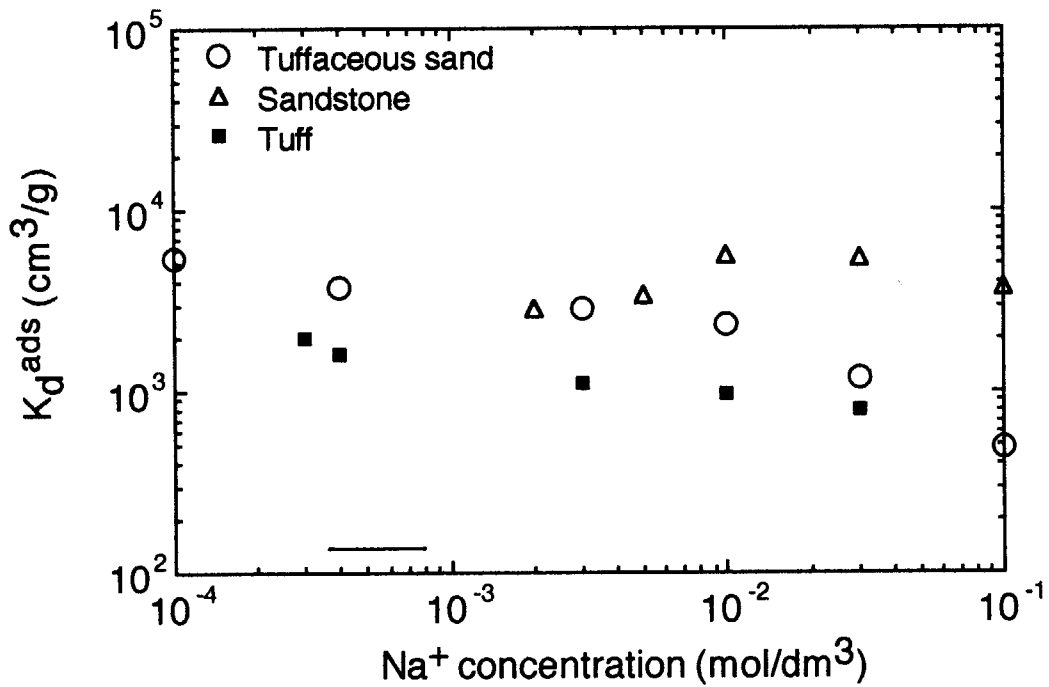


(b) ²⁴¹Am

Fig.4 Influence of pH on distribution coefficient of ²³⁷Np and ²⁴¹Am;
 — : pH of groundwater.

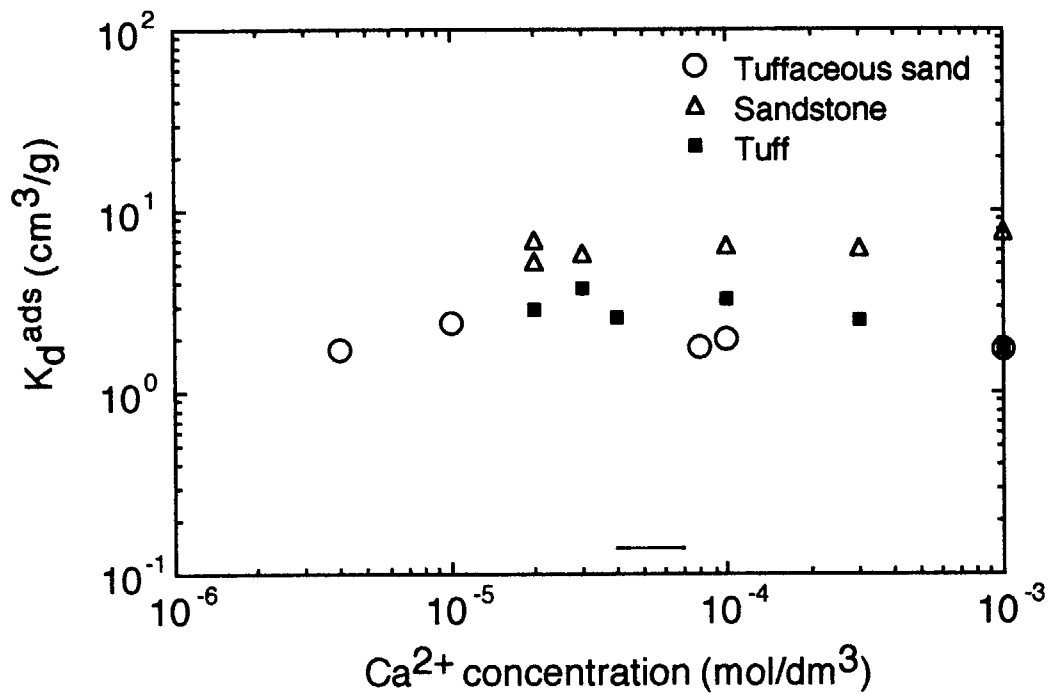


(a) ^{237}Np

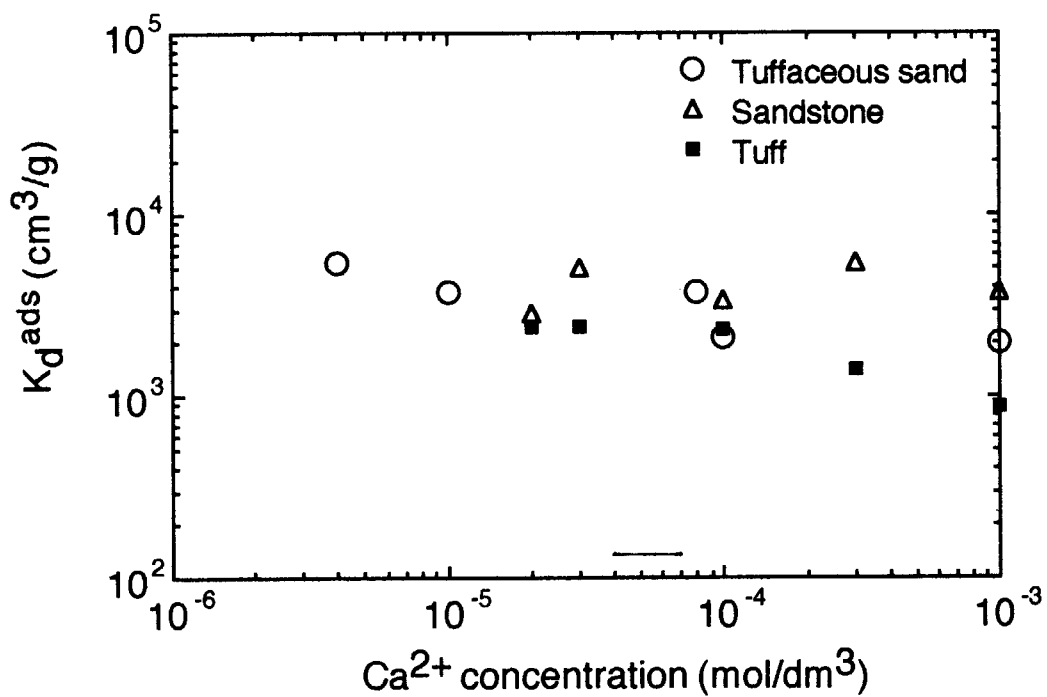


(b) ^{241}Am

Fig.5 Influence of Na⁺ concentration on distribution coefficient of ^{237}Np and ^{241}Am ;
 — : Na⁺ concentration of groundwater.



(a) ²³⁷Np



(b) ²⁴¹Am

Fig.6 Influence of Ca^{2+} concentration on distribution coefficient of ²³⁷Np and ²⁴¹Am;
 — : Ca^{2+} concentration of groundwater.

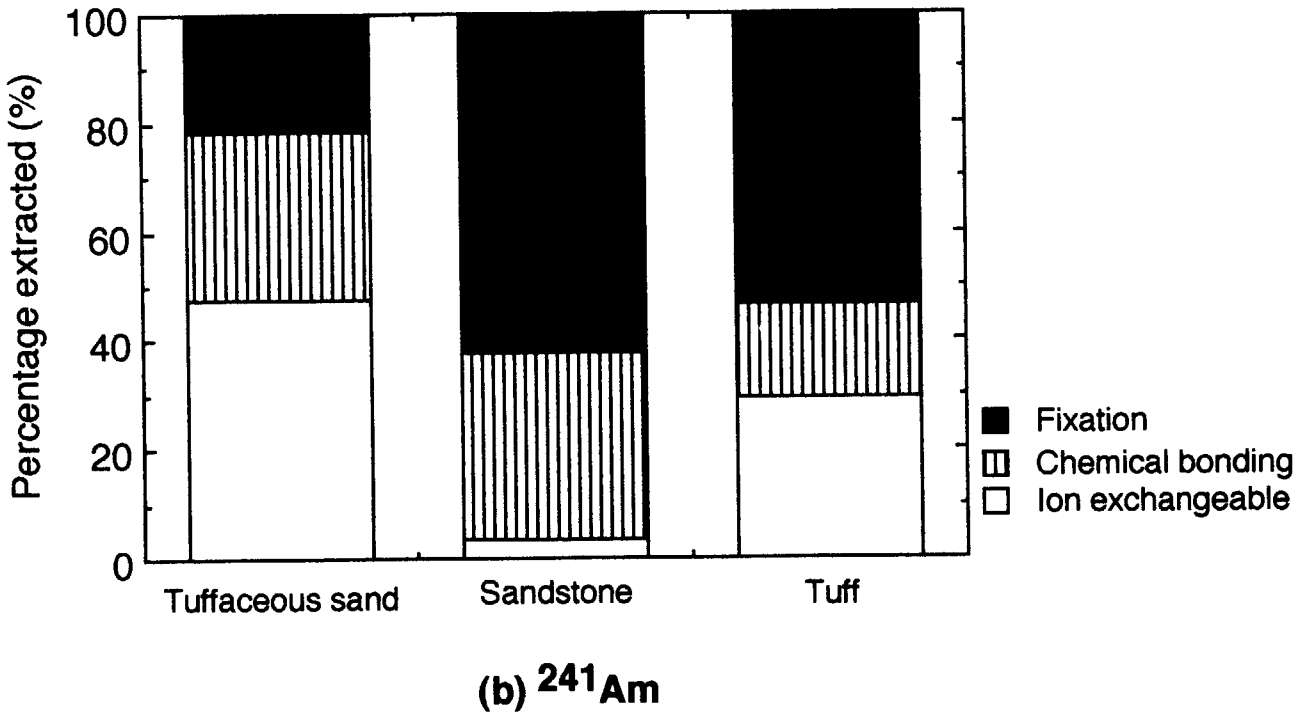
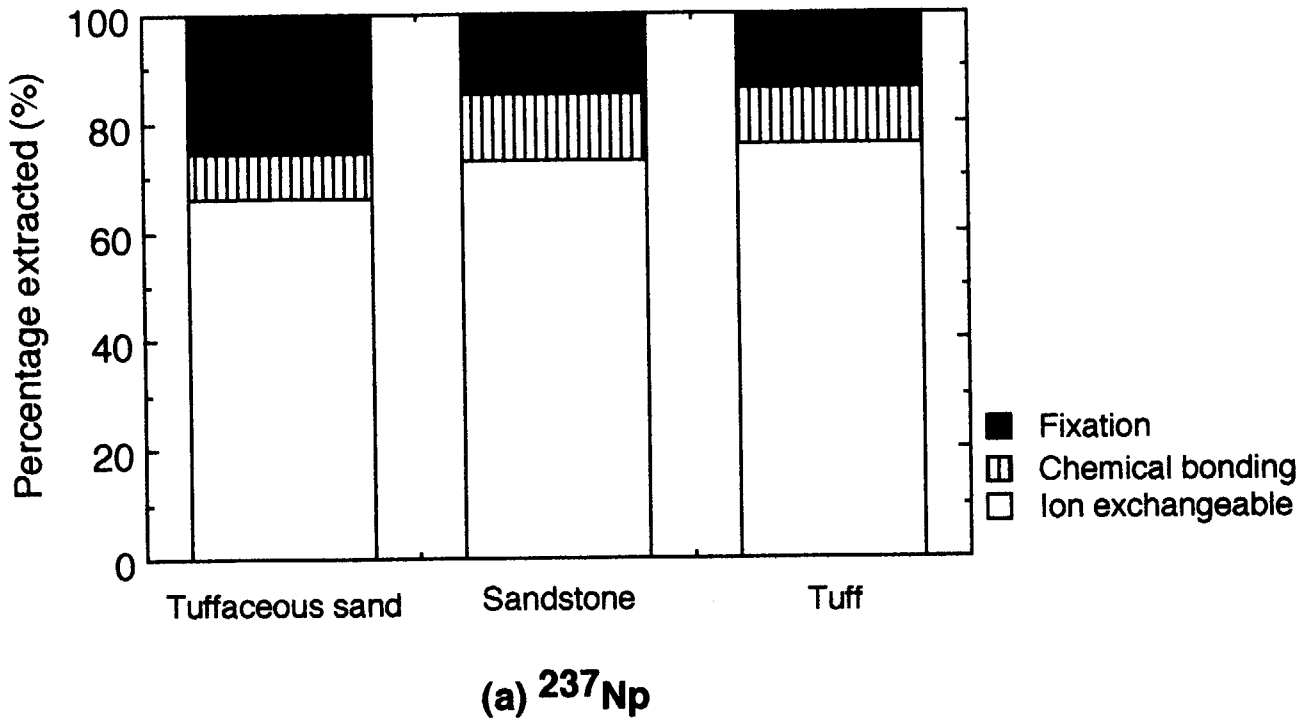


Fig.7 Percentage of ^{237}Np and ^{241}Am desorbed from the sedimentary samples by the sequential chemical extraction procedure.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射熱	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10⁻¹⁹J
1 u=1.66054×10⁻²⁷kg

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーン	b
バル	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10⁻¹⁰m
1 b=100fm²=10⁻²⁸m²
1 bar=0.1MPa=10⁵Pa
1 Gal=1cm/s²=10⁻²m/s²
1 Ci=3.7×10¹⁰Bq
1 R=2.58×10⁴C/kg
1 rad=1cGy=10⁻²Gy
1 rem=1cSv=10⁻²Sv

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局1985年刊行による。ただし, 1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリに分類されている。
- E C閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリに入れていない。

換 算 表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘 度 1 Pa·s(N·s/m²)=10 P (ポアズ)(g/(cm·s))
動粘度 1 m²/s=10⁴St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 ⁻⁴	1.35951×10 ⁻³	1.31579×10 ⁻³	1	1.93368×10 ⁻²
	6.89476×10 ⁻³	7.03070×10 ⁻²	6.80460×10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 ⁻⁷	0.238889	9.47813×10 ⁻⁴	0.737562	6.24150×10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407×10 ⁻⁶	2.34270	9.29487×10 ⁻³	7.23301	6.12082×10 ¹⁹
	3.6×10 ⁶	3.67098×10 ⁵	1	8.59999×10 ⁵	3412.13	2.65522×10 ⁶	2.24694×10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279×10 ⁻⁶	1	3.96759×10 ⁻³	3.08747	2.61272×10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072×10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515×10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616×10 ⁻⁷	0.323890	1.28506×10 ⁻³	1	8.46233×10 ¹⁸
	1.60218×10 ¹⁹	1.63377×10 ⁻²⁰	4.45050×10 ⁻²⁶	3.82743×10 ⁻²⁰	1.51857×10 ⁻²²	1.18171×10 ⁻¹⁹	1

1 cal = 4.18605 J (計量法)
= 4.184 J (熱化学)
= 4.1855 J (15°C)
= 4.1868 J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS(仏馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 ⁻¹¹
	3.7×10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

段丘堆積層における ^{210}Pb 及び ^{210}Am の分配係数