

海岸砂中における ^{85}Sr の吸着・移行挙動への共存フミン酸の関与[†]田中忠夫^{††} 向井雅之^{††} 妹尾宗明^{††}

地質媒体中における放射性核種の吸着・移行挙動に及ぼす腐植物質の影響を明らかにするため、フミン酸を共存する条件下において、海岸砂を対象とした ^{85}Sr のバッチ法吸着実験およびカラム法移行実験を実施した。

フミン酸を共存する液相中においては、砂への吸着親和性が小さな ^{85}Sr -フミン酸結合体が形成された。しかしながら、その結合力は ^{85}Sr と砂との吸着親和性に比較して著しく小さいため、バッチ法吸着実験で測定した ^{85}Sr の分配係数はフミン酸共存の影響を受けなかった。一方、カラム法移行実験では、フミン酸結合体の解離過程が平衡に達しないので、一部の ^{85}Sr -フミン酸結合体が砂層深部へ移行することにより、 ^{85}Sr の移行の増大がみられた。フミン酸共存下における ^{85}Sr の砂層中移行挙動は、 ^{85}Sr -フミン酸結合体の解離速度を考慮した吸着・移行モデルを用いて評価できることが示された。

Adsorption and migration experiments of ^{85}Sr in a coastal sand have been performed by a batch and a column methods respectively, in order to study influence of coexistent humic acid on adsorption and migration behavior of radionuclide in a geological medium.

Humic compounds of ^{85}Sr , which were hardly adsorbed on the sand, were formed in the solution containing humic acid. However, distribution coefficient of ^{85}Sr for the sand, determined by the batch method, was not affected by coexistent humic acid. This was attributed to that the binding force between ^{85}Sr and humic acid was significantly smaller than that between ^{85}Sr and the sand. Migration amounts of ^{85}Sr into a deeper region of sand layer in the column increased under coexistence of humic acid, because a dissociation process of the humic compounds did not equilibrate in experimental condition of the column method. Such migration behavior of ^{85}Sr could be evaluated by applying the migration model taking account of kinetics in the dissociation process.

1. 序論

放射性廃棄物の地層処分安全性を評価あるいは確保するためには、処分システムにおいて重要な役割を担う天然バリアが有する放射性核種移行阻止能力を把握することが不可欠である。しかしながら、放射性核種の移行経路および移行メカニズムについての理解が十分でない限り、その移行阻止能力を定量的に評価あるいは予測することはできない。

土壌や地下水中に存在するフミン酸に代表される腐植物質は、多くの陽イオン性金属元素と錯体を形成することから、放射性廃棄物の地中埋設処分に起因する放射性核種の移行現象に影響を及ぼす可能性があることが指摘されてきた[1,2]。水の流れに伴い地質媒体中を移動し得る腐植物質は、それと結合した放射性核種の移行を促進させるが、媒体中に捕獲された腐植物質は移行を抑制すると推察される。このように、環境中における放射性核種の移行現象は、共存する腐植物質と密接に関係するので、放射性核種の腐植物質結合体の生成プロセス、腐植

物質結合体の地質媒体中における吸着プロセスおよび移行プロセスについての理解は、放射性核種の移行現象を定量的に把握する上での重要な鍵となる。

以上の理由から、地質媒体中における腐植物質の移行や腐植物質を共存する系における放射性核種の移行を調べるための研究が行われてきた[3-5]。また、Carlsenら[6]は、放射性核種の移行に及ぼす有機物質との錯形成反応の影響を考慮した移行モデルを提案し、放射性核種と有機配位子およびそれらの地質媒体との相互作用に瞬時平衡を仮定して、放射性核種の移行現象を数値的に解析した結果を報告している。しかしながら、放射性核種の腐植物質結合体の生成プロセスやその地質媒体への吸着プロセスを一定容積系における実験から解明する研究に比較して、その移行プロセスを実験的に解明する試みならびに移行現象の定量化やモデル化を目的とした研究は極めて少ないのが現状である。

本研究では、フミン酸共存下における放射性核種の地質媒体中吸着・移行挙動を単純な系で調べるため、海岸砂と ^{85}Sr とを用いたバッチ法吸着実験およびカラム法移行実験を実施し、 ^{85}Sr の吸着・移行に及ぼすフミン酸の影響を明らかにするとともに、フミン酸の関与を考慮した海岸砂層中 ^{85}Sr 移行モデルを提案することを試みた。

[†] Influence of Coexistent Humic Acid on Adsorption and Migration Behavior of ^{85}Sr in a Coastal Sand, by Tadao Tanaka, Masayuki Mukai and Muneaki Senoo

^{††} 日本原子力研究所環境安全研究部 Department of Environmental Safety Research, Japan Atomic Energy Research Institute

2. 実験

2.1 試薬および試料の調製

フミン酸は、Aldrich 社製のフミン酸を Nash ら [7] の手法に従って精製し、不溶性成分、フルボ酸などを除去したものを実験に用いた [8]。実験に用いた ^{85}Sr は、New England Nuclear 製の塩化物形 $^{85}\text{SrCl}_2$ である。これを $0.01\text{mol}/\ell$ の NaNO_3 で所定の濃度に希釈した。対象とした地質媒体試料は、日本原子力研究所東海研究所敷地内から採取した海岸砂質土壌を JIS 標準篩で $250 \sim 350\mu\text{m}$ に分級し、脱イオン水で十分洗浄した調整砂である。調整砂の物理・化学的性質を表 1 に示す。この調整砂に吸着した ^{85}Sr は $0.5\text{mol}/\ell$ の CaCl_2 水溶液による抽出操作で 100% 溶離されることを確認しており、調整砂への ^{85}Sr の吸着は可逆的で単純なイオン交換メカニズムに支配されていることが期待される。

表 1 調整砂の物理・化学的性質

Density (g/cm^3)	2.6
Mineral composition	
Quartz	major
Plagioclase	medium
K-feldspar	minor
Hornblende	trace
Sericite	trace
Chlorite	trace
Specific surface area (m^2/g)	1.4
Chemical composition (wt%)	
SiO_2	78.20
Al_2O_3	8.31
TiO_2	0.36
Fe_2O_3	2.46
CaO	1.95
MgO	0.98
Na_2O	2.55
K_2O	2.70
MnO	0.07
H_2O	2.04
Total	99.61
Cation exchange capacity ($\text{meq}/100\text{g}$)	1.0

2.2 バッチ法吸着実験

溶存有機炭素濃度として $0 \sim 130\text{ppm}$ のフミン酸を含有する約 $1000\text{Bq}/\text{ml}$ ($3 \times 10^{-8}\text{mol}/\ell$) の ^{85}Sr 水溶液 50ml と調整砂 2.5g とを、 25°C の恒温槽中で 7 日間接触させる吸着反応を行った。なお、水溶液の pH は 5.5、イオン強度は NaNO_3 で $0.01\text{mol}/\ell$ に調節した。吸着反応終了後、固液分離を特に行わずに液相を 1ml 採取し、その ^{85}Sr 濃度を ORTEC 社製の Ge 半導体 γ 線検出器で測定した。並行して行ったブランク試験の ^{85}Sr 濃度との差から、調整砂に吸着した ^{85}Sr 濃度を求めた。分配係数 Kd は次式から算出した。

$$Kd = \frac{(C_0 - C_e) V}{C_e W} \quad (1)$$

ここで、 C_0 、 C_e ：各々ブランク試験（吸着実験前）および吸着実験後の液相中 ^{85}Sr 濃度 (Bq/ml)、 W ：調整砂の重量 (g)、 V ：液相の体積 (ml) を示す。

さらに、吸着実験およびブランク試験の液相は、分画分子量 (MW) 5000、10000、30000、100000 及び 300000 MW のミリポアフィルタで限外ろ過を行い、透過液中の ^{85}Sr 濃度およびフミン酸濃度を測定した [8]。

2.3 カラム法移行実験

実験装置図を図 1 に示す。 $0.01\text{mol}/\ell$ NaNO_3 水溶液を満たした内径 2.5cm 、高さ 5cm のアクリル樹脂製カラムに、調整砂 32g を充填（空隙率 40%）し、飽和調整砂カラムとした。 $0.01\text{mol}/\ell$ NaNO_3 水溶液 100ml を通水させた後、カラムの下部からフミン酸を 10ppm 含有する ^{85}Sr 水溶液 500ml （約 $100\text{Bq}/\text{ml}$ 、イオン強度： $0.01\text{mol}/\ell$ NaNO_3 ）を $1\text{ml}/\text{min}$ で流入した。カラム流出液はフラクションコレクタで採取し、 ^{85}Sr の濃度を測定した。また、流入終了後、カラム内調整砂を 0.5cm 間隔に 10 分割し、各々の分割試料中の ^{85}Sr 濃度を測定することにより、カラム中における ^{85}Sr の濃度分布を得た。なお、フミン酸を共存させない系での比較実験も実施した。

さらに、本移行実験条件における水およびフミン酸の調整砂カラム中移行現象を把握するため、トリチウム水および 10ppm フミン酸水溶液の移行実験も同じ条件下で行った。流出液中のトリチウム水およびフミン酸の濃度を測定することにより、それらの破過曲線を得た。

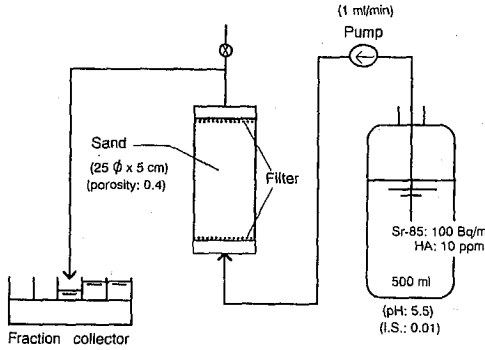


図1 カラム法移行実験装置図

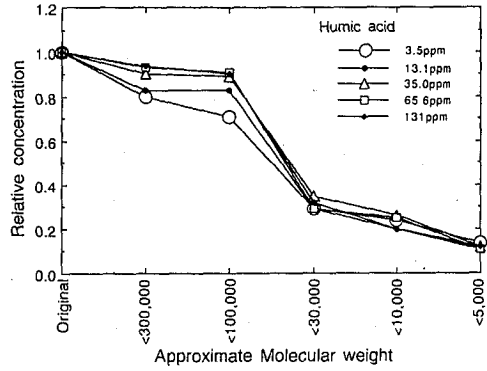
3. 結果および考察

3.1 フミン酸共存下における⁸⁵Srの吸着挙動

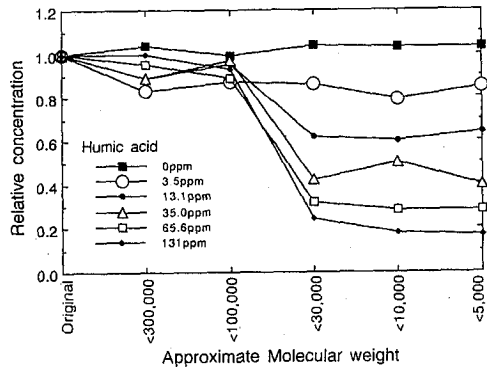
吸着実験前の液相、すなわち調整砂を含まないブランク試験の液相を5種類のミリポアフィルタでろ過し、各フィルタ透過液中におけるフミン酸および⁸⁵Srの相対濃度を図2(a)および(b)に示す。フィルタを透過したフミン酸の相対濃度は30000 MWと100000 MWとの間で急激な減少がみられた。これは、溶存するフミン酸が主として30000~100000 MWのサイズに存在することを示している。30000~100000 MWのサイズに存在する⁸⁵Srの相対濃度はフミン酸濃度が増すに従って高くなり、フミン酸との間になんらかの結合が生じていることが見い出された。一方、30000 MW以下のフィルタを透過した液中の濃度はフィルタの孔径が小さくとも変化せず、フミン酸との間に有意な相互作用が生じていないことを示唆している。したがって、5000 MW以下のフラクション中の⁸⁵Srは、フミン酸と相互作用していない陽イオン性⁸⁵Sr²⁺であると見なすことができるであろう。カラム法移行実験に用いたフミン酸を10ppm含む流入液中には、⁸⁵Srの約60%が陽イオン性⁸⁵Sr²⁺として存在しているものと推定される。

0~65 ppmのフミン酸を共存する条件下で測定した⁸⁵SrのK_dを図3に示す。調整砂に対する⁸⁵SrのK_dは、共存するフミン酸濃度に依らずフミン酸を含まない条件下で測定されたK_dとほぼ同じ値を示し、フミン酸共存の影響を受けなかった。

図4(a)および(b)は35ppmのフミン酸を共存する条件下で実施した⁸⁵Srの吸着実験の前後における液相中



(a) Humic acid



(b) ⁸⁵Sr

図2 各フィルタを透過したブランク試験液相中のフミン酸および⁸⁵Srの相対濃度; (a) フミン酸、(b) ⁸⁵Sr

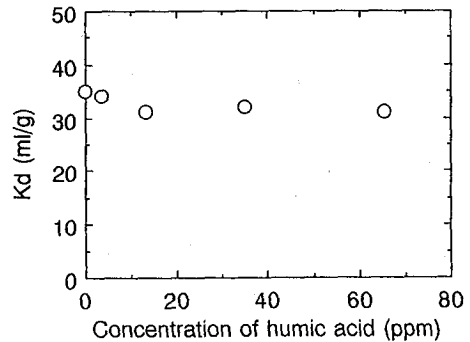
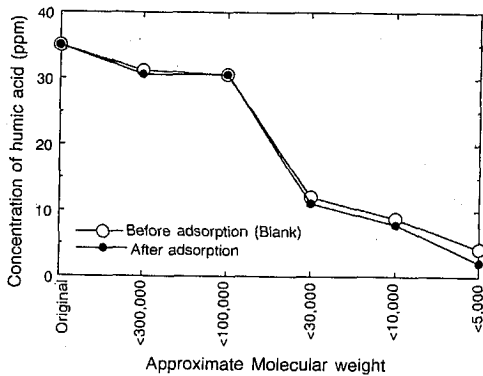


図3 フミン酸を共存する条件下で測定した⁸⁵Srの分配係数

フミン酸および⁸⁵Srの各フィルタ透過濃度である。い



(a) Humic acid

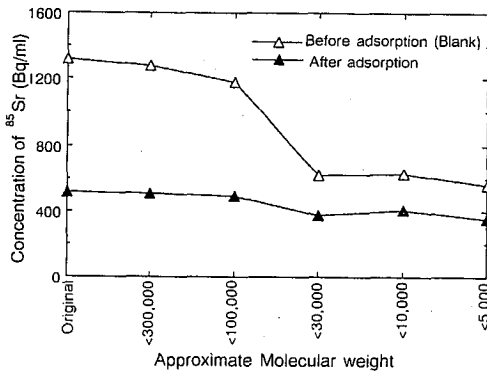
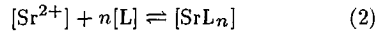
(b) ⁸⁵Sr

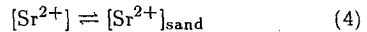
図4 ⁸⁵Srの吸着実験の前後における液中フミン酸および⁸⁵Srのフィルタ透過濃度；フミン酸濃度は35ppm；(a)フミン酸、(b)⁸⁵Sr

れのフィルタ透過液についてもフミン酸濃度は吸着実験前後で変化せず、調整砂への吸着がほとんどなかったことを示している。なお、⁸⁵Srの共存の有無に係わらず、調整砂に対するフミン酸の K_d は2g/mlと非常に小さな値であった。このように、フミン酸と結合した⁸⁵Srの調整砂への吸着はほとんど期待されないの、⁸⁵Srの K_d は陽イオン性の⁸⁵Sr²⁺の吸着に依存するものと考えられる。しかしながら、フミン酸と結合していると考えられる10000 MW以上のフラクション中における⁸⁵Srの濃度も吸着実験によって明らかに減少し、全てのフラクション中で⁸⁵Sr²⁺が支配的に存在しているかのように挙動した。これらの結果は次のように説明することができる。

フミン酸が共存する系での⁸⁵Srの調整砂への吸着実験においては、主として次に示す2つの平衡が存在する。1つは(2)、(3)式で示されるフミン酸Lと⁸⁵Srとの相互作用に関する平衡(β : 平衡定数)、他の1つは(4)、(5)式で示される調整砂への⁸⁵Srの吸着平衡(K_{dSr} : 陽イオン性⁸⁵Sr²⁺の分配係数)である。



$$\frac{C_{SrL_n}}{C_{Sr} \cdot C_L^n} = \beta \quad (3)$$

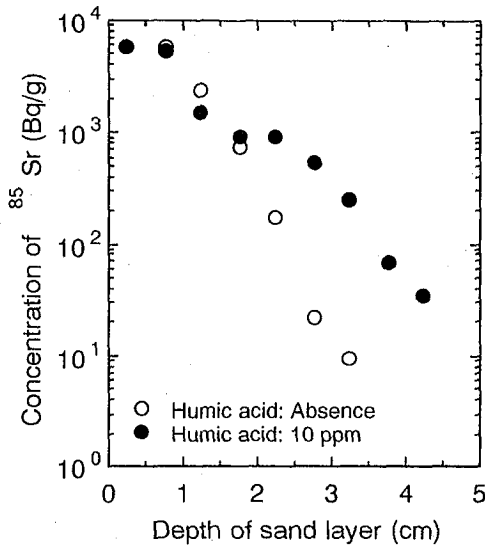


$$\frac{Q_{Sr}}{C_{Sr}} = K_{dSr} \quad (5)$$

ここで、 C_{SrL_n} : 液中フミン酸結合体濃度、 C_{Sr} : 液中⁸⁵Sr²⁺濃度、 C_L : 液中フミン酸濃度、 Q_{Sr} : 調整砂中⁸⁵Sr²⁺濃度である。

フミン酸と⁸⁵Sr²⁺が共存する系に調整砂が導入された場合、(4)式に従って陽イオン性⁸⁵Sr²⁺の調整砂への吸着が進行し、液中における⁸⁵Sr²⁺濃度は減少する。その結果、液中において(4)、(5)式の平衡を保つため、(2)式の逆反応によってフミン酸-⁸⁵Srの解離が生じ、液中に⁸⁵Sr²⁺を供給することになる。このような系で、 $K_{dSr} > \beta$ のような条件にあると仮定した場合、(4)式の反応および(2)式の逆反応が進行する。

本吸着実験系では、⁸⁵Srのフミン酸結合体が液中に存在するにも係わらず、⁸⁵Srの K_d は共存するフミン酸の影響を受けなかった。これは、調整砂と⁸⁵Srとの吸着親和性に比較してフミン酸と⁸⁵Srとの相互作用の安定性が著しく小さい条件、すなわち $K_{dSr} \gg \beta$ にあったことに起因させられる。したがって、反応系に調整砂が存在する場合、あたかもフミン酸と⁸⁵Srとの相互作用がないかのように(4)式の吸着過程が進行した。さらに、⁸⁵Srとフミン酸間の結合がイオン交換反応に基づく⁸⁵Sr²⁺と調整砂との結合より弱いという事実は、⁸⁵Srのフミン酸結合体が配位結合に基づく錯体ではなく、水素結合のように静電力的な非常に弱い力で結合していることを示している。

図5 調整砂カラム中における⁸⁵Srの濃度分布

3.2 フミン酸共存下における⁸⁵Srの移行挙動

フミン酸を 10ppm 共存する系およびフミン酸を含まない系の両実験を通して、カラム流出液中に⁸⁵Srは検出されなかった。カラム中における⁸⁵Srの濃度分布を図5に示す。フミン酸を共存する系での⁸⁵Srの濃度分布には、深部方向へのショルダーが観察され、フミン酸を含まない系に比べより深部へ移行することが分かった。この結果は、フミン酸共存下における⁸⁵Srの移行には2つの移行化学種が存在することを示唆する；1つは陽イオン性の⁸⁵Sr²⁺であり、他は、調整砂への吸着性が小さな⁸⁵Srのフミン酸結合体⁸⁵SrL_nであると推察される。しかしながら、バッチ法吸着実験の結果からは、調整砂への⁸⁵Srの吸着親和性は共存フミン酸の影響を受けないという結果を得ている。バッチ法吸着実験とカラム法移行実験との間に生じたこの矛盾は、(2)~(5)式の平衡到達度の違いに基づいて理解できる。両式が平衡に達しているバッチ法吸着実験とは異なり、⁸⁵Sr化学種が水の流れに伴い連続的に移流するカラム法移行実験では、局所固液相間における両式の可逆反応が平衡に達する前の状態にあり、そこに存在する解離過渡期の⁸⁵SrL_nがカラム中を移行したことにより⁸⁵Srの移行が増大したものと考える。

図6は10ppmのフミン酸およびトリチウム水の移行

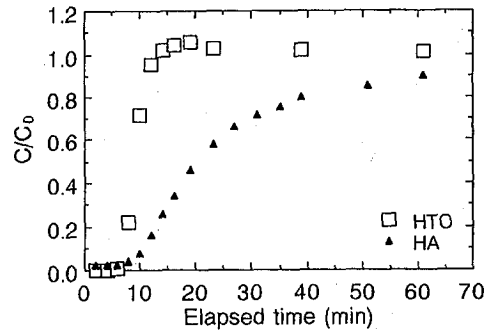


図6 フミン酸 (HA) およびトリチウム水 (HTO) の破過曲線

実験から得られた、フミン酸とトリチウム水の破過曲線である。フミン酸はトリチウム水より僅かに遅れてカラムから流出し、調整砂との相互作用による遅延が生じていることを示している。また、フミン酸の破過曲線はトリチウム水に比較してブロードであり、1には到達しなかった。これは、調整砂によるフミン酸の遅延メカニズムは単純なものではなく、2つ以上の遅延メカニズムが作用していることを示唆している。

Gutierrezら[4]やBidoglioら[5]も同様な実験から、フミン酸の破過曲線は1に至らず、トリチウム水と比較して極めて幅広い移動帯を持つことを確認している。このようなフミン酸の破過曲線の幅広いテイリング現象は、分子量や官能基の異なるフミン酸と鉱物表面、小さな空隙、残留微細粒子との間における物理・化学的相互作用に起因するとしている。

3.3 フミン酸共存下における⁸⁵Srの移行モデル

本カラム法移行実験で用いた調整砂層のような均質媒体の中では、水の流れに伴う溶質の一次元的移行が移流・拡散過程で説明できると考えると、⁸⁵Srの移行は(6)式で定義することができる[9]。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \rho \frac{(1-f)}{\theta} \frac{\partial Q}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial X^2} - V \frac{\partial C}{\partial X} \quad (6)$$

ここで、 C : 間隙水中⁸⁵Sr濃度 (Bq/ml)、 Q : 調整砂中⁸⁵Sr濃度 (Bq/g)、 ρ : 調整砂の密度 (g/ml)、 θ : 水分率、 D : 分散係数 (cm²/min)、 V : 水流速 (cm/min)、 t : 時間 (min)、 X : 長さ (cm)、 f : 空隙率を示す。

調整砂と水の間には⁸⁵Srの吸着脱離などの反応がある

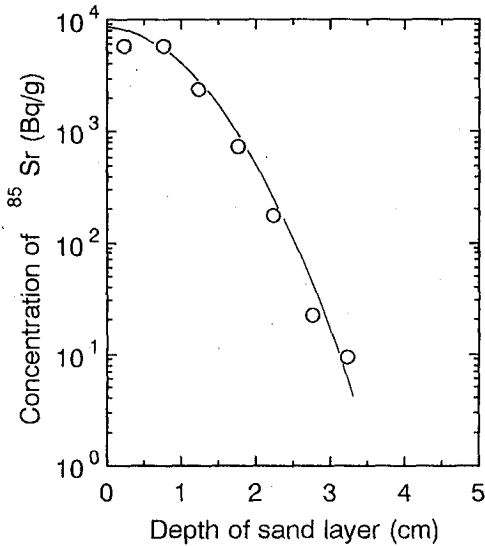


図7 瞬時平衡吸着モデルによる陽イオン性⁸⁵Sr²⁺の濃度分布の計算結果

場合、移行の遅延が生じる。⁸⁵Sr²⁺のように可逆的なイオン交換反応が想定される場合、吸着脱離反応は分配係数を用いる可逆平衡式(7)で記述が可能となる。

$$Q = Kd_{Sr}C \quad (7)$$

(6)および(7)式の連立式の解析解あるいは差分解を解くことによって、与えられた移行パラメータ V 、 D 、 Kd_{Sr} の設定条件における⁸⁵Srの濃度分布を算出することができる[10]。本実験条件下における V としては、トリチウム水の破過曲線から0.55cm/minを得た。

以上の移行モデルおよび移行パラメータに基づいて計算した、⁸⁵Sr²⁺の移行に支配されているとみなされるフミン酸を共存しない系での⁸⁵Srの濃度分布は、 Kd_{Sr} として87ml/g、 D として0.16cm²/minを設定することにより、実験から得た濃度分布を最もよく再現することができた(図7)。この結果は、⁸⁵Sr²⁺の移行が平衡吸着モデルで評価できることを明らかにした。

フミン酸が共存する場合、カラムに導入される水溶液中には陽イオン性の⁸⁵Sr²⁺とそのフミン酸結合体⁸⁵SrL_nが存在する。しかしながら、フミン酸と⁸⁵Srとの相互作用の安定性が、調整砂と⁸⁵Srとの吸着親和性に比較して

著しく小さい $Kd_{Sr} \gg \beta$ の条件にあるので、カラムに導入された⁸⁵SrL_nについては、移行する間に(2)式の逆反応が一方向的に進行すると考えられる。そこで、⁸⁵SrL_nの調整砂中移行に関して、⁸⁵Srとフミン酸との間で起こる解離速度を考慮した⁸⁵Srの吸着モデルを適用し、その妥当性について検討した。比較モデルとして、水溶液中で生じる⁸⁵SrL_nの形成と解離の反応が瞬時平衡にあるとみなされる場合を仮定した吸着モデルについても検討した。

(1) 平衡論的な相互作用を仮定したモデル

水溶液中での⁸⁵SrL_nの形成と解離が常に(2)式の瞬時平衡にあるとした場合、⁸⁵Sr濃度が希薄である本実験条件下では、フミン酸の濃度は一定と見なせるので、(3)式は条件付の平衡定数 β' をもって(8)式のように記述することができる。

$$\frac{C_{SrL_n}}{C_{Sr}} = \beta' \quad (8)$$

⁸⁵Sr²⁺と⁸⁵SrL_nの吸着平衡および調整砂相と液相中の全⁸⁵Sr濃度は次式で示される。

$$Q_{Sr} = Kd_{Sr} \cdot C_{Sr} \quad (9)$$

$$Q_L = Kd_{SrL_n} \cdot C_{SrL_n} \quad (10)$$

$$Q = Q_{Sr} + Q_{SrL_n} \quad (11)$$

$$C = C_{Sr} + C_{SrL_n} \quad (12)$$

フミン酸を共存する場合の⁸⁵Srの瞬時平衡吸着式は、(8)~(12)式を整理した(13)式で与えられる。

$$Q = \frac{Kd_{Sr} + \beta' Kd_{SrL_n} C}{1 + \beta'} \quad (13)$$

なお、バッチ法吸着実験の結果から、⁸⁵SrL_nの調整砂への吸着はフミン酸の吸着特性に依存すると考えられるので $Kd_{SrL_n} = Kd_L$ とおける。ここでは、フミン酸の分配係数が1つの Kd_L で表現できると仮定し、トリチウム水とフミン酸との破過曲線の比較から Kd_L として0.6ml/gを得た。

(2) 速度論的な相互作用を仮定したモデル

カラムに導入された⁸⁵SrL_nの⁸⁵Sr²⁺への解離速度は、解離速度定数 k_1 をもって、(14)式で示される。

$$\frac{\partial C_{Sr}}{\partial t} = k_1 \cdot C_{SrL_n} \quad (14)$$

(9)~(12)式の固液相間の反応と組み合わせることにより(15)式のような吸着式が得られる。

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = K d_L \frac{\partial C}{\partial t} + K d_{Sr} \cdot k_1 \cdot C - k_1 Q \quad (15)$$

カラム中の⁸⁵Srの濃度分布は、(7)式を吸着式として計算される⁸⁵Sr²⁺としてカラムに導入された⁸⁵Sr(図2(b)より全⁸⁵Srの60%と推定)を起源とする濃度分布と、(15)式を吸着式として計算される⁸⁵SrL_nとしてカラムに導入された⁸⁵Sr(全⁸⁵Srの40%)を起源とする濃度分布とを合成することによって与えられる。

以上の2つのモデルを仮定して、フミン酸を共存する実験条件下における⁸⁵Srの濃度分布を計算した(図8)。実線はフミン酸との相互作用に瞬時平衡を仮定した吸着モデルを適用して算出した⁸⁵Srの濃度分布であり、 β' を1.1に設定した場合の吸着平衡定数43ml/gを用いた結果である。一方、点線は解離速度を考慮した吸着モデルで計算した⁸⁵Srの濃度分布であり、 k_1 を0.004/minに設定した場合の結果である。フミン酸との相互作用に瞬時平衡を仮定したモデルでは、深部に広がるシオルダー部分の形状を説明することができなかった。一方、解離速度を考慮したモデルを適用した結果は、シオルダー部分の形状も含め実験結果を良く再現できた。

4. 結論

フミン酸共存下で実施した調整砂中における⁸⁵Srのバッチ法吸着実験およびカラム法移行実験の解析から、以下の結果が得られた。

1. フミン酸が共存する場合、調整砂への吸着性が小さな⁸⁵Sr-フミン酸結合体が水溶液中で形成されるが、その結合は非常に弱いものであった。
2. ⁸⁵Srとフミン酸との結合力は⁸⁵Srと調整砂との吸着親和性に比較して著しく小さいため、固液相間における反応が平衡に達した条件下で測定したバッチ法吸着実験からの⁸⁵Srの分配係数は、フミン酸共存の影響を受けなかった。
3. 一方、カラム法移行実験では、フミン酸を共存す

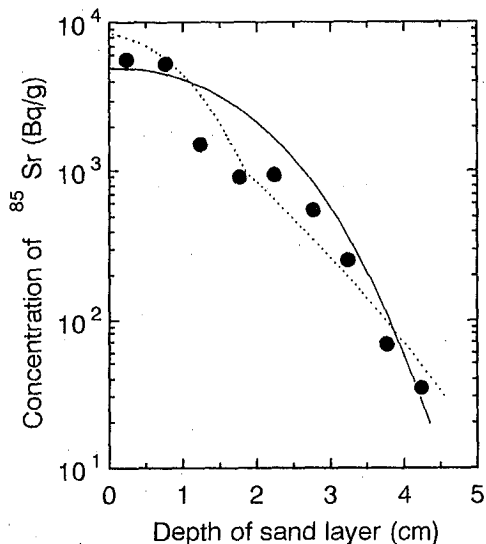


図8 フミン酸を共存する実験条件下における⁸⁵Srの濃度分布の計算結果; 実線は瞬時平衡を仮定した吸着モデルを適用、点線は解離速度を考慮した吸着モデルを適用

る条件下において⁸⁵Srの移行の増大がみられた。この⁸⁵Srの移行の増大は、間隙水中の⁸⁵Srが水の流れに伴い連続的に移流するため、フミン酸結合体の解離過程が平衡に達しないことにより、一部のフミン酸結合体が深部へ移行したことに起因する。

4. フミン酸結合体の解離速度を考慮した吸着モデルを用いて計算したフミン酸共存下における⁸⁵Srの移行現象は、実験結果と良く一致した。

⁸⁵Srのようにフミン酸と非常に弱い結合を持つ放射性核種について、フミン酸等腐植物質を共存する系での地層中移行を評価する場合、腐植物質結合体の解離速度を考慮した吸着モデルを適用することにより、信頼性の高い評価が期待できる可能性が示された。

5. 謝辞

終わりに、本研究を実施するにあたり、貴重なご助言を頂きました電力中央研究所物理化学部の塚本政樹氏、ならびに日本原子力研究所環境安全研究部の坂本義昭氏に感謝の意を表します。

6. 参考文献

- [1] McCarthy, D. C. and Zachara, J. M.: *Environ. Sci. Technol.*, **23**, 496 (1989).
- [2] Choppin, G. R., : *Radiochim. Acta*, **44/45**, 23 (1988).
- [3] Kirby, L. J. et al.: IAEA-SM-257/55P, 63 (1988).
- [4] Gutierrez, M. G. et al: *Radiochim. Acta*, **52/53**, 213 (1991).
- [5] Bidoglio, G. et al.: *Sci. Basis Nucl. Waste Manage.* **XII**, 823 (1989).
- [6] Carlsen, L. et al.: *Waste Management*, **9**, 165 (1989).
- [7] Nash, K. L. and Choppin, G. R.: *Environ. Sci. Technol.*, **15**, 1223 (1981).
- [8] Tanaka, T. and Ni, S.: JAERI-M 93-185 (1993).
- [9] Inoue, Y. and Kaufman, W. J.: *Health Phys.*, **9**, 705 (1963).
- [10] Ohnuki, T. et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **26**, 795 (1989).