

浅地中環境下におけるウラン系列核種の分配係数測定()

石井友章¹ 稲川聡² 軍司康義¹ 坂本義昭³ 武部慎一⁴ 小川弘道³ 佐々木朋三⁵

ウラン廃棄物の浅地中処分安全評価に必要となるウラン系列核種(鉛, ラジウム, アクチニウム, トリウム, プロトアクチニウム, ウラン)の分配係数を通気層環境および帯水層環境で求めた。通気層環境としてはローム等の4種類の土と雨水の組み合わせ, 帯水層環境としては砂等の3種類の土・岩石と地下水の組み合わせで, 各元素の分配係数をバッチ法により測定した。通気層環境と帯水層環境での分配係数を比べると, アクチニウム以外の元素で通気層環境での分配係数が帯水層環境よりも10倍~100倍大きい値が得られた。また, 土の代表的な物性値である陽イオン交換容量(CEC)および比表面積と各元素の分配係数の関係を求めた結果, 鉛, ラジウム, プロトアクチニウムについては, これらの物性値と分配係数に相関がおおむね認められた。

Keywords: ウラン廃棄物, 分配係数, 浅地中処分, 通気層環境, 帯水層環境, 鉛, ラジウム, アクチニウム, トリウム, プロトアクチニウム, ウラン

Distribution coefficients of Uranium series radionuclides such as Pb, Ra, Ac,Th, Pa as well as U were obtained under aerated zone and aquifer environments in order to have a database for the safety evaluation of shallow land disposal of uranium bearing waste. The distribution coefficients of them on four kinds of soil such as the loam in the rain water as for aerated zone environment and on three kinds of soil and rock such as the sand in the groundwater as for the aquifer environment have been measured by the batch method. The distribution coefficients in aerated zone environment were one or two orders of magnitude higher than those in the aquifer environment except Ac. There was an approximate linear relationship between the representative physical properties of the soil, such as the cation exchange capacity and the specific surface area, and the distribution coefficient of lead, radium and protactinium.

Keywords : uranium bearing waste, distribution coefficient, shallow land disposal, aerated zone environment, aquifer environment, lead, radium, actinium, thorium, protactinium, uranium

1. 緒言

ウランの製錬, 転換, 濃縮, 再転換, 成型加工の各施設から発生する放射性廃棄物(以下, 「ウラン廃棄物」と記す)の処分に関しては, 平成6年6月に「ウラン濃度が比較的低い大部分の廃棄物については, 段階管理を伴わない簡易な方法による浅地中処分を行うことが可能」と「原子力の研究, 開発および利用に関する長期計画」[1]の中に指針が示されており, 平成12年12月にはウラン廃棄物の処分方策として原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会により「ウラン廃棄物処理処分の基本的考え方について」が示された[2]。これらの方針を受けてウラン廃棄物の浅地中処分システムに関する研究を実施している[3-6]。

放射性廃棄物の処分にかかわる安全評価では種々のパラメータが用いられているが, 放射性核種の地中の移行

速度に関する重要なパラメータとしては分配係数が用いられている。しかし, 分配係数は固相や液相特性により大きく変化するため, 安全評価では処分場環境や移行経路の環境を考慮した分配係数を用いる必要がある。

ウラン廃棄物に含まれる主な放射性核種は U-234, U-235 および U-238 の3種類である。これらの核種からは Fig.1 に示すように長期にわたり多種の娘核種を生成する。このため, ウラン廃棄物の埋設処分に関する安全評価では, ウランだけでなくその娘核種の分配係数も必要になる。報告されているウランの分配係数の測定例は多くあるが, 対象としている土, 岩石および液相試験条件により非常に幅広い範囲の値が報告されている[7-15]。例えば IAEA TRS 364 に示されているウランの分配係数の範囲は砂で $5.5 \times 10^{-5} \sim 2.0 \times 10^1 (\text{m}^3/\text{kg})$, ロームで $1.7 \times 10^{-5} \sim 9.0 \times 10^0 (\text{m}^3/\text{kg})$ と約 6 桁の範囲が示されている[13]。しかし IAEA TRS 364 の分配係数は異なる試験条件で求めた分配係数をまとめたものであり, この分配係数を評価に用いることは適切ではない。また, ウランの娘核種を用いた測定事例や浅地中での核種挙動を想定した測定事例も少ない[12-19]。そこで我が国の浅地中環境条件下でのウラン系列核種の分配係数を同一の試験条件で系統的に測定する必要がある。

想定される浅地中埋設処分場から漏洩した放射性核種の移行経路を Fig.2 に示す。処分場では通気層環境を構成する固相成分(以下, 「通気層土」と記す)に廃棄物が埋設されており, 廃棄物から漏洩した放射性核種は通気層中を通して帯水層を地下水とともに移行する。このような移行経路を想定した場合, 処分場からの核種漏洩量評価と地下水経路での核種挙動評価で分配係数を用いるが,

Measurement of distribution coefficients for uranium series radionuclides under shallow land environment condition () by Tomoaki Ishii (ishii@nfi.co.jp), Satoshi Inagawa, Yasuyoshi Gunji, Yoshiaki Sakamoto, Shinichi Takebe, Hiromichi Ogawa, Tomozou Sasaki

- 1 原子燃料工業 環境安全部 Nuclear Fuel Industries, LTD., Environmental and Safety Management Department 〒319-1196 茨城県那珂郡東海村村松 3135-41
- 2 原子燃料工業 事業開発部 Nuclear Fuel Industries, LTD., Technical Development Department 〒590-0451 大阪府泉南郡熊取町野田 950 番地
- 3 日本原子力研究所 燃料サイクル安全工学部処分安全研究室 Japan Atomic Energy Research Institute, Department of Fuel Cycle Safety Research Disposal Safety Laboratory 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4
- 4 日本原子力研究所バックエンド技術部処分技術課 Japan Atomic Energy Research Institute, Department of Decommissioning and Waste Management, Division of Disposal Technology 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4
- 5 原子力環境整備促進・資金管理センター 浅地処分システム研究部 Radioactive Waste Management Funding and Research Center, Research Division of Shallow land Disposal 〒105-0001 東京都港区虎ノ門2丁目8番10号

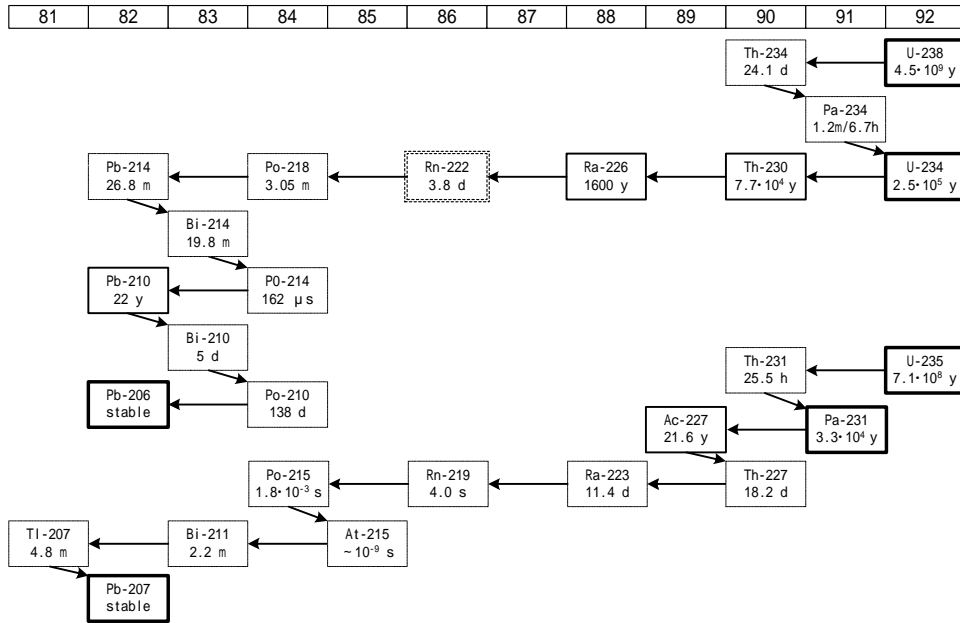


Fig. 1 Decay chains for U-238, U-234 and U-235

両者では環境条件が異なるため、それぞれの環境に適した分配係数を定める必要がある。浅地中埋設処分場周辺の通気層環境では、通気層土に雨水が浸透して放射性核種が移行すると考えられる。地下水経路周辺の帯水層環境では、帯水層環境を構成する固相成分(以下、「帯水層土」と記す)と地下水との間で放射性核種が平衡状態になっていると考えられる。そこで、本研究ではウラン系列核種(鉛, ラジウム, アクチニウム, トリウム, プロトアクチニウムおよびウランの6種類)の分配係数測定を、日本国内で採取した土の中から通気層環境での放射性核種挙動を想定した雨水を模擬した溶液(以下「模擬雨水」と記す)と通気層土を、帯水層環境での放射性核種挙動を想定した地下水と帯水層土を数種類の組み合わせで設定し、バッチ法により同一の試験条件、試験方法で測定を行い、系統的に比較が可能な分配係数を求めた。また、得られ

た分配係数について土の物性値との関係を調べ、両者の環境条件の違いによる分配係数の差について検討を行った。

2 試験試料

2.1 土試料

日本国内の5地点(AからE)で採取した土のうち、通気層土としては、ローム(), ローム(), 赤色土, 黄色土の4種類、帯水層土としては、砂(), 砂(), 凝灰岩の3種類を選択し試験に用いた。土は採取後風乾し、土および砂は2mm以上の礫を取り除き、凝灰岩は粉碎し250µm~500µmの粒度にふるい分けて調整したものを試験に供した。各土の物理化学特性をTable1に示す。各土の特徴としては、比表面積はローム()が最も大きく、通気層土の方が帯水層土と比較して大きい。土のpH[20]は赤色土が最も低く、通気層土の方が帯水層土より低い。陽イオン交換容量(CEC)は通気層土の方が帯水層土より2~3倍程度大きい値を示した。

2.2 液相試料

通気層環境の液相としては雨水が想定されることから、本研究ではこの雨水を模擬するため脱イオン水を大気中に24時間以上さらしたものを模擬雨水として用いた。帯水層環境の液相としては地下水が想定されることから砂()の採取場所で採取した湧水または凝灰岩の下層部を流れている地下水を模擬した模擬地下水を0.45µmメンブランフィルタでろ過して用いた。用いた液相試料の特性をTable2に示す。各液相試料の特徴としては、pHは

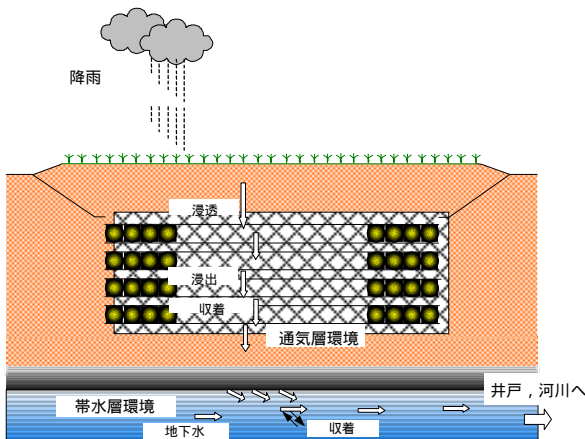


Fig.2 Supposed translation route of radionuclides from shallow land disposal site.

Table1 Physico-chemical properties of soils.

試料	採取地点	比表面積 (m ² /g)	CEC (meq/100g)	pH (H ₂ O)	組成 (wt%)							主要な粘土鉱物
					SiO ₂	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	Al ₂ O ₃	*Fe ^{Total}	P ₂ O ₄	
ローム()	A	99.5	15.6	5.7	79.7	0.06	0.17	0.22	11.70	5.35	<0.01	カリナイト, 珩イライト
ローム()	B	43.9	13.5	6.0	50.7	0.31	0.17	0.50	9.48	5.39	0.03	カリナイト, スメクタイト
赤色土	C	65.9	17.6	4.6	33.8	<0.1	<0.1	<0.1	14.60	11.70	0.07	カリナイト
黄色土	D	26.0	10.7	5.5	57.8	1.27	0.07	0.64	7.35	5.44	0.03	パーミューライト, 珩イライト
砂()	A	6.3	4.3	7.5	86.2	0.30	0.24	0.97	5.69	2.34	<0.01	カリナイト, スメクタイト
砂()	E	20.9	3.0	7.2	68.1	0.29	0.14	-	7.30	1.75	0.02	カリナイト
凝灰岩	E	20.8	5.7	8.0	58.6	0.52	0.40	-	6.69	2.95	0.02	緑泥石

*Fe^{Total} ; 酸化鉄()と酸化鉄()の合計

Table2 Chemical properties of liquids.

試料	pH	全炭素 (mg/l)	有機体炭素 (mg/l)	炭酸 (mg/l)	共存元素 (mg/l)										
					Mg ²⁺	Ca ²⁺	Na ⁺	K ⁺	Al ³⁺	*Fe ^{Total}	SiO ₂	P ₂ O ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻	Cl ⁻	HCO ₃ ⁻
模擬雨水	5.9	0.7	-	0.9	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.2	<0.10	<0.5	<0.5	<0.2	<0.1	0.2
模擬地下水	7.0	6.8	<0.1	22.8	2.55	3.31	10.6	1.12	0.59	0.25	4.83	<0.5	2.5	16.0	25.7
湧水	8.2	24.4	1.9	82.4	13.9	31.1	24.9	1.55	<0.20	0.64	23.4	<0.7	60.3	29.5	110.0

*Fe^{Total} ; 酸化鉄()と酸化鉄()の合計

模擬雨水で 5.9, 模擬地下水で 7.0, 湧水で 8.2 であった。共存元素濃度に関しては、模擬雨水 < 模擬地下水 < 湧水の順番で高かった。

3 分配係数測定試験

3.1 溶液試料の調整

試験に用いたウラン系列核種 6 種類(鉛, ラジウム, アクチニウム, トリウム, プロトアクチニウムおよびウラン)は, Table 2 に示した地下水組成において溶解度以下であることを地球化学計算コード CHESS(CHEMical Equilibrium with Species and Surface)[21]および熱力学データ[22]を用いて確認し, その結果をもとに以下の方法で調整した。

鉛: 硝酸鉛を溶解して鉛溶液を作成し, 模擬雨水や湧水(模擬地下水)で希釈した。

ラジウム: Ra-226 溶液(5.3×10^{-6} mol/l, 0.5M 塩酸溶液)を模擬雨水や湧水(模擬地下水)で希釈した。

アクチニウム: Ac-227 溶液(6.9×10^{-8} mol/l, 1M 塩酸溶液)を模擬雨水や湧水(模擬地下水)で希釈した。

トリウム: 硝酸トリウムを溶解してトリウム溶液を作成し, 模擬雨水や湧水(模擬地下水)で希釈した。

プロトアクチニウム: Np-237 溶液(1.0×10^{-3} mol/l, 1M 硝

酸溶液) からシリカゲルを用いて Np-237 を分離し, Np-237 と放射平衡にある Pa-233 を 2.3×10^{-11} mol/l 含む原液を作製し, 模擬雨水や湧水(模擬地下水)で希釈した。ウラン: 天然ウラン(U₃O₈)を溶解して硝酸ウラン溶液を作成し, 模擬雨水や湧水(模擬地下水)で希釈した。

分配係数は元素ごとに 3 種類の初期濃度の液を用いて測定した。Table3 に試験で用いた各元素の初期濃度を示す。

3.2 試験条件

分配係数はバッチ法により測定した。試験フローを Fig.3 に, 測定条件を以下に示す。

固液比: 各元素に対する固液比は, 平衡時液相中の濃度と検出器の下限値を考慮して, ウランは 5g/50ml または 1g/100ml, トリウムは 1g/50ml または 1g/100ml, 鉛は 5g/50ml または 1g/100ml, ラジウム, アクチニウムおよびプロトアクチニウムは 0.8g/8ml または 0.3g/30ml とした。

温度: 15 。

振とう条件: 振とう器による常時 50 回/分の振とうを行う一方, ハンドシェイクを約 1 回/日行った。

期間: 14 日間。

固液分離: 0.45 μm メンブランフィルタで固液分離を

Table3 Test concentration of distribution coefficients.

試料	初期濃度(mol/l)			備考
	No.1	No.2	No.3	
鉛	9.7×10^{-7}	4.9×10^{-6}	9.7×10^{-6}	和光ケミカル製硝酸鉛
ラジウム	6.0×10^{-10}	1.2×10^{-9}	2.4×10^{-9}	Ra-226溶液(5.3×10^{-6} mol/l, 0.5M塩酸溶液)
アクチニウム	3.0×10^{-13}	7.0×10^{-13}	1.4×10^{-12}	Ac-227溶液(6.9×10^{-8} mol/l, 1M塩酸溶液)
トリウム	8.6×10^{-8}	4.3×10^{-7}	8.6×10^{-7}	Fluka Chemie AG. 製硝酸トリウム
プロトアクチニウム	3.0×10^{-14}	6.0×10^{-14}	1.1×10^{-13}	CEA製Np-237溶液 (1.0×10^{-3} mol/l, 1M 硝酸溶液)
ウラン	8.4×10^{-6}	4.2×10^{-5}	8.4×10^{-5}	天然ウラン(U ₃ O ₈ 粉末)

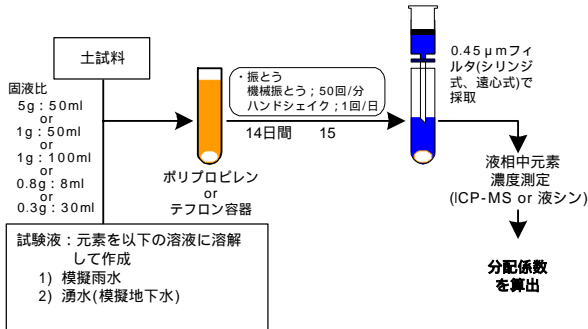


Fig. 3 Flow diagram for the procedure of the batch sorption experimentation.

行った。

分配係数は、初期濃度と平衡時液相中濃度を用いて、以下の式で算出した。平衡時液相中濃度は、0.45 μm のメンブランフィルタでろ過した液相中の元素濃度を用いた。

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

Kd:分配係数(m³/kg)

C₀:初期濃度(mol/l)

C:収着試験の平衡時液相中濃度(mol/l)

V:溶液体積(m³)

W:固相重量(kg)

なお、収着試験終了後に容器壁を 1M 硝酸で洗浄して容器への収着量を測定した結果、各元素とも投入量の 5%以下と小さかったため、容器への収着量の補正は行わなかった。

3.3 液相中元素濃度の分析方法

鉛、トリウムおよびウランは ICP-MS (Perkin Elmer ELAN 6100DRC) を用いて液相中元素濃度を測定した。ラジウム、アクチニウムおよびプロトアクチニウムは液体シンチレーションカウンタ(Packard Tri-curve 2000) を用いて液相中の放射能濃度を測定した。有機シンチレータは ULTIMA AB と ULTIMA F の混合液を用いた。放射能濃度測定では、各核種の特性を考慮して以下のように行った。

ラジウムの測定では、娘核種(Rn-222)との放射平衡を考慮して分析液採取後 10 日以降に測定を行い、 / 弁

別機構により 線と 線を分離して Ra-226 の全 線を求めた。

アクチニウムの測定では、Ac-227 の全 線を測定することにより求めた。

プロトアクチニウムの測定では、Pa-223 の全 線を測定した後に半減期補正を行って実験開始時の値を算出した。

4 結果および考察

4.1 各元素の分配係数

土試料7種類(通気層土4種類(ローム(), ローム(), 赤色土, 黄色土), 帯水層土3種類(砂(), 砂(), 凝灰岩)), 液試料2種類(模擬雨水, 湧水(模擬地下水))を用いてウラン系列核種6種類の分配係数を測定した。各条件での測定結果をまとめたものをTable4に示す。表に示した分配係数の計算方法および表示方法を以下に示す。

- 分配係数は試験条件ごとに3種類の初期濃度で3回繰り返し、最大9点の測定結果を平均した。

- 試験液相中の元素濃度が検出限界未満となった場合の分配係数は、

検出下限値以上の値が3点以上; 検出限界未満の値は省いて平均した。

検出下限値以上の値が2点以下; 初期濃度中央値と検出下限値を用いて算出し不等号を付けた。

本研究で得られた元素ごとの分配係数は、鉛が $1 \sim 5 \times 10^2$ (m³/kg), ラジウムが $3 \times 10^{-1} \sim 2 \times 10^2$ (m³/kg), アクチニウムが $9 \times 10^{-1} \sim 1 \times 10^2$ (m³/kg), トリウムが $6 \times 10^{-2} \sim 9 \times 10^1$ (m³/kg), プロトアクチニウムが $5 \times 10^{-1} \sim 5 \times 10^1$ (m³/kg), ウランが $3 \times 10^{-2} \sim 2 \times 10^2$ (m³/kg)であった。元素ごとの分配係数を比較すると通気層土および帯水層土とも鉛の分配係数が大きな値を示し、続いて通気層土ではラジウムが大きな値を、帯水層土ではアクチニウムが大きな値を示した。ウランは、ローム() - 模擬雨水の分配係数が大きな値を示すが、他の条件では他の元素より小さな分配係数を示すことがわかった。

通気層環境(ローム(), ローム(), 赤色土, 黄色土 - 模擬雨水)および帯水層環境(砂() - 湧水, 砂(), 凝灰岩 - 模擬地下水)での各元素の分配係数をFig.4に示す。鉛、

Table4 Disribution coefficients of Pb, Ra, Ac, Th, Pa and U.

核種	土種類	液相種類	平衡時 液相 pH	分配係数 (m ³ /kg)	核種	土種類	液相種類	平衡時 液相 pH	分配係数 (m ³ /kg)
鉛	ローム()	模擬雨水	6.2	(1.7 ± 0.2) × 10 ²	トリウム	ローム()	模擬雨水	6.4	(7.5 ± 4.2) × 10 ⁰
		湧水	6.9	(3.6 ± 1.1) × 10 ²			湧水	7.2	(3.4 ± 1.3) × 10 ¹
	ローム()	模擬雨水	5.8	(7.6 ± 4.2) × 10 ¹		ローム()	模擬雨水	6.1	(>9.3 ± -) × 10 ¹
		湧水	7.1	(1.4 ± 0.5) × 10 ²			湧水	8.4	(5.0 ± 2.6) × 10 ¹
	赤色土	模擬雨水	5.2	(>5.2 ± -) × 10 ²		赤色土	模擬雨水	4.6	(>9.3 ± -) × 10 ¹
		湧水	6.9	(>5.2 ± -) × 10 ²			湧水	6.7	(>9.3 ± -) × 10 ¹
	黄色土	模擬雨水	6.1	(9.3 ± 2.4) × 10 ¹		黄色土	模擬雨水	5.9	(2.9 ± 2.8) × 10 ¹
		湧水	7.3	(2.7 ± 1.0) × 10 ²			湧水	7.3	(1.1 ± 0.9) × 10 ¹
	砂()	模擬雨水	6.8	(1.9 ± 1.3) × 10 ¹		砂()	模擬雨水	7.1	(1.8 ± 1.3) × 10 ⁻¹
		湧水	8.1	(1.4 ± 0.7) × 10 ¹			湧水	8.2	(1.6 ± 1.0) × 10 ¹
	砂()	模擬雨水	7.1	(1.1 ± 0.5) × 10 ⁰		砂()	模擬雨水	6.9	(1.7 ± 0.7) × 10 ⁰
		模擬地下水	7.3	(2.6 ± 1.0) × 10 ¹			模擬地下水	7.3	(3.0 ± 2.0) × 10 ⁰
凝灰岩	模擬雨水	7.5	(2.6 ± 1.4) × 10 ¹	凝灰岩	模擬雨水	7.2	(6.1 ± 3.4) × 10 ⁻²		
	模擬地下水	7.6	(5.3 ± 1.8) × 10 ¹		模擬地下水	7.6	(3.4 ± 1.6) × 10 ⁻¹		
ラジウム	ローム()	模擬雨水	6.2	(5.3 ± 2.0) × 10 ¹	プロトアクチニウム	ローム()	模擬雨水	5.8	(7.2 ± 4.2) × 10 ⁰
		湧水	7.3	(4.9 ± 1.7) × 10 ¹			湧水	6.2	(5.2 ± 5.1) × 10 ⁻¹
	ローム()	模擬雨水	6.0	(1.9 ± 0.7) × 10 ²		ローム()	模擬雨水	7.1	(3.0 ± 3.5) × 10 ⁰
		湧水	7.3	(7.4 ± 4.7) × 10 ¹			湧水	7.6	(1.3 ± 1.2) × 10 ¹
	赤色土	模擬雨水	4.9	(3.7 ± 1.5) × 10 ¹		赤色土	模擬雨水	5.4	(2.7 ± 3.1) × 10 ¹
		湧水	5.9	(1.5 ± 0.5) × 10 ¹			湧水	7.3	(2.0 ± 2.7) × 10 ¹
	黄色土	模擬雨水	6.5	(2.1 ± 1.8) × 10 ¹		黄色土	模擬雨水	6.9	(2.7 ± 4.7) × 10 ⁰
		湧水	7.1	(4.5 ± 4.1) × 10 ¹			湧水	7.9	(2.4 ± 1.7) × 10 ¹
	砂()	模擬雨水	6.8	(3.8 ± 1.0) × 10 ⁻¹		砂()	模擬雨水	7.7	(5.5 ± 1.1) × 10 ⁻¹
		湧水	7.9	(1.9 ± 0.7) × 10 ⁰			湧水	8.4	(4.3 ± 2.8) × 10 ⁰
	砂()	模擬雨水	6.9	(2.5 ± 1.2) × 10 ⁻¹		砂()	模擬雨水	8.4	(4.5 ± 2.4) × 10 ⁻¹
		模擬地下水	7.2	(6.5 ± 2.8) × 10 ⁻¹			模擬地下水	8.3	(6.9 ± 3.5) × 10 ⁻¹
凝灰岩	模擬雨水	7.7	(5.9 ± 1.9) × 10 ⁻¹	凝灰岩	模擬雨水	8.1	(1.6 ± 1.1) × 10 ⁰		
	模擬地下水	7.9	(5.0 ± 4.8) × 10 ⁰		模擬地下水	8.2	(4.1 ± 5.8) × 10 ⁰		
アクチニウム	ローム()	模擬雨水	5.2	(2.9 ± 0.7) × 10 ⁰	ウラン	ローム()	模擬雨水	7.0	(1.8 ± 1.2) × 10 ²
		湧水	7.1	(5.8 ± 5.5) × 10 ⁰			湧水	6.8	(2.1 ± 0.8) × 10 ⁰
	ローム()	模擬雨水	5.2	(2.4 ± 3.4) × 10 ⁰		ローム()	模擬雨水	4.6	(2.0 ± 6.5) × 10 ⁰
		湧水	7.1	(1.6 ± 0.5) × 10 ¹			湧水	6.5	(4.6 ± 2.9) × 10 ⁰
	赤色土	模擬雨水	4.4	(1.4 ± 0.9) × 10 ⁰		赤色土	模擬雨水	4.2	(2.0 ± 2.4) × 10 ⁻¹
		湧水	4.8	(8.8 ± 1.3) × 10 ⁻¹			湧水	5.6	(1.9 ± 1.8) × 10 ⁰
	黄色土	模擬雨水	5.3	(6.9 ± 5.7) × 10 ⁰		黄色土	模擬雨水	4.1	(4.4 ± 6.5) × 10 ⁰
		湧水	6.5	(5.9 ± 2.7) × 10 ⁰			湧水	6.7	(4.6 ± 0.6) × 10 ⁻¹
	砂()	模擬雨水	4.3	(4.1 ± 2.9) × 10 ⁰		砂()	模擬雨水	6.4	(2.5 ± 1.0) × 10 ⁰
		湧水	7.9	(7.4 ± 5.7) × 10 ⁰			湧水	7.2	(3.2 ± 0.9) × 10 ⁻²
	砂()	模擬雨水	6.6	(>1.0 ± -) × 10 ²		砂()	模擬雨水	6.6	(2.4 ± 1.3) × 10 ⁰
		模擬地下水	6.7	(1.1 ± 2.0) × 10 ¹			模擬地下水	5.8	(1.9 ± 1.4) × 10 ⁻¹
凝灰岩	模擬雨水	6.9	(3.5 ± 1.1) × 10 ⁰	凝灰岩	模擬雨水	7.4	(5.8 ± 2.5) × 10 ⁻¹		
	模擬地下水	7.3	(1.8 ± 3.8) × 10 ¹		模擬地下水	7.4	(1.1 ± 0.4) × 10 ⁻¹		

分配係数は試験条件ごとに3種類の初期濃度で3回繰り返し、最大9点の測定結果を平均した。

試験液相中の核種濃度が検出限界未満となった場合の分配係数は、

- ・ 検出下限値以上の値が3点以上；検出限界未満の値は省いて平均した。
- ・ 検出下限値以上の値が2点以下；初期濃度中央値と検出下限値を用いて算出し不等号を付けた。

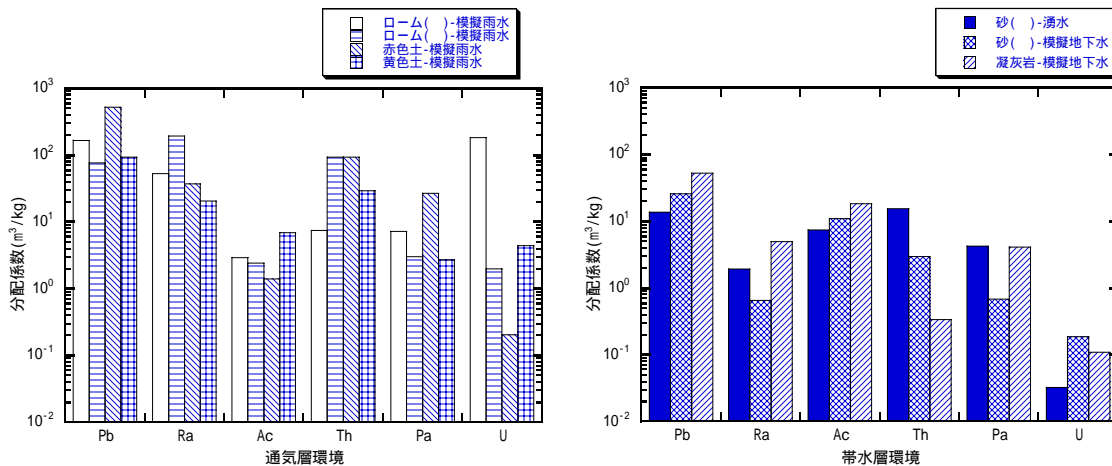


Fig.4 Distribution coefficients of each elements under aerated zone environment and aquifer environment.

ラジウム，トリウム，プロトアクチニウムおよびウランの分配係数は通気層環境のほうが帯水層環境より大きな値を示す傾向が見られたが，アクチニウムは他の元素とは異なり帯水層環境が通気層環境より大きくなる傾向が見られた．武部の研究結果でも通気層土の分配係数は帯水層土の分配係数と比較して大きな値を取ることが報告されて

おり[12]，このことから，アクチニウムを除くウラン系系列核種の分配係数は，帯水層環境より通気層環境のほうが大きいと推測される．

4.2 土の物性値との関係

Table4に示す分配係数について土のCEC，比表面積との関係を調べた．土のCECとの関係をFig.5に，比表面積との関係をFig.6に示す．鉛，ラジウムおよびプロトアクチニウムの分配係数とCECおよび比表面積との間に正の相関が見られた．また，トリウムについても多少の相関が見られた．Table1に示すようにCECおよび比表面積は通気層土が帯水層土よりも大きく，4.1で示した通気層環境のほうが帯水層環境より分配係数が大きい結果となったのは，CECのような陽イオンの収着に関する土の物性値の違いを反映しているためと推定される．

アクチニウムとウランの分配係数はCECや比表面積との間に相関は認められなかった．本研究は，通気層環境と帯水層環境を模擬しており，両環境の間でpHや液相中共存元素に大きな差が見られる．液相は固相の緩衝効果により液相特性が変化するが，Table3の平衡時液相pHは0.5～1.0程度湧水のほうが大きい結果が得られていることから，平衡時の液相特性は通気層環境と帯水層環境で異なると予想される．今回対象とした元素のうちウランは液相中でさまざまな化学形態で存在し，化学形の存在割合は液相特性に大きく依存することが知られている[23,24]．また，ウランは分配係数についてもpHで大きく変化することが知られている．Idemitsuらの報告[11]では，ウランの分配係数は

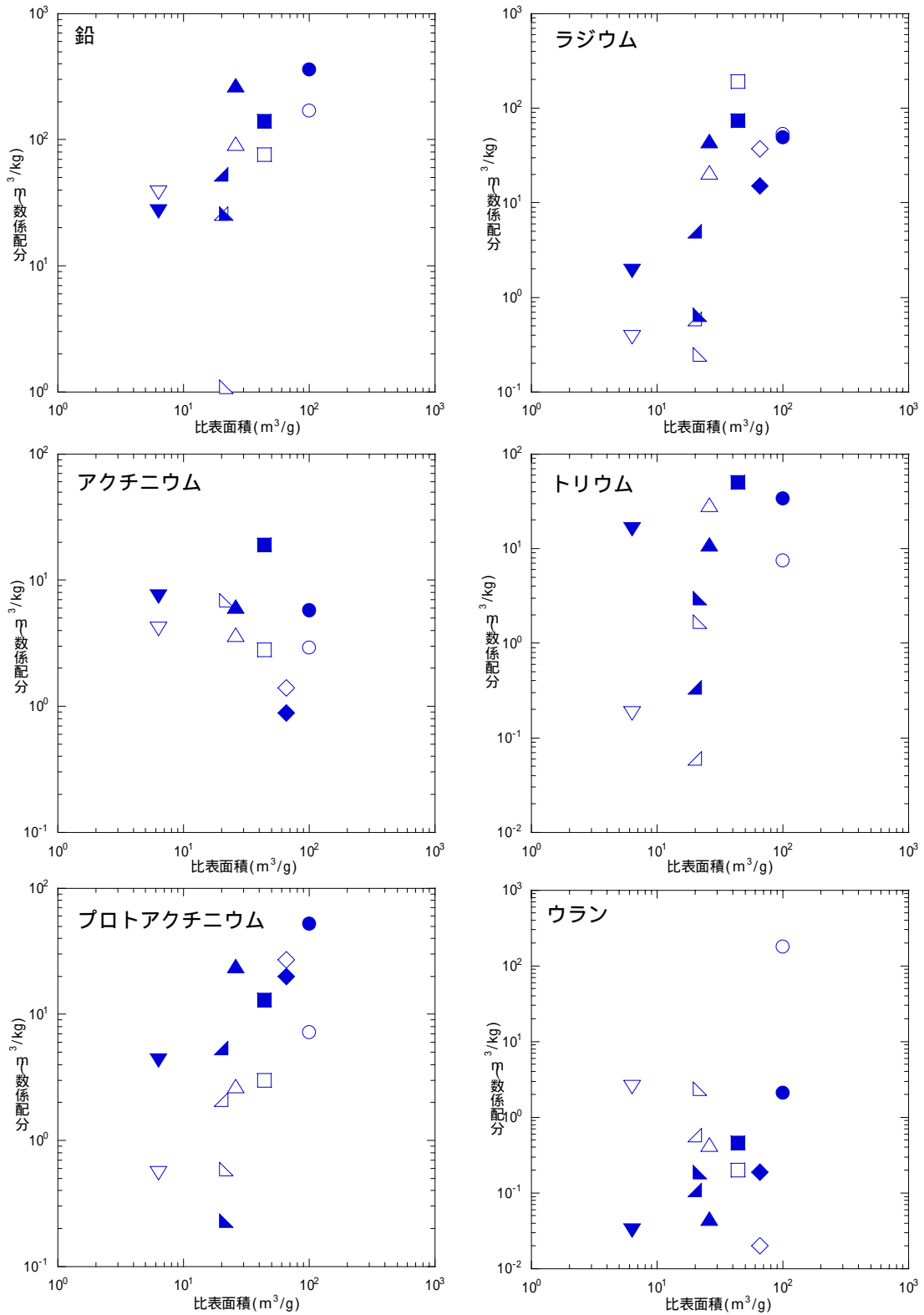
中性領域でピークを示しており，pHが酸性側になると1/10以下に低下する．本研究でも酸性から中性の領域(pH4～7)ではpHが上昇すると分配係数が大きくなる傾向が得られた．Table4に示すようにアクチニウムはすべての条件ではないがpHの上昇にともない分配係数が大きくなる傾向が認められた．これらのことからFig.5,6に示すように土の物性値とアクチニウムおよびウランの分配係数に相関が認められなかったのは，液相条件の違い(pH等)の影響が大きいためであると推定される[25]．

5 結言

日本国内で採取した土試料7種類(通気層土4種類(ローム()，ローム()，赤色土，黄色土)，帯水層土3種類(砂()，砂()，凝灰岩))，液試料2種類(模擬雨水，湧水(模擬地下水))を用い，同一試験条件，同一試験方法でウラン系列核種6種類の分配係数を測定し，系統的に比較が可能なウラン系列核種の分配係数を求めた．

環境の違いによる分配係数の比較ではアクチニウム以外の元素では通気層環境のほうが帯水層環境と比較して大きい傾向が得られた．アクチニウムの分配係数は帯水層環境のほうが通気層環境と比較して大きい傾向が得られた．

分配係数と土のCECおよび比表面積との関係を調べた結果，鉛，ラジウムおよびプロトアクチニウムはCECおよび比表面積と正の相関が観察され，また，トリウムについても若干の相関が見られた．通気層環境が帯水層環境よりも分配係数が大きいのはこのような土の物性値の違いを反映したものであると推測した．しかし，アクチニウムとウランはこれら物性値との相関が認められず，土の物理化学特性よりも液相条件，例えばpH等の影響により分配係数に違いが生じることを推測した．



(○(), (○(), (赤色土), (黄色土), (砂()), △(砂()) △(凝灰岩); 模擬雨水
 (○(), (○(), (赤色土), (黄色土), (砂()), ▲(砂()) ▲(凝灰岩); 湧水・模擬地下水

Fig.6 Correlation between specific surface area and distribution coefficients.

謝辞

本研究の推進にあたって、貴重な御助言をいただいた東京大学 田中知教授に深く感謝の意を表します。また、本研究は電源開発特別会計事業による通商産業省（現、経済産業省）からの受託研究「ウラン廃棄物処理処分システム開発調査」の一部として行ったものである。

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 - 平成 6 年度 - . (1994) .
- [2] 原子力委員会，原子力バックエンド対策専門部会：ウラン廃棄物処理処分の基本的考え方について . (2000) .
- [3] 財団法人原子力環境整備センター：ウラン廃棄物処理処分システム開発調査報告書 - 平成 8 年度 - . (1997) .
- [4] 財団法人原子力環境整備センター：ウラン廃棄物処理処分システム開発調査報告書 - 平成 9 年度 - . (1998) .
- [5] 財団法人原子力環境整備センター：ウラン廃棄物処理処分システム開発調査報告書 - 平成 10 年度 - . (1999) .
- [6] 財団法人原子力環境整備センター：ウラン廃棄物処理処分システム開発調査報告書 - 平成 11 年度 - . (2000) .
- [7] 財団法人原子力環境整備センター：土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数．環境パラメータシリーズ 2，RWMC-90-P-13(1990) .
- [8] Bell, J. W., Bates, T. H. : Distribution coefficients of radionuclides between soils and groundwaters and their dependence on various test parameters . *The Science of The Total Environment*, **69**, 297-317(1988) .
- [9] Rancon, D. : Comportement dans les milieux souterrains de l'uranium et du thorium rejetés par l'industrie nucléaire . IAEA-SM-172/55 , pp.333-346(1987) .
- [10] Idemitsu, K. et al. : Migration behavior of uranium (VI) in laboratory scale granite . *The third international symposium on advanced nuclear energy research -Global environment and nuclear energy -*, Mito, Japan, March 13-15,1991,pp.207-211(1991) .
- [11] Idemitsu, K. et al. : Sorption behavior of uranium (VI) on a biotite mineral . *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XV* (Mater. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 353) (Murakami Takeshi, Ewing R. C. ed.), Part 2, Kyoto, Japan Oct.23-27 1994 pp.981-988(1995) .
- [12] 武部慎一：浅地層土壌等における長寿命核種の分配係数 . KURRI-KR-44, pp.82-95(2000).
- [13] International Atomic Energy Agency :Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments . IAEA Technical Report Series No. 364(1994) .
- [14] 田上恵子，内田滋夫：ICP-MS 法を用いた土壌・土壌溶液間のウラン，トリウム等の分配係数の測定について . KURRI-KR-44 pp.155-158(2000) .
- [15] 塚田祥文，長谷川英尚：安定元素の分配係数測定法 . KURRI-KR-44 pp.159-162(2000) .
- [16] Haji-Djafari, S. et al. : Attenuation of radionuclides and toxic elements by in situ soils at a uranium tailings pond in central Wyoming, In: *Permeability and Groundwater Contaminant Transport*, ASTM STP 746, T.F. Zimmie and C.O. Riggs, Eds., American Society for Testing and Materials, pp. 221-242(1981) .
- [17] Sheppard, S.C. et al. : Uptake of natural radionuclides by field and garden crops. *Canadian Journal of Soil Science* **69** , 751-767(1989) .
- [18] Gerritse, R.G. et al. : Effect of sewage sludge on trace element mobility in soils. *Journal of Environmental Quality* **11** , 359-364(1982) .
- [19] 中西潔 他：セメント材料の化学バリア性能(2)-水和及び溶解変質セメントへのアクチニド元素収着挙動- . 日本原子力学会 2000 秋の大会，青森，9 月 15～17 日，K28(2000) .
- [20] 前田正男，松尾嘉郎：図解 土壌の基礎知識，農産漁村文化協会，東京，pp.202-203(1974) .
- [21] van der Lee, J., Windt L. De : CHESST Tutorial and cookbook. updated for version 2.5 users manual Nr. LHM/RD/00/13 , Ecole des Mines de Paris , Fontainebleau , France(2000) .
- [22] 山田徹治：地下水における元素の溶解度及び化学形を推定するための熱力学データの検討第 2 編：Np，Pu . JAERI-Data/Code 2000-031(2000) .
- [23] Brookins D.G. : 放射性廃棄物処分の基礎<地球化学的アプローチ>，石原健彦，大橋弘士訳，現代工学社，東京，pp.192 - 228(1987) .
- [24] Davydov Yu. P. : 溶液中の放射性核種の存在状態，阪上正信，市川富士夫訳，現代工学社，東京，pp.128 - 137(1985) .
- [25] 坂本義昭 他：浅地中環境下における U 系列核種の分配係数測定() . 日本原子力学会 2000 年秋の大会，青森，9 月 15～17 日 K50 (2000) .

