技術報告

396. TRU 核種に関する野外核種移行試験, (IV)

帯水層土壌における核種移行試験

田中 忠夫¹, 向井 雅之¹, 宗像 雅広¹, 前田 敏克¹, 小川 弘道^{1,†},
Zhiming WANG², Shushen LI², Yuee YANG², Yingjie ZHAO²

*Field Tests on Migration of TRU-nuclide, (IV)**Radionuclide Migration Test in Aquifer Soil Layer*

Tadao TANAKA, Masayuki MUKAI, Masahiro MUNAKATA, Toshikatsu MAEDA, Hiromichi OGAWA,
Zhiming WANG, Shushen LI, Yuee YANG and Yingjie ZHAO

Migration data of ⁹⁰Sr, ²³⁷Np and ²³⁸Pu in natural aquifer were collected by a field test, which was performed in an aquifer at 30 m under ground surface of the field test site. Migration parameters for analysis of the results obtained from the field test were measured by laboratory column tests and batch tests.

The large retardation effects of the soil for the radionuclides were confirmed in the natural aquifer. Dispersion coefficient corresponding to water velocity was determined from the relationship between water velocity and dispersivity, which obtained from the column tests. Distribution coefficient was determined by considering reliability of data, test conditions, and environmental conditions. One dimensional migration behavior of the radionuclides in aquifer, calculated by using the migration parameters obtained from the batch and column tests, agreed with the results obtained from the field test. It was confirmed that the migration behavior of α -nuclides could be evaluated by applying the conventional equation for evaluating the radionuclide migration and the migration parameters obtained from laboratory tests.

KEYWORDS: *aquifer, field test, radionuclide migration, strontium 90, neptunium 237, Plutonium 238, migration parameter, dispersion coefficient, distribution coefficient*

I. 緒 言

放射性廃棄物の地層処分の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土壌や岩石等天然バリアが有する放射性核種移行抑止能を把握することが不可欠である。一般に、土壌や岩石層中における放射性核種の移行は、土壌等と地下水間における放射性核種の反応による抑制作用を受けながら、主として地下水の移流拡散現象に伴って進行すると考えられている^{1,2)}。実際の環境中での反応は、イオン交換、溶解・沈殿、汙過、錯形成など複数の反応機構が生じており³⁾、また反応する放射性核種の化学形態も陽イオン、陰イオン、コロイドなど多種多様である^{3~5)}。さらに、土壌や岩石などは多様な吸着サイトを有する複数の鉱物の集合体であるため、個々の反応は非常に局所的なものとなる。したがって、地

層中で生じる個々の反応をミクロな視点から捉えらるとなると、地層中での放射性核種の吸着現象や移行現象のモデル化あるいは定量化は非常に複雑なものとなる。

一方、青森県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中への埋設事業の安全審査など⁶⁾、現在の放射性廃棄物処分の安全評価手法の多くでは、これら複雑に交錯するすべての反応をマクロな視点から捉え、土壌と反応している放射性核種濃度と地下水中に存在する放射性核種濃度との間に可逆的な瞬時平衡が一定の平衡定数の下で常に成り立つという仮定、すなわち広い意味での分配係数を用いる記述が用いられている⁷⁾。

以上の考え方に基けば、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、(1)、(2)式に示すように、地下水の移流拡散現象を支配する水流速と分散係数並びに地質媒体/地下水間での反応を支配する分配係数の3つの移行パラメータによって制御されることになる^{1,7)}。

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

$$Q = K_d C \quad (2)$$

ここで、 C : 地下水中放射性核種濃度 (Bq/cm³)

Q : 土壌に吸着した放射性核種濃度 (Bq/g)

¹ 日本原子力研究所燃料サイクル安全工学部 (Dept. of Fuel Cycle Safety Res., Japan At. Energy Res. Inst.)

² 中国輻射防護研究院 (China Inst. for Radiat. Prot.)
(2002年 11月22日 受理; 2003年 5月9日 査読通過)

* 著者連絡先: Tel. 029-282-5625, Fax. 029-282-6678,
E-mail: tanaka@sparclt.tokai.jaeri.go.jp

[†] 現在、日本原子力研究所環境整備計画室 (Office of Planning for Decommissioning and Radioact. Waste Manage., Japan At. Energy Res. Inst.)

ρ : 土壌の密度 (g/cm³)
 θ : 水分率
 D : 分散係数 (cm²/min)
 V : 水流速 (cm/min)
 t : 時間 (min)
 X : 放射性核種注入点からの距離 (cm)
 f : 空隙率
 K_d : 分配係数 (cm³/g)

しかしながら、再処理施設、放射性同位元素使用施設などから発生する α 核種を含む低レベル放射性廃棄物に含まれるアクチニドは、地下水中で加水分解、溶存する炭酸イオン等との反応および生成物の凝集、地下水中に存在する土壌微細粒子や腐植酸などとの結合などによって種々の化学種を形成する^{8,9)}。したがって、 α 核種を含む低レベル放射性廃棄物を浅地中に処分する際の安全性を評価する場合、(1)、(2)式に基づく移行評価式が水溶液中で多様な化学形態を形成するアクチニドの移行評価に対しても妥当なものであるか否かを確認することは、放射性廃棄物処分に係る信頼性の高い評価を行う上で重要な研究課題の一つである。

本研究協力では、自然地下環境にある帯水層土壌中で α 核種などを用いた野外核種移行試験を行い、実際の帯水層における核種移行に係るデータを取得した。一方、野外核種移行試験と並行して、移行評価に必要なデータを取得するため、室内試験および環境調査を実施した。本報では、得られたデータに基づき、野外試験結果の解析のための適切な移行パラメータの選定手法について検討するとともに、(1)、(2)式に基づく移行評価式を用いた解析を試み、 α 核種を含む低レベル放射性廃棄物の浅地中処分の安全評価へ本評価式を適用することの妥当性について検討した結果を述べる。

II. 帯水層中野外核種移行試験

1. 野外試験の方法

試験は、地表下約 30 m に位置する地下試験施設の試験坑に設けた縦 200 cm、横 140 cm の試験ピット内において実施した(第 1 図)^{10,11)}。試験場黄土および地下水の特性は、本シリーズ(I)総論の第 1 表、第 2 表にそれぞれ示す¹¹⁾。帯水層は試験坑の床面から約 150 cm 下方に位置し、地下水の流向は試験ピットの縦方向とほぼ同じである。ピット内の地下水流上流側には、石英砂に ³H (トリチウム水として導入)、⁹⁰Sr、²³⁷Np、²³⁸Pu を担持させたポイントソースを床面から 260 cm 下方の帯水層中へ注入する核種注入孔を 1 ヶ所設けた。また、下流側には定期的に地下水を採取するための採水孔を扇状に 12 本設けた。おのおのの採水孔には、同時に 3 つの深度から採水できるよう、深度ごとに独立したストレーナと採水チューブを組み込んだ。なお、野外で放射性核種を使用する試験を実

第 1 図 帯水層中放射性核種移行に関する野外試験の概略図(上図は平面図、下図は断面図)

野外試験は野外試験場の地下約 30 m の帯水層中で実施

第 2 図 試験ピットからの未攪乱黄土ブロックの採取方法

施するにあたっては、所期の予想を大きく上回るような速度で放射性核種が移行した場合の安全対策として、帯水層土壌層の空隙率 50% と同じ開孔率となるよう直径 1 cm の穴を開けたステンレス鋼製パンチングフレームネットを核種注入孔および採水孔を囲むよう、コの字型に帯水層へ挿入し、必要に応じ速やかに土壌を掘り出して回収できるようにした。核種移行試験は、放射性核種を注入してから 1,023 日間実施し、その間ピット内に設置した複数の採水孔から定期的に地下水を採取し、これら核種の移行挙動を観測した。

試験終了後は、第 2 図に示すように、安全対策上設置したパンチングフレームネットのフレーム支柱を利用し

第3図 未攪乱黄土ブロックからの分析試料の採取位置

第4図 地下水採取孔 No. 3, 6, 9, 12から採取した地下水中 ^3H 濃度の推移

て、ステンレス鋼板を全面に挿入し、採取目的土壌をブロック状に密閉した後、チェーンブロックで引き上げることにより、ピット内の土壌試料を未攪乱ブロック状に採取した。採取した未攪乱ブロック試料は実験室内に搬入し、分析用試料を第3図のX軸、Y軸、Z軸を基準にした各位置でカットした。各分析用試料の放射性核種濃度は、Ge検出器で ^{237}Np 濃度を測定した後、 ^{90}Sr および ^{238}Pu を化学分離し、液体シンチレーションカウンタおよび α 線スペクトロメータでそれぞれ分析した。

2. 野外試験の結果

1,023日間の試験を通して、各採水孔から採取した地下水中に ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu は検出されなかった。第4図は第1図における採水孔 No. 3, 6, 9, 12の中間深度から採取した地下水中における ^3H 濃度の推移を示したものである。核種注入孔からの距離が長くなるに従ってピーク濃度が低くなるとともに、濃度の上昇傾向は緩やかになった。また、ピークが出現した後にテーリングがみられ、分散効果の増大や流れの乱れが生じている可能性を示唆している。なお、核種注入孔から各採水孔までの距離と各採水孔において ^3H 濃度の最大値が観測されるまでの日数から水流速を計算した結果、平均水流速として0.2 cm/dが得られた。

ピット内土壌中における ^{90}Sr のX軸、Y軸、Z軸方向

(a) X軸方向への ^{90}Sr の分布 (b) X軸の各位置におけるY軸方向への ^{90}Sr の分布 (c) X軸の各位置におけるZ軸方向への ^{90}Sr の分布第5図 試験ピット内黄土中におけるX, Y, Z軸方向の ^{90}Sr 濃度の分布 第6図 移流中心(=X軸方向)に沿った ^{90}Sr 、 ^{237}Np および ^{238}Pu 濃度の試験ピット内1次元分布

への分布状態を第5図に示す。いずれの方向についても核種注入点を中心に広がる傾向にあることがわかる。第6図は地下水の流れ方向に沿った移流中心の1次元分布を示したものである。 ^{90}Sr のピーク位置は拡散による濃度分

布の広がり示しつつ、1 cm 程度下流方向への移行がみられた。一方、 ^{237}Np および ^{238}Pu は土壌への吸着による大きな遅延効果のため、拡散による若干の広がりがみられるものの核種注入位置に留まったままであった。これらの結果は、土壌の有する大きな核種移行抑止効果を示すものであり、カラム実験等室内試験などで明らかにされていた現象と定性的に一致するものである^{12,13)}。

III. 移行パラメータ取得試験

野外核種移行試験から得られるデータを解析評価するために、水流速、分散係数、分配係数といった移行パラメータを選定することが必要である。本研究協力では、信頼性の高い移行パラメータを取得するため、原位置でのカラム試験(アセンブリー試験)、帯水層環境を模擬した条件で核種移行を調べる室内カラム試験、分配係数測定バッチ試験を実施した。

1. バッチ法吸着試験

(1) バッチ試験の方法

対象とした試料は、野外試験場から採取した黄土試料である。実験に使用した放射性核種は、フランス LMRI から購入した $^{85}\text{SrCl}$ の塩酸水溶液、 $^{237}\text{NpO}_2\text{NO}_3$ および $^{238}\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ の硝酸酸性水溶液である。これらを脱イオン水で約 10^4 Bq/cm^3 に希釈したものを原液として実験に供した。原液の pH は 1 mol/dm^3 の NaOH で 4 程度に調整した。

黄土 0.5 g と脱イオン水 10 cm^3 とを 50 cm^3 テフロン容器に入れ、 25°C の恒温槽内で振とうしながら 7 日間接触させて固液相の温度、pH、Eh、イオンやコロイド等の溶出濃度に大きな変動が生じない状態に至らしめた。この混合物に液相中の放射性核種濃度が約 10^3 Bq/cm^3 となるように ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu 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 で 168 時間行い、168 時間後の上澄み液については、孔径 $0.45 \mu\text{m}$ の Millipore 製フィルタで濾過し、フィルタ透過液 1 cm^3 中の放射性核種濃度を測定した。

放射性核種の分配係数は、並行して行ったブランク試験の放射性核種濃度との差から黄土に吸着した放射性核種量が求まるので、黄土に対する放射性核種の分配係数 K_d は次式から算出した。

$$K_d = \frac{(C_0 - C_e) \cdot V}{C_e \cdot (W - A)} \quad (3)$$

ここで、 C_0 : ブランク試験(吸着実験前)の液相中放射性核種濃度(Bq/cm^3)

C_e : 吸着実験後の液相中放射性核種濃度(Bq/cm^3)

W : 黄土の重量(g)

V : 液相の体積(cm^3)

A : 黄土試料中の水分量(g)

さらに、黄土に吸着した放射性核種の吸着メカニズムを調べるため、次に示す 5 種類の抽出試薬を用いて黄土に吸着した放射性核種の逐次抽出を行った^{14~18)}。

- 1 段目の抽出 : 黄土平衡水による 25°C で 168 時間の抽出を 1 回
- 2 段目の抽出 : Ca^{2+} と交換可能な吸着形態にある放射性核種を脱離させるため、 0.5 mol/dm^3 の CaCl_2 水溶液による 25°C で 24 時間の抽出を 2 回
- 3 段目の抽出 : K^+ と交換可能な吸着形態にある放射性核種を脱離させるため、 0.5 mol/dm^3 の KCl 水溶液による 25°C で 24 時間の抽出を 1 回
- 4 段目の抽出 : マンガンおよび鉄の水酸化物・酸化物と結合している放射性核種を脱離させるため、pH 2 に調節した 0.1 mol/dm^3 の $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ と 0.2 mol/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
- 5 段目の抽出 : 有機態や Calcite を溶解し、これらと結合している放射性核種を脱離させるため、pH 2 に調節した 30 wt% の H_2O_2 と 60°C で 6 時間反応

おのおのの抽出液中の放射性核種濃度および一連の抽出操作後の試料に残存する放射性核種濃度を測定し、各抽出フラクションに存在する放射性核種の割合を求めた。

(2) バッチ試験の結果

分配係数測定結果を第 1 表に示す。 ^{85}Sr の分配係数は $130 \sim 140 \text{ cm}^3/\text{g}$ 、 ^{237}Np は液相中の Np 濃度によって $57 \sim 1,600 \text{ cm}^3/\text{g}$ 、 ^{238}Pu は $1,000 \sim 1,400 \text{ cm}^3/\text{g}$ であった。

半減期が長い ^{237}Np は比放射能が低いため、野外試験で使用する Np の化学濃度は、場合によって 10^{-5} mol/dm^3 を上回ることが想定される。この濃度領域は吸着親和性に濃度依存性が生じない Henry 型の吸着等温線からはずれ、濃度依存性が生じる Freundlich 型の吸着領域に相当することが確認されており¹⁹⁾、分配係数値に大きなバラ

第 1 表 バッチ試験で測定した放射性核種の分配係数

放射性核種	平衡濃度 (mol/dm^3)	K_d (cm^3/g)	pH
^{85}Sr	5.9×10^{-13}	130	8.4
	4.1×10^{-13}	140	8.2
^{237}Np	3.2×10^{-9}	1,600	8.2
	9.6×10^{-9}	1,300	8.1
	4.2×10^{-8}	750	8.1
	4.3×10^{-8}	690	8.2
	3.4×10^{-7}	460	8.1
	7.0×10^{-7}	270	8.2
	3.4×10^{-6}	130	8.2
	1.1×10^{-5}	70	8.1
	1.9×10^{-5}	71	8.4
	1.5×10^{-5}	57	8.1
^{238}Pu	1.5×10^{-10}	1,000	8.1
	1.2×10^{-10}	1,400	8.4

ツキを発生させた原因となった。一方、比放射能が高い ^{85}Sr や ^{238}Pu は、野外試験で使用される場合でも化学濃度は低いので、Henry型の吸着領域に存在し、濃度によらず一定の吸着親和性を示すことが期待される。さらに ^{85}Sr については、向井らが報告しているように、Srの濃度が土壌や地下水に天然に含まれるSr濃度によって決定されるため、吸着性についてSrの濃度依存性は考慮する必要はない⁽²⁰⁾。

黄土に吸着した放射性核種の逐次抽出結果を第7図に示す。黄土に吸着した ^{85}Sr の全量は土壌平衡水、 CaCl_2 およびKCl水溶液によって抽出され、吸着メカニズムがイオン交換に支配されていることがわかる。 ^{237}Np については、黄土に吸着した ^{237}Np の約60%が土壌平衡水、 CaCl_2 およびKCl水溶液によって抽出された。また、吸着した ^{237}Np の約20%は $\text{NH}_4\text{OH} \cdot \text{HCl} + \text{K-oxalate}$ によって抽出される成分であり、これらの成分は、非晶質の鉄やマンガンの水酸化物・酸化物と表面錯体形成など化学結合した成分に相当する。したがって、 ^{237}Np の吸着は、 ^{85}Sr と同様なイオン交換や表面錯体形成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とみなすことができる。一方、黄土に吸着した ^{238}Pu の70%は、いずれの抽出試薬によっても脱離しない成分であり、結合力の強い表面錯体形成や鉱物への固定など、脱離し難い吸着メカニズムに支配されていることがわかった。

2. 室内カラム法移行実験

(1) カラム試験の方法

試験装置の概略および試験条件を第8図に示す⁽¹⁰⁾。カラム試験は地下試験施設内の試験坑内において実施した。カラム試験槽は縦30 cm、横30 cm、長さ120 cmのアクリル樹脂製で、野外試験場の帯水層から未攪乱状態で採取した長さ80 cm黄土層を帯水状態を維持したまま充填した。カラム槽流入端および流出端には黄土層への地下水の浸透が均一に起こるよう透水性の良い砂礫層を20 cm設けた。石英砂に担持させた放射性核種ソースは流入端から10 cmに掘削した核種注入位置に埋め込み、再び黄土で埋め戻した。試験は、地下試験施設に設けた井戸から地下水をポンプで水頭を一定に保ちつつ大気に接触させない状態を維持しつつ黄土層に流入させた。試験期間は573日で、この間流出液を定期的に採取し、放射性核種濃度を測定した。試験終了後は、黄土層を解体し、土壌層内における放射性核種の濃度分布を測定した。

(2) カラム試験の結果

試験期間を通して、流出液中に ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu は検出されなかった。なお、水のトレーサとして注入した ^3H （トリチウム水）の破過傾向から、水流速 V として5.4 cm/d、分散長 D_L として1.3 cmが取得された。第9図は土壌層中における ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu の分布状態を示したものである。 ^{90}Sr のピークは下流側へ約17 cm、 ^{237}Np の

第7図 逐次抽出によって黄土から脱離した ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu の割合

第8図 未攪乱帯水層黄土カラムを用いた放射性核種移行試験の方法

第9図 黄土カラム中における ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu 濃度の分布
 曲線は、分配係数を解析するために(1)、(2)式を実測値にフィッティングさせた計算値

ピークは下流側へ数 cm の分散による広がりを伴った移行が確認できた。一方、 ^{238}Pu は核種注入位置に留まったままであった。このようなカラム試験から得られた放射性核種の移行傾向は野外試験結果を反映したものであり、野外試験に比べ非常に簡便なカラム試験によって野外試験と同様な核種移行データが取得できることを示すものである。また、カラム試験では、地層の不均質性の低減、地下水流

速など試験条件の制御が可能であり、適切な加速条件を設定することによって、野外試験を上回るデータを短期間で取得できる可能性がある。このように、カラム試験は、野外試験の模擬試験として、核種移行に関する十分な知見や情報を取得できる試験であることを支持できる結果が得られた。

(1), (2)式における移行パラメータのうち、水流速および分散係数($V \times D_L$)は ^3H の破過傾向から取得されるので、土壌中における ^{90}Sr , ^{237}Np , ^{238}Pu の分布状態に(1), (2)式をフィッティングさせることによって各放射性核種の分配係数 K_d を解析した²¹⁾。フィッティングさせた曲線を第9図に実測値とともに示した。解析の結果、 ^{90}Sr の分配係数として $44 \text{ cm}^3/\text{g}$, ^{237}Np の分配係数として $190 \text{ cm}^3/\text{g}$ が最適値として得られた。一方、 ^{238}Pu については、移流が確認できなかったため、適切な分配係数値をフィッティング解析から得ることはできなかった。

3. 野外カラム法移行試験(アセンブリー試験)

(1) アセンブリー試験の方法

アセンブリー試験は、地下試験施設内に設けた、野外試験の対象とした第1帯水層を貫通させた直径2.5 m、長さ6 mの試験縦坑内で実施した¹⁰⁾。試験概念および試験条件を第10図に示す。試験用アセンブリーは、あらかじめ帯水層から未攪乱状態で採取した土壌カラムを2つに分割し、一方の分割面に、石英砂に担持させた放射性核種をプレート状あるいはポイントソースとして埋め込んだ後、再び分割したカラムを密着固定して調製した。アセンブリーは、試験縦坑内に設けた挿入筒を介して帯水層へ挿入し、フランジで挿入筒に密閉固定させた。試験縦坑側に位置するもう一方のアセンブリー端には、透水性の高い礫を充填した流出液ポートを組み込み、帯水層からアセンブリー内へ流入する地下水の流量は流出液ポートに取り付けた流量調節バルブで制御した。4通りのアセンブリー試験は、それぞれ放射性核種ソースの形状および注入量、流量、試験期間が異なった条件設定とした。おのおのの試験条件を第10図にまとめて示す。試験期間は514日あるいは976日で、この間流出液を定期的に採取し、放射性核種濃度を測定した。試験終了後は、アセンブリーを解体し、土壌層内における放射性核種の濃度分布を測定した。

(2) アセンブリー試験の結果

カラム試験と同様、試験期間を通して、いずれのアセンブリーからの流出液中にも ^{90}Sr , ^{237}Np , ^{238}Pu は検出されなかった。第11図は各アセンブリー中における ^{90}Sr , ^{237}Np , ^{238}Pu の分布状態を示したものである。いずれのアセンブリーについても、 ^{90}Sr のピークは下流側へ10 cm程度、 ^{237}Np のピークは下流側へ数 cm程度の分散による広がりを伴った移行が確認できた。一方、 ^{238}Pu は、野外試験やカラム試験と同様に、大部分は核種注入位置付近に留まったままであった(図中では、 ^{238}Pu 濃度のみを対数

帯水層から未攪乱で採取した土壌カラム内に放射性核種ソースを注入した後、試験縦坑壁に設けた挿入筒を介して帯水層に挿入

核種注入法: 石英砂担持 プレートソース(10.5cm φ × 0.5cm) ポイントソース(2.5cm φ × 3cm)				
試験No.	1	2	3	4
ソース形状	プレート	プレート	プレート	ポイント
核種注入量(Bq)				
^3H	4.4×10^8	4.4×10^8	4.4×10^8	3.7×10^7
^{90}Sr	5.1×10^7	5.1×10^7	5.1×10^7	4.2×10^6
^{237}Np	4.1×10^8	4.1×10^8	4.1×10^8	3.3×10^5
^{238}Pu	3.7×10^8	3.7×10^8	3.7×10^8	3.0×10^5
期間(d)	976	976	514	514
平均流量(cm^3/d)	30	43	45	44

第10図 アセンブリー試験の概略図

アセンブリー試験は野外試験場の地下約30 mの地下試験施設に設けた試験縦坑内で実施

第2表 アセンブリー試験結果のフィッティング解析で算出した移行パラメータ

試験No.	放射性核種	V (cm/d)	D_L (cm)	K_d (cm^3/g)
1	^3H	0.79	2.4	—
	^{90}Sr	—	—	27
	^{237}Np	—	—	390
	^{238}Pu	—	—	320
2	^3H	1.2	2.0	—
	^{90}Sr	—	—	28
	^{237}Np	—	—	160
	^{238}Pu	—	—	6,500
3	^3H	1.3	1.8	—
	^{90}Sr	—	—	34
	^{237}Np	—	—	110
	^{238}Pu	—	—	210
4	^3H	1.2	3.1	—
	^{90}Sr	—	—	32
	^{237}Np	—	—	150
	^{238}Pu	—	—	1,200

第11図 各アセンブリー中における ^{90}Sr , ^{237}Np , ^{238}Pu 濃度の分布

により表示)。

カラム試験結果の解析と同様に、各アセンブリー中における ^{90}Sr , ^{237}Np , ^{238}Pu の分布状態に(1), (2)式をフィッティングさせることによって各放射性核種の分配係数 K_d を解析した。フィッティングさせた曲線を第11図に実測値とともに示した。なお、第11図において、試験 No. 1, 3, 4 の ^{237}Np など、移流拡散が認められるにもかかわらず、核種注入位置に留まったままのフラクシオンが確認された。これは、黄土に比べ透水性が高い石英砂層をトレーサ源として挟み込んだことにより、トレーサ層において不均一且つ局所的な流れが生じ、地下水の流れに関与しない部分がトレーサ層に発生したことによるものと推察される。したがって、明らかに地下水の流れに関与しないフ

ラクシオンを含めて解析することは、目的元素の移行を正しく捉えていないと判断し、解析から除外した。解析に用いた水流速および分散係数 ($V \times D_L$) は、アセンブリーからの ^3H の破過傾向から取得される値を用いた。解析の結果を V および D_L とともに第2表にまとめて示す。 ^{90}Sr の分配係数は、第10図に示す条件の違いがあるにもかかわらず、 $27 \sim 34 \text{ cm}^3/\text{g}$ ほぼ一定の値が得られた。 ^{237}Np の分配係数も $110 \sim 390 \text{ cm}^3/\text{g}$ と近接した値が得られた。一方、 ^{238}Pu については、移流の効果がほとんどみられず、地下水流の上下流方向への分散に加重が架かった解析となったため、得られた分配係数は $210 \sim 6,500 \text{ cm}^3/\text{g}$ と大きなバラツキを示した。なお、 ^3H の破過傾向から計算した分散長は、異なる流速条件下でも $1.8 \sim 3.1 \text{ cm}$ とお

第11図 各アセンブリー中における ^{90}Sr , ^{237}Np , ^{238}Pu 濃度の分布

むね均等の値が取得された。

VI. 移行パラメータの検討

水流速, 分散係数, 分配係数といった移行評価式に使用する移行パラメータは, 室内カラム試験およびアセンブリー試験などの移行試験並びにバッチ試験の結果を総合的に評価し, 解析評価のために適切な値を選定した。

1. 水流速

試験ピット内における水流速は, 第4図に示した地下水水中における ^3H 濃度の推移に基づき, 平均水流速として 0.2 cm/d が取得された。一方, 一般的に地下水の流速

は, 地下水位観測から得られる動水勾配, 地層の透水係数および地層の有効間隙率に基づき, 動水勾配 $\times$ 透水係数 / 有効間隙率として求められている。本協力研究においても地下試験施設内に水位観測用の井戸を8ヵ所設け, 地下試験施設周辺の地下水位分布を推定した(第12図)。試験ピット周辺の大まかな動水勾配並びに現地揚水試験によって取得した透水係数 ($6 \times 10^{-4} \text{ cm/s}$)¹¹⁾ および有効間隙率 (0.4)¹¹⁾ を基に水流速を計算した結果, 5 cm/d と ^3H の挙動から得られた値と異なる値となった。この原因は, 第1図に示したように, 試験ピットへのパンチングフレームネットの挿入やかなりの密度で採水孔を挿入したことにより, ピット内に特殊な流れが発生していたことが推察され

第12図 地下試験施設(黒枠)周辺の地下水位観測から推定した等地下水位線図(標高値, m)

る。一方、本野外試験で放射性核種の移行を解析する際の流れの場合は、最も移行しやすい ^{90}Sr でも20 cm程度であることを想定すると極めて局所的なものとなり、 ^3H の挙動を観測したエリア内であることがわかる。したがって、野外核種移行試験の解析場を考慮して、解析評価に用いる水流速としては、 ^3H の挙動から得られた0.2 cm/dを信頼性の高い値として選定すべきと判断した。

なお、後述するように、パンチングフレームネットを挿入した効果を考慮した地下水流動の多次元解析結果では²²⁾、パンチングフレームネットを挿入したことにより地下水の流動が変化し、ピット周辺に比べピット内では水流速が0.2 cm/d程度に低下するとの結果が得られており、 ^3H の挙動から得られた値とほぼ一致することが確認されている。

2. 分散係数

カラム試験およびアセンブリー試験から得られた地下水流速と分散長の関係を第3表にまとめて示す。水流速が0.79~5.4 cm/dの幅で変動しても、分散長は1.3~3.1 cmとおおむね一定値が得られた。これら試験の分散長の算術平均として2.1 cmが得られるので、ピット内における水流速0.2 cm/dおよび分散係数、水流速、分散長との関係 $D=D_L \times V$ に基づき、試験ピット内における分散係数は0.4 cm²/dと選定した。

3. 分配係数

バッチ試験、カラム試験およびアセンブリー試験から得られた分配係数を第4表にまとめて示す。

(1) ^{90}Sr の分配係数

第7図の逐次抽出結果によれば、Srの吸着メカニズムはイオン交換に支配されている。イオン交換に基づくSrの吸着は、共存イオンの影響を受けるが、陽イオン種による影響の大きさは一般的に $\text{Na}^+ < \text{K}^+ < \text{Mg}^{2+}$ 、 Ca^{2+} の順であり、Srの吸着性と同じアルカリ土類金属である

第3表 帯水層黄土についての水流速と分散長の関係

試験名	$V(\text{cm/d})$	$D_L(\text{cm})$
室内カラム試験	5.4	1.3
アセンブリー試験		
No. 1 (^3H)	0.79	2.4
No. 2 (^3H)	1.2	2.0
No. 3 (^3H)	1.3	1.8
No. 4 (^3H)	1.2	3.1

第4表 移行パラメータ取得試験で得た放射性核種の分配係数

試験名	$K_d(\text{cm}^3/\text{g})$		
	^{85}Sr	^{237}Np	^{238}Pu
バッチ実験	50	290	1,200
室内カラム試験	44	190	—
アセンブリー試験			
No. 1	27	390	320
No. 2	28	160	6,500
No. 3	34	110	210
No. 4	32	150	1,200

Mg^{2+} および Ca^{2+} の影響を著しく受ける²³⁾。例えば、Srの分配係数は Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 濃度が 10^{-5} mol/dm^3 程度から影響を受け、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 濃度が高くなるに従って分配係数の著しい減少が確認されている²³⁾。

脱イオン水を使用水としてバッチ法で測定したSrの分配係数は、130~140 cm³/gであった。この場合の液相中における $\text{Mg}^{2+} + \text{Ca}^{2+}$ 濃度は $6 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ であり、地下試験施設周辺の地下水の $\text{Mg}^{2+} + \text{Ca}^{2+}$ 濃度¹¹⁾ $1.4 \times 10^{-3} \sim 2.0 \times 10^{-3} \text{ mol/dm}^3$ に比べ低い条件であった。別途取得した黄土に対するSrの分配係数と液相の $\text{Mg}^{2+} + \text{Ca}^{2+}$ 濃度との関係²⁴⁾に基づきSrの分配係数を補正した結果、分配係数は50 cm³/g程度となることがわかった。この値は、カラム試験およびアセンブリー試験から得られた分配係数27~44 cm³/gともおおむね一致する。したがって、これら試験から得られた分配係数の算術平均から得られる40 cm³/gを野外核種移行試験の解析評価に用いる分配係数として選定した。

(2) ^{237}Np の分配係数

バッチ試験で測定された ^{237}Np の分配係数は、液相中のNp濃度によって57~1,600 cm³/gに変動した。また、黄土への吸着は可逆的なメカニズムに支配されていることを支持する結果を得た。筆者らは、試験場の黄土を対象として、 ^{237}Np 濃度、水の飽和度、 ^{237}Np の注入方法、試験期間など試験条件が異なる種々の ^{237}Np 移行試験を実施し、 ^{237}Np の移行挙動から推定される分配係数とバッチ法で測定した分配係数との関連性について検討した¹⁹⁾。その結果、移行挙動から推定される分配係数値は、バッチ試験で測定した分配係数の範囲からはずれずることはなく、 ^{237}Np の移行濃度から内挿されるバッチ法分配係数値と一致する

ことを明らかにしている。これらの結果は、黄土中における ^{237}Np の移行挙動が、分配係数をパラメータとした移行評価式で評価可能であることを支持するものである。

本検討では、バッチ法で測定した分配係数のバラツキの幅を考慮して、それらの調和平均から $290\text{ cm}^3/\text{g}$ を得た。この値とカラム試験およびアセンブリー試験から推定された分配係数 $110\sim 390\text{ cm}^3/\text{g}$ との平均的な値として得られる $200\text{ cm}^3/\text{g}$ を野外試験の解析評価に適用すべき信頼性の高い ^{237}Np の分配係数として選定することとした。

なお、 α 核種を含む放射性廃棄物を地中処分(ハル・エンドピースなど ^{237}Np 濃度が高い廃棄物を緩衝材を設置して地層処分するケース)することを想定した評価では²⁵⁾、人工バリアから天然バリアへの ^{237}Np の移行率は最大でも 10^{-5} mol/yr 程度と見積もられている。これは、地下水の流量を考慮すると、地下水における ^{237}Np 濃度は先述のHenry型の吸着領域に至る非常に低い濃度となることを示すものである。本研究では、比較的高い濃度領域で分配係数を決定したが、実際の評価を行う上では保守的な評価となることを付け加えておきたい。

(3) ^{238}Pu の分配係数

^{238}Pu の分配係数は、バッチ試験から $1,000\sim 1,400\text{ cm}^3/\text{g}$ を得た。一方、カラム試験およびアセンブリー試験では、水の流れに伴うピークの移行が確認できず、移行評価式における移流の効果が把握不可能なため、信頼性のある分配係数を取得できなかった。逐次抽出試験の結果によれば、 ^{238}Pu は脱離し難い吸着メカニズムに支配されていることがわかった。このように、 ^{238}Pu の吸着に脱離し難い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²⁶⁾。

以上の検討結果に基づき、試験データの信頼性を考慮して、野外試験の解析評価に適用する ^{238}Pu の分配係数には、バッチ試験結果の算術平均値 $1,200\text{ cm}^3/\text{g}$ を選定することとした。

V. 移行パラメータおよび移行評価式の妥当性の検討

移行パラメータを取得するために一般的に行われているバッチ試験、カラム試験などから取得した移行パラメータが、放射性核種の移行現象を解析評価するうえで妥当なものであるか否かを確認するため、前章において選定した移行パラメータを用いて帯水層土壌における ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu の移行挙動を計算し、野外核種移行試験結果と比較した。野外試験では、放射性核種はポイントソースから3次元に移流分散するが、本検討は移行パラメータの適用性を確認することを目的とするため、水の移流分散と核種の固液間吸着平衡に基づく既存の移行評価式である(1)、(2)式で帯水層土壌における1次元核種移行挙動を計算

第13図 ^{90}Sr 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu の1次元濃度分布の計算結果と野外試験結果との比較

し、第6図の野外試験結果と比較した。計算結果を野外核種移行試験の実測値とともに第13図に曲線で示す。 ^{90}Sr の計算結果は、ピークの位置と広がり試験結果とおおむね一致した。 ^{237}Np および ^{238}Pu の計算結果は、試験結果と同様に濃度ピークは核種注入位置に留まったままであり、また分散による上下流方向へのピークの広がり傾向が試験結果と一致した。

このように、予備解析的な1次元の計算結果は野外核種移行試験結果の傾向とおおむね一致しており、核種移行挙動は室内試験等から取得した移行パラメータと従来の移行評価式で解析評価可能であることがわかった。なお、後述するように、放射性核種の初期濃度や分散による希釈効果を考慮した多次元解析結果を別途実施している²²⁾。

VI. 結 言

自然地下環境にある帯水層土壌中で放射性核種の移行データを取得するとともに、室内試験等から得た結果に基づき移行パラメータの検討を行った。

その結果、実際の自然地下環境での放射性核種の挙動を解析するために、現在使われている移行評価式を適用できるとの結論を得た。また、解析評価に用いる移行パラメータは、室内で実施できるバッチ法吸着試験やカラム法移行試験によって取得できることを示した。とくに、バッチ法による分配係数の測定では、環境条件や試験条件を考慮することにより、信頼性の高い値を取得できることを立証した。

一方、カラム法移行試験は、水流速と分散係数の関連性を直接的に把握できるとともに、試験結果の解析を通してバッチ法で取得した分配係数の妥当性を確認することが可能であり、分配係数の信頼性向上のためにも有効であるといえる。

終わりに、本研究を実施するにあたり、貴重なご助言を

頂きました日本原子力研究所燃料サイクル安全工学部の藤根幸雄部長, 現在, 核燃料サイクル開発機構処分研究部の馬場恒孝氏, 核物質管理センター企画部の村岡 進氏, 原子力研究バックエンド推進センターの川上 泰氏に感謝の意を表します。

— 参考文献 —

- 1) Y. Inoue, W. J. Kaufman, "Prediction of movement of radionuclides in solution through porous media," *Health Phys.*, **9**, 705 (1963).
- 2) 福井正美, 地質媒体中における放射性核種の吸着・移動モデル, 原子力誌, **29**, 498 (1987).
- 3) D. C. McCarthy, J. M. Zachara, "Subsurface transport of contaminants," *Environ. Sci. Technol.*, **23**, 496 (1989).
- 4) D. R. Champ, *et al.*, "Chemical separation of long-lived radionuclides in a shallow groundwater flow system," *Water Poll. Res. J. Canada*, **19**, 35 (1984).
- 5) R. W. D. Killey, *et al.*, "Subsurface cobalt-60 migration from a low-level waste disposal site," *Environ. Sci. Technol.*, **18**, 148 (1984).
- 6) 日本原燃産業(株), 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).
- 7) 井上頼輝, 森澤真輔, 放射性廃棄物地中処分場の立地選定 (I), 原子力誌, **14**, 522 (1972).
- 8) S. Nagasaki, S. Tanaka, A. Suzuki, "Influence of Fe(III) colloids on Np(V) migration through quartz-packed column," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**, 143 (1994).
- 9) J. A. Davis, R. Gloor, "Adsorption of dissolved organics in lake water by aluminum oxide; Effect of molecular weight," *Environ. Sci. Technol.*, **15**, 1223 (1981).
- 10) M. Mukai, *et al.*, "Plan and progress of a cooperative research program on field migration test between JAERI and CIRP (Phase-2)," *J. Nucl. Fuel Cycle Environment.*, **7**, 31 (2001).
- 11) 小川弘道, 他, "TRU 核種に関する野外核種移行試験, (I); 総論," 原子力と文論文誌; **2**[3], 332~335 (2003).
- 12) T. Tanaka, H. Ogawa, *Migration Study of Americium in Porous Medium*, JAERI-Conf 99-004, 654 (1999).
- 13) 妹尾宗明, 他, 浅地層土壌と合成地下水系におけるプルトニウムの分配係数の測定, JAERI-M 88-038, (1988).
- 14) T. Tanaka, K. Sriyotha, H. Kamiyama, "Sorption mechanism of radioactive nuclides in sedimentary rocks," *Proc. 3rd Int. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (RECOD'91)*, Sendai, Japan, p. 1011 (1991).
- 15) J. L. Means, D. A. Crerar, M. P. Borcsik, "Adsorption of Co and selected actinides by Mn and Fe oxides in soils and sediments," *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 1763 (1978).
- 16) T. T. Chao, "Selective dissolution of manganese oxides from soils and sediments with acidified hydroxylamine hydrochloride," *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, **36**, 764 (1972).
- 17) U. Schwertmann, "Use of oxalate for Fe extraction from soils," *Can. J. Soil Sci.*, **53**, 244 (1973).
- 18) A. Tessier, P. G. C. Campbell, M. Bisson, "Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals," *Anal. Chem.*, **51**, 844 (1979).
- 19) T. Tanaka, *et al.*, *Study on the Distribution Coefficient for Evaluation of Neptunium Migration in Loess Media*, JAERI-Conf 2002-004, 627 (2002).
- 20) T. Ohnuki, *et al.*, "Development of migration prediction system (MIGSTEM) for cationic species of radionuclides through soil layers," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **26**, 795 (1989).
- 21) 向井雅之, 他, "TRU 核種に関する野外核種移行試験, (III); 通気層土壌中における核種移行試験," 原子力と文論文誌, **2**[3], 342~349 (2003).
- 22) 宗像雅広, 他, "TRU 核種に関する野外核種移行試験, (V); 浅地中処分安全評価コードシステム GSA-GCL の妥当性検証," 原子力と文論文誌, **2**[3], 361~367 (2003).
- 23) 田中忠夫, 他, "臨海砂質地層における放射性核種の分配係数に及ぼす地下水イオン組成の影響," 原子力誌, **29**, 498 (1987).
- 24) JAER and CIRP, *Safety Assessment Methodology for Shallow Land Disposal of Low Level Radioactive Waste*, (2001).
- 25) 間野 正, 他, "TRU 廃棄物の処分概念の検討概要," 原子力バックエンド研究, **6**, 233 (2000).
- 26) 田中忠夫, 他, 段丘堆積層における ^{237}Np 及び ^{241}Am の分配係数, JAERI-Research 98-018, (1998).