

## 通気層表層における放射性核種の吸着移行挙動に関する研究

## 学位論文内容の要旨

現在の我が国の電力需要は原子力発電が総発電量の35%を占めるに至っているが、発電施設の運転に伴って放射能レベルが低い”低レベル放射性廃棄物”が、200dm<sup>3</sup>ドラム缶換算で年間2.5万本以上発生している。このような低レベル放射性廃棄物の処分方策としては、浅地層への埋設が世界的に採用されている。その安全性を評価するためには、地層中における放射性核種の移行挙動の正確な把握が不可欠である。浅地層に設置された埋設場から地層中に漏出した放射性核種は、通気層を移行して地下水層に達し、さらには地下水と共に移行して生活環境に至ることが想定される。通気層中において放射性核種は、分配係数等で定義される土壌と間隙水間での吸着・脱離反応による遅延作用を受けながら、主として地表から浸透する水分の移流拡散により移行する。自然環境の下での通気層中における水の流れは、不定期に起こる降雨による地表からの雨水の浸透に基づいている。このような不定期に起こる降雨と晴・曇り時に起こる水分の蒸発との繰り返しのため、通気層表層付近では不連続かつ非定常な水の流れが発生する。しかしながら、これまで一般的に採用されてきたカラム法による核種移行試験では、定常的な流れの下での核種移行挙動の評価しか行われてこなかった。したがって、核種移行挙動に及ぼす非定常な流れの影響を考慮することの必要性を実験的に検討することが必要である。

本研究は、通気層表層付近で形成される核種移行挙動に影響を及ぼす可能性がある放射性核種の加水分解生成物、土壌微細粒子との結合体及びフミン酸等土壌中有機物質との錯体に着目して、通気層表層付近で生じる不連続な水流条件下での<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csの吸着・脱離挙動及び移行挙動を定性的・定量的に検討した結果をまとめたものである。

本論文は7章で構成した。以下に各章の概略を述べる。

第1章は序論であり、研究の背景と従来の知見、研究の目的と意義及び本論文の構成について述べた。

第2章では、海岸砂に吸着させた<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csを乾燥と湿潤が繰り返し生じる条件を仮定し、バッチ脱離実験を実施した。乾湿脱離条件下での<sup>60</sup>Coの脱離率は連続脱離条件下での値と有意な差はみられなかったが、乾湿脱離条件下での<sup>85</sup>Srと<sup>137</sup>Csの脱離率は連続脱離条件下での値よりも大きくなることを確認した。<sup>85</sup>Srや<sup>137</sup>Csの脱離率の増大は、乾燥によって生じる砂表面の崩壊及び水に接している間に生じる砂表面イオン交換サイトの変質に起因するものと推察した。また、<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csの脱離率が乾燥期間の影響を受けなかったことから、乾湿脱離条件下での<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csの脱離率の増大は、湿潤状態から乾燥状態へ変化する過程の過渡的環境において発生することを見出した。

第3章では、<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csで表面を汚染させた海岸砂質土壌層小型カラムへ脱イオン水を断続的に流入するカラム移行実験を実施し、放射性核種の化学形態と移行メカニズムについて検討した。土壌層中を移行する放射性核種の化学形態には、土壌への吸着性が高く表面付近に留まる陽イオン性化学種と吸着性が低く水とほぼ同じ速度で土壌層深部へと移行する非陽イオン性化学種とがあることを示した。土壌層深部へ移行する非陽イオン性化学種は、放射性核種が土壌微細粒子に吸着することにより形成される疑似コロイ

ド及び $^{60}\text{Co}$ の加水分解生成物であるコロイド状の $\{^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ であることを確認した。また、土壌層中における放射性核種の移行挙動に及ぼす流れの停止期間及び停止回数の影響として、陽イオン性 $^{85}\text{Sr}$ の移行速度及び非陽イオン性 $^{60}\text{Co}$ の土壌層深部への移行量の増大を確認した。陽イオン性 $^{85}\text{Sr}$ の移行速度の増大は、流れの停止期間中に $^{85}\text{Sr}$ の土壌への吸着に対しての競合イオンである $\text{Ca}^{2+}$ の濃度が増加したためであることを見出した。一方、土壌層深部への非陽イオン性 $^{60}\text{Co}$ の移行量の増大は、流れの停止期間に緩衝作用によって間隙水のpHが上昇し、 $\{^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ が生成したためであることを明らかにした。

第4章では、日本原子力研究所の環境シミュレーション試験装置に直径30cm、長さ60cmの大型砂質土壌カラムを設置し、降雨と乾燥の繰り返しによる地中水の不連続な流れを模擬した条件下での $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の移行試験を行った。乾湿サイクル条件下では、土壌層表面付近における陽イオン性 $^{85}\text{Sr}$ の移行速度並びに $^{60}\text{Co}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の粒子性化学種の土壌層深部への移行量が増大するなど、小型カラムを用いて実施した実験結果と定性的に一致することを確認した。しかしながら、小カラム実験と定量的に異なる結果も得られ、小型カラムでは評価できない土壌層内の水分率やカラムのサイズの効果を検討することの必要性を指摘した。

第2～4章で観察した通気層表面付近での放射性核種の移行挙動が一般的なものであるかどうかを検証するためには、実際の環境中での移行挙動と比較することが必要である。第5章では、放射性同位元素( $^3\text{H}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ )で標識した土壌を通気層中に埋設して実施した野外核種移行試験のデータを用いて、乾湿サイクルの影響について検証した。野外試験の結果から、核種標識土壌を通気層中に埋設した場合、すなわち通気層内部での核種移行に着目した場合、乾湿サイクル効果によって期待された陽イオン性化学種の移行速度及び非陽イオン性化学種の生成量の増大は無視できるほど小さいものであることを明らかにした。また、通気層中における核種移行に及ぼす乾湿サイクルの影響は、間隙水の化学組成が降雨や蒸発により著しく影響を受ける地表面や地層境界面に存在する放射性核種の脱離挙動に限定されるものであることを指摘した。

第6章では、天然環境に広く存在し、多くの陽イオン性放射性核種と安定なコロイド状の錯体を形成する可能性が指摘されるフミン酸について、放射性核種の上壤中吸着・移行挙動に及ぼす影響をバッチ実験及びカラム実験で調べた。バッチ実験から、 $^{60}\text{Co}$ 及び $^{85}\text{Sr}$ は分子量100,000以下のフミン酸と、 $^{241}\text{Am}$ は分子量30,000以上のフミン酸とそれぞれ優先的に錯形成するが、 $^{137}\text{Cs}$ 及び $^{237}\text{Np}$ はどの分子量のフミン酸ともほとんど錯体を形成しないことを明らかにした。フミン酸を吸着しない砂に対する $^{60}\text{Co}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の分配係数はフミン酸濃度が増加するに従って減少するが、フミン酸との結合力が砂との吸着親和性に比べて著しく小さい $^{85}\text{Sr}$ の分配係数はフミン酸の影響を受けないことを確認した。一方、フミン酸を良く吸着するクロボク土の場合、フミン酸濃度の増加に伴う $^{60}\text{Co}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の分配係数の減少率は砂より小さく、 $^{85}\text{Sr}$ の分配係数はフミン酸濃度が増加するに従って増大することが分かった。このような、放射性核種の分配係数に及ぼすフミン酸の影響は、液相中での錯形成、錯体の吸着、フミン酸の吸着による土壌の核種吸着能の変化を考慮したモデルにより評価できることを示した。また、フミン酸を含む $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ 水溶液を砂層カラムへ流入する実験の結果、フミン酸と錯体を形成する $^{60}\text{Co}$ や $^{85}\text{Sr}$ の移行がフミン酸の共存によって増大することを確認した。さらに、カラム実験系における核種移行を定量的に評価するため、フミン酸錯体の形成・解離の速度を考慮した吸着・移行モデルを提案するとともに、実験結果との比較検討から、フミン酸共存下での $^{85}\text{Sr}$ の移行は、解離速度定数を用いて定量的に説明できることを確認した。

第7章は結論であり、本研究で得られた成果を総括した。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 大 橋 弘 士  
副 査 教 授 田 中 信 壽  
副 査 教 授 恒 川 昌 美  
副 査 教 授 澤 村 貞 史

## 学 位 論 文 題 名

### 通気層表層における放射性核種の吸着移行挙動に関する研究

原子力発電所の運転に伴って発生する低レベル放射性廃棄物の処分方策としては、浅地層埋設が世界的に採用されている。その安全性評価には、地層中における放射性核種の移行挙動の正確な把握が不可欠である。浅地層に設置された埋設場から地層中に漏出する放射性核種は、通気層から地下水層に達し、さらには地下水と共に移行して生活環境に至ることが想定される。この場合、通気層表層付近では、不定期に起こる降雨と水分の蒸発との繰り返しのため、不連続かつ非定常な水の流れが発生する。しかし、これまで一般的に採用されてきたカラム法による核種移行試験では、定常流れの下での核種移行挙動の評価しか行われておらず、核種移行挙動に及ぼす非定常流れの影響は考慮されていない。本論文は、通気層表層付近で形成される放射性核種の加水分解生成物、土壤微細粒子との結合体およびフミン酸等土壤中有機物質との錯体に着目して、通気層表層付近で生じる不連続な水流条件下での放射性核種 ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  および  $^{241}\text{Am}$ ) の吸着・脱離挙動および移行挙動を検討した結果をまとめたものである。

本論文の成果は、以下のように要約される。

1. 海岸砂に吸着させた  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$  の乾湿繰り返し条件下でのバッチ脱離実験を行い、乾湿脱離条件下での  $^{60}\text{Co}$  の脱離率は連続脱離条件下での値と有意差がみられないが、乾湿脱離条件下での  $^{85}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の脱離率は連続脱離条件下での値よりも大きくなることを見出した。 $^{85}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$  の脱離率の増大は、乾燥によって生じる砂表面の崩壊および水に接している間に生じる砂表面イオン交換サイトの変質に起因するものと説明した。また、乾湿脱離条件下での  $^{85}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$  の脱離率の増大は、湿潤状態から乾燥状態へ変化する過程の過渡的環境において発生することを見出した。

2.  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$  で表面を汚染させた海岸砂質土壤層小型カラムへ脱イオン水を断続的に流入するカラム移行実験を行い、土壤層中を移行する放射性核種の化学形態には、土壤への吸着性が高く表面付近に留まる陽イオン性化学種と吸着性が低く水とほぼ同じ速度で土壤層深部へと移行する非陽イオン性化学種とがあることを示した。この非陽イオン性化学種は、疑似コロイドとコロイド状の  $\{\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$  であることを明らかにした。また、

土壌層中における放射性核種の移行挙動に及ぼす流れの停止期間および停止回数の影響として、陽イオン性<sup>85</sup>Srの移行速度および非陽イオン性<sup>60</sup>Coの土壌層深部への移行量の増大を見出した。陽イオン性<sup>85</sup>Srの移行速度の増大は、流れの停止期間中に<sup>85</sup>Srの土壌への吸着に対して競合するCa<sup>2+</sup>の濃度が増加したためであることを見出し、土壌層深部への非陽イオン性<sup>60</sup>Coの移行量の増大は、流れの停止期間に緩衝作用によって間隙水のpHが上昇し、 $\{^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ が生成したためであることを明らかにした。

3. 日本原子力研究所の環境シミュレーション試験装置に直径30cm、長さ60cmの大型砂質土壌カラムを設置し、降雨と乾燥の繰り返しによる地中水の不連続な流れを模擬した条件下での<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Srおよび<sup>137</sup>Csの移行試験を行い、乾湿サイクル条件下では、土壌層表面付近における陽イオン性<sup>85</sup>Srの移行速度並びに<sup>60</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csの粒子性化学種の土壌層深部への移行量が增大するなど、小型カラムを用いて実施した実験結果と定性的に一致することを見出した。

4. <sup>3</sup>H、<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Srおよび<sup>134</sup>Csで標識した土壌を通気層中に埋設して実施した実環境野外核種移行試験データを用いて、乾湿サイクルの影響を検証した。野外試験の結果から、核種標識土壌を通気層中に埋設した場合、乾湿サイクル効果によって期待された陽イオン性化学種の移行速度および非陽イオン性化学種の生成量の増大は無視できるほど小さいものであることを見出した。また、通気層中における核種移行に及ぼす乾湿サイクルの影響は、間隙水の化学組成が降雨や蒸発により著しく影響を受ける地表面や地層境界面に存在する放射性核種の脱離挙動に限定されるものであることを指摘した。

5. バッチ実験から、<sup>60</sup>Coおよび<sup>85</sup>Srは分子量100,000以下のフミン酸と、<sup>241</sup>Amは分子量30,000以上のフミン酸とそれぞれ優先的に錯形成するが、<sup>137</sup>Csおよび<sup>237</sup>Npはどの分子量のフミン酸ともほとんど錯体を形成しないことを明らかにした。フミン酸を吸着しない砂に対する<sup>60</sup>Coおよび<sup>241</sup>Amの分配係数はフミン酸濃度の増加とともに減少するが、フミン酸との結合力が砂との吸着親和性に比べて著しく小さい<sup>85</sup>Srの分配係数はフミン酸の影響を受けないことを見出した。一方、フミン酸を良く吸着するクロボク土の場合、フミン酸濃度の増加に伴う<sup>60</sup>Coおよび<sup>241</sup>Amの分配係数の減少率は砂より小さく、<sup>85</sup>Srの分配係数はフミン酸濃度の増加とともに増大することを見出した。このような放射性核種の分配係数に及ぼすフミン酸の影響は、液相中での錯形成、錯体の吸着、フミン酸の吸着による土壌の核種吸着能の変化を考慮したモデルにより評価できることを示した。また、フミン酸を含む<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Srおよび<sup>137</sup>Cs水溶液の砂層カラムへの流入実験の結果、フミン酸錯体を形成しない<sup>137</sup>Csはフミン酸の共存によって影響を受けないが、フミン酸錯体を形成する<sup>60</sup>Coおよび<sup>85</sup>Srの移行はフミン酸の共存によって増大することを見出した。さらに、フミン酸錯体の形成・解離の速度を考慮した吸着・移行モデルを提案し、フミン酸共存下での<sup>85</sup>Srのカラム系での移行挙動を解離速度定数を用いて定量的に説明できることを示した。

これを要するに、著者は低レベル放射性廃棄物の浅地層処分に関して新知見を得たものであり、核燃料サイクル工学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格があるものと認める。