

JAERI - M
86-011

核種移動速度測定装置の開発(III)

核種移動速度の測定

1986年2月

小川 弘道・山本 忠利・和達 嘉樹

JAERI-M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、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11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。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 印 しばらき印刷(株)

核種移動速度測定装置の開発 (Ⅲ)

核種移動速度の測定

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

小川弘道・山本忠利・和達嘉樹

(1986年1月24日受理)

本報告は放射性核種の土壤中移動速度を決定する手法について記すものであり、土壤中放射性核種濃度分布の非破壊測定に関する前報(I, II)と併せて、放射性核種の土壤中移動速度を非破壊的に決定する手法を確立した。すなわち、放射性核種の土壤中濃度分布と輸送拡散方程式の解の比較より決定される核種移動速度により、放射性核種の土壤中における移動性が定量的に評価できる。

Development of Radionuclide Migration Monitor (III)
Measurement of Radionuclide Migration Velocity

Hiromichi OGAWA, Tadatoshi YAMAMOTO and Yoshiki WADACHI

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

(Received January 24, 1986)

This report describes that the nondestructive method determining the radionuclide migration velocity in a soil layer is established incorporated with the previous reports(I,II) which are presented in terms of the nondestructive measurements of the distribution of radionuclide concentration in a soil layer. The radionuclide mobility in a soil layer can be evaluated quantitatively by the radionuclide migration velocity obtained from the comparison of the distribution of radionuclide concentration in a soil layer with the solution of mass-transport equation.

Keywords ; Nondestructive Measurement, Radionuclide Migration Velocity,
Radionuclide Mobility, ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{137}Cs , Aerated Soil Layer,
Aquifer Soil Layer

目 次

1. まえがき	1
2. 核種移動速度の決定法	1
3. 核種移動速度の非破壊測定および考察	2
3.1 通気層における核種移動速度測定	2
3.2 帯水層における核種移動速度測定	3
3.3 遅延係数の算出	3
4. あとがき	4
参考文献	4

Contents

1. Introduction	1
2. Determination method of radionuclide migration velocity	1
3. Nondestructive measurements of radionuclide migration velocity	2
3.1 Measurements of radionuclide migration velocity in an aerated soil	2
3.2 Measurements of radionuclide migration velocity in an aquifer soil	3
3.3 Calculation of retardation factors	3
4. Remarks	4
References	4

図表一覧表

表 1 遅延係数の推定値

- 図 1 通気層土壌試料中放射性核種濃度分布 (鉛直方向)
 図 2 通気層土壌試料中における ^{60}Co の鉛直方向移動距離
 図 3 通気層土壌試料中における ^{85}Sr の鉛直方向移動距離
 図 4 通気層土壌試料中における ^{137}Cs の鉛直方向移動距離
 図 5 帯水層土壌試料中放射性核種濃度分布 (水平方向)
 図 6 帯水層土壌試料中における ^{60}Co の流れ方向移動距離
 図 7 帯水層土壌試料中における ^{85}Sr の流れ方向移動距離
 図 8 帯水層土壌試料中における ^{137}Cs の流れ方向移動距離

Table and figure lists

Table 1 Estimated values of retardation factors.

- Fig. 1 Distribution of radionuclide concentration in an aerated soil sample (vertical direction)
 Fig. 2 Migration length of ^{60}Co to vertical direction in an aerated soil sample
 Fig. 3 Migration length of ^{85}Sr to vertical direction in an aerated soil sample
 Fig. 4 Migration length of ^{137}Cs to vertical direction in an aerated soil sample
 Fig. 5 Distribution of radionuclide concentration in an aquifer soil sample (horizontal direction)
 Fig. 6 Migration length of ^{60}Co to flow direction in an aquifer soil sample
 Fig. 7 Migration length of ^{85}Sr to flow direction in an aquifer soil sample
 Fig. 8 Migration length of ^{137}Cs to flow direction in an aquifer soil sample

1. ま え が き

日本原子力研究所では、低レベル放射性廃棄物浅地中処分の安全性評価に寄与することを目的として、環境シミュレーション試験を実施している。環境シミュレーション試験は自然状態の地層について施設内で放射性核種移動試験を行なうもので、昭和58年度後半より試験を開始した。昭和58年度後半より開始した試験では東海研究所敷地内の海岸砂層を対象としており、通気層試料8試料、帯水層試料2試料を採取し、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs について放射性核種移動試験を実施した。

環境シミュレーション試験のような自然状態の地層を用いて行なう放射性核種移動試験では、多数の同一土壌試料を準備することが困難なため、土壌試料を効果的に活用することが必要である。そのため筆者らは、通気層土壌試料中および帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を非破壊的に測定するシステムを開発した^{1, 2)}。その結果、土壌試料中に分布する ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の濃度分布測定が可能であり、非破壊測定システムの有効性を確認している。

本報告では、放射性核種の土壌試料中濃度分布から放射性核種の土壌中移動速度を決定する手法について述べ、実際に非破壊測定システムにより測定した ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の土壌試料中濃度分布に対して求めた各核種の土壌中移動速度について報告する。そして、土壌中における放射性核種の移動速度を決定する本手法の妥当性について言及する。

2. 核種移動速度の決定法

放射性核種の土壌中移動は、水の流れによる移流項と拡散項を考慮した物質収支により、一般に次の偏微分方程式により表わされる。

$$\frac{\partial \{C + (1-f) \rho Q / \theta\}}{\partial t} = \nabla \cdot D \nabla C - \nabla \cdot VC - \lambda \{C + (1-f) \rho Q / \theta\} \quad (1)$$

ここで、C および Q はそれぞれ放射性核種の間隙水中濃度および土壌層中濃度、f は土壌の空隙率、 ρ は土壌の密度、 θ は水分率、D は放射性核種の拡散（分散）係数、V は水流速、 λ は放射性核種の崩壊定数、t は時間である。

放射性核種の土壌中移動が座標 X に関する一次元的移動であると仮定し、 λ を無視すると、(1) 式は次式になる。

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

ここで、放射性核種の間隙水中および土壌層中における分配は、分配係数 Kd によって $Q = KdC$ で表わすため、(2) 式の偏微分方程式は (3) 式となる。

$$\{1 + (1-f) \rho Kd / \theta\} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial (D \partial C / \partial X)}{\partial X} - \frac{\partial (VC)}{\partial X} \quad (3)$$

一般に、(3) 式における $1 + (1-f) \rho Kd / \theta$ を遅延係数 Rd として、放射性核種の移動性の評価に用いている。

1. ま え が き

日本原子力研究所では、低レベル放射性廃棄物浅地中処分の安全性評価に寄与することを目的として、環境シミュレーション試験を実施している。環境シミュレーション試験は自然状態の地層について施設内で放射性核種移動試験を行なうもので、昭和58年度後半より試験を開始した。昭和58年度後半より開始した試験では東海研究所敷地内の海岸砂層を対象としており、通気層試料8試料、帯水層試料2試料を採取し、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs について放射性核種移動試験を実施した。

環境シミュレーション試験のような自然状態の地層を用いて行なう放射性核種移動試験では、多数の同一土壌試料を準備することが困難なため、土壌試料を効果的に活用することが必要である。そのため筆者らは、通気層土壌試料中および帯水層土壌試料中における放射性核種の濃度分布を非破壊的に測定するシステムを開発した^{1, 2)}。その結果、土壌試料中に分布する ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の濃度分布測定が可能であり、非破壊測定システムの有効性を確認している。

本報告では、放射性核種の土壌試料中濃度分布から放射性核種の土壌中移動速度を決定する手法について述べ、実際に非破壊測定システムにより測定した ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の土壌試料中濃度分布に対して求めた各核種の土壌中移動速度について報告する。そして、土壌中における放射性核種の移動速度を決定する本手法の妥当性について言及する。

2. 核種移動速度の決定法

放射性核種の土壌中移動は、水の流れによる移流項と拡散項を考慮した物質収支により、一般に次の偏微分方程式により表わされる。

$$\frac{\partial \{C + (1-f) \rho Q / \theta\}}{\partial t} = \nabla \cdot D \nabla C - \nabla \cdot VC - \lambda \{C + (1-f) \rho Q / \theta\} \quad (1)$$

ここで、C および Q はそれぞれ放射性核種の間隙水中濃度および土壌層中濃度、f は土壌の空隙率、 ρ は土壌の密度、 θ は水分率、D は放射性核種の拡散（分散）係数、V は水流速、 λ は放射性核種の崩壊定数、t は時間である。

放射性核種の土壌中移動が座標 X に関する一次元的移動であると仮定し、 λ を無視すると、(1) 式は次式になる。

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

ここで、放射性核種の間隙水中および土壌層中における分配は、分配係数 K_d によって $Q = K_d C$ で表わすため、(2) 式の偏微分方程式は (3) 式となる。

$$\{1 + (1-f) \rho K_d / \theta\} \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial (D \partial C / \partial X)}{\partial X} - \frac{\partial (VC)}{\partial X} \quad (3)$$

一般に、(3) 式における $1 + (1-f) \rho K_d / \theta$ を遅延係数 R_d として、放射性核種の移動性の評価に用いている。

適当な初期条件および境界条件を与えれば、(3)式により間隙水中濃度Cと時間tおよび座標Xの関係を求めることができる。試験開始前は間隙水中に放射性核種は存在しないため、初期条件は次式で表わされる。

$$t < 0 \quad C = 0 \quad (4)$$

また、試験中に均一濃度の放射性水溶液を流入する場合、境界条件は次式で表わすことができる。

$$X = 0, t \geq 0 \quad C = C_0 \quad (5)$$

$$X = \infty \quad C = 0 \quad (6)$$

遅延係数Rdを用い、(4)式の初期条件および(5)、(6)式の境界条件の下でラプラス変換により(3)式を解くと、(7)式が得られる。

$$C = C_0 \left[\exp(VX/D) \operatorname{erfc} \left\{ (X+Vt/Rd) / \sqrt{4Dt/Rd} \right\} + \operatorname{erfc} \left\{ (X-Vt/Rd) / \sqrt{4Dt/Rd} \right\} \right] / 2 \quad (7)$$

ここで、 $\operatorname{erfc}(z)$ は誤差余関数である。したがって、放射性核種の土壌層中濃度Qは(8)式となる。

$$Q = Q_0 \left[\exp(VX/D) \operatorname{erfc} \left\{ (X+Vt/Rd) / \sqrt{4Dt/Rd} \right\} + \operatorname{erfc} \left\{ (X-Vt/Rd) / \sqrt{4Dt/Rd} \right\} \right] / 2 \quad (8)$$

ただし、 $Q_0 = K_d C_0$ であり、 Q_0 は $X = 0$ における土壌層中濃度である。(8)式においては、第一項 $\exp(VX/D) \operatorname{erfc} \left\{ (X+Vt/Rd) / \sqrt{4Dt/Rd} \right\}$ は非常に小さく、第二項 $\operatorname{erfc} \left\{ (X-Vt/Rd) / \sqrt{4Dt/Rd} \right\}$ に比べて無視できるため³⁾、土壌層中濃度Qは(9)式で近似できる。

$$Q \approx Q_0 \left[\operatorname{erfc} \left\{ (X-Vt/Rd) / \sqrt{4Dt/Rd} \right\} \right] / 2 \quad (9)$$

(9)式において $X = Vt/Rd$ を代入すると、 $Q = Q_0/2$ となる。 Q_0 は放射性水溶液の流入位置における土壌層中濃度であり、土壌層中濃度が流入位置のその1/2になる位置X、すなわち $Q_0/2$ の移動距離を求めることにより Vt/Rd を得ることができる。ここで、 V/Rd は放射性核種の移動速度を示している。したがって、放射性核種の土壌中移動試験において $Q_0/2$ の移動距離を求めることから、放射性核種の移動速度を測定することができる。

3. 核種移動速度の非破壊測定および考案

3.1 通気層における核種移動速度測定

東海研究所敷地内から採取した通気層土壌試料 (30 cm ϕ \times 120 cmL, 空隙率 0.4, 密度 2.63 g/cm³) にそれぞれ 1.2×10^{-2} , 3.0×10^{-2} および 2.9×10^{-2} $\mu\text{Ci/ml}$ の放射能濃度を有する ^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs の混合放射性水溶液を流入し、土壌試料中における放射性核種の鉛直一次元濃度分布を非破壊測定システム¹⁾により測定した。流入した放射性水溶液は非放射性同位体を加えることにより化学濃度が、それぞれ 1.0×10^{-3} mol/l になるように調整したものである。その結果、 ^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs について、それぞれ図 1-A, 1-B および 1-C に実線で示した濃度分布を得た¹⁾。また、破線は、放射性水溶液の流入後土壌を採取し、破壊的に測定した濃度分布である。なお、図 1-A, 1-B および 1-C は、放射性水溶液の流

入開始から約6時間後における測定結果である。

図1-A, 1-Bおよび1-Cにおいて、非破壊測定により得られた濃度分布(実線)は、土壌を採取する破壊測定により得られた濃度分布(破線)に比べて、土壌層表面付近の濃度が、通気層カラム接続用のボルトによる γ 線吸収のため小さくなっている。しかし、非破壊測定の結果における最大濃度は、土壌層表面における実際の濃度とほとんど一致している。それ故、土壌層表面における濃度を非破壊測定における最大濃度で代用すると、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ $Q_0 = 6.2 \times 10^{-2}$ 、 7.8×10^{-2} および $7.6 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$ となる。この結果より $Q_0/2$ の濃度を有する位置を求めると、図2~4に示したように、それぞれ深度19, 23および23 cmとなる。したがって、 $Q_0/2$ の移動距離は、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ19, 23および23 cmとなり、放射性核種の平均移動速度は、これらの値を流入時間(360 min)で除することにより、 ^{80}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ 5.3×10^{-2} 、 6.4×10^{-2} および $6.4 \times 10^{-2} \text{ cm/min}$ が得られる。

3.2 帯水層における核種移動速度測定

東海研究所敷地内から採取した帯水層土壌(密度 2.63 g/cm^3)を帯水層槽(90 cmW \times 270 cmL \times 45 cmH)内に空隙率0.4で充填し、それぞれ 1.0×10^{-2} 、 2.0×10^{-2} および $2.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ の放射能濃度を有する ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の混合放射性水溶液を流入して、土壌内における放射性核種の水平方向濃度分布を非破壊測定システム²⁾により測定した。流入した放射性水溶液は、非放射性同位体を加えることにより、化学濃度が $1.0 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ になるように調整したものである。その結果、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ図5-A, 5-Bおよび5-Cに実線で示した濃度分布を得た²⁾。また、破線は、放射性水溶液の流入後土壌を採取する破壊測定により得られた濃度分布である。なお、図5-A, 5-Bおよび5-Cは、放射性水溶液の流入開始から約20時間後における測定結果である。

放射性水溶液の流入位置を通る流れ方向の直線上における非破壊濃度分布測定の結果は、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ図6~8の○で表わすことができる。通気層における核種移動速度を求めた場合と同様に最大濃度を Q_0 と仮定すると、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ $Q_0 = 2.5 \times 10^{-2}$ 、 2.7×10^{-2} および $3.5 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/cm}^3$ である。 $Q_0/2$ の濃度を有する位置を求めると、上流側からそれぞれ78, 77および80 cmとなり、放射性水溶液の流入位置が上流側より50 cmであるため、実際の $Q_0/2$ の移動距離は、それぞれ28, 27および30 cmである。したがって、放射性核種の平均移動速度は、移動距離を流入時間(1200 min)で除することにより、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ 2.3×10^{-2} 、 2.3×10^{-2} および $2.5 \times 10^{-2} \text{ cm/min}$ が得られる。

3.3 遅延係数の算出

前項で求めた核種移動速度の妥当性を評価するため、遅延係数を算出し、バッチ法により得られる遅延係数と比較した。

平均水流速 V は、流量 q 、水分率 θ および断面積 S により、次式で計算することができる。

$$V = q / \theta S \quad (10)$$

通気層における流入試験では、 $q = 0.31 / \text{min}$ 、 $\theta = 0.2$ および $S = 707 \text{ cm}^2$ ¹⁾ より $V = 2.1 \text{ cm/min}$ であり、帯水層における流入試験においては、 $q = 0.31 / \text{min}$ 、 $\theta = 0.4$ および $S = 2700 \text{ cm}^2$ ²⁾ より $V = 0.28 \text{ cm/min}$ である。したがって、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対する遅延係数 R_d は、水流速と放射性核種の移動速度との比から、通気層の場合それぞれ 40、33 および 33 であり、帯水層の場合それぞれ 12、12 および 11 である。ほぼ同一の土壌を使用し、帯水層と通気層では水分率が約 2 倍異なるため、帯水層の遅延係数は通気層のその約 $1/2$ になると考えられるが、上記の結果においては約 $1/3$ となっている。その原因として、帯水層における放射性水溶液の点流入の影響が考えられる。すなわち、帯水層の放射性水溶液流入位置の周辺では実際の水流速は平均水流速よりも大きく、帯水層の遅延係数は実際よりも小さく見積られたものと推定される。

通常、遅延係数はバッチ法で測定した分配係数から推定されることが多い。山本らによるバッチ法での測定⁴⁾では、東海研究所敷地内から採取した土壌に対する分配係数は、化学濃度が $1.0 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ の条件下で ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs に対して、それぞれ 7.3、1.7 および 4.4 (ml/g) が得られている。空隙率 0.4、密度 2.63 g/cm^3 として、前述の分配係数と遅延係数の関係から遅延係数を推定すると、通気層でそれぞれ 59、14 および 36、帯水層でそれぞれ 30、7.7 および 18 となる。これらの値を本方法により算出した遅延係数と比較すると、表 1 に示したように最大で 2 倍程度の差が見受けられるものの、使用した土壌が多少異なること、3 核種を混合して土壌中に流入したことおよび平均水流速の誤差を考慮するとかなり良く一致しているものと考えられる。

4. あとがき

非破壊的に測定した通気層および帯水層中における ^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs の濃度分布から、各核種に対する土壌中移動速度を求めた。その結果、各核種の土壌中移動速度は、 $1.0 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ の化学濃度において、通気層中でそれぞれ 5.3×10^{-2} 、 6.4×10^{-2} および $6.4 \times 10^{-2} \text{ cm/min}$ 、また、帯水層中でそれぞれ 2.3×10^{-2} 、 2.3×10^{-2} および $2.5 \times 10^{-2} \text{ cm/min}$ であった。さらに、これらの値から遅延係数を計算すると、バッチ法により測定した分配係数から推定される遅延係数とかなり良く一致し、本システムにより通気層試料および帯水層試料中における放射性核種の移動速度が非破壊的に測定できることがわかった。

参考文献

- 1) 小川弘道, 大貫敏彦, 山本忠利, 和達嘉樹; JAERI-M 85-061 (1985)
- 2) 小川弘道, 山本忠利, 和達嘉樹; JAERI-M 85-111 (1985)
- 3) M. FUKUI and K. KATSURAYAMA; Health Physics, 28, 717 (1975)
- 4) 山本忠利, 武部慎一, 和達嘉樹; 保健物理, 17, 3 (1982)

Table 1 Estimated values of retardation factors.

Nuclide	Retardation factor of aerated soil layer		Retardation factor of aquifer soil layer	
	Nondestructive	From batch Kd	Nondestructive	From batch Kd
⁶⁰ Co	40	59	12	30
⁸⁵ Sr	33	14	12	7.7
¹³⁷ Cs	33	36	11	18

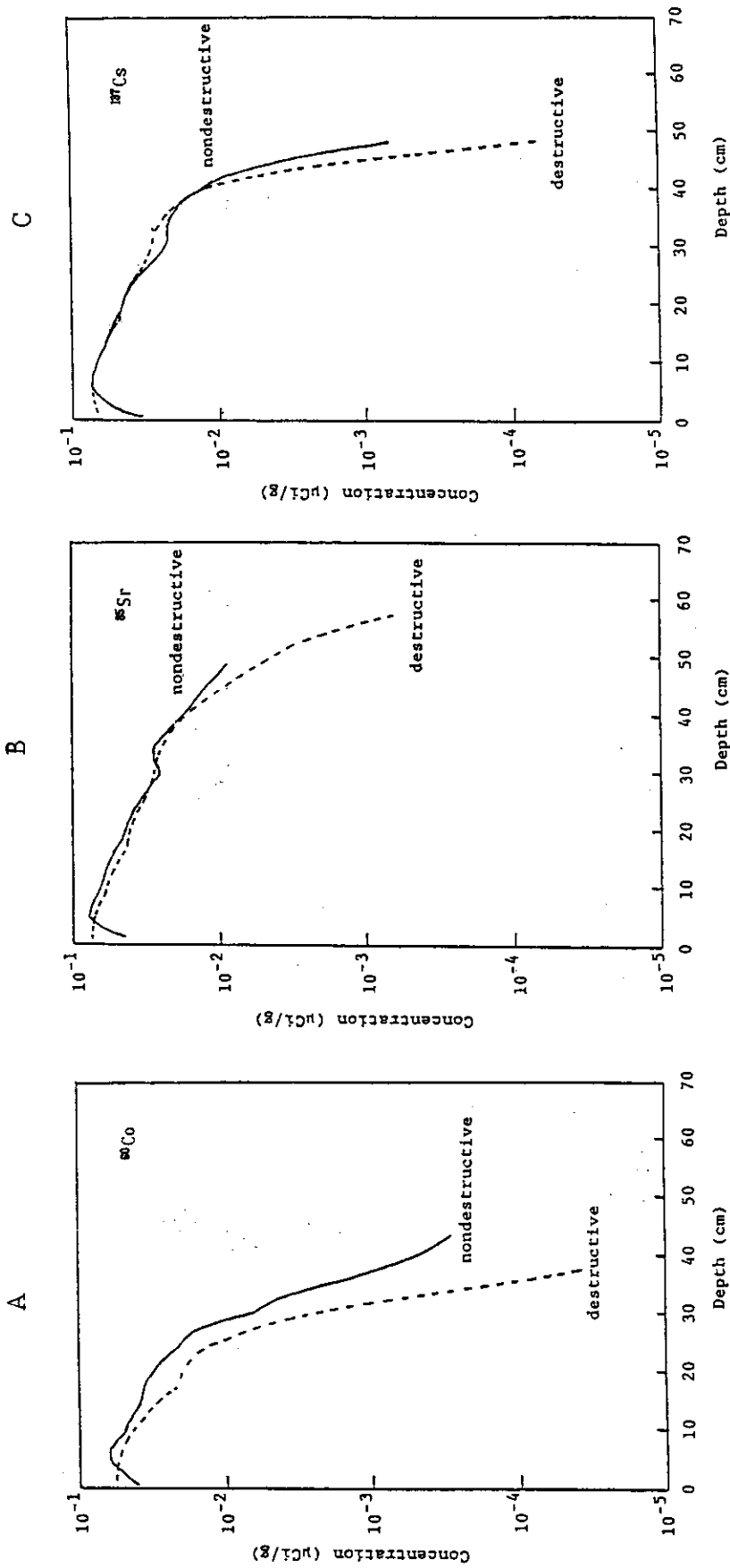


Fig. 1 Distribution of radionuclide concentration in an aerated soil sample (vertical direction)

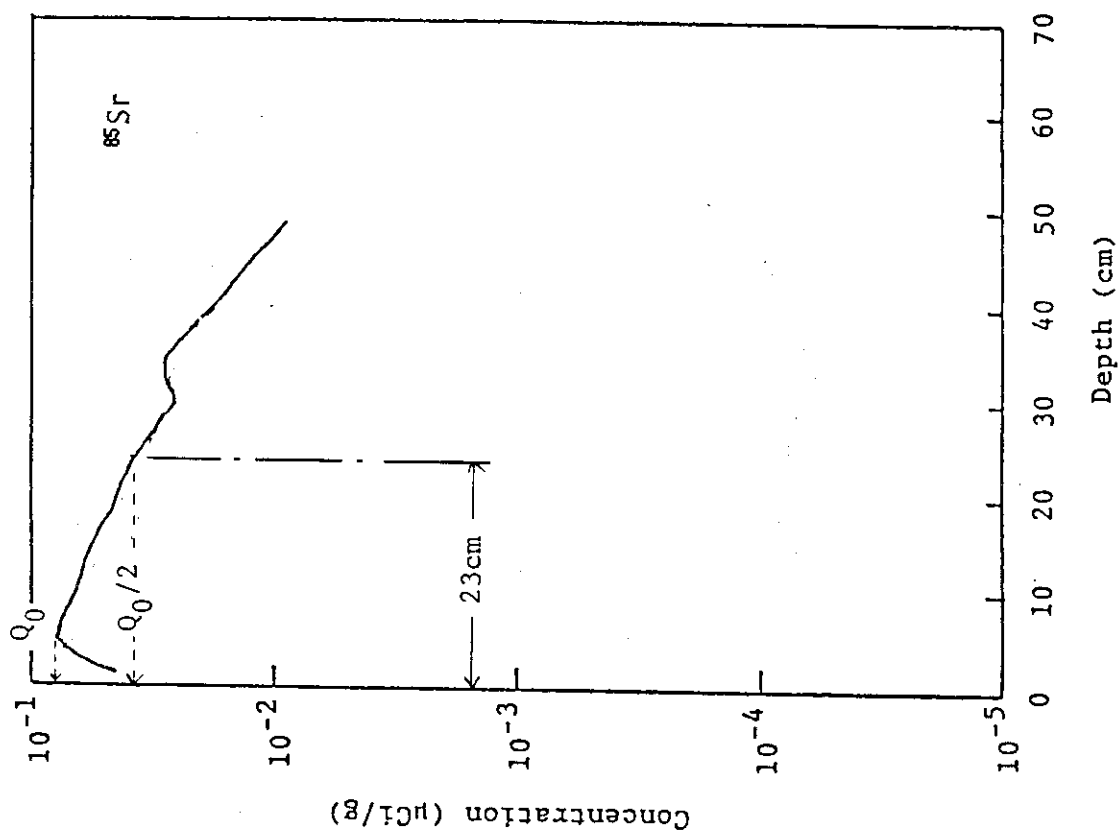


Fig. 3 Migration length of ^{85}Sr to vertical direction in an aerated soil sample

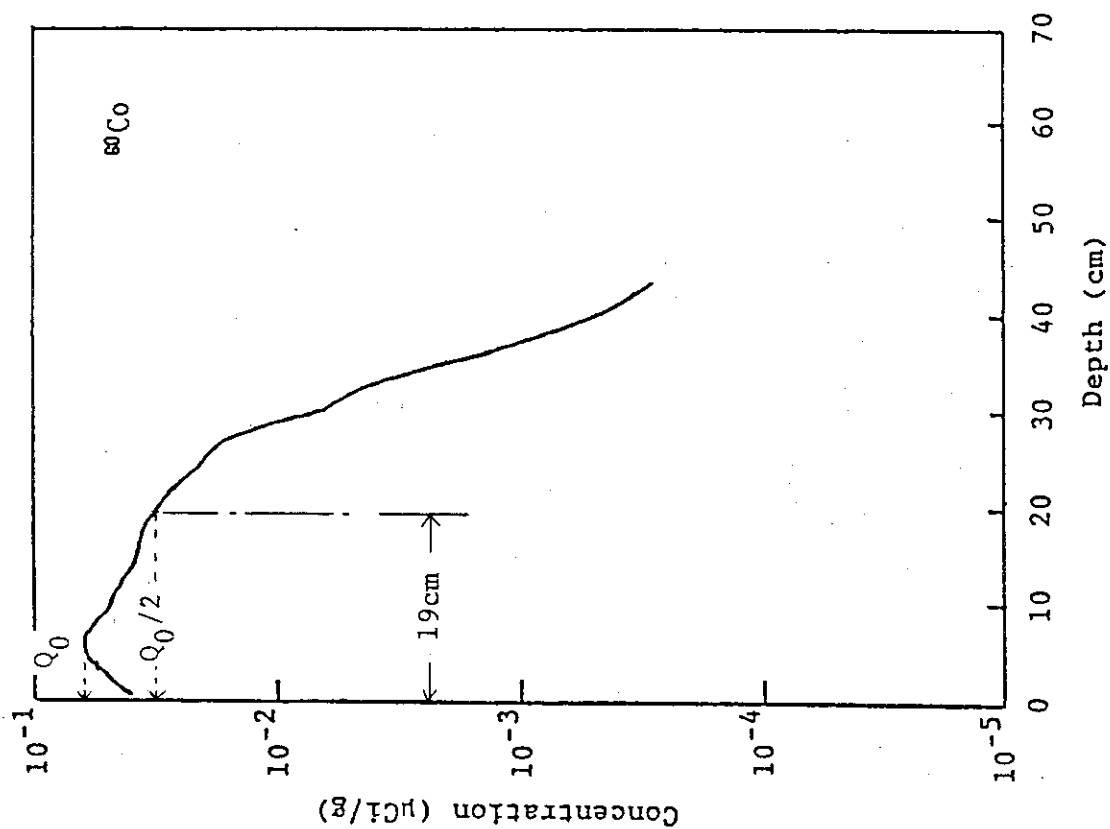


Fig. 2 Migration length of ^{60}Co to vertical direction in an aerated soil sample

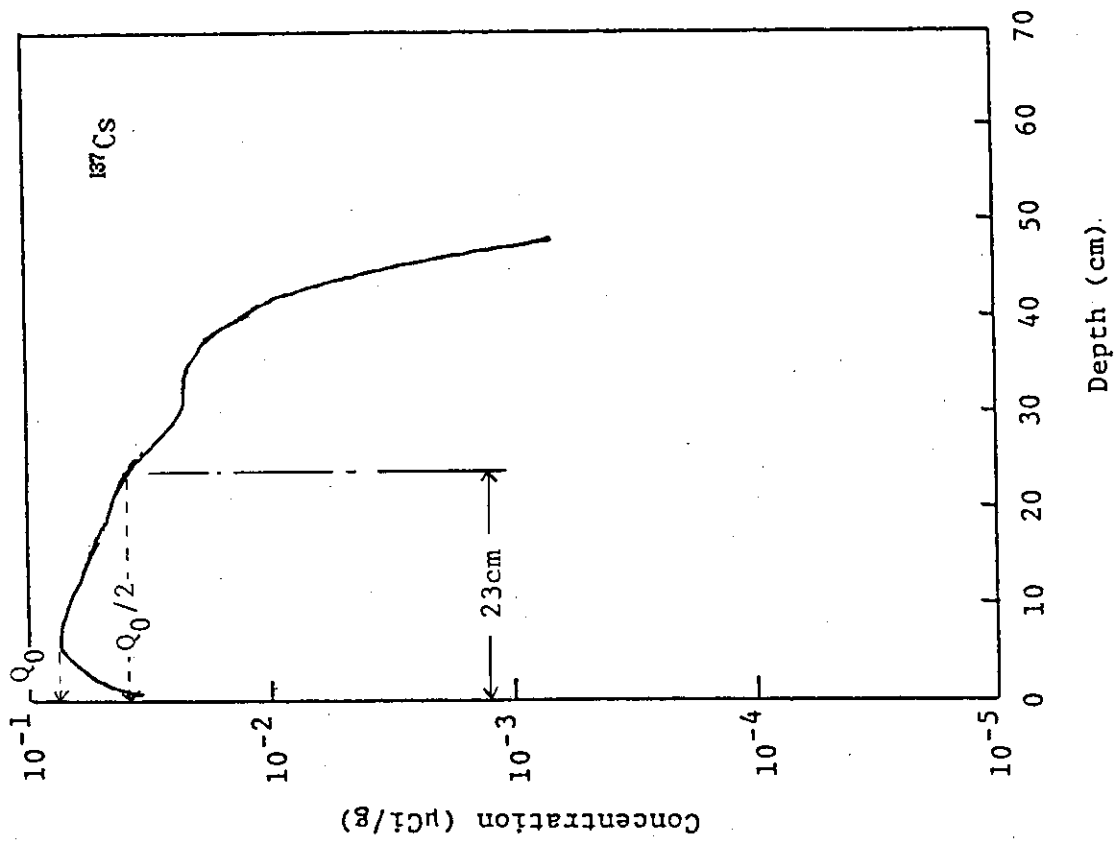


Fig. 4 Migration length of ^{137}Cs to vertical direction in an aerated soil sample

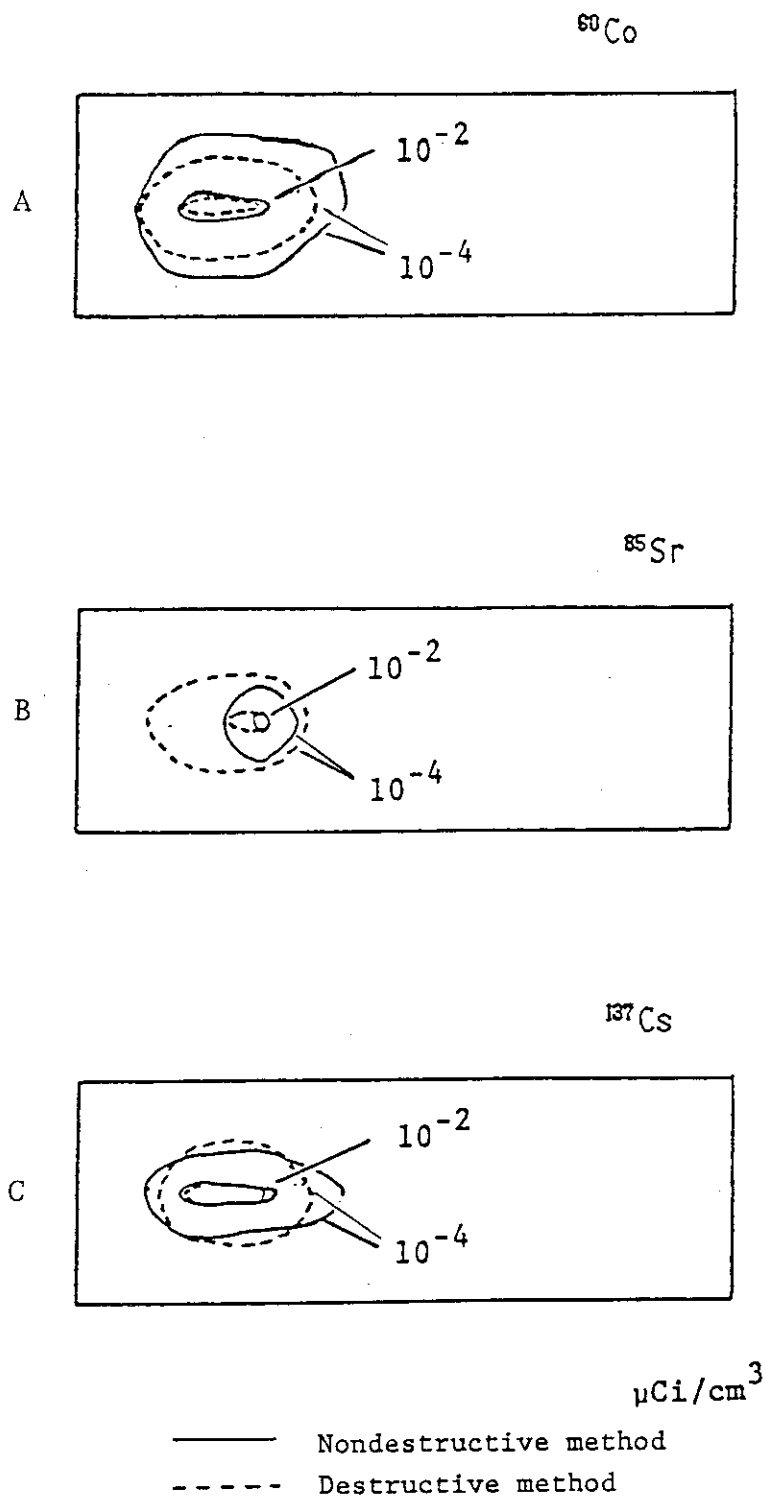


Fig. 5 Distribution of radionuclide concentration in an aquifer soil sample (horizontal direction)

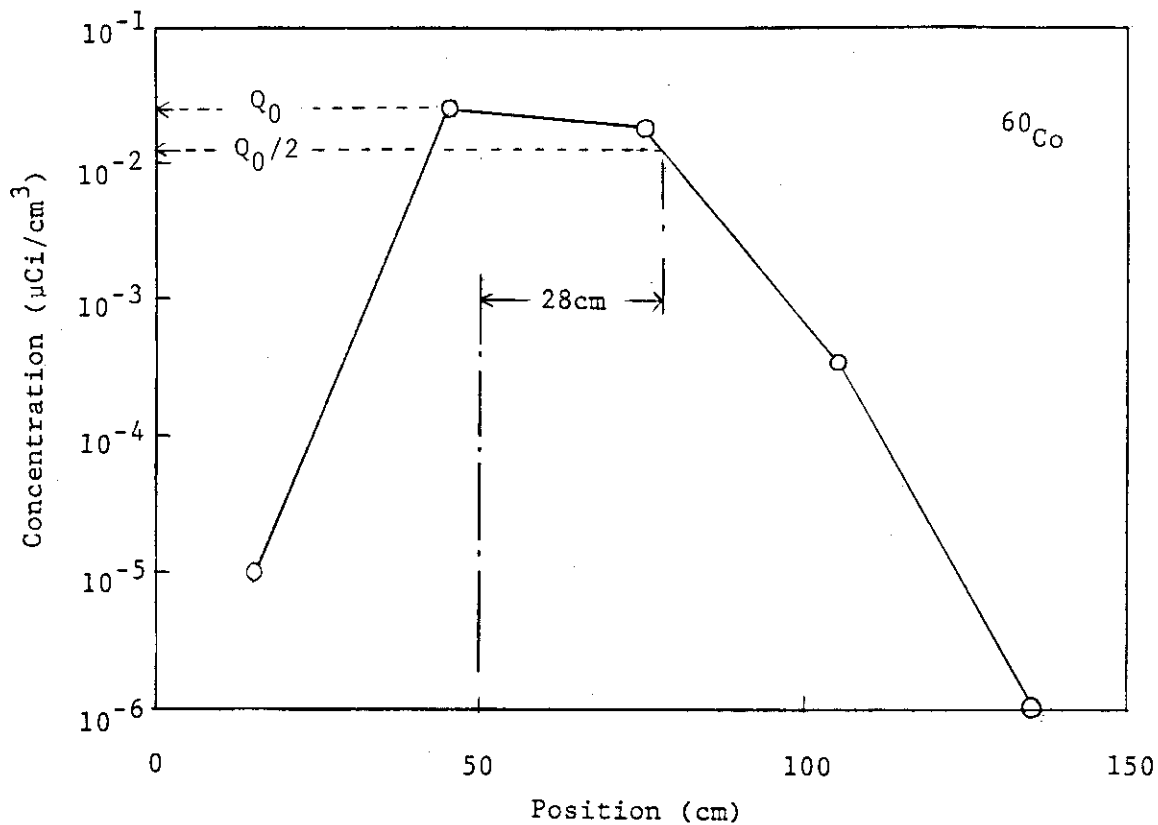


Fig. 6 Migration length of ^{60}Co to flow direction in an aquifer soil sample

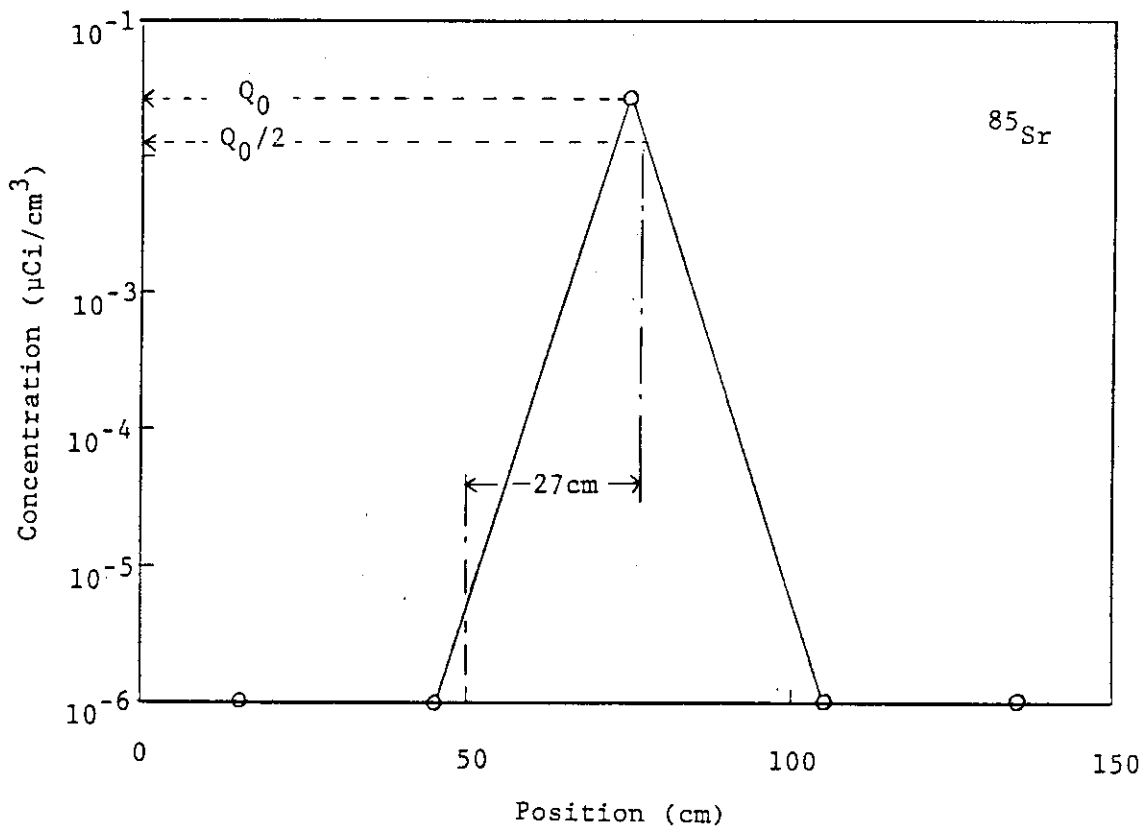


Fig. 7 Migration length of ^{85}Sr to flow direction in an aquifer soil sample

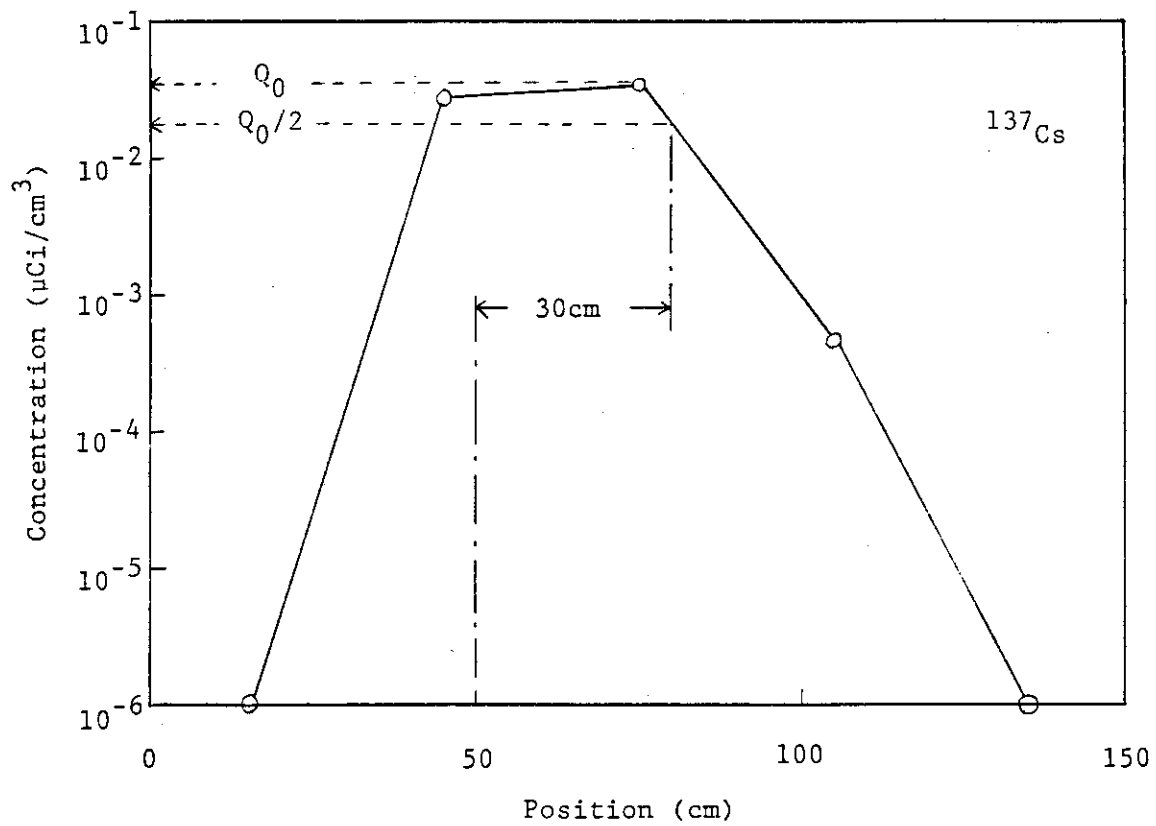


Fig. 8 Migration length of ^{137}Cs to flow direction in an aquifer soil sample