

JAERI - M
89-144

最終貯蔵予定地土壌における放射性核種の移行挙動
に関する研究

——放射性汚染水による通気層核種移行試験——

1989年10月

山本 忠利・武部 慎一・小川 弘道・田中 忠夫
向井 雅之・古宮 友和・横本 誠一・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, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 株式会社高野高速印刷

最終貯蔵予定地土壌における放射性核種の移行挙動に関する研究
- 放射性汚染水による通気層核種移行試験 -

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
山本忠利・武部慎一・小川弘道・田中忠夫
向井雅之・古宮友和・横本誠一・和達嘉樹

(1989年9月13日受理)

放射性核種の地中移行について、より現実的なデータを得るため、低レベル放射性廃棄物最終貯蔵予定地より未攪乱状態で深度別に採取した4種類の通気層土壌試料(ローム層上部, 下部, 砂層, 凝灰質層)を用いて、放射性汚染水による核種移行試験を行った。得られた試験データより、これら土壌に対する遅延効果を評価した。

流出液中の核種濃度は、いずれの土壌においても、 ^{85}Sr , ^{137}Cs は検出限界($2 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{ml}$)の小さな値であり、流出を示した ^{60}Co においても $5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ の小さな値であり、これら土壌は放射性核種に対して大きな保持能力を有することが分った。

土壌中の核種移行は、高濃度部分($1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{g}$)と低濃度部分($1 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{g}$)では異なる状況を示した。高濃度部分では、土壌の種類によらず、各核種の大部分が土壌表面付近に吸着したのに対して、低濃度部分では、深部まで移行した。4種類の土壌の中で、特にローム層上部での ^{60}Co の移行が大きかった。このような核種による土壌中移行分布の違いは、核種の化学形および土壌の種類の双方によるものと考えられる。さらに、不飽和土壌中における核種移行モデルを用いて、核種の遅延係数をイオン形での移行が支配的である高濃度部分から計算し、 $10^3 \sim 10^4$ オーダの大きな遅延係数を得た。これら土壌が使用した核種のイオン形に対して大きな保持能力を有することが確認された。一方、低濃度部分については、非イオン形での移行が関与するため、高濃度部分から求めた値に比べて1~2桁程小さな値を示すことが分った。

Migration Behavior of Radionuclide in Soil Layer of Final Storage Site
- Radionuclide Migration Test in Aerated Soil Layer
by Radioactive Contaminated Water -

Tadatoshi YAMAMOTO, Shinichi TAKEBE, Hiromichi OGAWA
Tadao TANAKA, Masayuki MUKAI, Tomokazu KOMIYA
Seiichi YOKOMOTO and Yoshiki WADACHI

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

(Received September 13, 1989)

Radionuclide migration tests by radioactive contaminated water were carried out using four kinds of undisturbed aerated soil samples (upper and lower layer of loamy soil, sandy soil, tuff soil) taken out from the final storage site of low-level radioactive waste, in order to obtain realistic data on radionuclide migration in the soil layer. Based on the analysis of data obtained from the tests, the retardation ability of these soil layers was evaluated.

The concentration of ^{85}Sr and ^{137}Cs in effluent was less than detection limit (2×10^{-7} $\mu\text{Ci/ml}$), and that of ^{60}Co rose to 5×10^{-6} $\mu\text{Ci/ml}$. It was found that these soil layers have a larger retention ability of radionuclides. Difference in the radionuclide migration was observed between portions of high concentration (10^{-2} $\mu\text{Ci/g}$) and low concentration (10^{-4} $\mu\text{Ci/g}$) of radionuclides in the soil layer. In the portion of high concentration, a large portion of the radionuclide was adsorbed mainly on the surface of soil layers and its behavior was not dependent on kinds of soil layer. In the portion of low concentration, a slight portion of the radionuclide migrated to deeper layer. The migration rate of ^{60}Co was particularly high in the upper layer of loamy soil. Difference in the radionuclide distribution might be caused by the chemical form of radionuclide and the properties of soil layer. Calculating the retardation

factor from the portion of high concentration by using the radionuclide migration model of the unsaturated soil layer, value of $10^3 \sim 10^4$ order was obtained. It was confirmed that these soil layers have a large retention ability for ionic radionuclides. As to the portion of low concentration, non-ionic radionuclide are considered to be taken part in the migration and the retardation factor was 1 ~ 2 order lower than that of the portion of high concentration.

Keywords: Migration Behavior, Radionuclide Migration Test, Soil Layer, Radioactive Contaminated Water, Low-level Radioactive Waste, Undisturbed Soil Sample, Disposal Site, Retention Ability, Adsorption, Retardation Factor, Non-ionic Radionuclide, Cobalt-60, Strontium-85, Cesium-137

目 次

1. 緒言	1
2. 試験方法	1
2.1 試験装置	1
2.2 土壌試料	2
2.3 放射性水溶液の流下	3
2.4 放射能測定	3
3. 試験結果	4
3.1 流出液中核種濃度	4
3.2 土壌中核種濃度	4
4. 考察	5
5. 結言	8
参考文献	9

Contents

1. Introduction	1
2. Testing method	1
2.1 Testing apparatus	1
2.2 Test soil sample	2
2.3 Inflow of radioactive aqueous solution	3
2.4 Measurement of radioactivity	3
3. Results	4
3.1 Radioactive concentration in effluent	4
3.2 Radioactive concentration in soil layer	4
4. Discussion	5
5. Conclusion	8
References	7

1. 結 言

低レベル放射性廃棄物の陸地処分は、我が国の基本的考え方¹⁾によると、地表面近くの地中に構築したコンクリートピットにパッケージ化した放射性廃棄物を収納する浅地中埋設である。我が国の場合には、諸外国に比べて地下水位が高い等の地理的条件、さらに、人口密度も比較的高い等の社会的条件も異なるため、浅地中埋設の実施に際しては、十分な安全性の確認が必要である。このため、人工バリアはもとより、天然バリアに対する安全性についても正確な情報が必要である。それ故、処分サイトの地層についてホットトレーサによるフィールド試験の実施が望ましいが、法規制、環境保全等種々の問題により不可能である。

したがって、原研では、放射性核種の地中移行研究として、現実的なデータを得るため、未攪乱状態で採取した海岸砂層およびローム層の土壌試料を用いた実験室規模での核種移行試験を昭和58年度より開始した²⁾⁻⁴⁾。現在、低レベル放射性廃棄物最終貯蔵予定地において未攪乱状態で採取した通気層土壌層における放射性核種 (^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs) の移行挙動を明らかにするとともに、同土壌層の放射性核種遅延効果を評価することを目的として試験を行っている。本試験では、雨水等の水が処分構造物に浸透し、汚染した水が連続的に土壌層を浸透する場合を想定して、土壌表面に放射性水溶液を連続流入することにより、土壌における放射性核種の移行挙動、ならびに土壌層の放射性核種遅延効果を調べた。

2. 試 験 方 法

2.1 試験装置

通気層核種移行試験に使用した装置は、自然の地層から未攪乱状態で採取した通気層土壌試料を恒温恒湿のウェザールーム内に設置し、土壌試料に放射性水溶液を流下させて、土壌中の放射性核種の移行状況を調べるためのもので、流下機構部、土壌カラム部、流出機構部、サンプリング部から構成されている⁵⁾。試験装置の概略をFig.1に示す。

流下機構部は放射性水溶液を試料液タンクから通気層土壌試料表面に所定量均一に流下させるものであり、試料液タンク、試料液ポンプおよび散布器より成る。散布器は、放射性水溶液を土壌試料表面に均一に散布するため、ノズルに回転振動を加えながら放射性水溶液を流下する回転振動型ノズル滴下方式を採用している。

土壌カラム部は、通気層土壌試料を未攪乱状態のまま使用するため、土壌試料採取容器と兼用するものであり、透明硬質塩化ビニール製の4段接合型カラム (内径 300 mm ϕ \times 1200 mm h) より成る。流下試験終了後、分解することによって放射能測定用土壌試料のサンプリングが容易な構造となっている。

1. 結 言

低レベル放射性廃棄物の陸地処分は、我が国の基本的考え方¹⁾によると、地表面近くの地中に構築したコンクリートピットにパッケージ化した放射性廃棄物を収納する浅地中埋設である。我が国の場合には、諸外国に比べて地下水位が高い等の地理的条件、さらに、人口密度も比較的高い等の社会的条件も異なるため、浅地中埋設の実施に際しては、十分な安全性の確認が必要である。このため、人工バリアはもとより、天然バリアに対する安全性についても正確な情報が必要である。それ故、処分サイトの地層についてホットトレーサによるフィールド試験の実施が望ましいが、法規制、環境保全等種々の問題により不可能である。

したがって、原研では、放射性核種の地中移行研究として、現実的なデータを得るため、未攪乱状態で採取した海岸砂層およびローム層の土壤試料を用いた実験室規模での核種移行試験を昭和58年度より開始した²⁾⁻⁴⁾。現在、低レベル放射性廃棄物最終貯蔵予定地において未攪乱状態で採取した通気層土壤層における放射性核種 (^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs) の移行挙動を明らかにするとともに、同土壤層の放射性核種遅延効果を評価することを目的として試験を行っている。本試験では、雨水等の水が処分構造物に浸透し、汚染した水が連続的に土壤層を浸透する場合を想定して、土壤表面に放射性水溶液を連続流入することにより、土壤における放射性核種の移行挙動、ならびに土壤層の放射性核種遅延効果を調べた。

2. 試 験 方 法

2.1 試験装置

通気層核種移行試験に使用した装置は、自然の地層から未攪乱状態で採取した通気層土壤試料を恒温恒湿のウェザールーム内に設置し、土壤試料に放射性水溶液を流下させて、土壤中の放射性核種の移行状況を調べるためのもので、流下機構部、土壤カラム部、流出機構部、サンプリング部から構成されている⁵⁾。試験装置の概略をFig.1に示す。

流下機構部は放射性水溶液を試料液タンクから通気層土壤試料表面に所定量均一に流下させるものであり、試料液タンク、試料液ポンプおよび散布器より成る。散布器は、放射性水溶液を土壤試料表面に均一に散布するため、ノズルに回転振動を加えながら放射性水溶液を流下する回転振動型ノズル滴下方式を採用している。

土壤カラム部は、通気層土壤試料を未攪乱状態のまま使用するため、土壤試料採取容器と兼用するものであり、透明硬質塩化ビニール製の4段接合型カラム (内径 300 mm ϕ \times 1200 mm h) より成る。流下試験終了後、分解することによって放射能測定用土壤試料のサンプリングが容易な構造となっている。

流出機構部は、土壌カラム内の土壌の落下と流出を防止し、カラム内土壌を通過した液を集水し流出させるためのものであり、土壌カラムの下部に接続され、ウールフィルターおよびガラスビーズが充填されている。さらに、透水性の低い土壌については、真空ポンプにより土壌カラム全体を吸引することにより水の浸透を促進させる機構を有している。

サンプリング部は、流出液の採取または排水、およびカラム内の土壌の採取を行うものであり、流出液に関しては、オートサンプラーにより所定の時間間隔毎に1ℓずつサンプリングすることが可能であり、カラム内土壌に関してはサンプリング器を用いて、所定の位置で定量サンプリングすることができる。

計測機器としては、土壌中の水流速を非破壊的に測定するための透過中性子検出方式による測定装置⁶⁾、放射性核種の移行を非破壊的にモニターするためのγ線検出方式による測定装置⁷⁾を付置してある(Photo. 1 参照)。前者の測定装置は、コリメートした²⁵²Cf中性子ビームを用いて検出計数率の時間的变化から、浸透水が透過中性子の検出幅を通過するのに要する時間を求め、土壌中の任意の一定点で水流速を測定するものである。後者の測定装置は、放射性水溶液流下中における核種濃度(計数率)を測定し、核種の移行状況をモニターするものである。その他には、流量計、温度計、液面計等を付置している。

2.2 土壌試料

通気層土壌試料採取に当たり、まず、青森県六ヶ所村に予定されている低レベル放射性廃棄物最終貯蔵予定地において簡単な地質調査を実施した。その結果によると、試料採取地付近の地質は、主に表層はローム層で、深部に行くにしたがって砂層、凝灰質層(凝灰質砂、凝灰質粘土、凝灰質岩等)と地層が変化している(Fig. 2参照)。地質調査結果の概要を以下に記す。

ローム層は約 1.2 mの層厚ではほぼ水平に分布し、黄褐色の緻密な土相を呈し、下部のローム層には砂が多く含まれる第四紀洪積世の堆積物と考えられる。平均的なN値は3~4を示し、柔らかく、粘性が強い層である。ローム層の下に位置する砂層は約 1.3 mの層厚ではほぼ水平に分布し、砂層上部から順に黄褐色のシルト質細砂および細砂が存在し、新第三紀鮮新世の砂子又層、もしくは第4紀洪積世の野辺地層に相当する堆積物と考えられる。平均的なN値は14~17を示し、硬いが固結度は弱い。最下部の凝灰質層は、上部から凝灰質砂、凝灰質粘土、凝灰質岩と変化し、層厚は凝灰質砂層が約40cm、凝灰質粘土層が約20cm、凝灰質岩層は厚く、約20m以上あることが確認された。凝灰質岩には浮石質凝灰岩が多数存在し、基質は凝灰質の細~中砂からなり、新第三紀中新世の鷹架層に相当する。N値は風化帯部分では10程度であるが、凝灰質岩では50以上を示し、非常に硬く固結している層である。

本試験では凝灰質岩層の上層部までの地層を対象とし、ローム層上部(深度: G. L. 0~1.2m)、ローム層下部(深度: G. L. 0.8~2.0 m)、砂層(深度: G. L. 1.6~2.8 m)および凝灰質層(深度: G. L. 2.5~3.7 m)の4試料を未攪乱状態で採取し、それぞれの試験US-1~US-4に供した。

試験用土壌試料の上部と対応する位置より土壌物性測定用に採取した土壌試料の物性値をTable 1にまとめて示す。一般的な土壌物性は、JISに準拠した分析方法により測定した。分配係数は、放射性水溶液800mlに土壌試料20gを添加して吸着平衡後の土壌への吸着量

を求めるバッチ法により測定した^{8),9)}。測定に使用した土壌試料は、各地層から採取した土壌を室温で風乾し、篩により2,000 μm 以上の礫を除去し、調整したものである。

一方、土壌の拡散係数は、核種移行試験で使用した土壌と対応する地層から未攪乱状態で採取した土壌試料(4.8 cm ϕ \times 10 cm h)を用いて、³Hをトレーサーとして含む水を土壌表面より流入(流速:約0.2 ml/min, 流量:300 ml)し、土壌層から流出してくる水中の³Hの濃度を液体シンチレーション測定システム(アロカ製LSC-700型)で測定し、回帰分析を行い拡散係数を算出した^{10),11)}。拡散係数より計算した土壌中の水流速と併せてTable 1に示す。

2.3 放射性水溶液の流下

試験に使用した放射性水溶液は、⁶⁰Co, ⁸⁵Sr および¹³⁷Csの混合液である。使用した⁶⁰Co および¹³⁷CsはRadiochemical Centre製,⁸⁵SrはNew England Nuclear製であり、化学形はいずれも塩化物である。放射性水溶液の性質および試験条件をそれぞれTable 2に示す。流入液量は、土壌試料体積の約3倍に当る液量の240 ℓ とした。

試験は、調整した放射性水溶液を試料液ポンプにより容積型流量計を経て散布器に送り、土壌表面に均一に散布した。カラム内土壌を通過した放射性水溶液は流出カラムで集水した。試験期間中は、装置全体を収めたウェザールームの温度を一定(約20 $^{\circ}\text{C}$)に保つことにより、各箇所における温度をほぼ20 $^{\circ}\text{C}$ に維持した。さらに、これら土壌試料の透水性が低いことから、真空ポンプによる吸引により浸透を促進させる方法をとった。

2.4 放射能測定

放射能測定試料は、大きく分けて流出液試料と土壌試料の2つがある。流出液試料はカラム下部に取付けた流出機構部により集水し、オートサンプラーにより所定の時間間隔で1 ℓ ずつポリエチレン製容器に自動的に採取し、放射能測定に供した。放射能濃度測定は、1 ℓ のポリエチレン製容器のままGe半導体検出器(SEIKO EG&G社製)を用いて行った。測定限界は、各放射性核種とも $2 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度であった。土壌試料は、流下試験終了後、サンプリング器(内径37.5 mm ϕ \times 300 mm)をカラム内土壌に押し込み、水平方向における所定の位置(カラムの中心、中心から7.5 cmと12.5 cm)からサンプリングを行った。放射性核種の大部分が土壌表面付近に吸着していることを考慮して、表面付近では鉛直方向のサンプリング間隔を小さくし(表面から30 cmの深さまで2 cm間隔)、深部では間隔を大きくして(30 cm以深では5 cm間隔)サンプリングした。このようにしてサンプリングした土壌数十gをビーカーに入れ、乾燥した後、放射能濃度に応じて放射能測定容器に所定量(1~10 g)を分取し、0.1 N HClを50 ml加え、測定ジオメトリを一定にして、放射能測定を行った。測定限界は⁸⁵Srが $1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{g}$ 程度、⁶⁰Co および¹³⁷Csが $5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{g}$ 程度であった。

3. 試 験 結 果

3.1 流出液中核種濃度

試験中、カラム下部から流出する液を採取して、流出液中の核種濃度を調べた結果として、各試験における流出液量に対する ^{60}Co の濃度変化をFigs. 3~6に示す。いずれの試験の場合においても、 ^{85}Sr および ^{137}Cs は検出限界以下であった。 ^{60}Co は各試験において流出液中に検出されているが、流出濃度は非常に低く $10^{-7}\sim 10^{-6}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度であり、流出傾向は、流出液量の増加に伴い緩やかに増大する傾向を示している。 ^{60}Co の流出終了時の濃度は、各試験ともに約 $5\times 10^{-6}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ を示し、 ^{60}Co の流出濃度比 C_i/C_o （流出液中の放射能濃度 C_i ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$) / 流下前の放射性水溶液の濃度 C_o ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$))を計算すると、試験US-1では 7.7×10^{-4} 、試験US-2では 1.2×10^{-3} 、試験US-3では 1.1×10^{-3} 、試験US-4では 1.3×10^{-3} となる。

このように、流出濃度比についてみると、 ^{60}Co は初期濃度の約 $1/1,000$ の小さな値を示した。また、 ^{85}Sr および ^{137}Cs は検出限界値を考慮すると約 $1/10,000$ 以下のきわめて小さな値になることが推測できた。したがって、土壌が各核種に対して大きな保持能力を有することが分かった。

さらに、放射性核種の土壌からの流出が、どのような化学状態で流出しているかを確認するため、各試験における流出液 1l を $0.45\mu\text{m}$ メンブランフィルターで吸引濾過し、懸濁物質（シルト等）を分離し、流出した核種がどちらの部分に存在するかを調べた。その結果、 ^{85}Sr はフィルターに捕捉されなかった。一方、極く僅かではあるが、 ^{60}Co および ^{137}Cs がフィルターに捕捉された。 ^{60}Co は10%程度がフィルターに捕捉された。 ^{137}Cs は約 $8\times 10^{-8}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ の濃度（流出液濃度換算）でフィルターに捕捉された。

3.2 土壌中核種濃度

試験終了後、カラム内土壌を採取して、土壌内の核種濃度分布を調べた結果として、各試験に対する一次元の土壌中核種濃度分布をFigs. 7~10に示す。10cmまでの土壌表面では、各試験ともに核種濃度は指数関数的に減少した。このことは、土壌の種類によらず、各核種ともに大部分が表面に吸着されることを示している。これに対して、土壌深部では、各試験ともに核種濃度は緩やかに減少し、核種により深部における移行状況が異なった。特に、ローム層上部において ^{60}Co の移行は他の核種に比べて大きく現われた。この結果は、流出液中の放射能濃度変化の結果とも良く一致している。また、核種の移行状況を土壌深度別に比較した場合、各核種ともに土壌深度が増すにしたがって移行は小さくなる傾向が見られた。

土壌に吸着した放射性核種が水によりどの程度脱離されるかを確認するため、風乾した土壌10gに放射性核種 $1\times 10^{-2}\mu\text{Ci}$ を吸着させ、水400mlを加えて10日間振盪させたときの土壌から

の脱離量を測定した。その結果をTable 3に示す。 ^{137}Cs が土壌から脱離され難く、 ^{85}Sr が脱離され易かった。

4. 考 察

各試験における放射性核種の土壌内移行距離をTable 4に示す。表における放射性核種による移行距離の違いは、核種の化学形および土壌の種類（性質）の違いにより説明することができる。試験に使用した放射性水溶液は中性であることから、溶液中の核種の化学形は、 ^{60}Co の一部を除き大部分がイオン形（ $^{60}\text{Co}^{2+}$ 、 $^{60}\text{Co}(\text{OH})^+$ 、 $^{85}\text{Sr}^{2+}$ および $^{137}\text{Cs}^+$ ）であると考えられる。したがって、吸着量の大部分を占める高濃度部分（ $10^{-2} \mu\text{Ci/g}$ ）の核種移行距離がTable 4に示すように顕著な差が生じなかったのは、これら核種が土壌に良くイオン吸着したためである。しかしながら、低濃度部分（ $10^{-4} \mu\text{Ci/g}$ ）で核種による差が生じているのは、核種の化学形の違いによることのほか、土壌の種類（性質）の違いによるものと考えられる。

試験US-1、US-2に使用した土壌層はローム質土壌であり、固相分は少なく、水相と気相で約75%を占める。非イオン形は、水とともに深部まで移行する。試験US-3に使用した土壌層は主に砂質土壌であり、水相と気相で約50%を占める。透水係数が大きいので、非イオン形は比較的良く深部まで移行する。試験US-4に使用した土壌層は主に凝灰質土壌であり、固相は約55%と高く、水相と気相で約45%の土壌である。層全体が硬く固結しているため、透水係数は小さくなり、凝灰質層の迂過効果が高くなるので、非イオン形での移行する割合は減少する。

結局、土壌の種類の違いによる核種の低濃度部分の移行距離は以下の順に小さくなる傾向を示した。

^{60}Co ; ローム（上部>下部）>砂>凝灰質層

^{85}Sr ; ローム（上部~下部）~砂>凝灰質層

^{137}Cs ; ローム（上部~下部）>砂>凝灰質層

その他、ローム層において、分配係数の大きい上部の方が下部に比べて移行が大きく見られたこと、また、大きな分配係数を示す ^{137}Cs が深部まで移行したこと等は、試験用土壌試料が未攪乱状態で採取したものであるためと考えられる。実際に、試験終了後、カラムを解体し土壌を観察した結果、細孔が多数存在している箇所が随所に見られた。

放射性核種の土壌からの流出液のメンブランフィルター迂過に関する結果から、流出する ^{60}Co の大部分はフィルターに捕捉されない非イオン形、例えば水酸化物となっているものと考えられる。一方、 ^{137}Cs はフィルターに捕捉されたことから、土壌中に存在する微細粒子（懸濁物質）に吸着した粒子形で流出するものと考えられる。すなわち、各試験において、 ^{60}Co および ^{137}Cs は、一部ではあるが、移行し易い形である非イオン形で土壌中を移行するものと考えられる。

このような放射性核種による土壌からの流出傾向の違いは、次のように説明することができる。すなわち、 ^{60}Co の場合は、大部分が土壌に吸着するが、Table 3に示すようにその一部が水により脱離されるため、微細粒子に ^{60}Co が一部吸着し、この微細粒子が水で押し流されることに

の脱離量を測定した。その結果をTable 3に示す。 ^{137}Cs が土壌から脱離され難く、 ^{85}Sr が脱離され易かった。

4. 考 察

各試験における放射性核種の土壌内移行距離をTable 4に示す。表における放射性核種による移行距離の違いは、核種の化学形および土壌の種類（性質）の違いにより説明することができる。試験に使用した放射性水溶液は中性であることから、溶液中の核種の化学形は、 ^{60}Co の一部を除き大部分がイオン形（ $^{60}\text{Co}^{2+}$ 、 $^{60}\text{Co}(\text{OH})^+$ 、 $^{85}\text{Sr}^{2+}$ および $^{137}\text{Cs}^+$ ）であると考えられる。したがって、吸着量の大部分を占める高濃度部分（ $10^{-2} \mu\text{Ci/g}$ ）の核種移行距離がTable 4に示すように顕著な差が生じなかったのは、これら核種が土壌に良くイオン吸着したためである。しかしながら、低濃度部分（ $10^{-4} \mu\text{Ci/g}$ ）で核種による差が生じているのは、核種の化学形の違いによることのほか、土壌の種類（性質）の違いによるものと考えられる。

試験US-1、US-2に使用した土壌層はローム質土壌であり、固相分は少なく、水相と気相で約75%を占める。非イオン形は、水とともに深部まで移行する。試験US-3に使用した土壌層は主に砂質土壌であり、水相と気相で約50%を占める。透水係数が大きいので、非イオン形は比較的良く深部まで移行する。試験US-4に使用した土壌層は主に凝灰質土壌であり、固相は約55%と高く、水相と気相で約45%の土壌である。層全体が硬く固結しているため、透水係数は小さくなり、凝灰質層の沍過効果が高くなるので、非イオン形での移行する割合は減少する。

結局、土壌の種類の違いによる核種の低濃度部分の移行距離は以下の順に小さくなる傾向を示した。

^{60}Co ；ローム（上部>下部）>砂>凝灰質層

^{85}Sr ；ローム（上部～下部）～砂>凝灰質層

^{137}Cs ；ローム（上部～下部）>砂>凝灰質層

その他、ローム層において、分配係数の大きい上部の方が下部に比べて移行が大きく見られたこと、また、大きな分配係数を示す ^{137}Cs が深部まで移行したこと等は、試験用土壌試料が未攪乱状態で採取したものであるためと考えられる。実際に、試験終了後、カラムを解体し土壌を観察した結果、細孔が多数存在している箇所が随所に見られた。

放射性核種の土壌からの流出液のメンブランフィルター沍過に関する結果から、流出する ^{60}Co の大部分はフィルターに捕捉されない非イオン形、例えば水酸化物となっているものと考えられる。一方、 ^{137}Cs はフィルターに捕捉されたことから、土壌中に存在する微細粒子（懸濁物質）に吸着した粒子形で流出するものと考えられる。すなわち、各試験において、 ^{60}Co および ^{137}Cs は、一部ではあるが、移行し易い形である非イオン形で土壌中を移行するものと考えられる。

このような放射性核種による土壌からの流出傾向の違いは、次のように説明することができる。すなわち、 ^{60}Co の場合は、大部分が土壌に吸着するが、Table 3に示すようにその一部が水により脱離されるため、微細粒子に ^{60}Co が一部吸着し、この微細粒子が水で押し流されることに

より土壌層から流出すること、さらに、 ^{60}Co の一部が加水分解して水酸化物を生成することにより、土壌に捕捉され難く、土壌層から流出し易くなるものと思われる。

^{85}Sr の場合は、広い pH 範囲でイオンとして存在するため、良くイオン吸着する。しかし、土壌（微細粒子も同様）に吸着した $^{85}\text{Sr}^{2+}$ は、Table 3 に示すように容易に水により脱離されるけれども、一旦脱離した $^{85}\text{Sr}^{2+}$ は、再びイオン交換反応により土壌に吸着するため僅かに土壌を移行するが、土壌層からの流出は見られなかったものと考えられる。

^{137}Cs の場合は、広い pH 範囲でイオン形で存在し、土壌に良くイオン吸着する。 $^{137}\text{Cs}^+$ は、土壌（微細粒子も同様）に吸着したとき、Table 3 に示すように水によりほとんど脱離されない。したがって、 ^{137}Cs は、土壌表面の微細粒子に吸着した形で水により押し流される機構で土壌層を移行したものと判断される。

以上の定性的考察に加えて、定量的に核種移行を評価するため、従来行われているように、不飽和土壌中における核種移行モデル^{12),13)}を用いて、核種の遅延係数を算出した。

放射性核種の不飽和層中における移行を一次元について考えた場合、液相中濃度を C 、固相中濃度を Q 、水流速を V 、拡散係数を D 、密度を ρ 、空隙率を f 、飽和度を s 、位置を x 、時間を t とすると、崩壊を無視した核種の土壌中における物質収支は次式で示される。

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

イオン交換平衡が成立つ場合には、ヘンリー型のイオン交換平衡式 ($Q = K_d \cdot C$) が成立ち⁸⁾、(1)式は液相中の濃度変化を表わす(2)式のような形に変換される。

$$\left(1 + \frac{1-f}{f s} \rho K_d\right) \frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V \frac{\partial C}{\partial x} \quad (2)$$

(2)式において、左辺の $\{1 + (1-f) \rho K_d / (f s)\}$ は、放射性核種の移行が水の移動に対して遅れる程度を示すものとして、遅延係数 K_f と定義されている。したがって、前述のように、土壌表面付近に核種の大部分がイオン交換吸着していることから、約10cmまでの土壌表面の高濃度部分について上式が適応できることが考えられる。そこで、土壌表面付近における高濃度部分について、試験で得られたカラム内土壌中の一次元核種濃度分布からフィッティングにより遅延係数を算出した¹⁴⁾。

計算により得られた結果をTable 5に示した。表にはカラム中心部A、周辺部B、C（中心から7.5cmと12.5cm）の位置における一次元核種濃度分布から求めたそれぞれの遅延係数を表わす。また、カラム中心部AのフィッティングカーブをFig. 7～10において実線で示した。

Table 5より明らかなように、各核種ともにイオン性化学種については遅延係数は $10^3 \sim 10^4$ オーダの大きな値を示した。特に、ローム層に比べて砂層および凝灰質層の遅延係数は大きな値を示した。したがって、これら土壌が大きな放射性核種保持能力を有することを示唆している。なお、核種間における遅延係数の大きな違いは見られなかった。この領域では3核種ともにイオン交換吸着が支配的である。

さらに、バッチ法で求めた分配係数 (Table 1 参照) 等から計算した遅延係数をTable 6に示

す。フィッティングにより求めた遅延係数 (Table 5) と比較すると、砂層および凝灰質層の場合、両者の違いは2倍程度ではほぼ一致することが認められた。これに対してローム層の場合、 ^{60}Co および ^{137}Cs は5倍程度ではほぼ一致していると言えるが、 ^{85}Sr では大きさが1桁異なっていた。この ^{85}Sr における違いは、分配係数測定時と本核種移行試験時における土壤に接触している水中の Ca^{2+} 濃度の違いによるものと考えられる。すなわち、分配係数測定では、ローム層から溶出する Ca^{2+} 濃度が比較的高い (1時間振盪後の Ca^{2+} 濃度は間隙水濃度換算で約 1 meq/l) ものと思われるけれども、本核種移行試験では、土壤表面から Ca^{2+} を含まない放射性水溶液がたえず供給される状態で、水が土壤と接触する時間が短いため溶出する Ca^{2+} 濃度が低く、その結果 ^{85}Sr の移行に対して Ca^{2+} の影響を余り受けず、ローム層の遅延係数が大きく評価されたものと思われる。

フィッティングカーブ (Figs. 7~10) は、約10cmまでの土壤表面では比較的良い一致が見られる。しかし、深部では放射能濃度分布の一致が見られない。これは、深部への核種移行には非イオン形による移行が関与しているためと未攪乱状態の土壤が、前述した理由等により不均一である部分が存在するためであることが考えられる。この低濃度部分について、カラム内土壤を無限鉛直方向に同じ地層が存在すると仮定して、土壤中を移動した水の移動距離 $D_{\text{H}_2\text{O}}$ と放射性核種が移行した距離 D_{RI} との比 R を計算した。計算には、低濃度部分の放射能濃度 $1 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$ における核種の移行距離 D_{RI} (Table 4 参照) と土壤中の水の移動速度 (Table 1 参照) から求めた水の移動距離 $D_{\text{H}_2\text{O}}$ を使用した。非イオン形核種の遅延を表わすパラメーターと考えられる $D_{\text{H}_2\text{O}}$ と D_{RI} の比 R は、Table 7 に示すように、 K_f に比べていずれの試験の場合も約1~2桁小さな値を示した。土壤の種類では、特に深部の凝灰質層の核種遅延効果が大きいことが認められた。

これらの結果から実際には、放射性核種の一部は従来の核種移行モデルにより予測できないものが不飽和土壤中を移行することを表わしている。

このように、汚染箇所付近の高濃度部分については、従来の核種移行モデルが適応可能であると考えられるが、より深部における低濃度部分については、多くの影響因子 (地質の構成、土壤の物理化学的性質、核種の化学形等) が介在するため、これら影響因子を含んだ移行解析モデルが必要である。このようなモデルについては、すでに数件提案されているが¹⁵⁾⁻¹⁹⁾、均一な地質を仮定しているため、土壤層の性質の違いに対応し難い等、実際の地層についての適応にはさらに多くの問題があるものと考えられる。

5. 結 言

本研究で得られた結果を以下にまとめて示す。

1) 流出液中の核種濃度は、試験US-1~US-4のいずれの場合も、 ^{60}Co は僅かに流出するが、 ^{85}Sr および ^{137}Cs は検出限界以下であり、これら土壤は、放射性核種に対して大きな保持能力を有した。この流出した ^{60}Co の大部分はフィルターに捕捉されない形で流出しており、また、 ^{137}Cs では、流出液には検出されず、フィルターに捕捉されたことから、土壤中の土壤微細粒子（懸濁物質）に吸着した形で一部が水とともに流出するものと考えられる。結局、各試験において ^{60}Co および ^{137}Cs は、非常に僅かな部分ではあるが、移行し易い非イオン形で土壤中を移行するものと考えられた。

2) 土壤中の核種移行は、高濃度部分 ($1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$) と低濃度部分 ($1 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$) とでは異なり、高濃度部分は、各試験ともに核種の移行は小さく、土壤表面から数cm~10cm以内であった。土壤の種類によらず、各核種ともに大部分が土壤表面付近にイオン形で吸着した。これに対して、低濃度部分は、かなり深部まで移行した。このような土壤中核種分布状況は、核種の化学形および土壤の種類双方によるものと判断された。

3) 従来行われている不飽和土壤中における核種移行モデルを用いて算出した放射性核種の遅延係数 K_f は、イオン交換平衡が成立つと考えられる高濃度部分においては、 10^3 オーダー以上の大きな遅延係数が得られ、分配係数の大ききで分るように、これら土壤が大きな核種保持能力を有することが示された。一方、低濃度部分においては、一部ではあるが非イオン形での移行が関与するため、高濃度部分から求めた値に比べて小さな値を示した。土壤の種類では、特に凝灰質層の核種遅延効果が大きいことが認められた。

おわりに、本報告書を作成するにあたり、貴重な御助言をいただいた浅地処分研究室の神山秀雄室長に深く感謝の意を表します。また、土壤試料を採取するにあたり、多大な御協力をいただいた日本原燃産業株の方々に深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会：“放射性廃棄物処理処分方策について（中間報告）”（1983）.
- 2) 和達嘉樹, 山本忠利, 武部慎一, 大貫敏彦, 鷲尾方一, 原田芳金, 斎藤和明：日本原子力学会誌, 24, 182 (1982).
- 3) 和達嘉樹, 山本忠利：“放射性廃棄物フォーラム 84” p22, 東京 (1984).
- 4) 山本忠利, 大塚芳郎, 小川弘道, 和達嘉樹：日本原子力学会誌, 30, 942 (1988).
- 5) 山本忠利, 大塚芳郎, 武部慎一, 大貫敏彦, 小川弘道, 原田芳金, 斎藤和明, 和達嘉樹：JAERI-M 84-125 (1984).
- 6) 大貫敏彦, 山本忠利：JAERI-M 85-096 (1985).
- 7) 小川弘道, 大貫敏彦, 山本忠利, 和達嘉樹：JAERI-M 85-061 (1985).
- 8) 山本忠利, 武部慎一, 和達嘉樹：RADIOISOTOPES, 29, 373 (1980).
- 9) 武部慎一, 山本忠利：RADIOISOTOPES, 37, 681 (1988).
- 10) M. Fukui and K. Katsurayama：Health Phys., 28, 717 (1977).
- 11) 小川弘道, 山本忠利, 和達嘉樹：保健物理, 22, 421 (1987).
- 12) Y. Inoue and W. J. Kaufman：Health Phys., 9, 705 (1963).
- 13) 井上頼輝, 赤木文行：土木学会第26回年次学術講演会講演集, p633 (1971).
- 14) 小川弘道, 大貫敏彦：JAERI-M 86-102 (1986).
- 15) 大貫敏彦, 和達嘉樹：日本原子力学会誌, 25, 486 (1983).
- 16) H. Ogawa：J. Nucl. Sci. Technol., 25, 283 (1988).
- 17) H. Ogawa：J. Nucl. Sci. Technol., 25, 594 (1988).
- 18) 加藤尚武, 村上徹郎, 田坂広志, 上田真三：日本原子力学会誌, 29, 834 (1987).
- 19) 大貫敏彦, 和達嘉樹：日本原子力学会誌, 26, 880 (1984).

Table 1 Properties of soil layer samples used in this test.

Measurement item	Test No.			
	US-1	US-2	US-3	US-4
Solid phase (vol%)	26.2	22.1	50.1	55.1
Liquid phase (vol%)	64.2	71.7	47.6	40.8
Gaseous phase (vol%)	9.6	6.2	2.3	4.9
Sand (wt%)	17.5	18.0	83.5	83.5
Silt (wt%)	39.0	41.0	8.5	8.5
Clay (wt%)	43.5	41.0	8.0	8.0
Density (g/cm ³)	2.77	2.76	2.68	2.67
Permeability coefficient (cm/s)	6.5×10^{-5}	4.1×10^{-4}	2.5×10^{-4}	9.3×10^{-5}
Cation exchange capacity (meq/100g)	14.1	11.6	3.5	6.0
Surface area (m ² /g)	73.0	88.3	39.6	23.6
Soil pH (H ₂ O)	5.6	6.3	5.9	6.9
Distribution coefficient (ml/g)	⁶⁰ Co 2.0×10^3 ⁸⁵ Sr 3.7×10^2 ¹³⁷ Cs 5.4×10^3	1.2×10^3 3.0×10^2 5.0×10^3	4.6×10^3 2.8×10^3 5.8×10^3	2.4×10^3 3.4×10^3 5.8×10^3
Dispersion coefficient (cm ² /min)	7.7×10^{-2}	7.7×10^{-2}	2.6×10^{-1}	8.2×10^{-2}
[Flow velocity (cm/min)]	1.4×10^{-2}	1.4×10^{-2}	2.0×10^{-2}	1.5×10^{-2}

Table 2 Conditions of test.

Conditions	Test No.			
	US-1	US-2	US-3	US-4
1. Radioactive solution				
Concentration (μ Ci/ml)				
^{60}Co	6.5×10^{-3}	4.3×10^{-3}	4.4×10^{-3}	3.8×10^{-3}
^{85}Sr	6.1×10^{-3}	4.2×10^{-3}	4.2×10^{-3}	4.5×10^{-3}
^{137}Cs	7.2×10^{-3}	4.8×10^{-3}	4.4×10^{-3}	3.7×10^{-3}
Na ⁺ -concentration (ppm)	1.6	2.5	3.1	1.1
pH	6.0	6.1	6.2	6.2
2. Inflow condition				
Flow rate (l/h)	0.386	0.519	0.256	0.287
Time (h)	622	462	937	837
Inflow RI solution volume (l)	240	240	240	240

Table 3 Amount of desorption from radionuclides adsorbed on soil.

Soil Sample	Desorption ratio (%)		
	^{60}Co	^{85}Sr	^{137}Cs
Loamy soil	0.05~2.4 (1.8)	1.1~11.2 (8.5)	0.03~0.2 (0.05)
Sandy soil	0.02~2.5 (1.2)	0.6~6.2 (4.4)	0.03~0.2 (0.06)
Tuff soil	0.02~1.8 (0.7)	0.03~1.4 (0.6)	0.03~0.1 (0.03)

Condition : Soil; Contaminated dry soil 10 g
 Solvent ; Distilled water 400 ml
 Desorption time ; 10 days

() : Average value of ten soil samples

Table 4 Migration distance of radionuclides for soil layer samples.

Test No.	Radioactive concentration (μ Ci/g)		Migration distance (cm)		
			^{60}Co	^{85}Sr	^{137}Cs
US-1	1×10^{-2}	A	8.6	3.0	3.6
		B	9.4	7.1	6.1
		C	11.5	7.1	7.1
	1×10^{-4}	A	58.6	21.4	20.8
		B	71.6	34.5	31.8
		C	77.4	28.6	28.6
US-2	1×10^{-2}	A	4.8	4.8	3.6
		B	6.0	6.0	4.8
		C	3.0	3.0	3.0
	1×10^{-4}	A	31.5	22.6	22.6
		B	31.5	28.6	25.6
		C	24.4	22.6	17.3
US-3	1×10^{-2}	A	4.8	4.4	2.4
		B	5.4	4.7	1.8
		C	8.3	6.5	2.4
	1×10^{-4}	A	25.0	19.6	13.5
		B	22.6	20.2	18.0
		C	41.7	24.3	21.4
US-4	1×10^{-2}	A	1.2	1.2	1.8
		B	1.2	1.2	1.2
		C	1.6	1.0	1.4
	1×10^{-4}	A	6.1	4.8	4.2
		B	6.0	5.4	4.8
		C	7.1	6.5	7.1

A, B, C : A; Center, B; 7.5cm apart from center, C; 12.5cm apart from center

Table 5 Retardation factor of radionuclides for soil layer samples.

Test No.		Retardation factor K_r		
		^{60}Co	^{85}Sr	^{137}Cs
US-1	A	4.8×10^3	5.6×10^3	6.0×10^3
	B	6.0×10^3	5.4×10^3	5.8×10^3
	C	4.4×10^3	4.0×10^3	4.5×10^3
US-2	A	3.2×10^3	3.3×10^3	6.4×10^3
	B	4.9×10^3	4.3×10^3	6.3×10^3
	C	6.1×10^3	6.5×10^3	8.5×10^3
US-3	A	1.2×10^4	1.2×10^4	2.3×10^4
	B	5.7×10^3	6.9×10^3	2.8×10^4
	C	1.1×10^4	9.9×10^3	1.7×10^4
US-4	A	7.6×10^3	7.3×10^3	1.2×10^4
	B	1.4×10^4	1.3×10^4	8.9×10^3
	C	1.1×10^4	1.2×10^4	1.8×10^4

A, B, C : A; Center, B; 7.5cm apart from center, C; 12.5cm apart from center

Table 6 Retardation factor calculated from distribution coefficient by batch method.

Test No.	Retardation factor K_r		
	^{60}Co	^{85}Sr	^{137}Cs
US-1	2.3×10^3	4.2×10^2	6.1×10^3
US-2	1.0×10^3	2.6×10^2	4.3×10^3
US-3	1.3×10^4	7.9×10^3	1.6×10^4
US-4	8.6×10^3	1.2×10^4	2.1×10^4

Table 7 Ratio of water migration distance D_{H_2O} to radionuclide migration distance D_{RI} .

Test No.		^{60}Co	D_{H_2O}/D_{RI}	
			^{85}Sr	^{137}Cs
US-1	A	8.9	2.4×10	2.5×10
	B	7.3	1.5×10	1.6×10
	C	6.7	1.8×10	1.8×10
US-2	A	1.8×10	2.5×10	2.5×10
	B	1.8×10	1.9×10	2.2×10
	C	2.3×10	2.5×10	3.2×10
US-3	A	3.4×10	4.3×10	6.2×10
	B	3.7×10	4.2×10	4.7×10
	C	2.0×10	3.4×10	3.9×10
US-4	A	1.2×10^2	1.6×10^2	1.8×10^2
	B	1.3×10^2	1.4×10^2	1.6×10^2
	C	1.1×10^2	1.2×10^2	1.1×10^2

A, B, C : A; Center, B; 7.5cm apart from center, C; 12.5cm apart from center

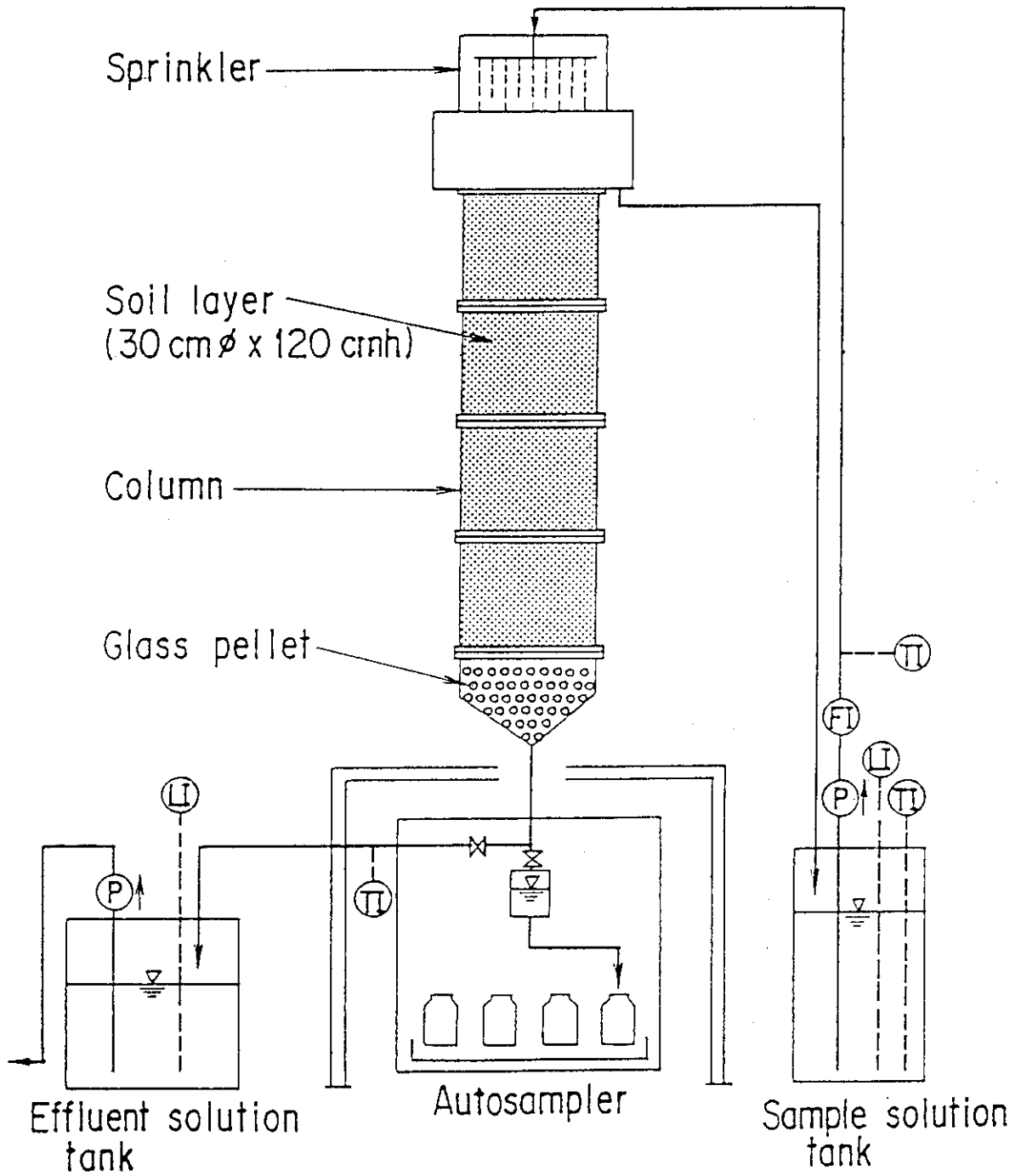


Fig. 1 Schematic diagram of soil layer apparatus for radionuclides migration.

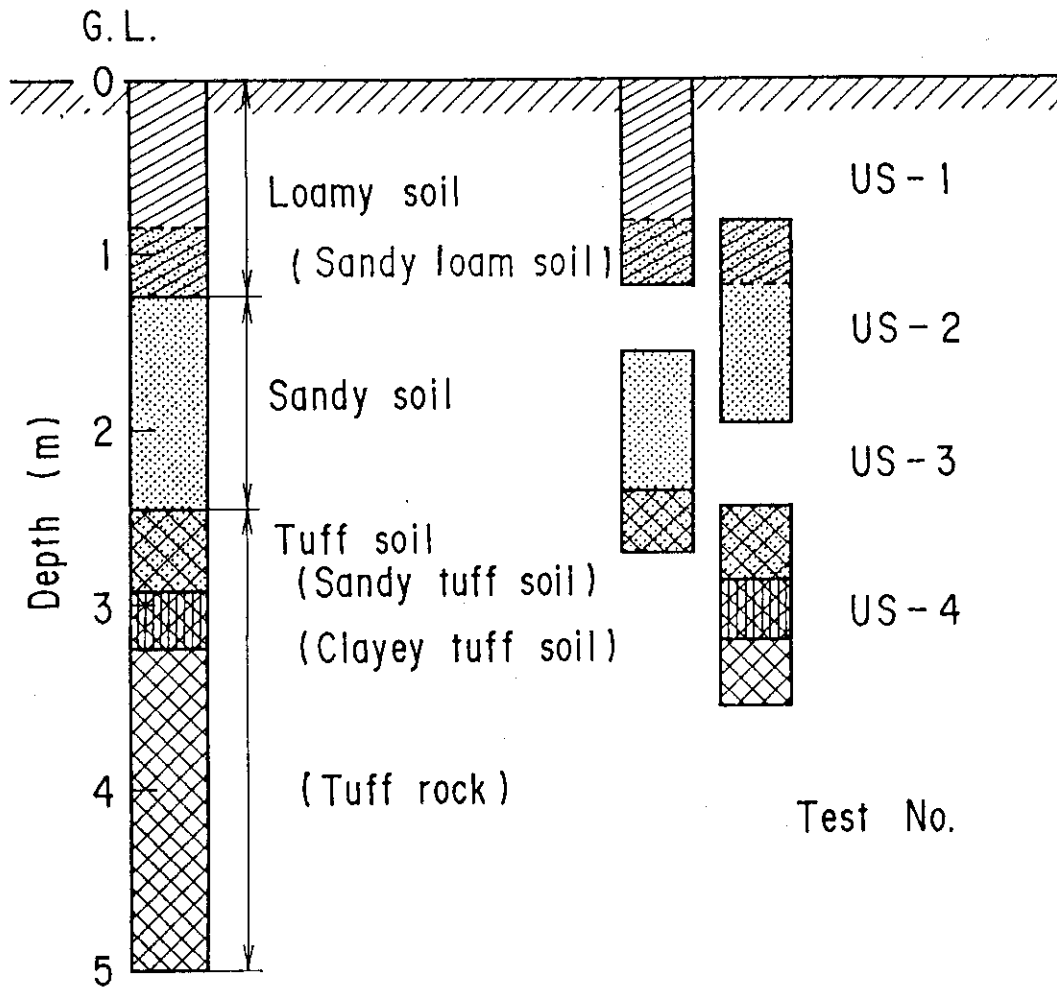


Fig. 2 Geological structure of soil layer sample used in this test.

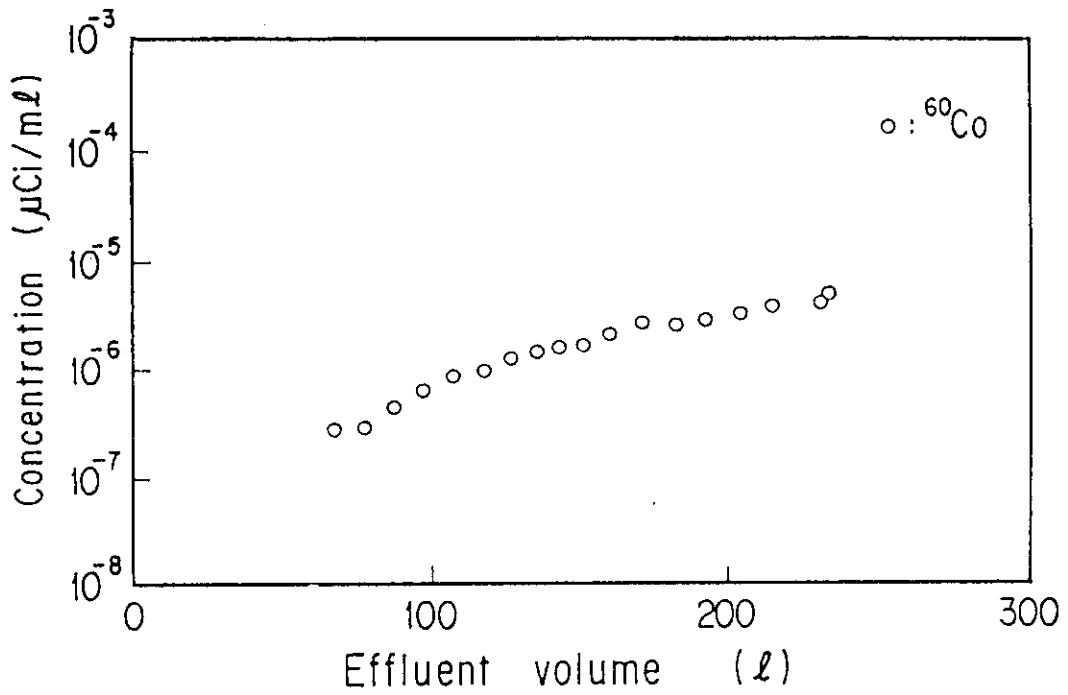


Fig. 3 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-1).

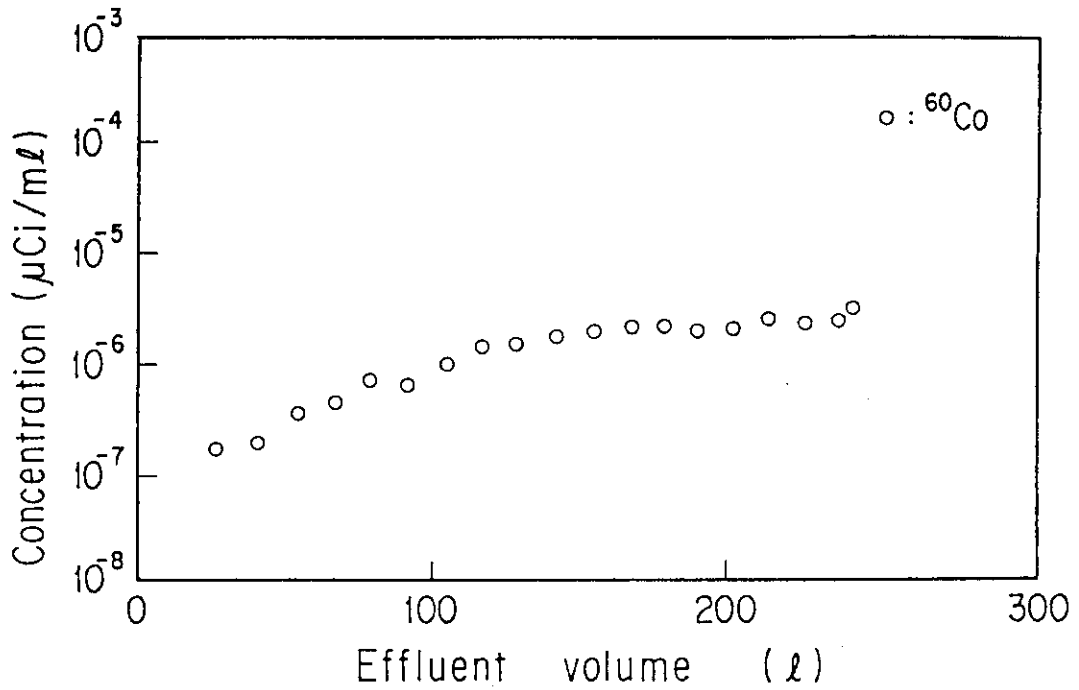


Fig. 4 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-2).

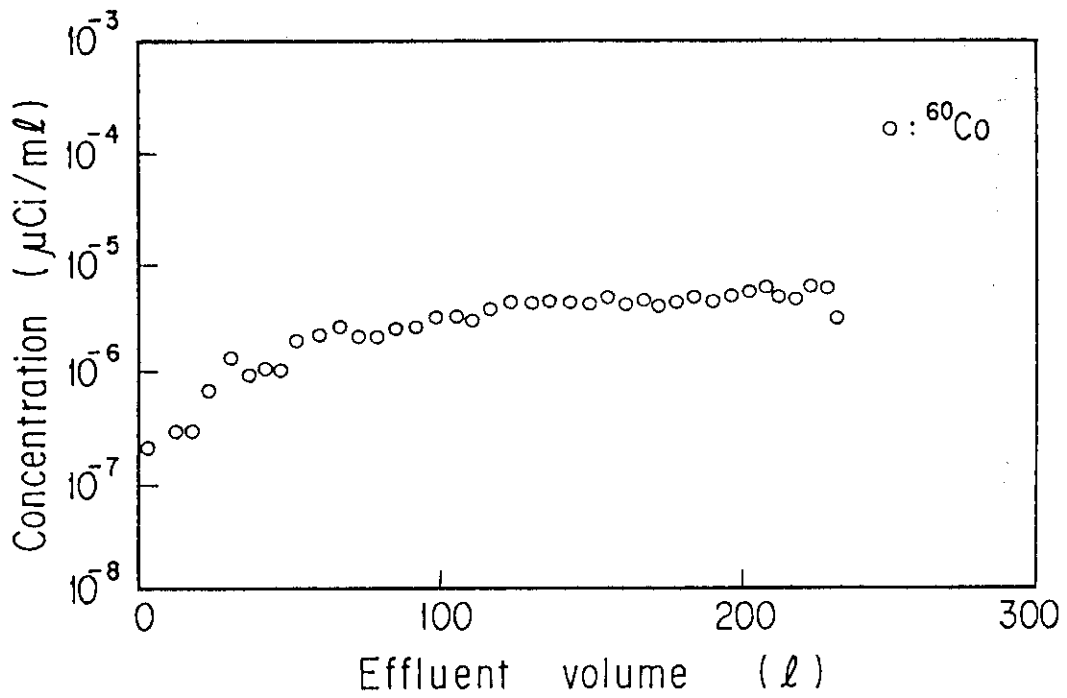


Fig. 5 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-3).

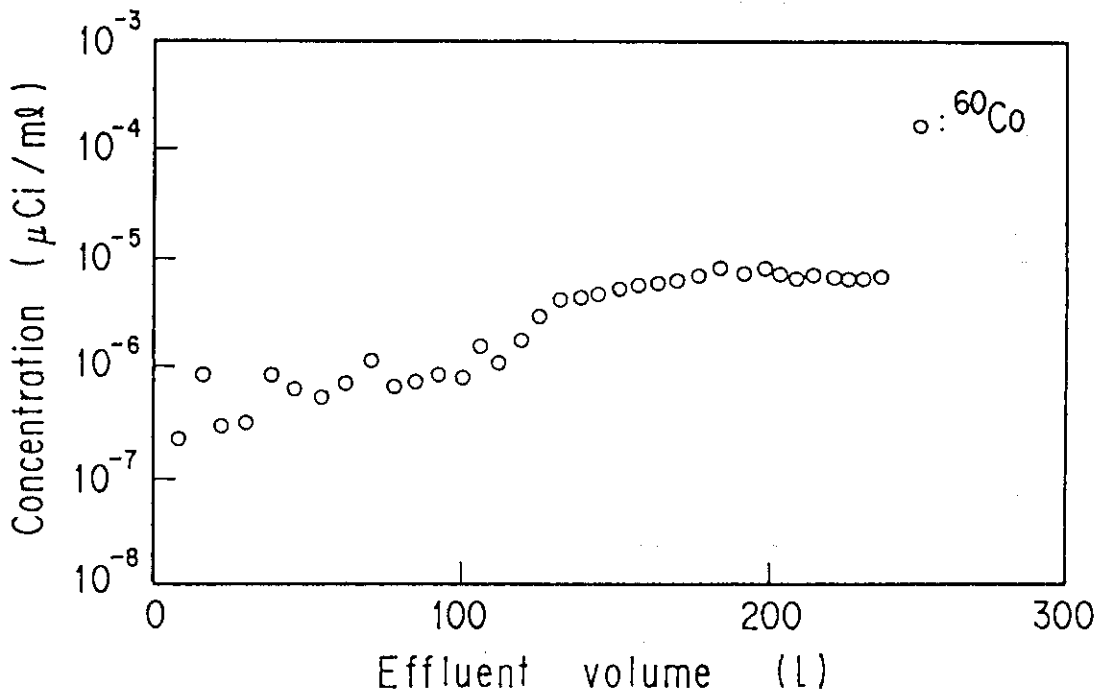


Fig. 6 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-4).

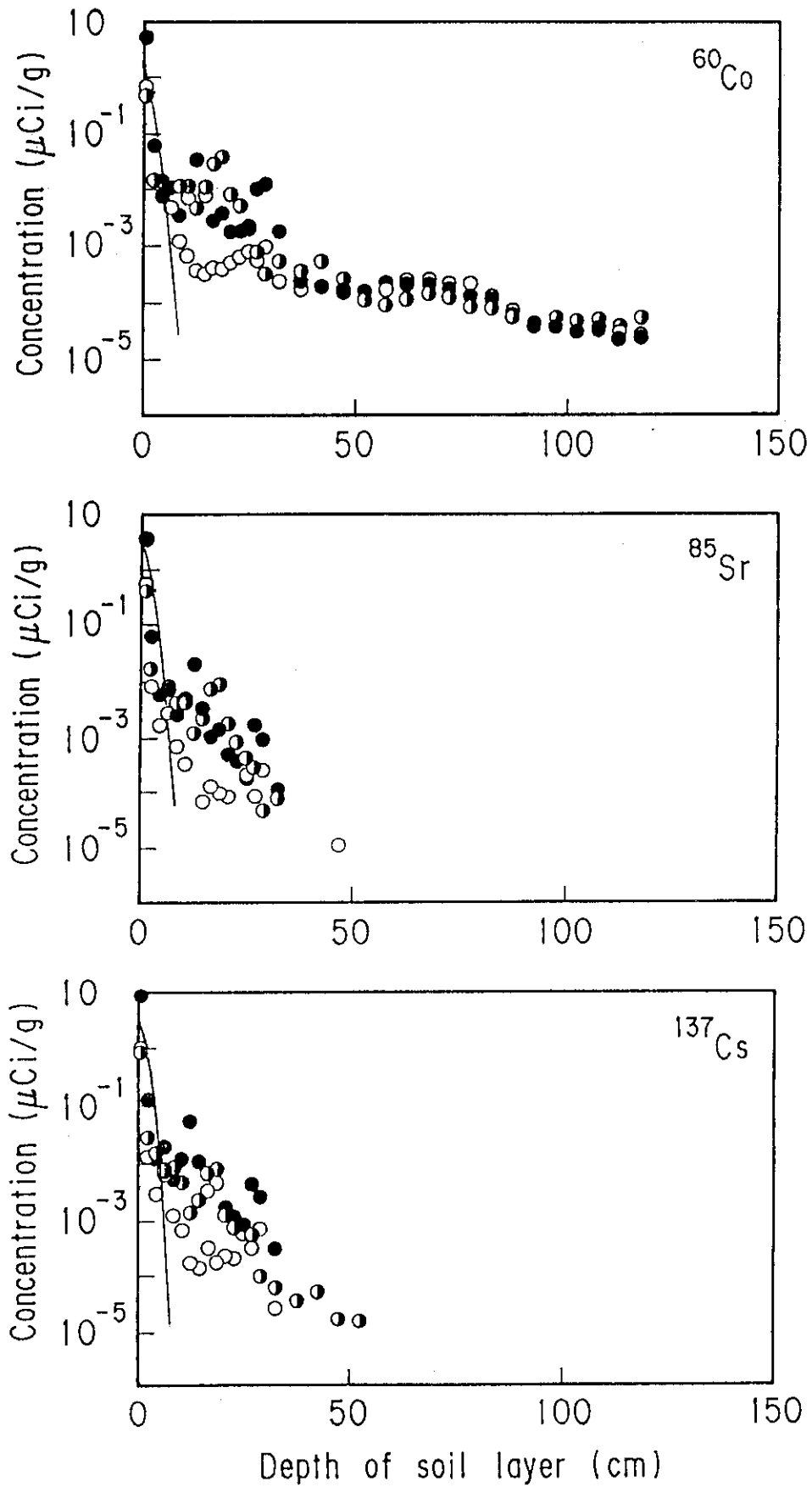


Fig. 7 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-1).
 (○:Center, ◐:7.5cm apart from center, ●:12.5cm apart from center).

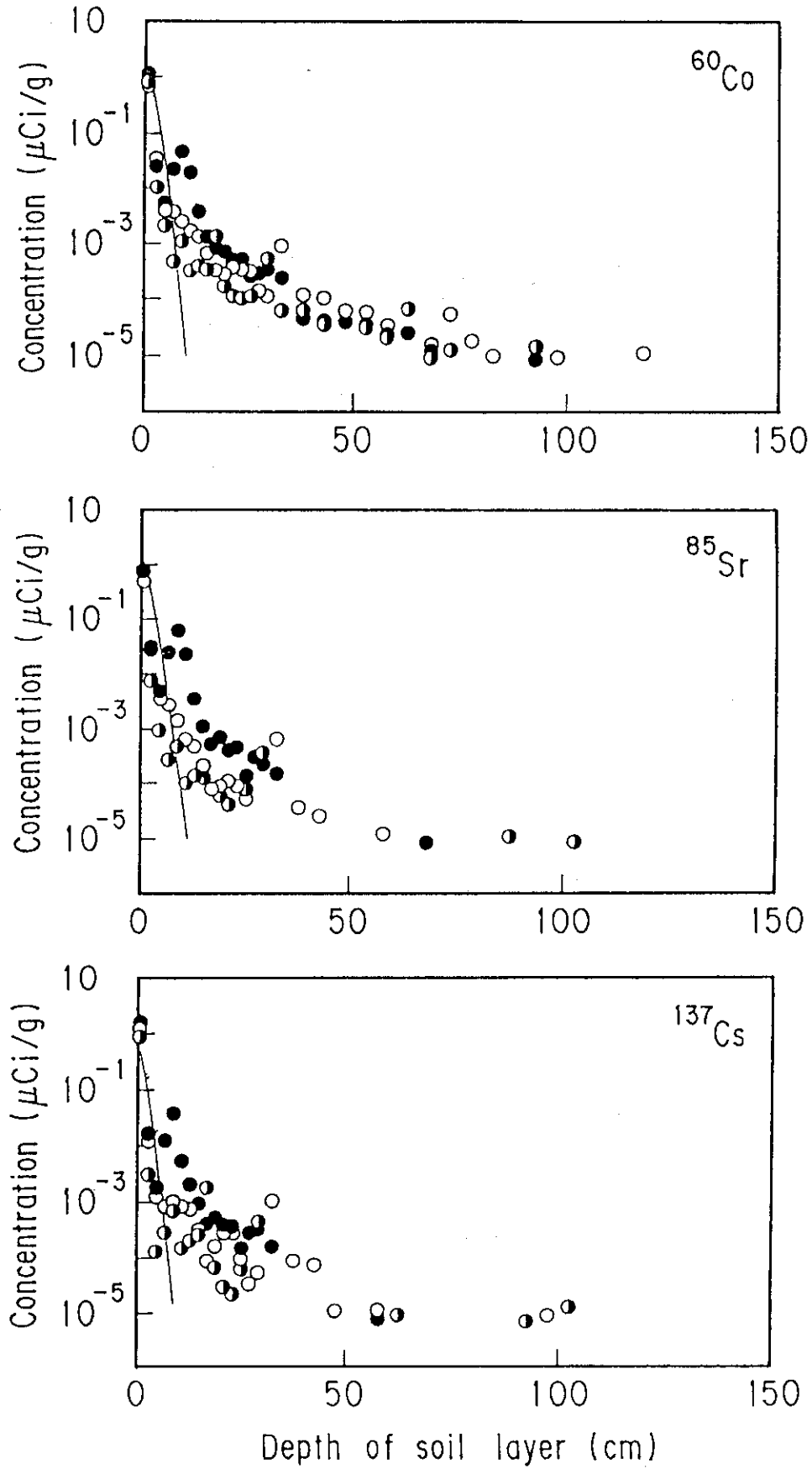


Fig. 8 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-2).
 (○:Center, ◐:7.5cm apart from center, ●:12.5cm apart from center)

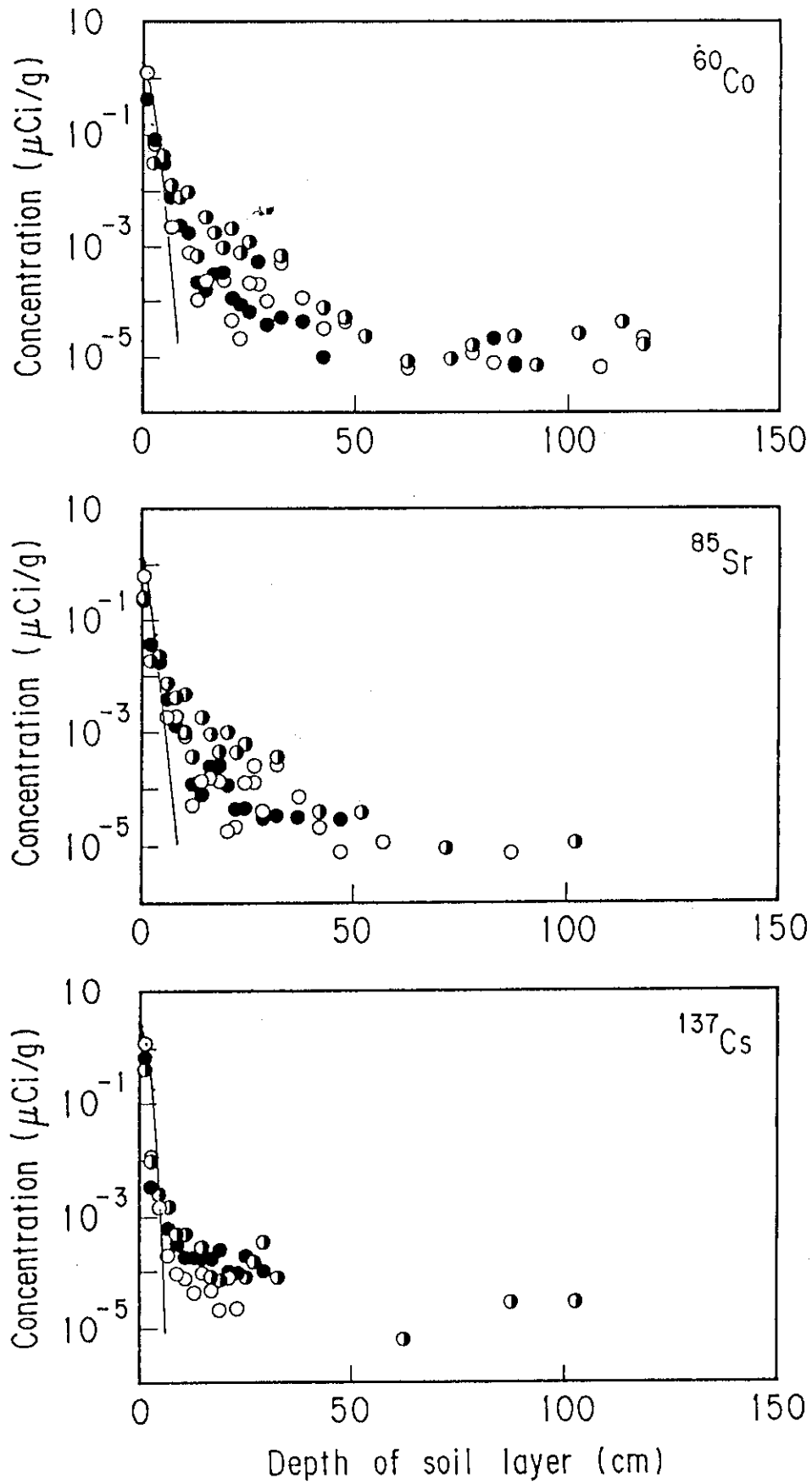


Fig. 9 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-3).
 (○:Center, ◐:7.5cm apart from center, ●:12.5cm apart from center)

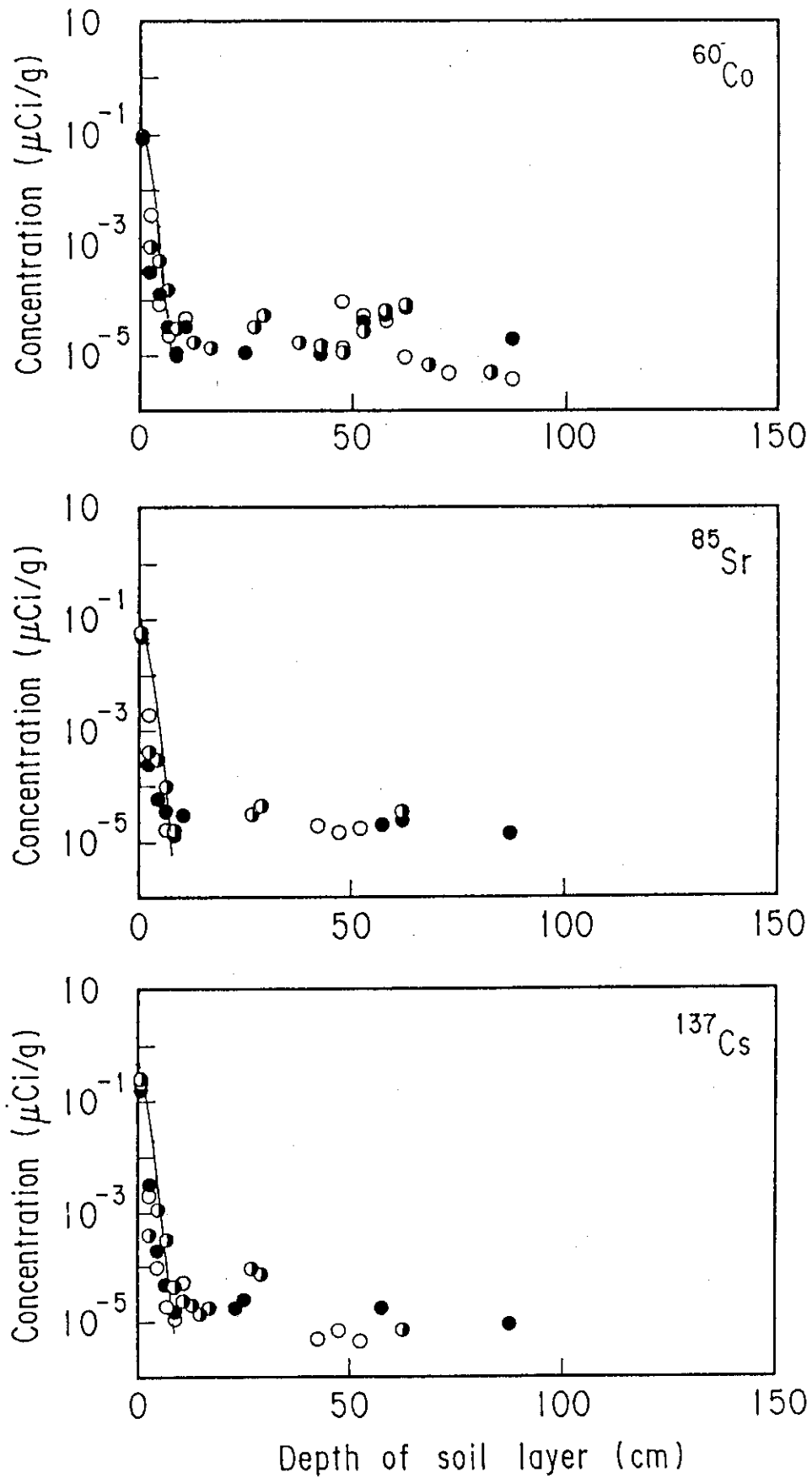


Fig. 10 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-4).
 (○:Center, ◐:7.5cm apart from center, ●:12.5cm apart from center)

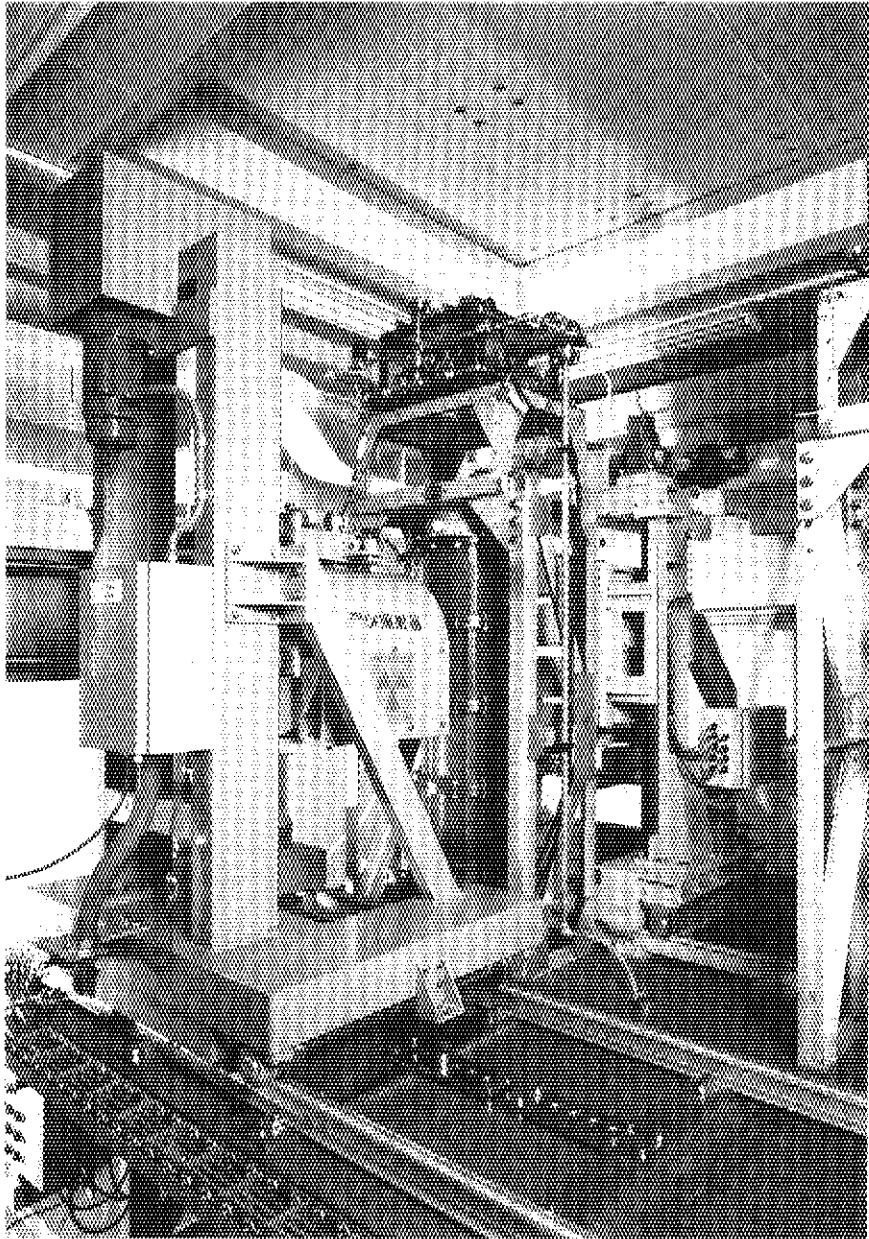


Photo.1 Soil layer apparatus for radionuclides migration.