

JAERI - M  
89-189

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

—— 降水による通気層核種移行試験 ——

1989年11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

日 本 原 子 力 研 究 所  
Japan Atomic Energy Research Institute

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, 1989

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 山田軽印刷所

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

— 降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10月20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、降水模擬条件での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、 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ は検出限界( $2 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ )以下であり、流出を示した $^{60}\text{Co}$ においても $10^{-7} \sim 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度の小さな値であった。土壌中の核種移行については、土壌層表面では指数関数的な濃度減少を示し、土壌の種類によらず、各核種の大部分がイオン形で吸着した。これに対して、土壌層深部では緩やかな濃度減少を示し、核種および土壌の種類により深部における非イオン形の移行が異なった。さらに、土壌表面付近における高濃度部分の核種濃度分布から、核種の遅延係数を計算したところ、 $10^3 \sim 10^4$ の大きな遅延係数を得た。これら土壌は、イオン形核種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し、高濃度部分の値に比べて1~2桁小さな値を示した。放射性汚染水流下による核種移行試験と比較したところ、土壌層表面の濃度分布では遅延係数が多少異なった。一方、土壌層深部の濃度分布では、ローム層上部で $^{60}\text{Co}$ の僅かに大きな遅延係数が認められた。

Migration Behavior of Radionuclide in Soil Layer of Final Storage Site  
- Radionuclide Migration Test in Aerated Soil Layer by Precipitation -

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 October 20, 1989)

Radionuclide migration tests by precipitation 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  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in effluent was less than detection limit ( $2 \times 10^{-7}$   $\mu\text{Ci/ml}$ ), and that of  $^{60}\text{Co}$  was  $10^{-7} \sim 10^{-6}$   $\mu\text{Ci/ml}$ . In the surface soil layer, radionuclide concentration decreased exponentially with depth. A large portion of ionic radionuclide was adsorbed on the surface of soil layer and its behavior was not dependent on kinds of soil layer. In the deeper soil layer, radionuclide concentration decreased smoothly with depth. A difference in the migration of non-ionic radionuclides was observed and caused by the kinds of radionuclide and soil layer. Calculating the retardation factor from the portion of high concentration in the surface soil layer, value of  $10^3 \sim 10^4$  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 radionuclides 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. Compared with the result of radionuclide migration test by flow down of radioactive contaminated water, some differences in retardation factor were obtained from concentration distribution of surface soil layer in this test. A slight larger retardation factor of  $^{60}\text{Co}$  for the upper layer of loamy soil was observed in the deeper soil layer.

Keywords: Migration Behavior, Radionuclide Migration Test, Soil Layer, Precipitation, 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 放射性水溶液および降水の流下	1
2.2 放射能測定	2
3. 試験結果および考察	3
3.1 流出液中核種濃度	3
3.2 土壤中核種濃度	3
3.3 遅延係数による比較	4
4. 結 言	5
参 考 文 献	6

## Contents

1. Introduction	1
2. Testing method	1
2.1 Inflow of radioactive aqueous solution and precipitation	1
2.2 Measurement of radioactivity	2
3. Results and discussion	3
3.1 Radioactive concentration in effluent	3
3.2 Radioactive concentration in soil layer	3
3.3 Comparison by retardation factor	4
4. Conclusion	5
References	6

## 1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物を地表面近くの地中に構築したコンクリートピットに収納する方針<sup>1)</sup>の下で、青森県六ヶ所村に低レベル放射性廃棄物貯蔵センターが計画中である。著者らは、放射性核種の地中移行に関する研究として、未攪乱状態で採取した土壌試料を用いた実験室規模での核種移行試験を行い、現実的なデータを得るとともに種々の新しい知見を得てきた<sup>2), 3)</sup>。また、低レベル放射性廃棄物最終貯蔵予定地の地層について、放射性核種の地中移行データを得るため、未攪乱状態で採取した深度別の土壌試料を用いて核種移行試験を行った。

前報<sup>4)</sup>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た試験を行い、各核種の大部分は土壌表面付近に吸着することを確認した。さらに、少量の<sup>60</sup>Coがローム層上部で移行することが認められたが、ローム層下部、砂層および凝灰質層では各核種の移行はさほど大きくなく、大きな遅延係数を有することを明らかにした。

本報は、コンクリートピットから汚染水が漏出して通気層土壌を汚染し、その後降水による核種移行を想定して、放射性水溶液を通気層土壌試料に流下させて土壌表面を汚染させた後、降雨を模擬して水を均一に散布する試験を実施した結果である。試験の目的は、水による溶離における土壌に吸着した放射性核種の土壌内移行挙動を明らかにするとともに、得られた結果を前報と比較して土壌層の放射性核種遅延効果を評価することである。

## 2. 試 験 方 法

### 2.1 放射性水溶液および降水の流下

試験は、汚染土壌からの降雨による核種移行を想定して、放射性水溶液を通気層土壌に流入し、土壌表面を汚染させた後、水を流下させる方法である。試験に使用した装置は、放射性汚染水による通気層核種移行試験の場合に使用した装置と流入機構部を除いて全く同じである<sup>5)</sup>。一方、試験用土壌試料Bは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採取した深度別のもの、放射性汚染水による通気層核種移行試験の場合に使用した土壌試料Aより西方約5 m離れた場所のものである。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 ~ 1.2 m)、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試料をそれぞれの試験US-5 ~ US-8に供した。これら土壌試料の物性値をTable 1に示す。透水係数については、場所の違いによる影響を受け易いローム層上部と下部で土壌試料Aと大きな差異が認められるが、その他の物性については、土壌試料Aとほぼ同様な数値を示している。したがって、地質的には同一の場所と見なせるものと考えられる。

## 1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物を地表面近くの地中に構築したコンクリートピットに収納する方針<sup>1)</sup>の下で、青森県六ヶ所村に低レベル放射性廃棄物貯蔵センターが計画中である。著者らは、放射性核種の地中移行に関する研究として、未攪乱状態で採取した土壌試料を用いた実験室規模での核種移行試験を行い、現実的なデータを得るとともに種々の新しい知見を得てきた<sup>2), 3)</sup>。また、低レベル放射性廃棄物最終貯蔵予定地の地層について、放射性核種の地中移行データを得るため、未攪乱状態で採取した深度別の土壌試料を用いて核種移行試験を行った。

前報<sup>4)</sup>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た試験を行い、各核種の大部分は土壌表面付近に吸着することを確認した。さらに、少量の<sup>60</sup>Coがローム層上部で移行することが認められたが、ローム層下部、砂層および凝灰質層では各核種の移行はさほど大きくなく、大きな遅延係数を有することを明らかにした。

本報は、コンクリートピットから汚染水が漏出して通気層土壌を汚染し、その後降水による核種移行を想定して、放射性水溶液を通気層土壌試料に流下させて土壌表面を汚染させた後、降雨を模擬して水を均一に散布する試験を実施した結果である。試験の目的は、水による溶離における土壌に吸着した放射性核種の土壌内移行挙動を明らかにするとともに、得られた結果を前報と比較して土壌層の放射性核種遅延効果を評価することである。

## 2. 試 験 方 法

### 2.1 放射性水溶液および降水の流下

試験は、汚染土壌からの降雨による核種移行を想定して、放射性水溶液を通気層土壌に流入し、土壌表面を汚染させた後、水を流下させる方法である。試験に使用した装置は、放射性汚染水による通気層核種移行試験の場合に使用した装置と流入機構部を除いて全く同じである<sup>5)</sup>。一方、試験用土壌試料Bは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採取した深度別のもの、放射性汚染水による通気層核種移行試験の場合に使用した土壌試料Aより西方約5m離れた場所のものである。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. 0~1.2 m)、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試料をそれぞれの試験US-5~US-8に供した。これら土壌試料の物性値をTable 1に示す。透水係数については、場所の違いによる影響を受け易いローム層上部と下部で土壌試料Aと大きな差異が認められるが、その他の物性については、土壌試料Aとほぼ同様な数値を示している。したがって、地質的には同一の場所と見なせるものと考えられる。



試験に使用した放射性水溶液は、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$  および $^{137}\text{Cs}$ の混合液である。使用した $^{60}\text{Co}$ および $^{137}\text{Cs}$ はRadiochemical Centre製、 $^{85}\text{Sr}$ はNew England Nuclear製であり、化学形はいずれも塩化物である。一方、降水には、核種移行に影響を与えるほどの溶存イオン量を含んでいないので、試験の再現性を高める上で実際の降水の代わりに蒸留水を使用した。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。放射性水溶液の放射能濃度は各核種とも約 $2\sim 3 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。

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およびヘッドタンクを経て、土壤中に埋め込んだ円筒形ノズル（内径 $200\text{mm}\phi \times 80\text{mmh}$ ）に送り土壤中に加圧流入した（Fig. 1参照）。ノズルの埋め込み深さは土壌表面より $3\text{cm}$ とした。この場合、放射性水溶液 $40\text{l}$ を、試験US-5では $0.171\text{l}/\text{h}$ 、試験US-6では $0.255\text{l}/\text{h}$ 、試験US-7では $0.227\text{l}/\text{h}$ 、試験US-8では $0.195\text{l}/\text{h}$ で注入した。

次いで、ノズルを撤去して蒸留水を散布器により土壌表面に均一に散布した。この場合、蒸留水 $200\text{l}$ を、試験US-5では $0.277\text{l}/\text{h}$ 、試験US-6では $0.515\text{l}/\text{h}$ 、試験US-7では $0.253\text{l}/\text{h}$ 、試験US-8では $0.373\text{l}/\text{h}$ で流下させた。降水量としては $2.8 \times 10^3\text{mm}/\text{cm}^2$ に相当する。これら土壌層は透水性が低いため、真空ポンプによる吸引により水の浸透を促進させながら排水系に流出させた。試験期間中、装置全体を収めたウェザールームの温度を一定に保持し、各箇所における温度をほぼ $20^\circ\text{C}$ に維持した。

## 2.2 放射能測定

試験中は、カラム下部からの流出液をオートサンプラーにより所定の時間間隔で $1\text{l}$ ずつ自動的にサンプリングした。ポリエチレン製容器に流出液を直接受け、そのまま放射性核種濃度測定に供した。放射性核種の濃度測定には、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。

流下試験終了後、散布器等を撤去してサンプリング器（内径 $37.5\text{mm}\phi \times 300\text{mm}\ell$ ）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 $7.5\text{cm}$ および $12.5\text{cm}$ ）から数本のサンプリングを行った。鉛直方向のサンプリング間隔は、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、表面から $30\text{cm}$ の深さまでは $2\text{cm}$ 間隔、 $30\text{cm}$ 以深では $5\text{cm}$ 間隔とした。このようにしてサンプリングした土壌を放射性核種濃度測定に供した。放射性核種の濃度測定は、サンプリングした土壌数+gをビーカーに入れ、乾燥した後、放射能濃度に応じて $8\text{cm}\phi$ のプラスチック容器に所定量（ $1\sim 10\text{g}$ ）を分取し、 $0.1\text{N HCl}$ を $50\text{ml}$ 加え、Ge半導体検出器により行った。測定限界は、 $^{85}\text{Sr}$ が $1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{g}$ 程度、 $^{60}\text{Co}$ および $^{137}\text{Cs}$ が $5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{g}$ 程度であった。

### 3. 試験結果および考察

#### 3.1 流出液中核種濃度

流出液中における $^{60}\text{Co}$ の濃度変化を、各試験に対してそれぞれFigs.2～5に示す。 $^{60}\text{Co}$ のみが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 $10^{-7} \sim 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度である。ローム層上部および下部に対する試験(US-5とUS-6)では、 $^{60}\text{Co}$ は放射性水溶液40ℓまでの流下初期で検出されず、続く蒸留水の流下に伴い、濃度が徐々に増加し、流出液量約100ℓでの最大濃度を経て、漸次減少する様相を示している。一方、砂層および凝灰質層に対する試験(US-7とUS-8)では、 $^{60}\text{Co}$ は放射性水溶液流下中の流出液量約10ℓから検出され、続く蒸留水流下中の流出液量約40～50ℓでの最大濃度を経て漸次減少する様相を示している。流出液量に対する $^{60}\text{Co}$ の濃度変化は、放射性水溶液の連続注入による前報<sup>4)</sup>の試験で得られた飽和形カーブと異なり、本試験の場合には蒸留水による溶離を反映して極大形の特徴的カーブを描いている。なお、 $^{85}\text{Sr}$ および $^{137}\text{Cs}$ は、いずれの試験の場合においても、検出限界以下であり、両核種は土壤にほとんど吸着されたことになる。

$^{60}\text{Co}$ の流出終了時の濃度は、各試験ともに約 $10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ を示し、 $^{60}\text{Co}$ の流出比 $\text{Ci}/\text{Co}$ (流出液中の放射能濃度 $\text{Ci}(\mu\text{Ci}/\text{ml})$ /流下前の放射性水溶液の濃度 $\text{Co}(\mu\text{Ci}/\text{ml})$ )を計算すると、試験US-5では $1.7 \times 10^{-5}$ 、試験US-6では $3.3 \times 10^{-5}$ 、試験US-7では $8.7 \times 10^{-5}$ 、試験US-8では $4.0 \times 10^{-5}$ を示した。このように流出濃度比についてみると、 $^{60}\text{Co}$ は初期濃度の約 $1/10,000 \sim 1/100,000$ の小さな値を示した。また、 $^{85}\text{Sr}$ および $^{137}\text{Cs}$ は検出限界値を考慮するとさらに約 $1/100,000$ 以下のきわめて小さな値になることが推測できた。以上のことから、土壤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、前報と同様に、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、 $^{85}\text{Sr}$ はフィルターに捕捉されなかったが、 $^{60}\text{Co}$ および $^{137}\text{Cs}$ は極く僅かな量がフィルターに捕捉された。 $^{60}\text{Co}$ では約10%、 $^{137}\text{Cs}$ ではほぼ100%がフィルターに捕捉された。これらの結果は前報の結果と良く一致している。

これらのことから、 $^{60}\text{Co}$ は流出する大部分はフィルターに捕捉されない非イオン形、すなわち水酸化物となっているものと考えられる。一方、 $^{137}\text{Cs}$ はフィルターにおいて捕捉されたことから、土壤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た。

#### 3.2 土壤中核種濃度

試験終了後における土壤中核種濃度の1次元分布をFigs. 6～9に示す。10 cmまでの土壤層表面では、各試験ともに核種濃度は指数関数的な減少を呈した。このことは、土壤の種類によらず、各核種ともに大部分が表面にイオン形で吸着されたことを示している。これに対して、土壤

層深部では、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僅かに異なる程度であった。前報<sup>4)</sup>と比較すると、放射性水溶液の流下によって土壌層表面に吸着した核種は、蒸留水の流下によって脱離、吸着を繰返し移行するイオン形の部分と土壌微細粒子に吸着した形、あるいは水酸化物形で移行する非イオン形の部分に分れることは同じであるが、深部における非イオン形の移行に核種による顕著な差が生じなかったことが核種の移行挙動として特徴的である。すなわち、前報における<sup>60</sup>Coの大きな移行は、本試験のような蒸留水による核種溶離の場合には見られなかった。

つぎに、イオン形での核種移行が支配的である高濃度部分 ( $10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ ) と非イオン形での核種移行が支配的である低濃度部分 ( $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ ) について、各核種に対して核種の移行距離を求めた。その結果を Table 3 に示す。表には、中心部 A、周辺部 B と C (中心から 7.5 cm と 12.5 cm) における 1 次元核種濃度分布より得られた移行距離を表わしている。核種の移行状況を土壌の種類で比較した場合、ローム層上部では低濃度部分が約 30 cm の深部まで移行していたが、凝灰質層では低濃度部分が約 10 cm の深部に留まっていた。ローム層下部と砂層では移行状況は似ており、ローム層上部と凝灰質層の中間的な移行状況であった。一方、高濃度部分は、いずれの試験の場合も、表面から 2~6 cm 以内に留まり、土壌の分配係数が大きいことが反映された。

### 3.3 遅延係数による比較

土壌表面付近ではイオン形での核種移行が支配的である<sup>4)</sup>ことから、前報の試験に対する解析の場合と同じ基本式が適用できると仮定して、約 10 cm までの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<sup>6), 7)</sup>。遅延係数の計算にあたっては、初期条件は、 $t=0$  で、 $C=0$  を、境界条件は放射性水溶液の流下時で、 $C_{x=0} = C_0$ 、蒸留水の流下時で、 $C_{x=0} = 0$  を、土壌の物性値は Table 1 の値をそれぞれ使用した。

計算により得られた結果を Table 4 に示した。表には、カラム中心部 A の位置における一次元核種濃度分布から求めた遅延係数を表わす。また、カラム中心部 A のフィッティングカーブを Figs. 6~9 において実線で示した。カーブと核種濃度分布の間には狭い範囲ではあるが比較的良好な一致が見られた。

Table 4 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  $K_f$  は  $10^3 \sim 10^4$  の大きな値を示した。また、いずれの土壌についても、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。核種間における遅延係数の大きな違いが見られないことから、土壌表面付近では 3 核種ともイオン吸着が支配的であると判断できる。

フィッティングカーブの一致が見られない土壌層深部では非イオン形での核種移行が支配的である<sup>4)</sup>ことから、この低濃度部分について、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土壌中を移動した水の移動距離  $D_{H_2O}$  と放射性核種が移行した距離  $D_{R1}$  の比  $R$  を計算した。計算には、低濃度部分の放射能濃度  $1 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{g}$  における核種の移行距離  $D_{R1}$  (Table 3 参照) と土壌中の水の移動速度 (Table 1 参照) から求めた水の移動距離  $D_{H_2O}$  を使用した。 $D_{H_2O}$  と

$D_{R1}$ の比RはTable 5に示すように、 $K_f$ に比べていずれの試験の場合も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。

さらに、各土壤層に対する高濃度部分の核種濃度分布から求めたイオン形核種の遅延係数について、前報<sup>4)</sup>の試験の結果と比較する。両試験における土壤層の物性値はほとんど同じであるが、本試験のような蒸留水による溶離方式の核種移行試験は汚染水流下による前報の試験(連続流入方式)と流入方式が異なるため、Table 4に示すように、両試験における放射性核種の遅延係数には多少の違いが生じている。特に、ローム層上部での遅延係数に大きな差が見られた。

一方、低濃度部分から求めた核種と水の移動距離の比Rについて、両試験の結果を比較すると、Table 5に示すように本試験の場合はローム層上部での $^{60}\text{Co}$ の値が前報の試験より約3倍大きくなり、流入方式の違いによって非イオン形の核種移行が影響を多少受けている。また、流入方式の違いによる $^{60}\text{Co}$ の非イオン形の移行が顕著に現われたローム層上部での $^{60}\text{Co}$ の濃度分布パターンを比較すると、Fig. 10に示されるように、本試験の場合は汚染水による前報の試験の場合と比べて、低濃度部分が約1桁小さな値を示した。すなわち、蒸留水の溶離によって非イオン形 $^{60}\text{Co}$ の部分が低下するという特徴的な濃度分布を示した。このことは、Fig. 11に示すように、前報の試験の場合と比べ、流出液中における $^{60}\text{Co}$ の濃度が大幅に低下していることとよく対応している。非イオン形 $^{60}\text{Co}$ の移行機構<sup>8)-10)</sup>については、多少の解明が進められているが、今回のような $^{60}\text{Co}$ の非イオン形の移行に流入方式による違いが生じたのは、本試験の場合には新たに供給される水による土壤に由来する無機成分を余り含まないため、土壤表面付近から深部への非イオン形部分の移行が起こりにくくなっていることが原因と考えられる。

上記の結果は、一旦汚染した土壤に降水等の地中水が浸透してきた場合に、放射性汚染水による核種移行と比較して、 $^{60}\text{Co}$ 等の非イオン形核種の移行がしにくくなることを意味しており、放射性廃棄物処分の安全評価における非イオン形核種の移行評価に対してきわめて重要な知見を与えるものである。

## 4. 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-5~US-8のいずれの場合も、 $^{60}\text{Co}$ は僅かに流出するが、 $^{85}\text{Sr}$ および $^{137}\text{Cs}$ 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 $^{60}\text{Co}$ 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 $^{137}\text{Cs}$ 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、土壤中に存在する微細粒子に吸着した形で一部水とともに流出するものと考えられる。
- 2) 土壤中の核種移行は、10 cmまでの土壤層表面では指数関数的な減少を呈し、土壤の種類によらず、各核種の大部分が表面付近にイオン形で吸着した。これに対して、土壤層深部では緩やかな減少を呈し、核種および土壤の種類により非イオン形での移行が僅かに異なる程

$D_{R1}$ の比RはTable 5に示すように、 $K_f$ に比べていずれの試験の場合も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。

さらに、各土壤層に対する高濃度部分の核種濃度分布から求めたイオン形核種の遅延係数について、前報<sup>4)</sup>の試験の結果と比較する。両試験における土壤層の物性値はほとんど同じであるが、本試験のような蒸留水による溶離方式の核種移行試験は汚染水流下による前報の試験(連続流入方式)と流入方式が異なるため、Table 4に示すように、両試験における放射性核種の遅延係数には多少の違いが生じている。特に、ローム層上部での遅延係数に大きな差が見られた。

一方、低濃度部分から求めた核種と水の移動距離の比Rについて、両試験の結果を比較すると、Table 5に示すように本試験の場合はローム層上部での $^{60}\text{Co}$ の値が前報の試験より約3倍大きくなり、流入方式の違いによって非イオン形の核種移行が影響を多少受けている。また、流入方式の違いによる $^{60}\text{Co}$ の非イオン形の移行が顕著に現われたローム層上部での $^{60}\text{Co}$ の濃度分布パターンを比較すると、Fig. 10に示されるように、本試験の場合は汚染水による前報の試験の場合と比べて、低濃度部分が約1桁小さな値を示した。すなわち、蒸留水の溶離によって非イオン形 $^{60}\text{Co}$ の部分が低下するという特徴的な濃度分布を示した。このことは、Fig. 11に示すように、前報の試験の場合と比べ、流出液中における $^{60}\text{Co}$ の濃度が大幅に低下していることとよく対応している。非イオン形 $^{60}\text{Co}$ の移行機構<sup>8)-10)</sup>については、多少の解明が進められているが、今回のような $^{60}\text{Co}$ の非イオン形の移行に流入方式による違いが生じたのは、本試験の場合には新たに供給される水による土壤に由来する無機成分を余り含まないため、土壤表面付近から深部への非イオン形部分の移行が起こりにくくなっていることが原因と考えられる。

上記の結果は、一旦汚染した土壤に降水等の地中水が浸透してきた場合に、放射性汚染水による核種移行と比較して、 $^{60}\text{Co}$ 等の非イオン形核種の移行がしにくくなることを意味しており、放射性廃棄物処分の安全評価における非イオン形核種の移行評価に対してきわめて重要な知見を与えるものである。

## 4. 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-5~US-8のいずれの場合も、 $^{60}\text{Co}$ は僅かに流出するが、 $^{85}\text{Sr}$ および $^{137}\text{Cs}$ 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 $^{60}\text{Co}$ 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 $^{137}\text{Cs}$ 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、土壤中に存在する微細粒子に吸着した形で一部水とともに流出するものと考えられる。
- 2) 土壤中の核種移行は、10 cmまでの土壤層表面では指数関数的な減少を呈し、土壤の種類によらず、各核種の大部分が表面付近にイオン形で吸着した。これに対して、土壤層深部では緩やかな減少を呈し、核種および土壤の種類により非イオン形での移行が僅かに異なる程

度であった。

- 3) 土壤表面付近における高濃度部分の核種濃度分布から求めた遅延係数は、 $10^3$ 以上の値となり、これら土壤がイオン形核種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、土壤層深部における低濃度分布の核種移行においては、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。
- 4) 放射性汚染水による核種移行試験と比較したところ、土壤層表面の濃度分布では遅延係数が多少異なった。一方、土壤層深部の濃度分布ではローム層上部で $^{60}\text{Co}$ の遅延係数が約3倍大きくなった。
- 5) 本試験結果から、汚染土壤からの降水による核種移行は、放射性汚染水流下による核種移行に比べ、 $^{60}\text{Co}$ 等の非イオン形核種に対して起こりにくいという重要な知見が得られた。

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上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) 原子力安全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：放射性廃棄物フォーラム'84，p22，東京（1984）。
- 3) 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）。
- 4) 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 89-144（1989）。
- 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) 小川弘道，大貫敏彦：JAERI-M 86-102（1986）。
- 7) T. Ohnuki, S. Takebe and T. Yamamoto：J. Nucl. Sci. Technol., 26, 795（1989）。
- 8) 加藤正平，穴沢豊，岩谷征男，和達嘉樹，笠井篤，吉田芳和：日本原子力学会誌，20，42（1978）。
- 9) 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）。
- 10) H. Ogawa：J. Nucl. Sci. Technol., 26, 530（1989）。

度であった。

- 3) 土壤表面付近における高濃度部分の核種濃度分布から求めた遅延係数は、 $10^3$ 以上の値となり、これら土壤がイオン形核種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、土壤層深部における低濃度分布の核種移行においては、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。
- 4) 放射性汚染水による核種移行試験と比較したところ、土壤層表面の濃度分布では遅延係数が多少異なった。一方、土壤層深部の濃度分布ではローム層上部で $^{60}\text{Co}$ の遅延係数が約3倍大きくなった。
- 5) 本試験結果から、汚染土壤からの降水による核種移行は、放射性汚染水流下による核種移行に比べ、 $^{60}\text{Co}$ 等の非イオン形核種に対して起こりにくいという重要な知見が得られた。

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上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) 原子力安全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：放射性廃棄物フォーラム’84，p22，東京（1984）。
- 3) 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）。
- 4) 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 89-144（1989）。
- 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) 小川弘道，大貫敏彦：JAERI-M 86-102（1986）。
- 7) T. Ohnuki, S. Takebe and T. Yamamoto: J. Nucl. Sci. Technol., 26, 795 (1989)。
- 8) 加藤正平，穴沢豊，岩谷征男，和達嘉樹，笠井篤，吉田芳和：日本原子力学会誌，20，42（1978）。
- 9) 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）。
- 10) H. Ogawa: J. Nucl. Sci. Technol., 26, 530 (1989)。

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

Measurement item	Test No.			
	US-5	US-6	US-7	US-8
Solid phase (vol%)	21.0	15.0	53.8	57.1
Liquid phase (vol%)	72.0	81.8	42.5	39.3
Gaseous phase (vol%)	7.0	3.2	3.7	3.6
Sand (wt%)	15.5	15.0	88.0	87.5
Silt (wt%)	42.5	41.5	7.0	7.5
Clay (wt%)	42.0	44.5	5.0	5.0
Density (g/cm <sup>3</sup> )	2.78	2.77	2.68	2.67
Permeability coefficient (cm/s)	$1.51 \times 10^{-3}$	$3.38 \times 10^{-5}$	$5.08 \times 10^{-4}$	$1.51 \times 10^{-4}$
Cation exchange capacity (meq/100g)	13.5	9.3	12.0	28.3
Surface area (m <sup>2</sup> /g)	64.0	72.6	42.4	30.2
Soil pH(H <sub>2</sub> O)	5.6	6.3	5.8	6.8
Distribution coefficient (ml/g)				
<sup>60</sup> Co	$1.2 \times 10^3$	$2.0 \times 10^3$	$4.2 \times 10^3$	$2.0 \times 10^3$
<sup>85</sup> Sr	$1.6 \times 10^2$	$4.3 \times 10^2$	$2.8 \times 10^3$	$3.5 \times 10^3$
<sup>137</sup> Cs	$4.3 \times 10^3$	$5.4 \times 10^3$	$5.6 \times 10^3$	$5.9 \times 10^3$
Dispersion coefficient (cm <sup>2</sup> /min)	$7.7 \times 10^{-2}$	$7.7 \times 10^{-2}$	$2.6 \times 10^{-1}$	$8.2 \times 10^{-2}$
[Flow velocity (cm/min)]	$1.4 \times 10^{-2}$	$1.4 \times 10^{-2}$	$2.0 \times 10^{-2}$	$1.5 \times 10^{-2}$



Table 2 Conditions of test.

Conditions	Test No.			
	US-5	US-6	US-7	US-8
1. Radioactive solution				
Concentration ( $\mu$ Ci/ml)				
$^{60}\text{Co}$	$2.9 \times 10^{-2}$	$3.0 \times 10^{-2}$	$2.3 \times 10^{-2}$	$2.5 \times 10^{-2}$
$^{85}\text{Sr}$	$2.9 \times 10^{-2}$	$2.8 \times 10^{-2}$	$2.0 \times 10^{-2}$	$2.2 \times 10^{-2}$
$^{137}\text{Cs}$	$3.1 \times 10^{-2}$	$3.3 \times 10^{-2}$	$2.5 \times 10^{-2}$	$3.0 \times 10^{-2}$
Na <sup>+</sup> -concentration (ppm)	3.6	4.5	4.7	2.3
pH	6.2	6.3	6.4	6.1
2. Inflow condition				
Flow rate (l/h)				
Radioactive solution	0.171	0.255	0.227	0.195
Water	0.277	0.515	0.253	0.373
Time (h)				
Radioactive solution	234.5	156.7	176.3	205.5
Water	721.0	388.0	790.7	536.7
Inflow RI solution volume (l)				
Radioactive solution	40	40	40	40
Water	200	200	200	200
Vacuum pressure (Torr)	350	650	200	300

Table 3 Migration distance of radionuclides for soil layer samples.

Test No.	Radioactive concentration ( $\mu\text{Ci/g}$ )		Migration distance (cm)		
			$^{60}\text{Co}$	$^{85}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
US-5	$1 \times 10^{-2}$	A	3.2	3.9	2.6
		B	2.0	3.2	3.0
		C	3.2	3.9	1.9
	$1 \times 10^{-4}$	A	20.8	18.0	16.8
		B	21.0	16.8	16.8
		C	30.3	26.4	19.5
US-6	$1 \times 10^{-2}$	A	6.1	5.0	5.0
		B	2.8	3.4	4.6
		C	1.4	2.8	2.6
	$1 \times 10^{-4}$	A	24.4	20.3	23.0
		B	16.3	17.6	20.8
		C	18.7	12.4	12.2
US-7	$1 \times 10^{-2}$	A	3.4	4.6	3.9
		B	3.2	2.6	3.2
		C	4.6	3.3	3.3
	$1 \times 10^{-4}$	A	20.9	22.7	8.4
		B	15.5	16.0	14.4
		C	18.1	22.5	17.9
US-8	$1 \times 10^{-2}$	A	4.1	3.4	2.8
		B	2.1	2.1	2.9
		C	2.1	2.1	2.0
	$1 \times 10^{-4}$	A	8.2	5.5	4.5
		B	5.5	5.5	4.4
		C	5.5	5.5	3.4

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

Table 4 Comparison of retardation factor of radionuclides in soil layer samples.

Soil layer	Test No.	Retardation factor $K_r$		
		$^{60}\text{Co}$	$^{85}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
Loamy soil (Upper layer)	US-1	$5.1 \times 10^3$	$5.0 \times 10^3$	$5.4 \times 10^3$
	US-5	$9.2 \times 10^3$	$9.2 \times 10^3$	$1.1 \times 10^4$
Loamy soil (Lower layer)	US-2	$4.7 \times 10^3$	$4.7 \times 10^3$	$7.1 \times 10^3$
	US-6	$4.6 \times 10^3$	$4.9 \times 10^3$	$7.3 \times 10^3$
Sandy soil	US-3	$9.6 \times 10^3$	$9.6 \times 10^3$	$2.3 \times 10^4$
	US-7	$1.1 \times 10^4$	$1.1 \times 10^4$	$1.6 \times 10^4$
Tuff soil	US-4	$1.1 \times 10^4$	$1.1 \times 10^4$	$1.3 \times 10^4$
	US-8	$8.9 \times 10^3$	$1.0 \times 10^4$	$8.9 \times 10^3$

US-1~US-4: Average value of  $k_r$  in A, B and C position

US-5~US-8: Value of  $k_r$  in center

Table 5 Comparison of ratio of water migration distance  $D_{\text{H}_2\text{O}}$  to radionuclide migration distance  $D_{\text{RI}}$  (Low concentration portion).

Soil layer	Test No.	$D_{\text{H}_2\text{O}} / D_{\text{RI}}$		
		$^{60}\text{Co}$	$^{85}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
Loamy soil (Upper layer)	US-1	7.6	$1.9 \times 10$	$2.0 \times 10$
	US-5	$2.1 \times 10$	$2.4 \times 10$	$2.6 \times 10$
Loamy soil (Lower layer)	US-2	$2.0 \times 10$	$2.3 \times 10$	$2.6 \times 10$
	US-6	$2.2 \times 10$	$2.6 \times 10$	$2.3 \times 10$
Sandy soil	US-3	$3.0 \times 10$	$4.0 \times 10$	$4.9 \times 10$
	US-7	$3.5 \times 10$	$3.2 \times 10$	$5.4 \times 10$
Tuff soil	US-4	$1.2 \times 10^2$	$1.4 \times 10^2$	$1.5 \times 10^2$
	US-8	$8.0 \times 10$	$1.2 \times 10^2$	$1.5 \times 10^2$

US-1~US-4: Average value of  $D_{\text{H}_2\text{O}} / D_{\text{RI}}$  in A, B and C position

US-5~US-8: Value of  $D_{\text{H}_2\text{O}} / D_{\text{RI}}$  in center

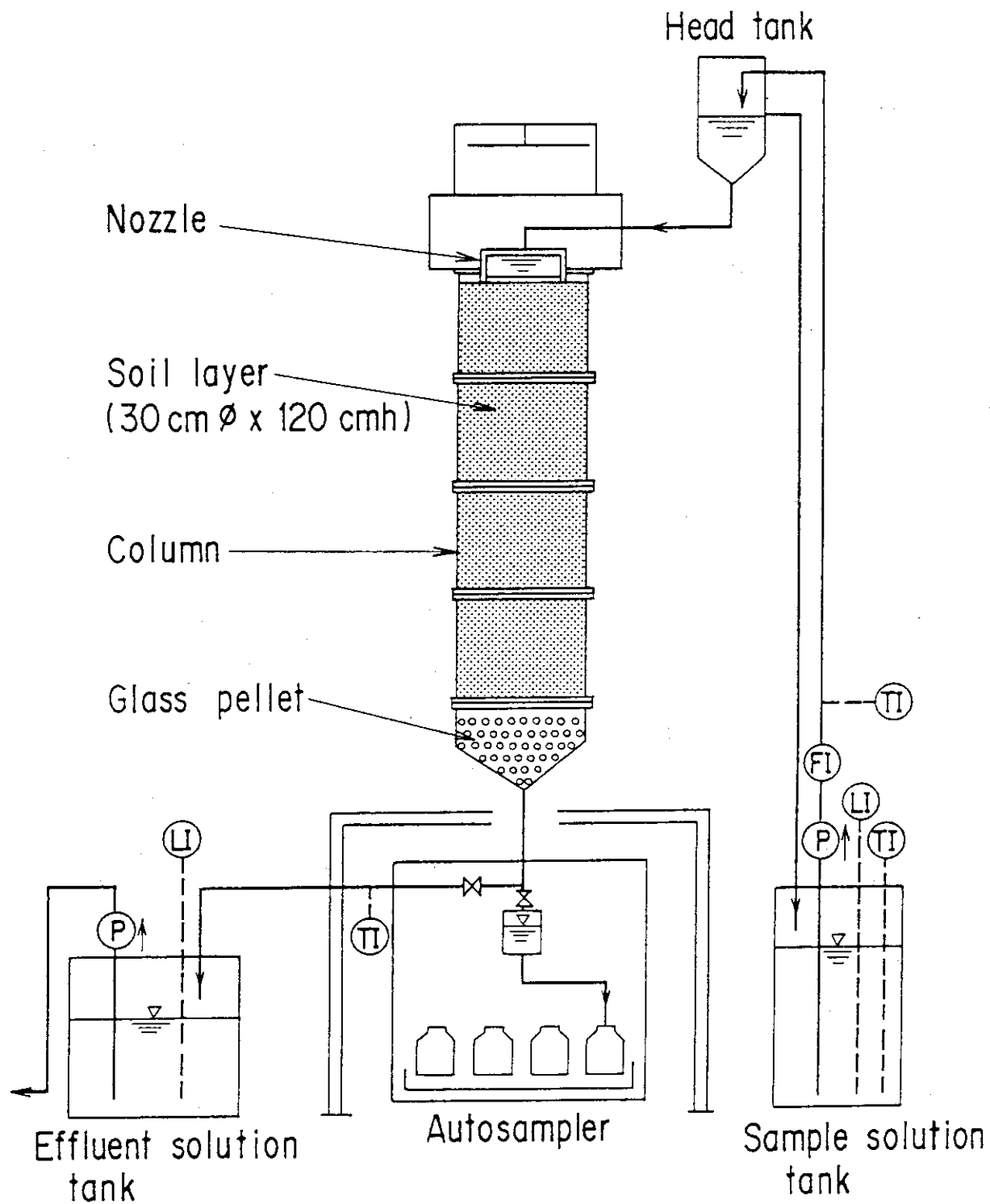


Fig. 1 Inflow of radioactive aqueous solution by nozzle.

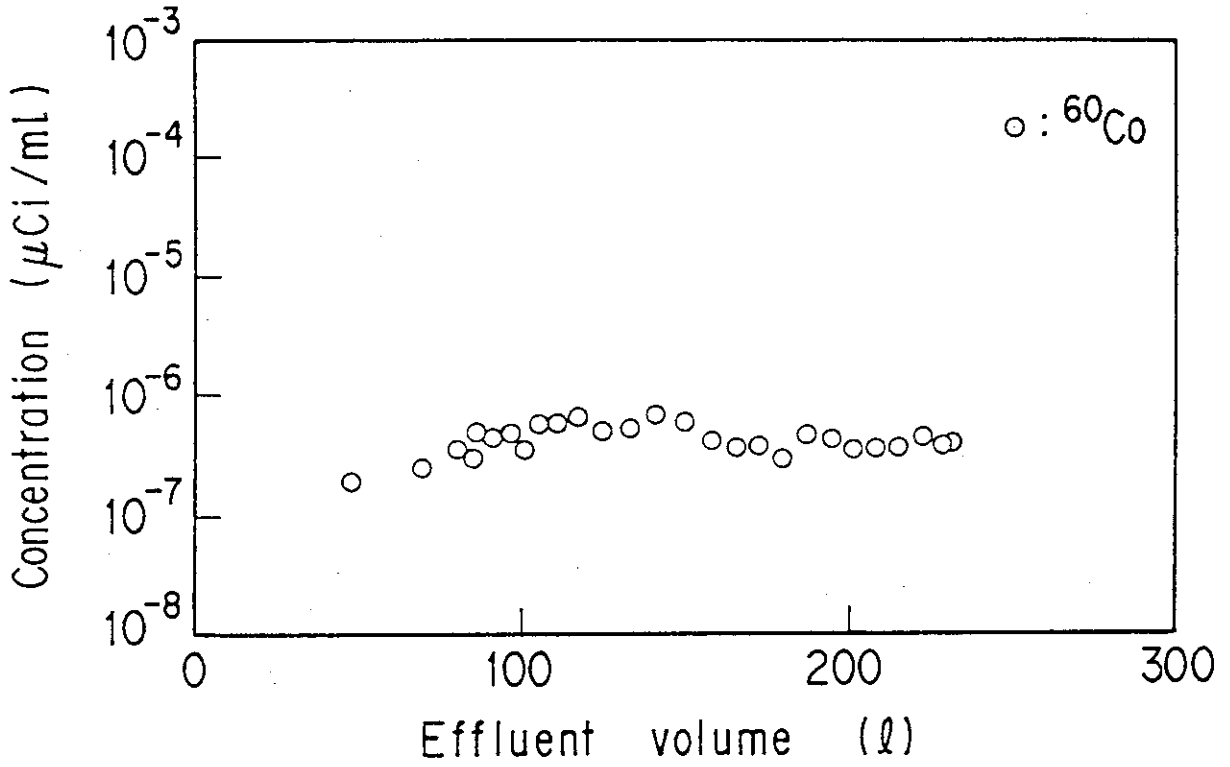


Fig. 2 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-5).

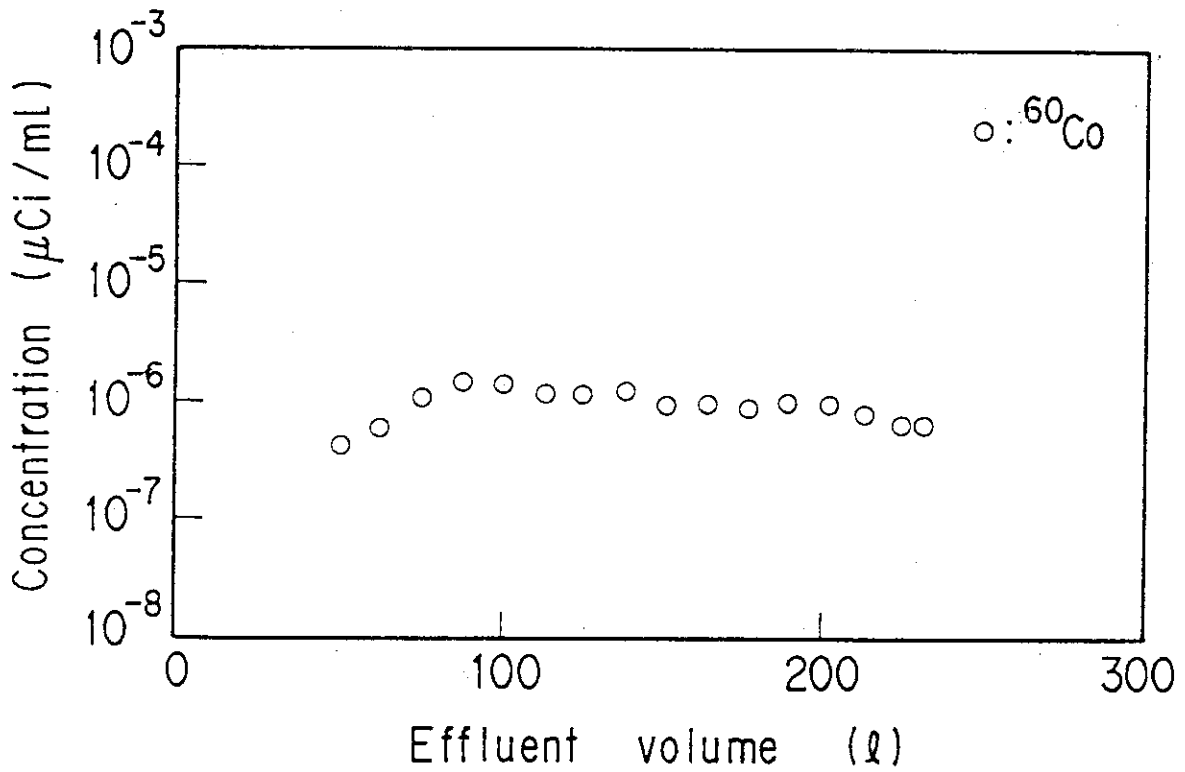


Fig. 3 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-6).

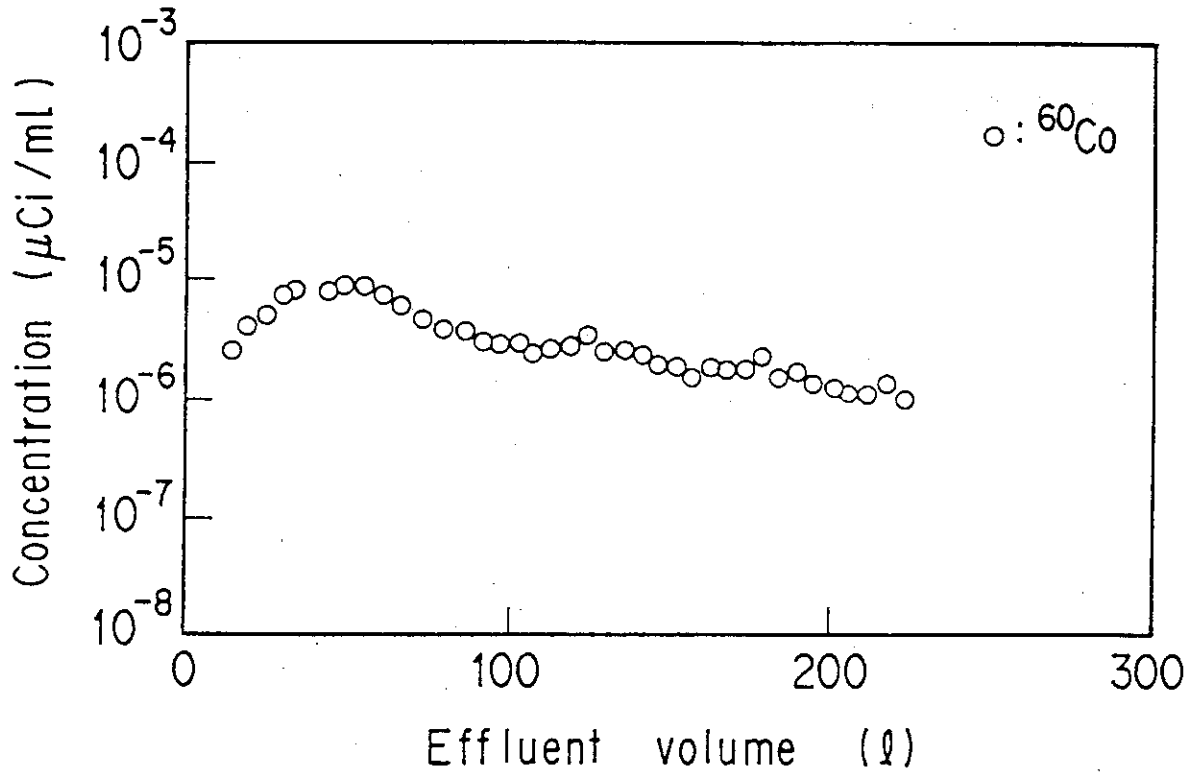


Fig. 4 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-7).

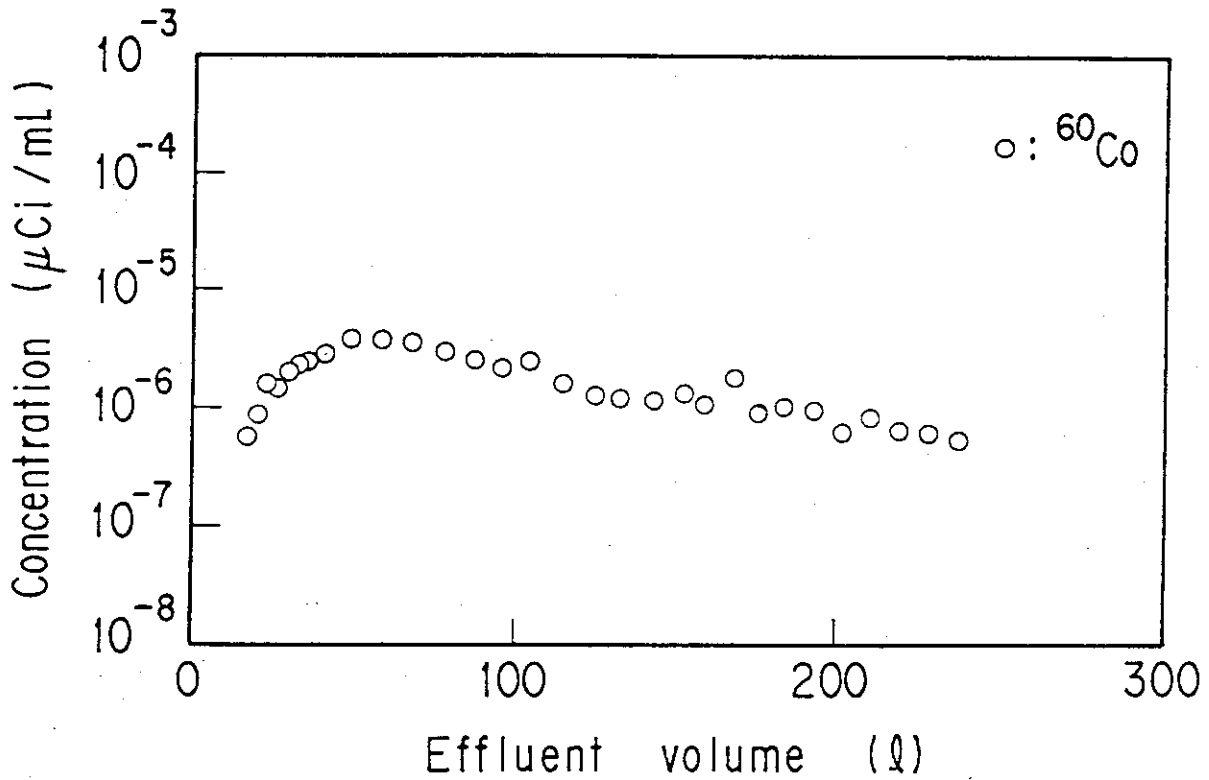


Fig. 5 Concentration of radionuclide in effluent for soil layer (US-8).

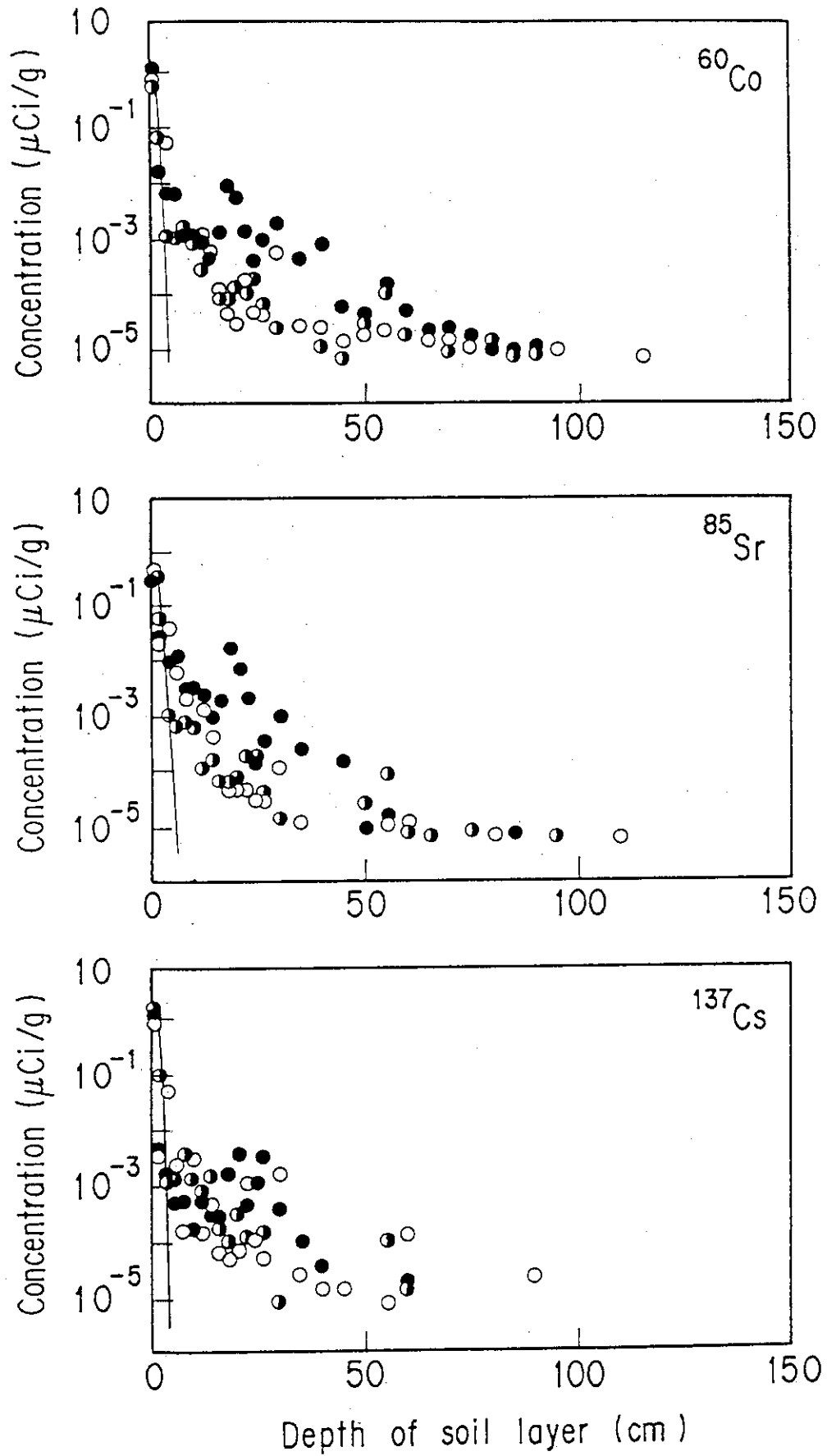


Fig. 6 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-5).

( $\circ$ :Center,  $\bullet$ :7.5cm apart from center,  $\bullet$ :12.5cm apart from center)

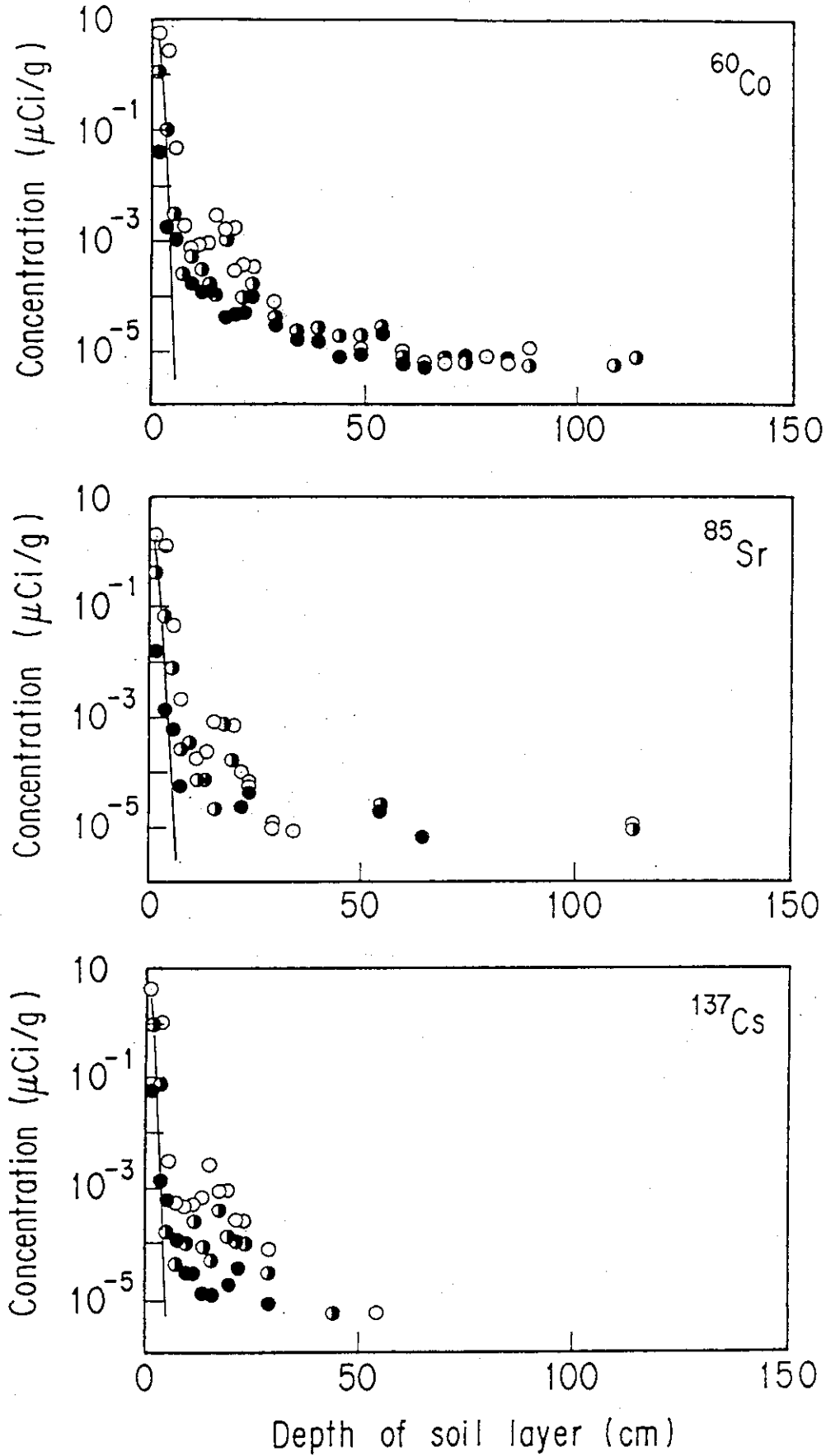


Fig. 7 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-6).

( $\circ$ :Center,  $\bullet$ :7.5cm apart from center,  $\bullet$ :12.5cm apart from center)



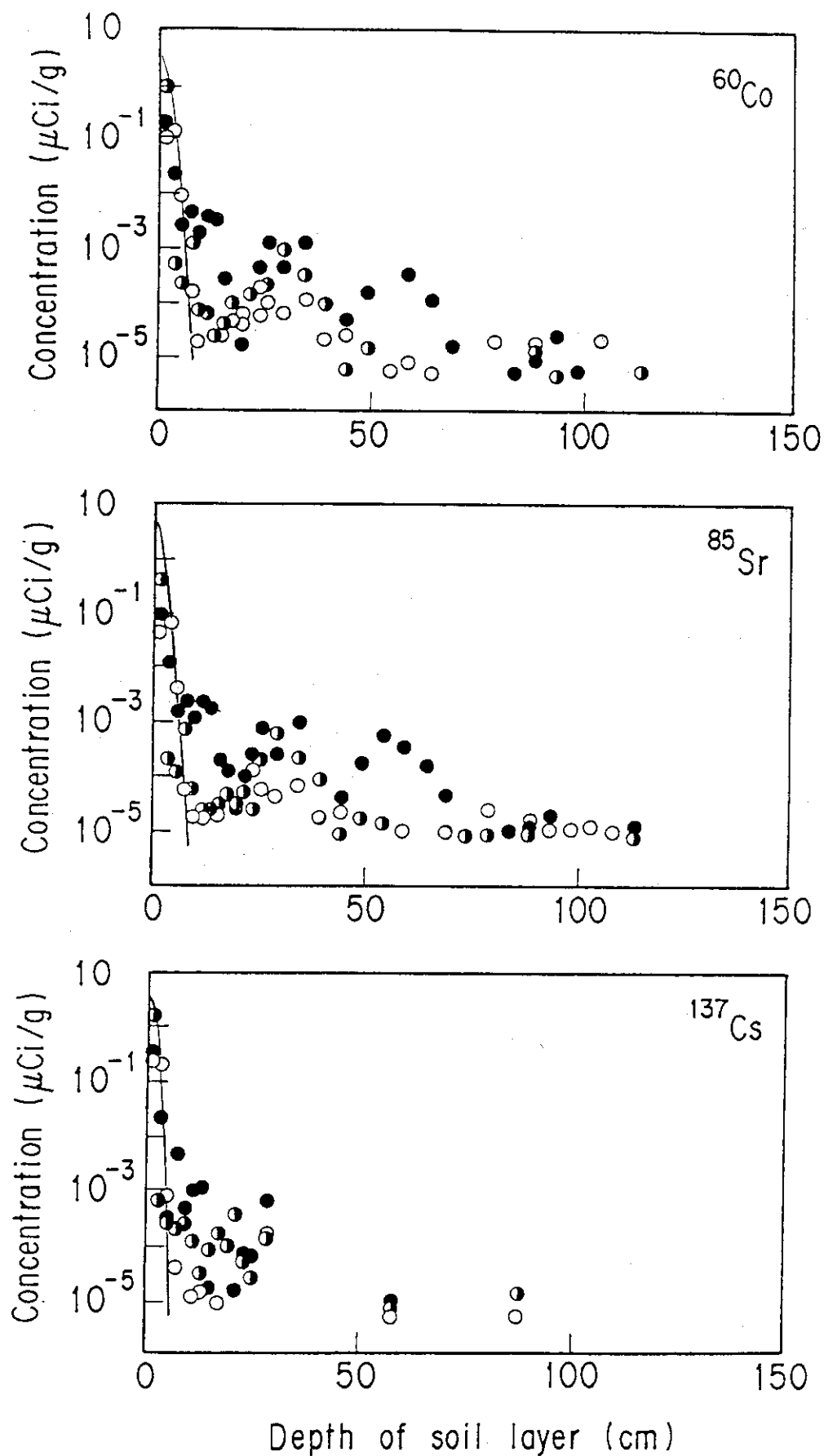


Fig. 8 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-7).

(○:Center, ◐:7.5cm apart from center, ●:12.5cm apart from center)

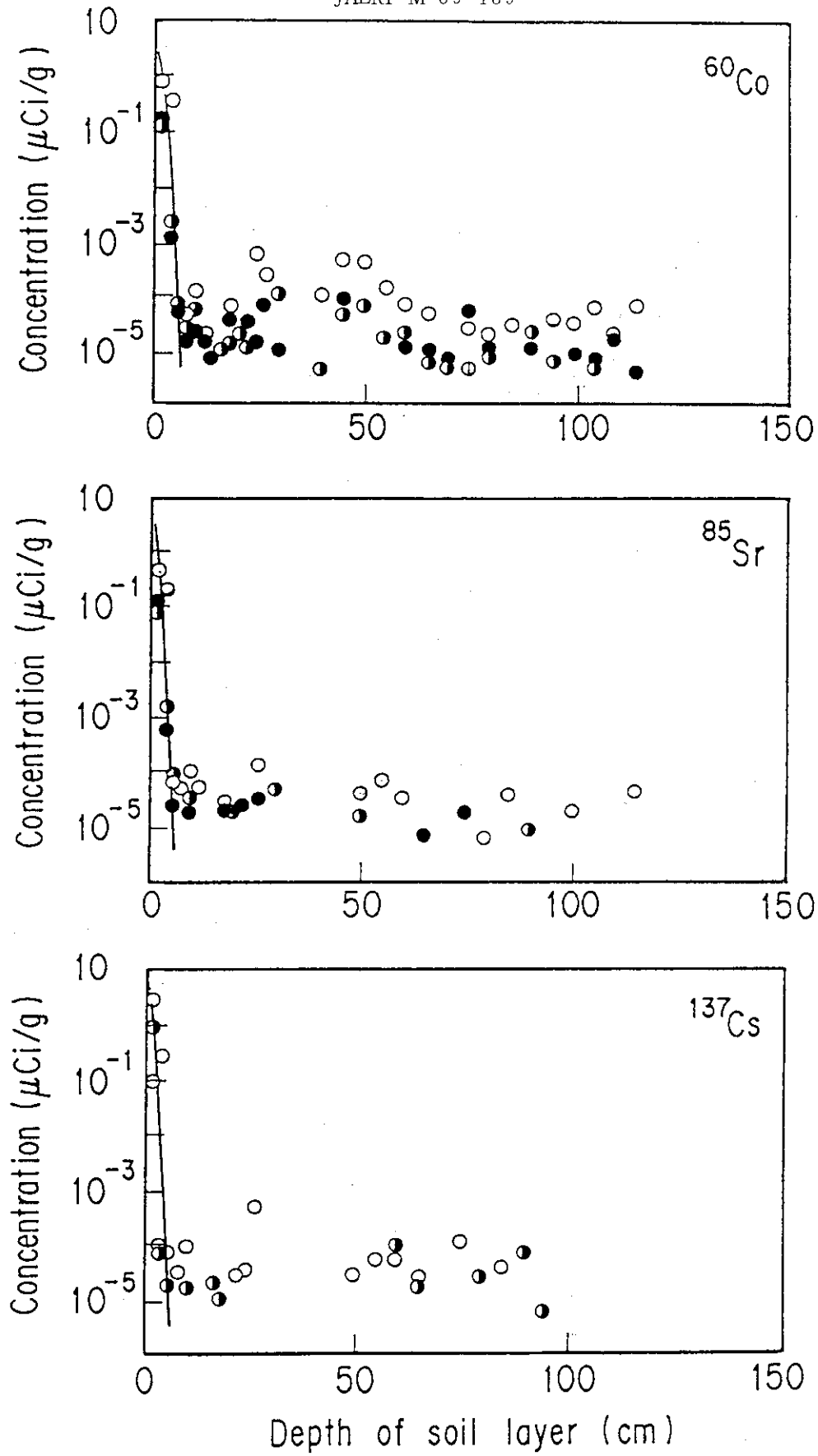


Fig. 9 Concentration profile of radionuclides in soil layer (US-8).

( $\circ$  : Center,  $\bullet$  : 7.5cm apart from center,  $\bullet$  : 12.5cm apart from center)

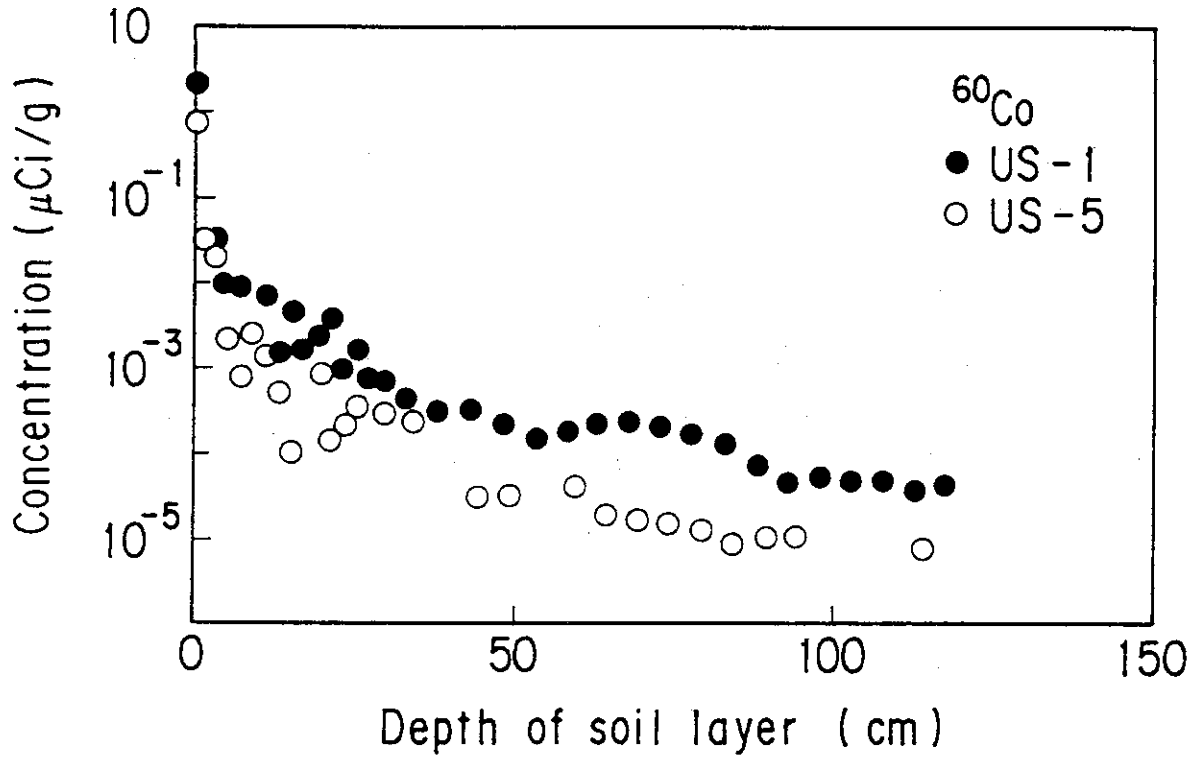


Fig. 10 Comparison of concentration profiles of  $^{60}\text{Co}$  in upper layer of loamy soil.

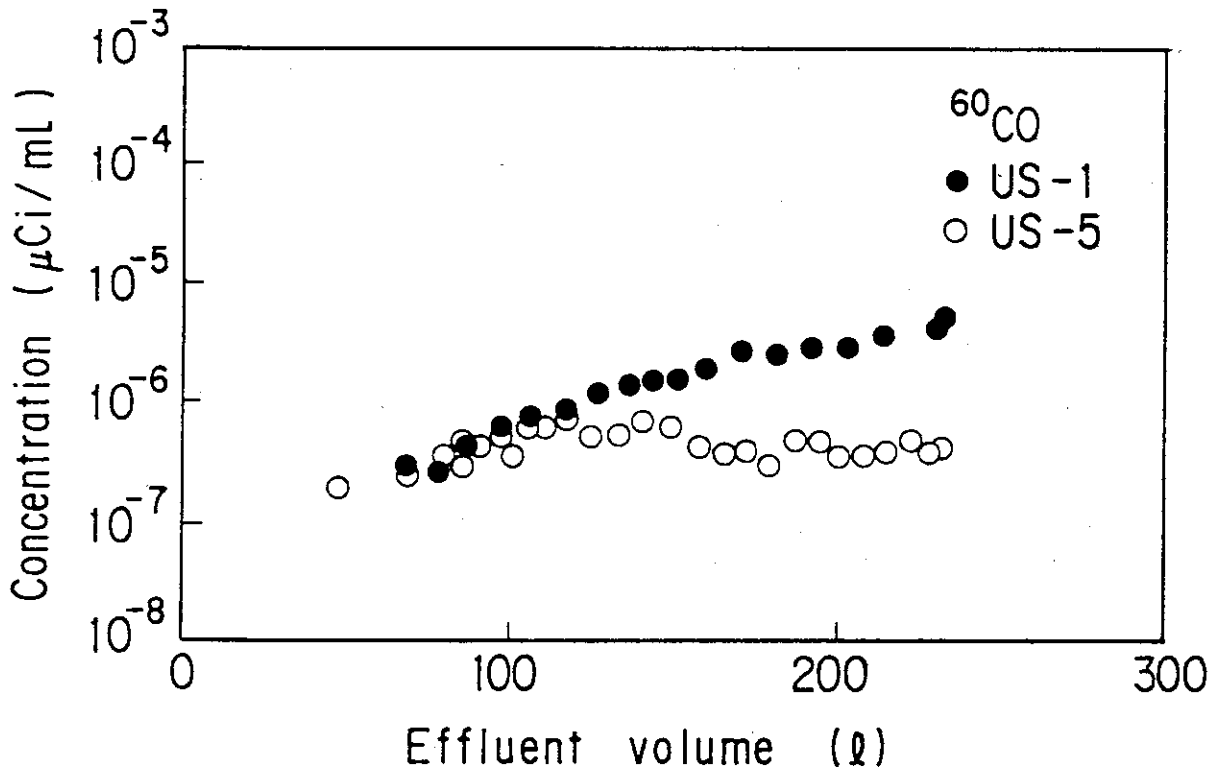


Fig. 11 Comparison of concentration of  $^{60}\text{Co}$  in effluent for upper layer of loamy soil.