

JAERI-M  
92-205

通気層土壌試験の低吸着領域における  
放射性核種の移行挙動

1993年1月

武部 慎一・向井 雅之・古宮 友和・神山 秀雄

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、お申し込みください。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）で複写による実費領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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 ニッセイエプロ株式会社

通気層土壌試験の低吸着領域における  
放射性核種の移行挙動

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

武部 慎一・向井 雅之・古宮 友和  
神山 秀雄

(1992年12月3日受理)

未攪乱状態で採取した4種類の土壌試料を用いて、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ で汚染した土壌から脱離した放射性核種の大型カラムによる移行試験を行った。 $^{60}\text{Co}$ については、カラム上部の高濃度吸着部分の下部に広い範囲にわたり平坦な低濃度吸着領域が見出され、また、流出液中にも低濃度検出され、特徴的な濃度の時間変化が観測された。通気層土壌中の低吸着領域における $^{60}\text{Co}$ の移行挙動について、非陽イオン性化学種の吸着及び脱離反応速度を考慮した核種移行モデルによる解析を試み、これらの試験結果をかなりよく説明することができた。

Radionuclide Migration Behavior at the Low Adsorption Region  
on the Aerated Soil Testing

Shinichi TAKEBE, Masayuki MUKAI  
Tomokazu KOMIYA and Hideo KAMIYAMA

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

(Received December 3, 1992)

Migration test of desorbed radionuclides from a soil layer, contaminated with  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , were carried out by using large columns for four kinds of soil samples taken out in the undisturbed state. A flat low sorption area for  $^{60}\text{Co}$  was found in a wide range below the strong adsorption region at the upper part of the column.  $^{60}\text{Co}$  was detected at very low concentration in the effluent and a characteristic time change in its concentration was observed. Those migration behaviors of  $^{60}\text{Co}$  in the low sorption area were considered to be related to its non-cationic species of low sorption property, and then analyzed by using a non-equilibrium sorption migration model, taking into consideration of sorption and desorption rates. This model was able to explain consistently the test results.

Keywords: Radionuclide Migration Behavior, Low Adsorption Region, Aerated Soil Test, Contaminated Soil,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , Sorption and Desorption rates, Non-cationic Species, Migration Model

## 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 試験方法 .....	1
2.1 試験試料 .....	1
2.2 核種脱離移行試験 .....	2
3. 試験結果と考察 .....	3
3.1 土壌層中の核種濃度分布 .....	3
3.2 流出液中の核種濃度分布 .....	4
4. 解 析 .....	5
5. 結 言 .....	6
謝 辞 .....	7
参考文献 .....	8

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Testing Method .....	1
2.1 Test Soil Samples .....	1
2.2 Radionuclide Migration Test .....	2
3. Results and Discussions .....	3
3.1 Radioactive Concentration in the Soil Layer .....	3
3.2 Radioactive Concentration of Effluent .....	4
4. Analysis .....	5
5. Conclusion .....	6
Acknowledgement .....	7
References .....	8

## 1. 緒言

原子力施設等から発生する低レベル放射性廃棄物のうち、気体状のもの及び液体状のものの一部は、法令で定められた基準を下回るように排出され、液体状及び固体状の廃棄物は形態に応じて減容、固化等の処理が行われた後、これまで施設内に保管されてきた。これら低レベル放射性廃棄物の処分方法としては、海洋処分あるいは陸地処分が基本方針として考えられている。海洋処分については、国際的な動向等の関係で実施には慎重に対処することになっており、実施にはさらに多くの課題が残されている。一方、陸地処分については、現在、青森県六ヶ所村において民間事業者による操業が開始されようとしている。

原研では、この陸地処分に関する放射性核種の地中移行研究として、実際的な核種移行データを得るため、未攪乱状態で採取した海岸砂層、ローム層あるいは処分サイト周辺地層等について、核種移行挙動を調べ、これら地層の核種遅延効果を評価してきた。これらの結果、大型カラムを用いた移行試験において、大部分の放射性核種が土壌表面近傍に高濃度に吸着されることが見出された。この吸着部分については主として陽イオンの関与する反応機構により解析評価できること等を明らかにしてきた<sup>1) - 6)</sup>。しかし、核種の極く一部が、低濃度吸着部分として土壌深部まで移行して行く過程については、化学的形態の違いによること等が推察されてはいたが、その核種移行挙動についてはあまり検討されていなかった。

本報では、これらの低濃度吸着領域における核種移行挙動について、安全評価上の重要性等を詳細に検討するため、土壌表面に高濃度に吸着した汚染層を作成し、上部より人工地下水を流下する核種脱離移行試験を行い、土壌層中へ脱離した核種がどのように移行するのかを調べた。

## 2. 試験方法

### 2. 1. 試験試料

試験試料の採取は青森県下北地区で行った。試料採取地点の地層はFig. 1に示したように、表層はローム層で、深部に行くにしたがって段丘堆積層の砂層、次いで基底岩盤層と変化している。試料採取地点では、表層のローム層は層厚約2.7mでほぼ水平に分布し、茶褐色～黄褐色を呈する。ローム層の上部では、表面に近いほど細孔及び炭化物が点在する。下部では、砂分が多く含まれ、細孔及び炭化物は少い。また、上部及び下部ローム層ともに柔らかく強い粘性を示し、第4紀の堆積層と考えられる<sup>6)</sup>。ローム層の下部に位置する段丘堆積砂層は、層厚約3mで水平に分布し、砂層上部から順に黄褐色の粘土質細砂及びシルト質細砂、灰黄色の凝灰質細砂が存在し、新第3紀あるいは第4紀に相当する堆積物と考えられる<sup>6)</sup>。最下部の基底岩盤層には、砂岩層と凝灰岩層が存

## 1. 緒言

原子力施設等から発生する低レベル放射性廃棄物のうち、気体状のもの及び液体状のものの一部は、法令で定められた基準を下回るように排出され、液体状及び固体状の廃棄物は形態に応じて減容、固化等の処理が行われた後、これまで施設内に保管されてきた。これら低レベル放射性廃棄物の処分方法としては、海洋処分あるいは陸地処分が基本方針として考えられている。海洋処分については、国際的な動向等の関係で実施には慎重に対処することになっており、実施にはさらに多くの課題が残されている。一方、陸地処分については、現在、青森県六ヶ所村において民間事業者による操業が開始されようとしている。

原研では、この陸地処分に関する放射性核種の地中移行研究として、実際的な核種移行データを得るため、未攪乱状態で採取した海岸砂層、ローム層あるいは処分サイト周辺地層等について、核種移行挙動を調べ、これら地層の核種遅延効果を評価してきた。これらの結果、大型カラムを用いた移行試験において、大部分の放射性核種が土壌表面近傍に高濃度に吸着されることが見出された。この吸着部分については主として陽イオンの関与する反応機構により解析評価できること等を明らかにしてきた<sup>1) - 6)</sup>。しかし、核種の極く一部が、低濃度吸着部分として土壌深部まで移行して行く過程については、化学的形態の違いによること等が推察されてはいたが、その核種移行挙動についてはあまり検討されていなかった。

本報では、これらの低濃度吸着領域における核種移行挙動について、安全評価上の重要性等を詳細に検討するため、土壌表面に高濃度に吸着した汚染層を作成し、上部より人工地下水を流下する核種脱離移行試験を行い、土壌層中へ脱離した核種がどのように移行するのかを調べた。

## 2. 試験方法

### 2. 1. 試験試料

試験試料の採取は青森県下北地区で行った。試料採取地点の地層はFig. 1に示したように、表層はローム層で、深部に行くにしたがって段丘堆積層の砂層、次いで基底岩盤層と変化している。試料採取地点では、表層のローム層は層厚約2.7mでほぼ水平に分布し、茶褐色～黄褐色を呈する。ローム層の上部では、表面に近いほど細孔及び炭化物が点在する。下部では、砂分が多く含まれ、細孔及び炭化物は少い。また、上部及び下部ローム層ともに柔らかく強い粘性を示し、第4紀の堆積層と考えられる<sup>6)</sup>。ローム層の下部に位置する段丘堆積砂層は、層厚約3mで水平に分布し、砂層上部から順に黄褐色の粘土質細砂及びシルト質細砂、灰黄色の凝灰質細砂が存在し、新第3紀あるいは第4紀に相当する堆積物と考えられる<sup>6)</sup>。最下部の基底岩盤層には、砂岩層と凝灰岩層が存

在する。砂岩層上部は比較的軟らかく、深部に行くにしたがって硬く固結している。凝灰岩層は、上部から凝灰質風化層、凝灰岩層と変化し、層厚は凝灰質風化層が数m、凝灰岩層は厚く数十m以上の深さである。凝灰岩層には浮石物質が多数存在し、新第3紀中新世に相当する<sup>(1)・(7)</sup>。

本試験では、基底岩盤層の上層部までの地層を対象とし、ローム層上部（採取深度 G.L. 1.10～1.70m；試験番号 L-1）及び下部（採取深度 G.L. 2.05～2.65m；試験番号 L-2）、段丘堆積層の砂層上部（一部シルト質砂層を含む、採取深度 G.L. 3.30～3.90m；試験番号 D-1）及び下部（凝灰質砂層、採取深度 G.L. 4.50～5.10m；試験番号 D-2）の4深度の試料を大口径ボーリングマシンにより未攪乱状態（30cmφ×120cmh）で採取し、それぞれ通気層状態で試験に使用した。

また、同地点において試験試料に対応した深度で採取した小型の未攪乱土壌試料（12.5cmφ×100cmh）について、物理的性質及び化学的性質を調べた結果をTable 1に示す。一般的な土壌物性は、JISに準拠した分析方法により測定を行った。ローム層の含水量は砂層の値に比べて1.5倍程度大きいものに対して、水分飽和度はどの地層でも約90%とほぼ同じ値を示した。

さらに、分配係数は、各地層において所定の深度から採取した土壌を風乾・篩い分け等の前処理をした試料について、バッチ法により求めた。<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csに対する分配係数は、いずれもに数1,000～10,000の非常に大きな値を示し、陽イオン性核種の吸着能力が非常に大きいことが推察された。

## 2. 2. 核種脱離移行試験

核種脱離移行試験に使用した試験装置<sup>(8)</sup>の概略をFig. 2に示す。自然の地層から未攪乱状態で採取した土壌試料カラムを30cmφ×60cmhに切断調製して装置架台にセットし、その土壌の上に汚染土壌層を載せ、各種配管、カラム円筒等を取り付けた後、上部に設置した流下器により人工地下水を汚染土壌面全体に散布した。

試験に使用した人工地下水は、試料採取地の地下水組成を模擬して化学的に調製した。人工地下水の組成をTable 2に示す。特徴的なのは、硫酸根濃度 $[SO_4^{2-}]$ が他のイオン濃度に比べて高いことであり、各イオン成分のヘキサダイアグラムより、 $[Na^+-SO_4^{2-}]$ タイプの地下水組成である。このような地下水組成は、比較的浅い地層中における典型的な地下水を示している。

移行試験の際に、水の浸透挙動を把握するため人工地下水には<sup>3</sup>H（37Bq/ml）を混合した。人工地下水の流下条件をTable 3に示す。各試験とも流下した人工地下水液量は70ℓであり、流下流速はそれぞれの土壌試料について表面が冠水しない程度の流下流速とした。Table 3に示した各試験の流下流速は、各土壌試料の空隙率を考慮して求めた推定値である。

汚染土壌部は、試験に使用した土壌試料の上部2cmの部分を取り出して調製した。汚染核種には、<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csを使用し、汚染核種量は各核種とも37MBqとした。その調製方法は次の通りである。塩酸酸性の放射性水溶液を中和してpH 6.4、液量を80mlとした後、汚染をできるだけ均一にさせるため、まず、プラスチック製シ



ャーレに入れ凍結させた。次いで、それを土壌部表面に載せ解凍し、土壌部表面全体を放射性核種で汚染させた。試験には、この汚染土壌部を汚染面を下にして未攪乱土壌層の上面に載せた。この汚染土壌内の核種は、汚染面から深さ0.5cmまでで約95%、1cmまでで約100%が吸着していることを別途行った予備試験で確認した。

試験中は、カラム下部より流出した流出液を1ℓずつ逐次採取し、全量を用いて放射能濃度の測定を行った。土壌層中の吸着濃度分布については、脱離した核種の大部分が土壌表面附近に吸着している高濃度部分からの汚染を避けて低濃度部分の分布をより正確に求めるために、地下水流下終了後、20時間経過してから土壌カラムを転倒させ、放射能濃度が低い下部より所定の深度毎に土壌試料の採取を行った。放射能測定用土壌試料の採取位置はFig. 3に示したA～Qの17箇所であり、図に示した深度でそれぞれ一定の間隔で採取を行った。

### 3. 試験結果と考察

#### 3. 1. 土壌層中の核種濃度分布

ローム層上部(L-1)における土壌中核種濃度について、代表的な採取位置であるA(カラム中心部)、B(カラム中心部から7.5cmの位置)及びC(カラム中心部から12.5cmの位置)の3箇所の深度方向の分布をFig. 4に示した。ローム層上部の土壌中核種濃度分布は、カラム内のコア採取位置により異なり、表面濃度が高い場合は表面から急激に減少した後、低吸着領域が現れ、表面濃度が低い場合には表面から低吸着領域が始っていた。 $^{60}\text{Co}$ では、低吸着領域がカラム下端まで続いていた。 $^{85}\text{Sr}$ では、この低吸着領域はほとんど見られなかった。これに対して、 $^{137}\text{Cs}$ は土壌層深部において飛び地的に極低濃度の $^{137}\text{Cs}$ が検出された。ローム層下部(L-2)の土壌中核種濃度分布は、各核種ともにローム層上部の核種濃度分布とほとんど同じ傾向を示した。

砂層上部(D-1)の土壌中核種濃度分布は、全体的にはローム層の場合とほぼ同じ傾向を示し、低濃度の $^{60}\text{Co}$ が土壌深部まで移行していたが、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ では高濃度部分の直下附近に僅かに認められたただけであった。砂層下部(D-2)の土壌中核種濃度分布は、全体的には砂層上部の場合とほぼ同じ傾向を示し、低濃度の $^{60}\text{Co}$ が土壌深部まで移行し、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ では表面附近に僅かに認められただけで、汚染土壌から脱離した核種の深部への土壌中移行はほとんど認められなかった。

上述の各地層における脱離した核種の土壌中移行傾向を核種別に比較すると、 $^{60}\text{Co}$ では、土壌試料の土質の違いによる影響はあまり見られず、土壌深度10cm以深ではほとんど同じ $10^{-1}\text{Bq/g}$ 程度の放射能濃度になり、カラム末端まで広く分布することが見出された。 $^{85}\text{Sr}$ では、段丘堆積層においてはローム層に比べて核種移行は小さかったが、 $^{60}\text{Co}$ と同じように土壌層全体に広く分布する傾向が見られた。 $^{137}\text{Cs}$ では、ローム層では土壌層の所々に検出されたが、段丘堆積層では観察されなかった。

このような移行挙動の違いは、核種の化学形あるいは土壌の性質をもとに次のように考えらえる。 $^{60}\text{Co}$ については、中性附近において大部分が陽イオン性であるが、一部は

ャーレに入れ凍結させた。次いで、それを土壤部表面に載せ解凍し、土壤部表面全体を放射性核種で汚染させた。試験には、この汚染土壤部を汚染面を下にして未攪乱土壤層の上面に載せた。この汚染土壤内の核種は、汚染面から深さ0.5cmまでで約95%、1cmまでで約100%が吸着していることを別途行った予備試験で確認した。

試験中は、カラム下部より流出した流出液を1ℓずつ逐次採取し、全量を用いて放射能濃度の測定を行った。土壤層中の吸着濃度分布については、脱離した核種の大部分が土壤表面附近に吸着している高濃度部分からの汚染を避けて低濃度部分の分布をより正確に求めるために、地下水流下終了後、20時間経過してから土壤カラムを転倒させ、放射能濃度が低い下部より所定の深度毎に土壤試料の採取を行った。放射能測定用土壤試料の採取位置はFig. 3に示したA～Qの17箇所であり、図に示した深度でそれぞれ一定の間隔で採取を行った。

### 3. 試験結果と考察

#### 3. 1. 土壤層中の核種濃度分布

ローム層上部(L-1)における土壤中核種濃度について、代表的な採取位置であるA(カラム中心部)、B(カラム中心部から7.5cmの位置)及びC(カラム中心部から12.5cmの位置)の3箇所の深度方向の分布をFig. 4に示した。ローム層上部の土壤中核種濃度分布は、カラム内のコア採取位置により異なり、表面濃度が高い場合は表面から急激に減少した後、低吸着領域が現れ、表面濃度が低い場合には表面から低吸着領域が始っていた。 $^{60}\text{Co}$ では、低吸着領域がカラム下端まで続いていた。 $^{85}\text{Sr}$ では、この低吸着領域はほとんど見られなかった。これに対して、 $^{137}\text{Cs}$ は土壤層深部において飛び地的に極低濃度の $^{137}\text{Cs}$ が検出された。ローム層下部(L-2)の土壤中核種濃度分布は、各核種ともにローム層上部の核種濃度分布とほとんど同じ傾向を示した。

砂層上部(D-1)の土壤中核種濃度分布は、全体的にはローム層の場合とほぼ同じ傾向を示し、低濃度の $^{60}\text{Co}$ が土壤深部まで移行していたが、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ では高濃度部分の直下附近に僅かに認められたただけであった。砂層下部(D-2)の土壤中核種濃度分布は、全体的には砂層上部の場合とほぼ同じ傾向を示し、低濃度の $^{60}\text{Co}$ が土壤深部まで移行し、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ では表面附近に僅かに認められたただけで、汚染土壤から脱離した核種の深部への土壤中移行はほとんど認められなかった。

上述の各地層における脱離した核種の土壤中移行傾向を核種別に比較すると、 $^{60}\text{Co}$ では、土壤試料の土質の違いによる影響はあまり見られず、土壤深度10cm以深ではほとんど同じ $10^{-1}\text{Bq/g}$ 程度の放射能濃度になり、カラム末端まで広く分布することが見出された。 $^{85}\text{Sr}$ では、段丘堆積層においてはローム層に比べて核種移行は小さかったが、 $^{60}\text{Co}$ と同じように土壤層全体に広く分布する傾向が見られた。 $^{137}\text{Cs}$ では、ローム層では土壤層の所々に検出されたが、段丘堆積層では観察されなかった。

このような移行挙動の違いは、核種の化学形あるいは土壤の性質をもとに次のように考えられる。 $^{60}\text{Co}$ については、中性附近において大部分が陽イオン性であるが、一部は

非陽イオン性の水酸化物 $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ 等を生成する<sup>9)</sup>。さらに、これら水酸化物の凝集、高分子化によるコロイド、陰電荷をもった錯体 $\text{Co}(\text{OH})_3^-$ 等の生成が考えられる<sup>10), 11)</sup>。この中で、陽イオン性のものは、大きな分配係数値から推測されるように (Table 1)、土壤に強く陽イオン吸着される。それに対して、極く一部の中性又は陰電荷を持った化学形の部分は、土壤には一般的に吸着され難く、土質の違いによる影響が少く、それゆえ低濃度部分が土壤層深部まで移行し、土壤層中に広く分布したものと考えられる。

このことは、同一試料について、試料採取位置によって汚染土壤からの脱離の度合いに差があって表面附近の濃度が数桁の異なる場合でも、低濃度部分の濃度はほぼ一定となっていることから裏付けられる。したがって、カラム下部では採取位置以外でも全体にほぼ同程度の核種濃度になっていると推定される。

$^{85}\text{Sr}$ については、広いpH範囲でほぼ陽イオンとして存在する<sup>9)</sup>と考えられることから、土壤に陽イオン吸着されると推定される。しかし、 $^{85}\text{Sr}$ の場合には地下水に含まれる $\text{Ca}^{2+}$ 等の共存イオンの影響を受けやすく、陽イオン交換反応による吸着脱離を繰返しながら、土壤中を移行すること等が知られている<sup>12)-15)</sup>。各土壤溶出水中の共存イオン濃度を溶出水液量(ml)/土壤重量(g)=10の場合で比較した結果では、ローム層においては $\text{Ca}^{2+}$ ; 1.68ppm,  $\text{Mg}^{2+}$ ; 0.98ppm,  $\text{Na}^+$ ; 3.29ppm、段丘堆積砂層においては $\text{Ca}^{2+}$ ; 0.05ppm,  $\text{Mg}^{2+}$ ; 0.05ppm,  $\text{Na}^+$ ; 2.84ppmとなり、明らかに土壤間隙水中における共存アルカリ土類イオン濃度はローム質土壤の方が高く、段丘堆積層に比べて $^{85}\text{Sr}$ の土壤中移行が促進されることが予測される。 $^{85}\text{Sr}$ の移行が、ローム層において段丘堆積層に比べて大きいのは以上の理由によるものと考えられ、土質の違いにより土壤中移行挙動の差違が理解できる。

$^{137}\text{Cs}$ については、 $^{85}\text{Sr}$ よりさらに広いpH範囲で陽イオン性であるが<sup>9)</sup>、単なる陽イオン交換吸着だけでなく、土壤中の粘土鉱物中に取り込まれて<sup>16)</sup>非常に強く収着固定される<sup>12), 16)</sup>。このため、 $^{137}\text{Cs}$ は、土壤に含まれる粘土鉱物等の微細粒子に強く吸着した形で土壤中を移行する可能性が考えられる。ローム層において所々に $^{137}\text{Cs}$ が検出されたのは、このような土壤微細粒子に吸着した $^{137}\text{Cs}$ が、土壤間隙、細孔等を移行し、細密な部分で捕集されたためではないかと考えられる。したがって、段丘堆積層ではローム層に比べて全体が比較的細密な地質であり細孔等が少いため、 $^{137}\text{Cs}$ の深部への移行が少なかったものと考えられる。

### 3. 2. 流出液中の核種濃度分布

各地層から流出した流出液中には、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ は検出されず、 $^{60}\text{Co}$ のみが検出された。流出液中の $^3\text{H}$ 及び $^{60}\text{Co}$ 濃度の時間変化をFig. 5に示す。

この流出した $^{60}\text{Co}$ の化学的形態を検討するため、流出液を $0.45\mu\text{m}$ メンブレンフィルターで吸引濾過し、濾液及びフィルターの放射能濃度をそれぞれ測定した。その結果、流出した $^{60}\text{Co}$ は、このフィルターにはほとんど捕集されなかった。したがって、濾過及び吸着され難い化学種が土壤層中の低吸着領域に関与したものと推察される。

また、 $^{60}\text{Co}$ の流出は、どの土壤試料においても $^3\text{H}$ の破過に対応して始り、ある濃度に達した後、次第に低下して行く傾向が見られた。 $^{60}\text{Co}$ の核種濃度ピーク位置における流

出液量、または、ピークを持たない場合には $^{60}\text{Co}$ の最終流出液中濃度の1/2に相当する濃度における流出液量が、 $^3\text{H}$ の最終流出濃度の1/2に相当する流出液量とほぼ一致した。このことは、各地層から流出した移行しやすい化学形の $^{60}\text{Co}$ が、 $^3\text{H}$ の挙動に示される地下水とほぼ同様に移動してきたことを示している。したがって、移行しやすい化学形の $^{60}\text{Co}$ については、 $^3\text{H}$ の破過曲線から求められた水流速ならびに拡散係数の値 (Table 4) が適用できるものと考えられる。

以上のことから、放射性核種の低濃度部分の移行に関しては、 $^{60}\text{Co}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の2つのケースが検討課題であり、このうち、 $^{137}\text{Cs}$ については、流出液中では検出限界以下であり、さらに検討することは困難であり、また、安全評価上の影響も小さいと考えられる。 $^{60}\text{Co}$ については、土壌層中において明確な低濃度分布が見られること、ならびに流出液中にも特徴的な濃度の時間変化が見出されていることから、さらに検討を進めた。

#### 4. 解析

土壌層中の $^{60}\text{Co}$ 濃度分布 (Fig. 4) において、土壌深部で低濃度部分が平坦になる傾向、及び流出液中核種流出曲線 (Fig. 5) の非対称な時間変化は、平衡吸着モデルでは表せない現象である。そこで、解析の第1歩として、吸着移行の非定常の取扱の中で最も単純な1次の吸着脱離反応を取り入れたモデルで、どの程度これらの現象が説明できるかについて考察した。

解析に用いたモデルの概略をFig. 6に示す。横軸に土壌深度、縦軸に核種量を示した。初期条件として、汚染土壌プレート中では移行核種の全量を $A_0$ 、土壌層中を移行しやすい化学種の初期吸着量 $Q_0$ 、そのうち土壌水中と平衡にある部分の初期濃度を $C_0$ と仮定した。

拡散輸送方程式(1)と、吸着に関する反応速度定数 $k_1$ 及び脱離に関する反応速度定数 $k_2$ を考慮した式(2)とを連立させ<sup>17)</sup>、60 cmの土壌層中の核種濃度 $Q$ の分布、及び土壌層を通過してくる流出液中の濃度 $C$ の時間変化を初期汚染層間隙水中濃度 $C_0$ 、吸着反応速度定数 $k_1$ 、脱離反応速度定数 $k_2$ をパラメータとして差分逐次法による計算により求め、計算値と実測値の差の二乗の総和が最小になるパラメータの値を求めた。

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

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = k_1 \cdot C - k_2 \cdot Q \quad (2)$$

出液量、または、ピークを持たない場合には $^{60}\text{Co}$ の最終流出液中濃度の1/2に相当する濃度における流出液量が、 $^3\text{H}$ の最終流出濃度の1/2に相当する流出液量とほぼ一致した。このことは、各地層から流出した移行しやすい化学形の $^{60}\text{Co}$ が、 $^3\text{H}$ の挙動に示される地下水とほぼ同様に移動してきたことを示している。したがって、移行しやすい化学形の $^{60}\text{Co}$ については、 $^3\text{H}$ の破過曲線から求められた水流速ならびに拡散係数の値 (Table 4) が適用できるものと考えられる。

以上のことから、放射性核種の低濃度部分の移行に関しては、 $^{60}\text{Co}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の2つのケースが検討課題であり、このうち、 $^{137}\text{Cs}$ については、流出液中では検出限界以下であり、さらに検討することは困難であり、また、安全評価上の影響も小さいと考えられる。 $^{60}\text{Co}$ については、土壌層中において明確な低濃度分布が見られること、ならびに流出液中にも特徴的な濃度の時間変化が見出されていることから、さらに検討を進めた。

#### 4. 解析

土壌層中の $^{60}\text{Co}$ 濃度分布 (Fig. 4) において、土壌深部で低濃度部分が平坦になる傾向、及び流出液中核種流出曲線 (Fig. 5) の非対称な時間変化は、平衡吸着モデルでは表せない現象である。そこで、解析の第1歩として、吸着移行の非定常の取扱の中で最も単純な1次の吸着脱離反応を取り入れたモデルで、どの程度これらの現象が説明できるかについて考察した。

解析に用いたモデルの概略をFig. 6に示す。横軸に土壌深度、縦軸に核種量を示した。初期条件として、汚染土壌プレート中では移行核種の全量を $A_0$ 、土壌層中を移行しやすい化学種の初期吸着量 $Q_0$ 、そのうち土壌水中と平衡にある部分の初期濃度を $C_0$ と仮定した。

拡散輸送方程式(1)と、吸着に関する反応速度定数 $k_1$ 及び脱離に関する反応速度定数 $k_2$ を考慮した式(2)とを連立させ<sup>17)</sup>、60 cmの土壌層中の核種濃度 $Q$ の分布、及び土壌層を通過してくる流出液中の濃度 $C$ の時間変化を初期汚染層間隙水中濃度 $C_0$ 、吸着反応速度定数 $k_1$ 、脱離反応速度定数 $k_2$ をパラメータとして差分逐次法による計算により求め、計算値と実測値の差の二乗の総和が最小になるパラメータの値を求めた。

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

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = k_1 \cdot C - k_2 \cdot Q \quad (2)$$

ここで、 $f$  は空隙率、 $s$  は飽和度、 $D$  は拡散係数 ( $\text{cm}^2/\text{h}$ )、 $V$  は水流速 ( $\text{cm}/\text{h}$ )、 $x$  は距離 ( $\text{cm}$ )、 $t$  は時間 ( $\text{h}$ ) である。

$^3\text{H}$  の破過曲線の解析により求められた水流速  $V$  及び拡散係数  $D$  の値を用いて、上記の最小二乗法により得られた  $^{60}\text{Co}$  の移行パラメータ  $k_1$ 、 $k_2$ 、 $C_0$  の値を Table 5 に示す。

得られたパラメータの値を用いて計算した  $^{60}\text{Co}$  の流出曲線を Fig. 7 に示す。図より明らかのように実測値と計算値は良く一致した。このことから、汚染土壤中における一定量の移行化学種の存在と吸着及び脱離反応速度を考慮することにより、非陽イオン性の  $^{60}\text{Co}$  のカラム層からの流出挙動の動向をよく説明することができた。これらのパラメータ値を用いてそれぞれの地層における非陽イオン性核種の存在比 ( $Q_0/A_0$ ) を求めると、ローム層上部及び下部では約  $7 \times 10^{-5}$ 、段丘堆積層上部及び下部では約  $1.5 \times 10^{-4}$  というかなり小さい値となった。このことから、汚染土壤中に含まれる移行しやすい核種量は非常に少なく、安全評価への影響は比較的少ないと推定される。

また、これら得られたパラメータを基に、低濃度分布を示している土壤深部における土壤中核種濃度分布を計算した。Fig. 8 に得られた計算結果を示す。同図からわかるように、流出液についてはよく説明できるパラメータを用いても、土壤中濃度分布については、核種濃度分布が低濃度部分で平坦になる傾向は示されたが、実際の分布曲線に比べて、濃度のレベルは約 1 桁ほど低い値しか与えられなかった。

したがって、今回のモデルでは、土壤層から流出した核種の流出傾向についてはほぼ説明することができるが、土壤中の核種濃度分布はまだ十分に予測できないことが分かった。

今後は、流出液分布ならびに土壤中分布をより正確に現すことが可能なモデル等についてさらに検討を進める予定である。

## 5. 結言

$^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  で汚染した土壤部を上部に載せて各種の通気層土壤カラムを用いて、人工地下水による脱離移行試験を実験するとともに、試験結果の解析を行った。その結果をまとめると以下のようなになる。

1. 土壤中の核種濃度分布はカラムの採取位置により異なり、表面濃度が高い場合は表面から急激に減少し、低い場合には濃度の変化は小さく、いずれも深度 10 cm 附近では、ほぼ同じ濃度に減少した。特に、 $^{60}\text{Co}$  では、その濃度がカラム下端まで続く傾向が見られた。
2. 流出液中には  $^{60}\text{Co}$  のみが低濃度検出された。その流出は、地下水の移流拡散に対応して、 $^3\text{H}$  の破過とともに始り、土壤の種類に応じた一定の濃度に達した後、時間とともに次第に低下した。
3. これらのことから、 $^{60}\text{Co}$  について、土壤中の低吸着領域及び極低濃度の流出においては、陽イオン以外の移行しやすい化学形が関与していると推察された。
4.  $^{60}\text{Co}$  の低吸着領域における放射性核種の移行挙動について、非定常の取扱の中で最

ここで、 $f$  は空隙率、 $s$  は飽和度、 $D$  は拡散係数 ( $\text{cm}^2/\text{h}$ )、 $V$  は水流速 ( $\text{cm}/\text{h}$ )、 $x$  は距離 ( $\text{cm}$ )、 $t$  は時間 ( $\text{h}$ ) である。

$^3\text{H}$  の破過曲線の解析により求められた水流速  $V$  及び拡散係数  $D$  の値を用いて、上記の最小二乗法により得られた  $^{60}\text{Co}$  の移行パラメータ  $k_1$ 、 $k_2$ 、 $C_0$  の値を Table 5 に示す。

得られたパラメータの値を用いて計算した  $^{60}\text{Co}$  の流出曲線を Fig. 7 に示す。図より明らかのように実測値と計算値は良く一致した。このことから、汚染土壤中における一定量の移行化学種の存在と吸着及び脱離反応速度を考慮することにより、非陽イオン性の  $^{60}\text{Co}$  のカラム層からの流出挙動の動向をよく説明することができた。これらのパラメータ値を用いてそれぞれの地層における非陽イオン性核種の存在比 ( $Q_0/A_0$ ) を求めると、ローム層上部及び下部では約  $7 \times 10^{-6}$ 、段丘堆積層上部及び下部では約  $1.5 \times 10^{-4}$  というかなり小さい値となった。このことから、汚染土壤中に含まれる移行しやすい核種量は非常に少なく、安全評価への影響は比較的少ないと推定される。

また、これら得られたパラメータを基に、低濃度分布を示している土壤深部における土壤中核種濃度分布を計算した。Fig. 8 に得られた計算結果を示す。同図からわかるように、流出液についてはよく説明できるパラメータを用いても、土壤中濃度分布については、核種濃度分布が低濃度部分で平坦になる傾向は示されたが、実際の分布曲線に比べて、濃度のレベルは約 1 桁ほど低い値しか与えられなかった。

したがって、今回のモデルでは、土壤層から流出した核種の流出傾向についてはほぼ説明することができるが、土壤中の核種濃度分布はまだ十分に予測できないことが分かった。

今後は、流出液分布ならびに土壤中分布をより正確に現すことが可能なモデル等についてさらに検討を進める予定である。

## 5. 結言

$^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  で汚染した土壤部を上部に載せて各種の通気層土壤カラムを用いて、人工地下水による脱離移行試験を実験するとともに、試験結果の解析を行った。その結果をまとめると以下のようなになる。

1. 土壤中の核種濃度分布はカラムの採取位置により異なり、表面濃度が高い場合は表面から急激に減少し、低い場合には濃度の変化は小さく、いずれも深度 10 cm 附近では、ほぼ同じ濃度に減少した。特に、 $^{60}\text{Co}$  では、その濃度がカラム下端まで続く傾向が見られた。
2. 流出液中には  $^{60}\text{Co}$  のみが低濃度検出された。その流出は、地下水の移流拡散に対応して、 $^3\text{H}$  の破過とともに始り、土壤の種類に応じた一定の濃度に達した後、時間とともに次第に低下した。
3. これらのことから、 $^{60}\text{Co}$  について、土壤中の低吸着領域及び極低濃度の流出においては、陽イオン以外の移行しやすい化学形が関与していると推察された。
4.  $^{60}\text{Co}$  の低吸着領域における放射性核種の移行挙動について、非定常の取扱の中で最

も単純な吸着-脱離反応速度を考慮したモデルを適用した解析を行った。流出液中濃度の時間変化についてはよく説明することができ、また、土壤中濃度分布についても低濃度部分で平坦になる傾向を示すことができた。このモデルによる解析結果では、汚染層中における $^{60}\text{Co}$ の非陽イオン性化学種の存在割合は $1.5 \times 10^{-4}$ 以下であり、安全評価への影響は比較的少ないと推定された。

5. 今回の解析モデルでは、土壤層中分布の濃度レベル等については十分説明できず、さらに検討が必要である。

### 謝辞

おわりに、本報告書を作成するにあたり、貴重な助言を頂いた浅地処分研究室山本忠利主任研究員、並びに土壤試料を採取するにあたり、多大な御協力を頂いた多くの方々に深く感謝の意を表します。



も単純な吸着-脱離反応速度を考慮したモデルを適用した解析を行った。流出液中濃度の時間変化についてはよく説明することができ、また、土壤中濃度分布についても低濃度部分で平坦になる傾向を示すことができた。このモデルによる解析結果では、汚染層中における $^{60}\text{Co}$ の非陽イオン性化学種の存在割合は $1.5 \times 10^{-4}$ 以下であり、安全評価への影響は比較的少ないと推定された。

5. 今回の解析モデルでは、土壤層中分布の濃度レベル等については十分説明できず、さらに検討が必要である。

### 謝辞

おわりに、本報告書を作成するにあたり、貴重な助言を頂いた浅地処分研究室山本忠利主任研究員、並びに土壤試料を採取するにあたり、多大な御協力を頂いた多くの方々に深く感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) 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)
- 2) 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 89-189(1989)
- 3) 武部慎一、山本忠利、和達嘉樹：保健物理、17, p437-442(1982)
- 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, p942-949(1988)
- 5) 武部慎一、大塚芳郎、大貫敏彦、小川弘道、田中忠夫、古宮友和、小林信夫、前村克巳、山本忠利、和達嘉樹：日本原子力学会秋の分科会(仙台)(1985)
- 6) 生出慶司、中川久夫、蟹沢聡史：東北地方、共立出版株式会社、p153(1989)
- 7) 中川久夫：青森県地質図及び地質説明書、p71-120(1972)
- 8) 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：JEARI-M 84-125(1984)
- 9) Pourbix, M.: "Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solution" pp. 325-329, Pergamon Press, Ltd. (1966)
- 10) Hasany, S. M. and Qureshi, M. A.: Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32, p747-752(1981)
- 11) Sillen, L. G. and Martel, A. E.: "Stability Constants Metal-Ion Complexes", pp. 54-58, Chem. Soc. London (1957)
- 12) 山本忠利、武部慎一、和達嘉樹：RADIOISOTOPES, 29, 8, p13-16(1980)
- 13) Syed M. H. and Munawar H. C.: Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32, p899-904(1981)
- 14) Rhodes D. W.: Soil Sci. Soc. Proc. 21, p389-392(1957)
- 15) Krisina S., Gunnar s. and Ivars N.: Nucl. Technol., 59 p302-313(1982)
- 16) 武部慎一、山本忠利：RADIOISOTOPES, 35, 2, p69-76(1986)
- 17) H. Ogawa : J. Nucl. Sci. Technol., 26, p530-535(1989)

Table 1 Properties of soil samples used in this test.

Properties	Soil sample			
	L 1	L 2	D 1	D 2
Soil type	Loamy soil	Loamy soil	Clayly sand	Sandy tuff soil
Specific gravity	2.77	2.79	2.68	2.68
Wet density(g/cm <sup>3</sup> )	1.41	1.74	1.90	1.90
Porosity	0.73	0.56	0.43	0.44
Water content(g/cm <sup>3</sup> )	0.67	0.52	0.39	0.39
Saturation degree	0.91	0.93	0.91	0.90
Saturation permeability coefficient(cm/s)	5.4x10 <sup>-4</sup>	5.3x10 <sup>-5</sup>	6.2x10 <sup>-7</sup>	6.9x10 <sup>-4</sup>
Distribution coefficient(ml/g)				
<sup>60</sup> Co	6.5x10 <sup>3</sup>	7.0x10 <sup>3</sup>	7.4x10 <sup>3</sup>	3.1x10 <sup>3</sup>
<sup>85</sup> Sr	5.6x10 <sup>3</sup>	8.7x10 <sup>3</sup>	6.1x10 <sup>3</sup>	5.0x10 <sup>3</sup>
<sup>137</sup> Cs	1.2x10 <sup>4</sup>	1.1x10 <sup>4</sup>	1.2x10 <sup>4</sup>	8.2x10 <sup>4</sup>

Table 2 Composition of the artificial ground water used in the test.

Ion	Concentration (ppm)	
Concentration of coexistent ion		
Cation	Ca <sup>2+</sup>	1.37
	Mg <sup>2+</sup>	1.09
	Na <sup>+</sup>	5.93
	K <sup>+</sup>	0.28
Anion	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	10.15
	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	2.85
	Cl <sup>-</sup>	6.28
pH	6.4	

Table 3 Inflow condition of the artificial ground water.

Test No.	Total inflow volume ( l )	Testing time ( h )	Inflow water velocity ( cm/h )
L - 1	70	1,287.5	0.105
L - 2	70	1,315.7	0.134
D - 1	70	6,481.8	0.035
D - 2	70	1,341.9	0.168

Table 4 Water flow velocity and dispersion coefficient in the soil layer estimated from the breakthrough curve of  $^3\text{H}$ .

Item	Test No.			
	L - 1	L - 2	D - 1	D - 2
Water flow velocity (cm/h)	0.098	0.097	0.029	0.145
Dispersion coefficient (cm <sup>2</sup> /h)	0.119	0.391	0.100	0.138

Table 5 Estimation of initial concentration of the non-cationic form in the contaminated soil.

Item	Test No.			
	L - 1	L - 2	D - 1	D - 2
Initial concentration in the soil water $C_0$ ( Bq/ml )	3.19	3.11	7.98	10.40
Adsorption reaction velocity constant $k_1$ ( 1/h )	$6.96 \times 10^{-3}$	$1.75 \times 10^{-3}$	$6.07 \times 10^{-5}$	$7.76 \times 10^{-4}$
Desorption reaction velocity constant $k_2$ ( 1/h )	$9.07 \times 10^{-3}$	$2.67 \times 10^{-3}$	$1.22 \times 10^{-4}$	$2.82 \times 10^{-3}$
Experimental average concentration in contaminated plate $A_0$ ( Bq/g )	$7.57 \times 10^4$	$4.59 \times 10^4$	$3.69 \times 10^4$	$3.72 \times 10^4$
Estimated initial concentration in contaminated soil $Q_0$ ( Bq/g )	5.32	3.37	6.03	5.58
Presence ratio of Non-cationic form $Q_0/A_0$	$7.02 \times 10^{-5}$	$7.33 \times 10^{-5}$	$1.64 \times 10^{-4}$	$1.50 \times 10^{-4}$

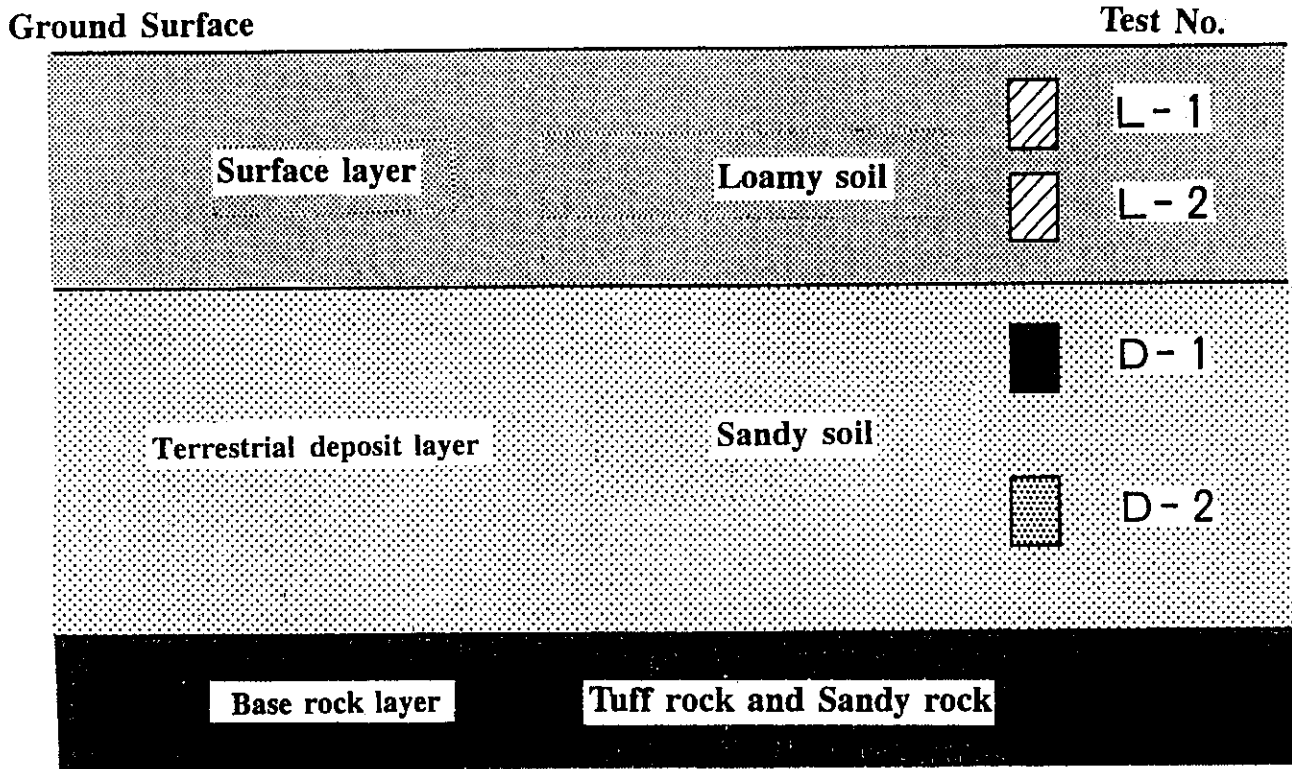


Fig.1 Geological structure of soil sampling site.

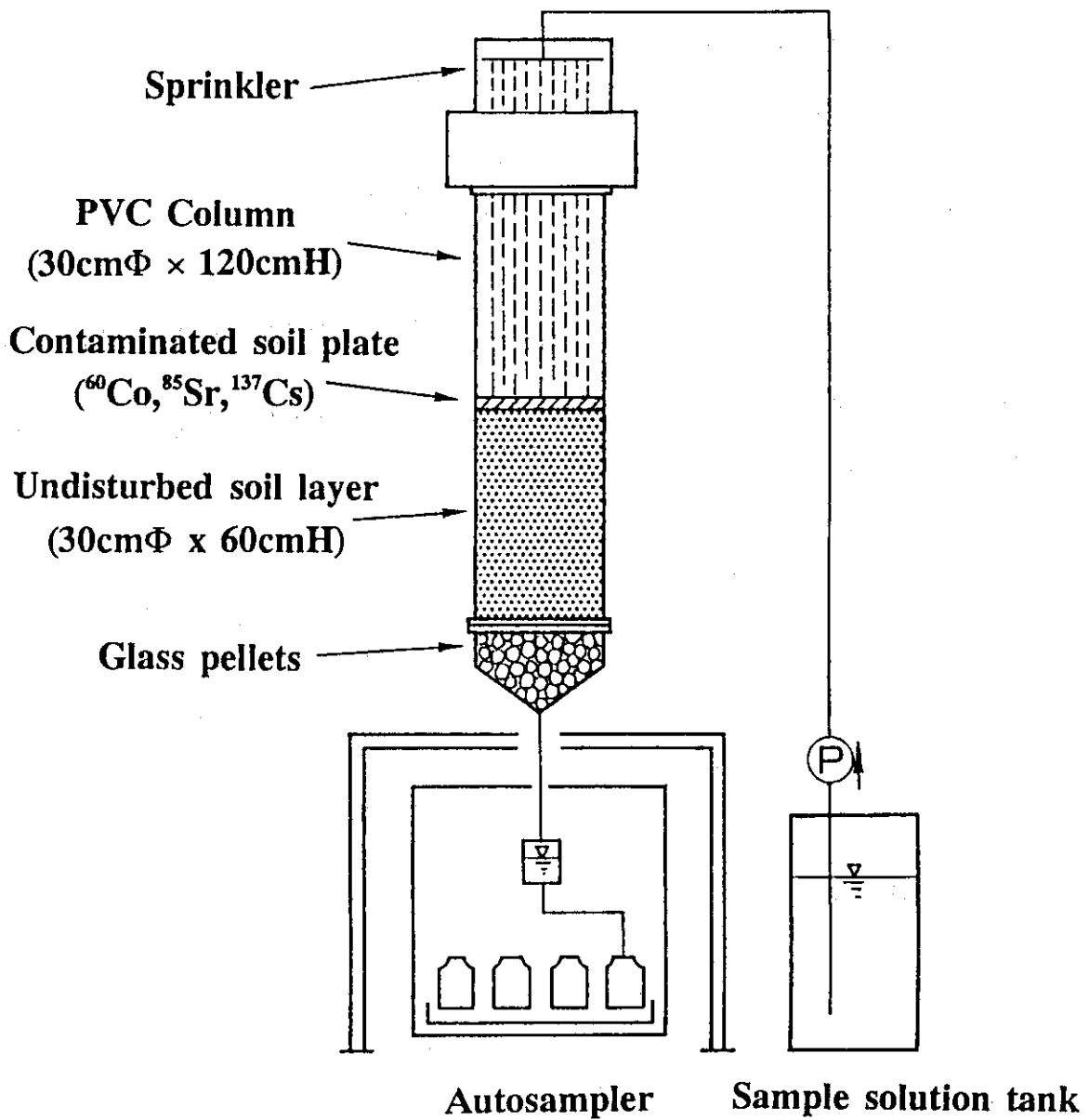


Fig.2 Schematic diagram of the apparatus for radionuclides migration in the soil column.

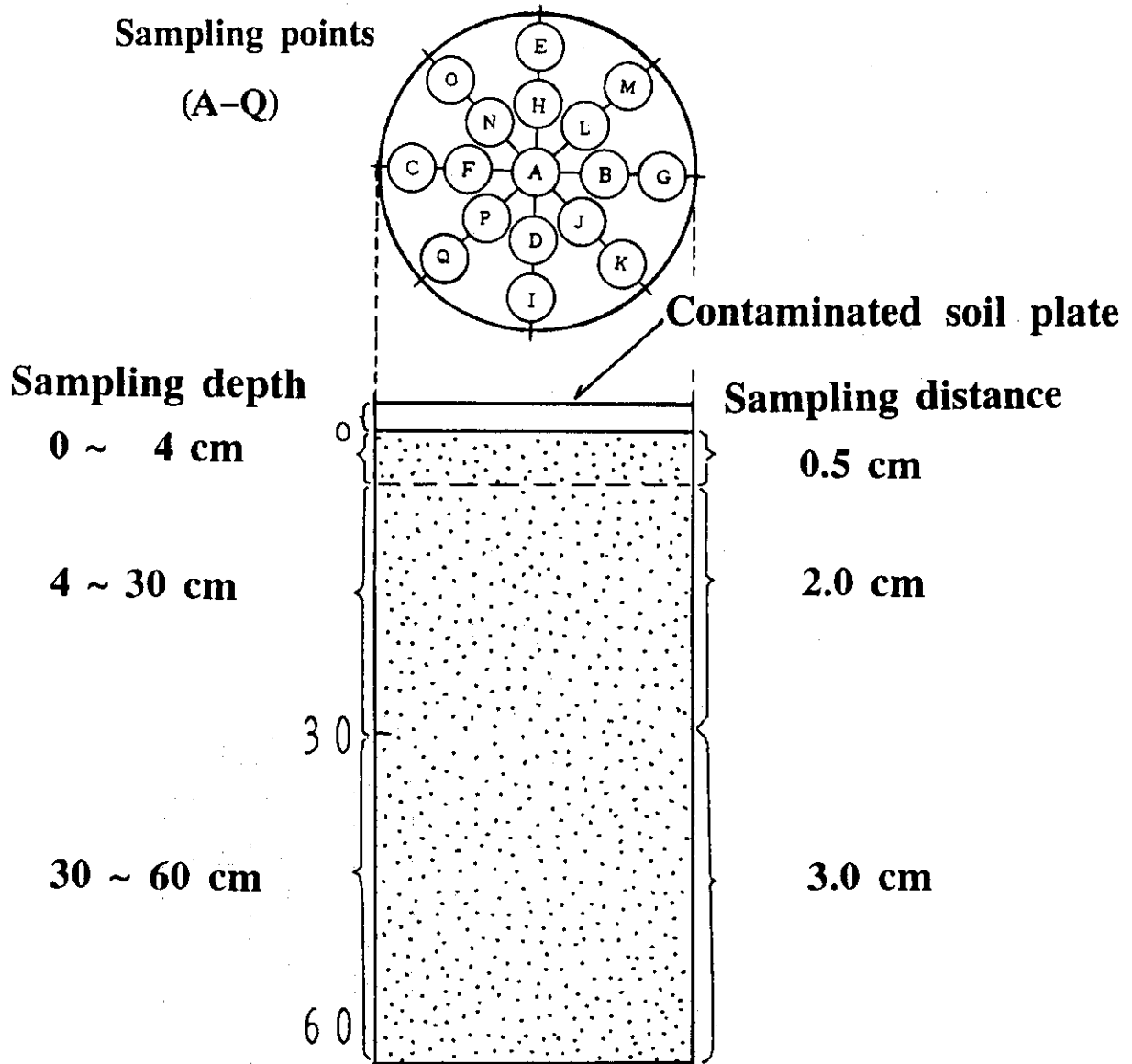


Fig.3 Sampling points of contaminated soil samples.



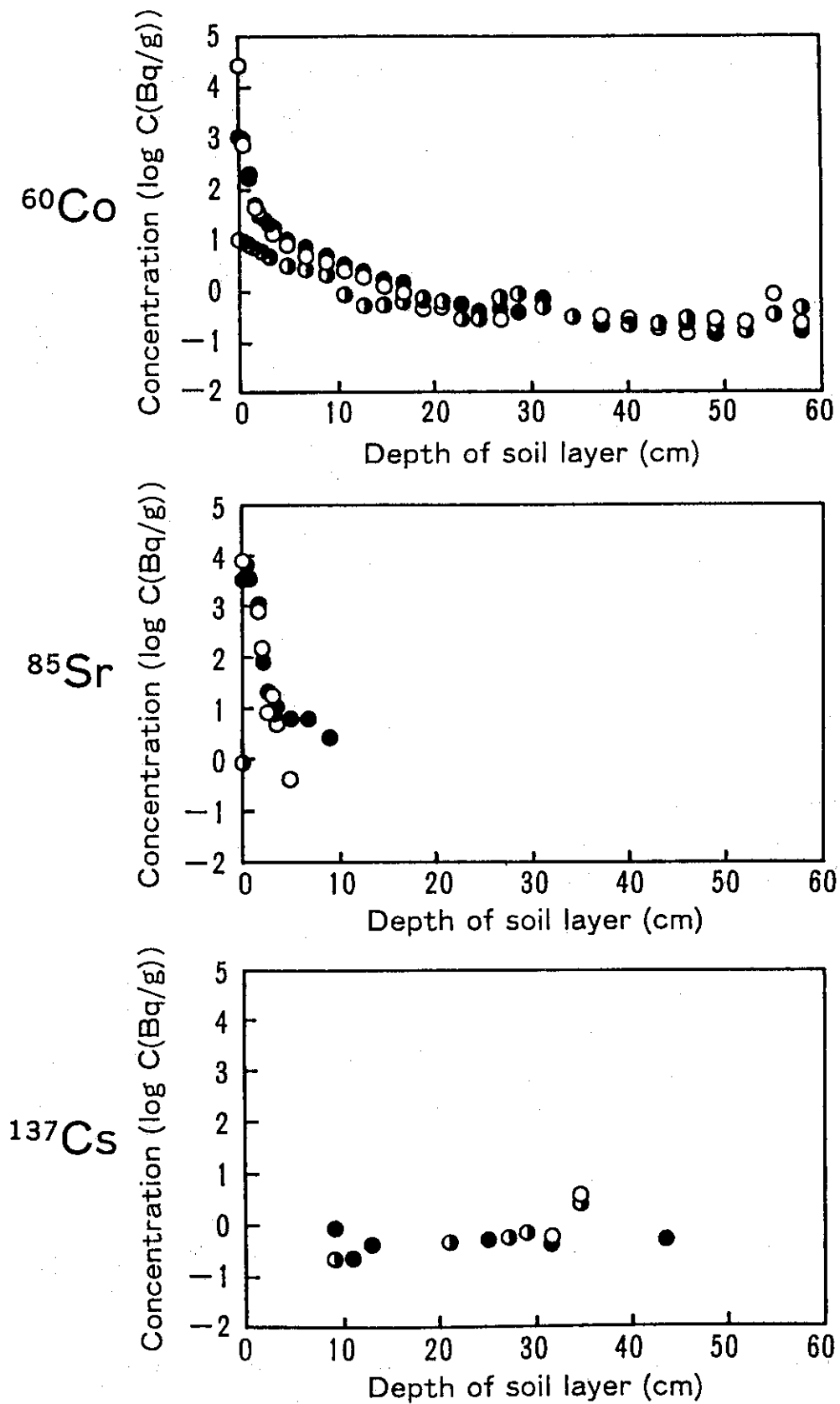


Fig.4 Concentration profile of radionuclides in soil layer (L-1).  
 (Sampling points ; A : ○, B : ◐, C : ●)

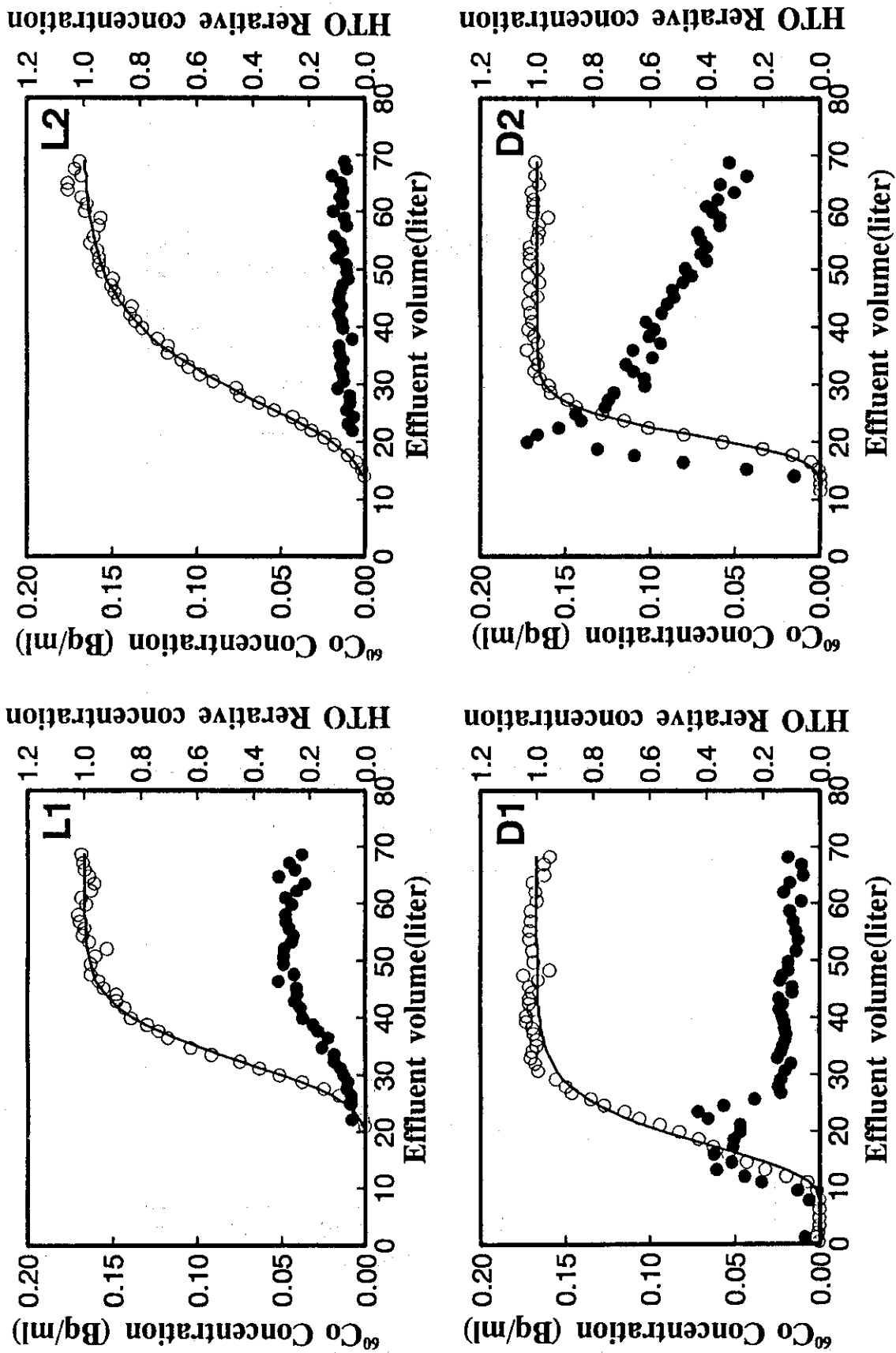


Fig.5 Concentration of radionuclides in the effluent from the soil layer.

● ;  $^{60}\text{Co}$ , ○ ; HTO, — ; HTO (Estimated)

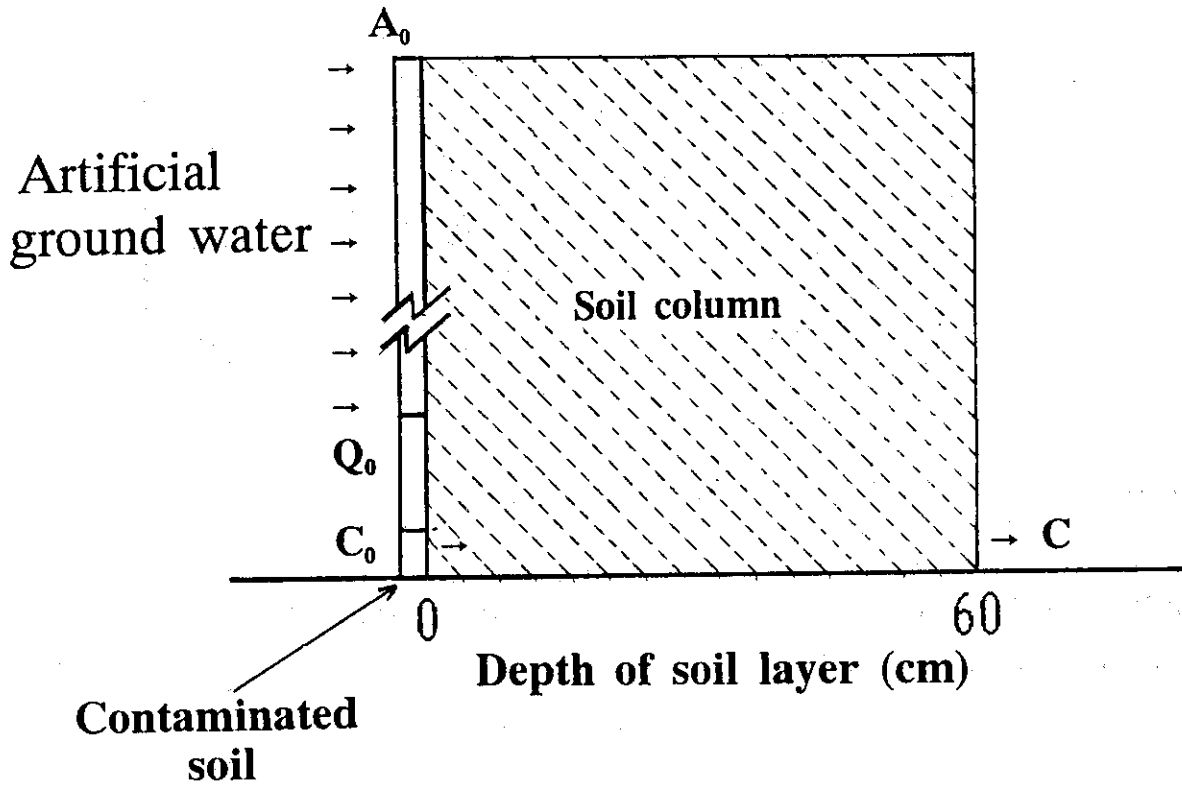


Fig.6 Schematic diagram of radionuclide migration model.

$A_0$  : Experimental average concentration  
in the contaminated plate

$Q_0$  : Initial concentration of non-ionic form  
in the contaminated soil

$C_0$  : Equilibrium concentration of non-cationic form  
in the pore water

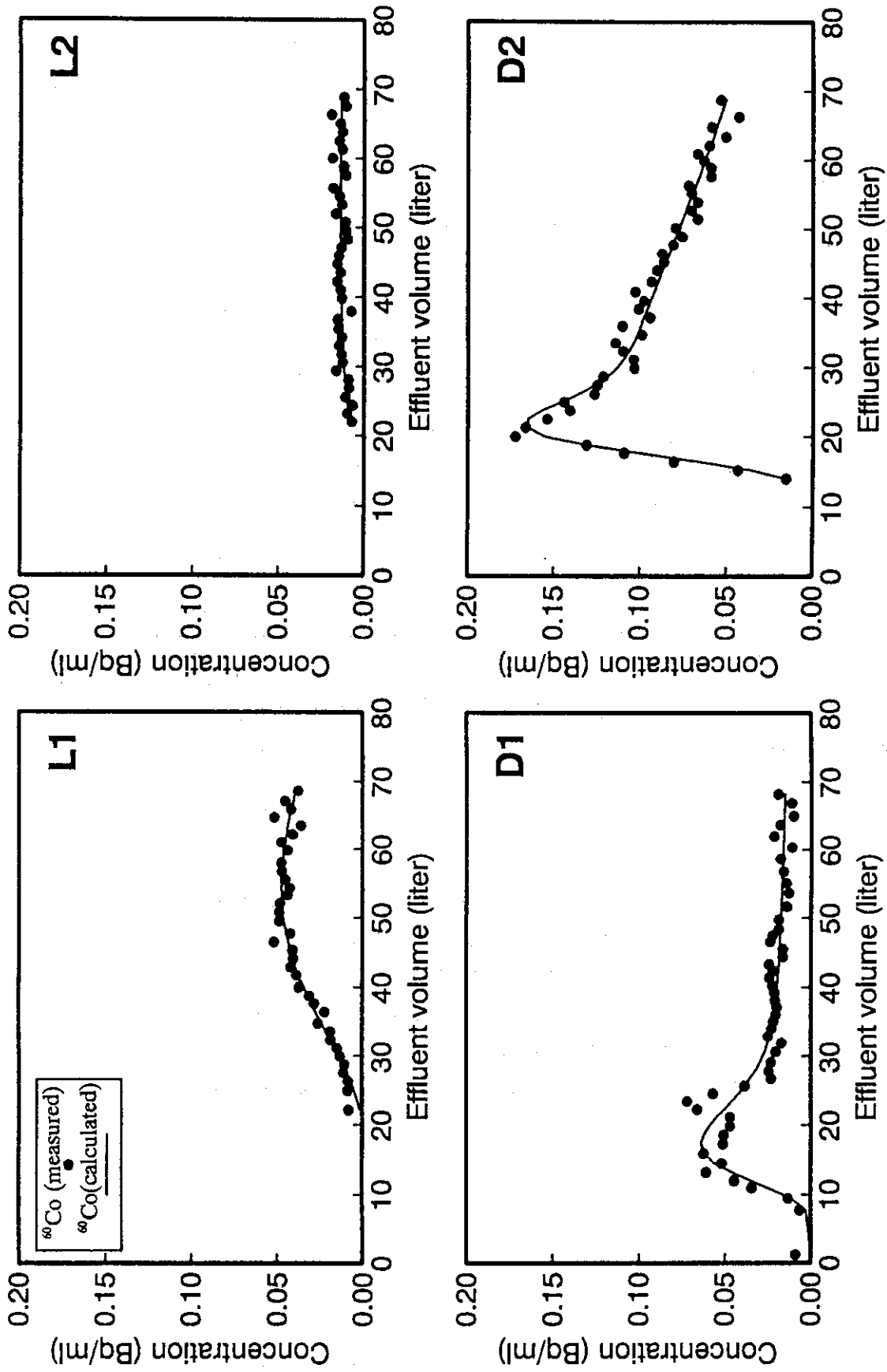


Fig.7 Fitting curve of  $^{60}\text{Co}$  concentration in the effluent from soil layers.

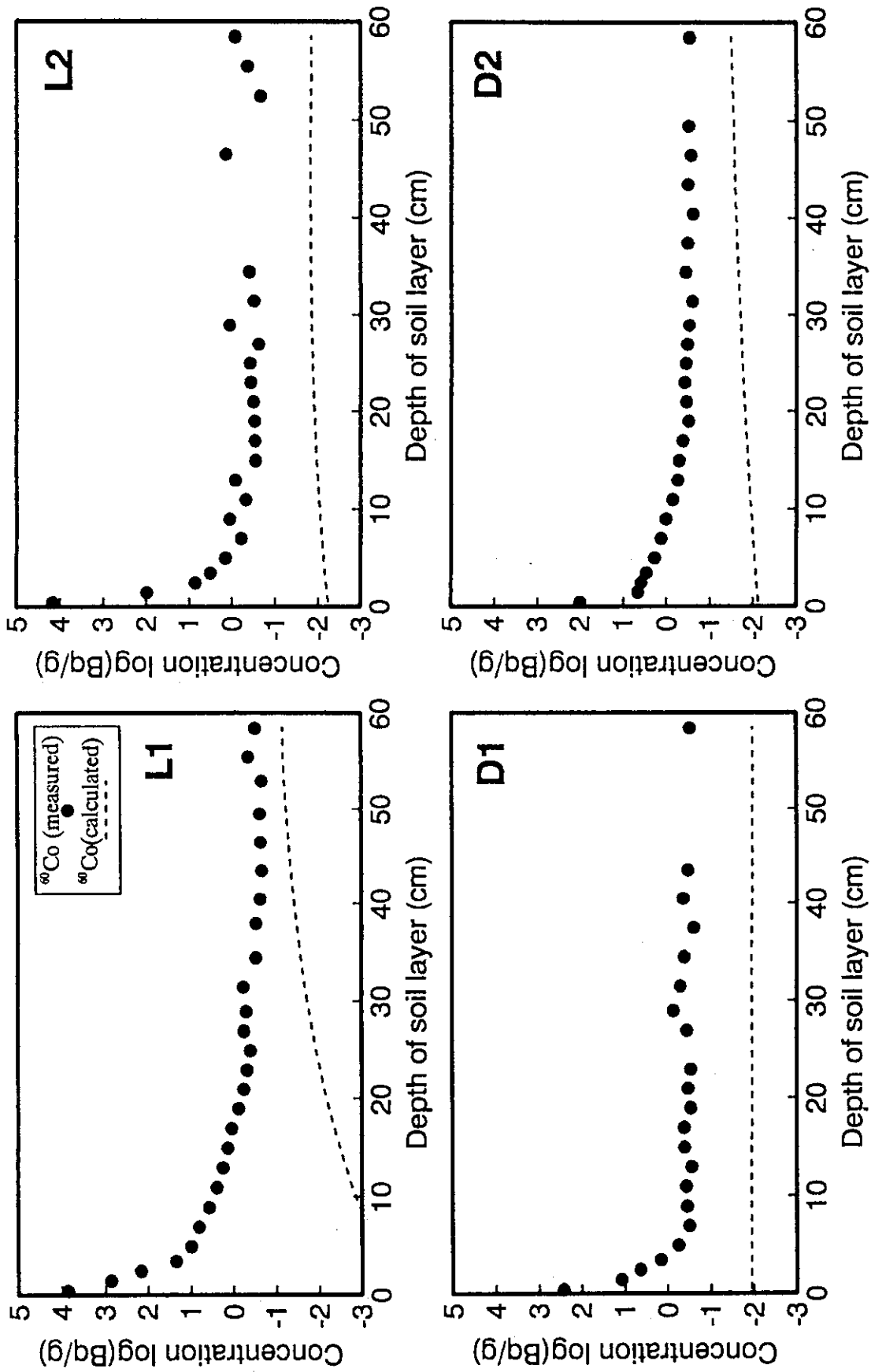


Fig. 8  $^{60}\text{Co}$  concentration calculated from the estimated parameters in the aerated soil layers.