

JAERI - M  
93-034

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  
第2報 流量の影響とその解析

1993年2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。  
入手の問い合わせは、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, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 いばらき印刷(株)

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  
第2報 流量の影響とその解析

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

(1993年1月29日受理)

未攪乱状態の通気層土壌試料を用いて、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 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試験において、前報に続いて低吸着領域における核種移行挙動について、地下水流下をトリチウムの破過開始直後までにとどめることにより調べ、土壌中の核種濃度分布及び流出液濃度分布の時間変化の結果を総合して解析を行った。その結果、この程度の流量では、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ は深部への移行は認められず、 $^{60}\text{Co}$ についてのみ低吸着領域の移行が認められ、その濃度分布にはピークが見出された。この低吸着領域における $^{60}\text{Co}$ の移行挙動について、吸着及び脱着反応速度定数を考慮した非定常の取扱において、最大吸着容量を導入したモデルを用いることにより、核種の流出液中濃度及び土壌中分布を統一的に説明することができた。解析結果から、汚染層における $^{60}\text{Co}$ の移行し易い化学形の初期割合は、0.1%程度と推定された。

Radionuclide Migration Behavior at the Low Adsorption Region  
on the Aerated Soil Testing  
The Second Report  
Effect of Inflow Volume and Migration Analysis

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 January 29, 1993)

Migration test of desorbed radionuclides from a soil layer, contaminated with  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , by using large column soil samples taken out in the undisturbed state, was continued. Radionuclide migration behavior at the low adsorption region were investigated of reduced inflow volume of the ground water just before the breakthrough of tritiated water. Integrated analysis was made for all testing results of migration concentration profile in the soil layer, and effluent concentration profile on elapsed time.

$^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were not observed in the deeper soil layer of the column at such a low inflow volume,  $^{60}\text{Co}$  showed a low concentration migration profile with a concentration peak in the deeper soil layer. The migration behavior of  $^{60}\text{Co}$  at the low adsorption region was analyzed by using a non-equilibrium migration model taking in consideration of sorption and desorption rates and a maximum sorption capacity. This model was able to explain consistently all the test results in account of the migration of movable non-cationic form of  $^{60}\text{Co}$ . Initial fraction of the movable form in the contaminated soil layer was estimated to be around 0.1%.

---

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, Maximum Sorption Capacity, Migration Model

目 次

1. 緒 言	1
2. 試験方法	1
3. 試験結果	2
4. 解析と考察	2
5. 結 言	6
謝 辞	6
参 考 文 献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Testing Method	1
3. Test Results	2
4. Analysis and Discussion	2
5. Conclusion	6
Acknowledgement	6
References	7

## 1. 緒 言

原子力発電施設から発生する低レベル放射性廃棄物について、地下構造物等へ処分する浅地層処分が計画されてきたが、平成4年12月より青森県六ヶ所村に浅地層処分施設が開始された。このような浅地層処分の安全評価においては、地下水等による放射性核種の移行を評価するための核種地中移行モデルが重要である。これまでに概略的な挙動を評価する方法がとられてきた。しかし、単純に分配係数のみでは核種の化学形の変化や地質構造の違い等による核種の地中移行挙動を詳細には現すことは困難である。これまで原研で行ってきた通気層核種移行試験の結果から、大部分の放射性核種が土壌表面に吸着され、土壌中核種濃度分布は表面より指数関数的に減少を呈することが分っており、このような核種の移行については分配係数を用いて大局的に解析評価が行われてきた。<sup>1)・2)</sup>しかし、前報<sup>3)</sup>で示したように、大型カラムによる地中核種移行試験において低濃度の<sup>60</sup>Coがテーリング現象を示し、土壌深部まで移行して行く過程についてはこれまでの分配係数のみではまったく説明できない。そこで、前報では拡散輸送方程式において吸着及び脱離<sup>4)・5)</sup>に関する反応速度定数を考慮した解析を試みた。その結果、流出液中の核種濃度の時間変化についてはかなり良く説明できたが、土壌中の核種濃度分布を十分には現せなかった。そこで、本報では、さらに通気層土壌試験における低吸着領域の核種移行挙動を解明する目的で、流下する人工地下水の流量を変化させて、土壌中の核種濃度分布の時間的変化を明らかにし、流出液中核種濃度の時間的変化の結果と総合して検討を行った。

## 2. 試験方法

試験に使用した未攪乱試料の採取地点の地層を図-1に示す。今回の試験には、前報で報告した核種脱離試験結果と比較検討するため、前回の試験に使用したローム層および段丘堆積層に対応する近傍の地層から採取した2種類の未攪乱土壌試料(上部ローム層(L0)、段丘堆積層下部の凝灰質砂層(D0))を使用した。試験試料の性質を表-1に示す。試験に使用した試料の空隙率は、ローム層では凝灰質砂層の値に比べ約1.5倍程度大きいものに対して、飽和度はともに約0.9と高い値を示した。また、ローム層の分配係数は砂層に比べて大きい傾向が見られた。その他の特徴は前報で報告したものと大きな違いは見受けられなかった。試験方法は、前報と同様に、長さ60cmの未攪乱通気層土壌層の上面に<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csで汚染した厚さ2cmの土壌層を載せ、<sup>3</sup>Hを含んだ人工地下水をそれぞれ一定の流速で流下した。流下流量は、前回は流出液中<sup>3</sup>H濃度(C<sub>i</sub>)/流下液中濃度<sup>3</sup>H濃度(C<sub>0</sub>)=1.0に近づくまで約70 l流下したが、今回は<sup>3</sup>Hの破過が始る時点(C<sub>i</sub>/C<sub>0</sub>=0.05を越えた段階)

## 1. 緒 言

原子力発電施設から発生する低レベル放射性廃棄物について、地下構造物等へ処分する浅地層処分が計画されてきたが、平成4年12月より青森県六ヶ所村に浅地層処分のため核種移行モデルが重要である。これま核種移行モデルでは分配係数が用いられ、放射性核種について概略的な挙動を評価する方法がとられてきた。しかし、単純に分配係数のみでは核種の化学形の変化や地質構造の違い等による核種の地中移行挙動を詳細には現すことは困難である。これまで原研で行ってきた通気層核種移行試験の結果から、大部分の放射性核種が土壌表面に吸着され、土壌中核種濃度分布は表面より指数関数的に減少を呈することが分っており、このような核種の移行については分配係数を用いて大局的に解析評価が行われてきた。<sup>1)</sup><sup>2)</sup>しかし、前報<sup>3)</sup>で示したように、大型カラムによる地中核種移行試験において低濃度の<sup>60</sup>Coがテーリング現象を示し、土壌深部まで移行して行く過程についてはこれまでの分配係数のみではまったく説明できない。そこで、前報では拡散輸送方程式において吸着及び脱離<sup>4)</sup><sup>5)</sup>に関する反応速度定数を考慮した解析を試みた。その結果、流出液中の核種濃度の時間変化についてはかなり良く説明できたが、土壌中の核種濃度分布を十分には現せなかった。そこで、本報では、さらに通気層土壌試験における低吸着領域の核種移行挙動を解明する目的で、流下する人工地下水の流量を変化させて、土壌中の核種濃度分布の時間的変化を明らかにし、流出液中核種濃度の時間的変化の結果と総合して検討を行った。

## 2. 試験方法

試験に使用した未攪乱試料の採取地点の地層を図-1に示す。今回の試験には、前報で報告した核種脱離試験結果と比較検討するため、前回の試験に使用したローム層および段丘堆積層に対応する近傍の地層から採取した2種類の未攪乱土壌試料(上部ローム層(L0)、段丘堆積層下部の凝灰質砂層(D0))を使用した。試験試料の性質を表-1に示す。試験に使用した試料の空隙率は、ローム層では凝灰質砂層の値に比べ約1.5倍程度大きいものに対して、飽和度はともに約0.9と高い値を示した。また、ローム層の分配係数は砂層に比べて大きい傾向が見られた。その他の特徴は前報で報告したものと大きな違いは見受けられなかった。試験方法は、前報と同様に、長さ60cmの未攪乱通気層土壌層の上面に<sup>60</sup>Co、<sup>85</sup>Sr及び<sup>137</sup>Csで汚染した厚さ2cmの土壌層を載せ、<sup>3</sup>Hを含んだ人工地下水をそれぞれ一定の流速で流下した。流下流量は、前回は流出液中<sup>3</sup>H濃度(C<sub>i</sub>)/流下液中濃度<sup>3</sup>H濃度(C<sub>0</sub>)=1.0に近づくまで約70 l流下したが、今回は<sup>3</sup>Hの破過が始る時点(C<sub>i</sub>/C<sub>0</sub>=0.05を越えた段階)

で流下を停止した。各流下流量及び流下時間は上部ローム層の場合(L0)では18.8 l, 363h、凝灰質砂層の場合(D0)では8.3 l, 162hであった。

流下終了後にカラムを解体して、前報と同様な方法で所定の位置から土壤試料を採取し、土壤中の核種濃度分布の変化を調べた。

### 3. 試験結果

上部ローム層(L0)及び凝灰質砂層(D0)の流出液中濃度及び土壤中の核種濃度の試験結果を図-2及び図-3に示す。

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。上部ローム質土壌及び凝灰質砂層における $^{60}\text{Co}$ の流出液中における検出は、前報で報告した試験結果と同じように $^3\text{H}$ の破過に対応して始まることが確認された。

図中の土壤中核種濃度は、土壤カラム表面の17箇所においてコア採取した試料<sup>3)</sup>について、それぞれ深度毎に放射能濃度を測定し、各深度における平均核種濃度で表したものである。土壤中の核種濃度分布は、どちらの地層においても $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ は土壤表面に大部分が吸着され、その後、急激に濃度は減少し、土壤表面下数cmで留り、今回の流量では特徴的な低濃度吸着領域の土壤深部での広がりは見出されなかった。これに対して、 $^{60}\text{Co}$ は、上部ローム層では土壤表面から急激に濃度が減少した後、土壤深部に低濃度領域が現れ、巾広いピークを持つと思われる分布が現れ、その後なだらかに減少を示した。凝灰質砂層では、表面から急激に濃度が減少した後、低濃度部分が続き、その後、カラム末端付近において明らかなピークが認められた。

### 4. 解析と考察

上記の試験結果において、流出した $^{60}\text{Co}$ は、 $0.45\mu\text{m}$ メンブレンフィルターにより捕集されなかったことから、濾過及び吸着され難い化学形の $^{60}\text{Co}$ が土壤層より流出したものと考えられる。また、 $^{60}\text{Co}$ の流出が $^3\text{H}$ の破過に対応して始まることは、各地層から流出した移行し易い化学形の $^{60}\text{Co}$ 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唆している。

土壤による核種の移行挙動の違いは、核種の化学形及び土壤の化学的性質の違いによるものと考えられる。 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ では、広いpH範囲で陽イオンとして存在する<sup>4)</sup>ため土壤表面で大部分が吸着され、土壤中濃度は表面から急激に減少し、流出液中には検出されなかったものと考えられ、前報で得られたこれまでの核種移行試験結果と同様であった。

一方、 $^{60}\text{Co}$ では、中性付近において大部分が陽イオン<sup>5)</sup>として存在するが、一部は非陽イオン性の水酸化物 $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ 等を生成し、これら水酸化物は凝集や高分子化によるコロイド、あるいは陰電荷を持った錯体



で流下を停止した。各流下流量及び流下時間は上部ローム層の場合(L0)では18.8 l, 363h、凝灰質砂層の場合(D0)では8.3 l, 162hであった。

流下終了後にカラムを解体して、前報と同様な方法で所定の位置から土壤試料を採取し、土壤中の核種濃度分布の変化を調べた。

### 3. 試験結果

上部ローム層(L0)及び凝灰質砂層(D0)の流出液中濃度及び土壤中の核種濃度の試験結果を図-2及び図-3に示す。

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。上部ローム質土壤及び凝灰質砂層における $^{60}\text{Co}$ の流出液中における検出は、前報で報告した試験結果と同じように $^3\text{H}$ の破過に対応して始まることが確認された。

図中の土壤中核種濃度は、土壤カラム表面の17箇所においてコア採取した試料<sup>3)</sup>について、それぞれ深度毎に放射能濃度を測定し、各深度における平均核種濃度で表したものである。土壤中の核種濃度分布は、どちらの地層においても $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ は土壤表面に大部分が吸着され、その後、急激に濃度は減少し、土壤表面下数cmで留り、今回の流量では特徴的な低濃度吸着領域の土壤深部での広がりは見出されなかった。これに対して、 $^{60}\text{Co}$ は、上部ローム層では土壤表面から急激に濃度が減少した後、土壤深部に低濃度領域が現れ、巾広いピークを持つと思われる分布が現れ、その後なだらかに減少を示した。凝灰質砂層では、表面から急激に濃度が減少した後、低濃度部分が続き、その後、カラム末端付近において明らか

### 4. 解析と考察

上記の試験結果において、流出した $^{60}\text{Co}$ は、 $0.45\mu\text{m}$ メンブレンフィルターにより捕集されなかったことから、濾過及び吸着され難い化学形の $^{60}\text{Co}$ が土壤層より流出したものと考えられる。また、 $^{60}\text{Co}$ の流出が $^3\text{H}$ の破過に対応して始まることは、各地層から流出した移行し易い化学形の $^{60}\text{Co}$ 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唆している。

土壤による核種の移行挙動の違いは、核種の化学形及び土壤の化学的性質の違いによるものと考えられる。 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ では、広いpH範囲で陽イオンとして存在する<sup>4)</sup>ため土壤表面で大部分が吸着され、土壤中濃度は表面から急激に減少し、流出液中には検出されなかったものと考えられ、前報で得られたこれまでの核種移行試験結果と同様であった。

一方、 $^{60}\text{Co}$ では、中性付近において大部分が陽イオン<sup>5)</sup>として存在するが、一部は非陽イオン性の水酸化物 $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ 等を生成し、これら水酸化物は凝集や高分子化によるコロイド、あるいは陰電荷を持った錯体

で流下を停止した。各流下流量及び流下時間は上部ローム層の場合(L0)では18.8 l, 363h、凝灰質砂層の場合(D0)では8.3 l, 162hであった。

流下終了後にカラムを解体して、前報と同様な方法で所定の位置から土壤試料を採取し、土壤中の核種濃度分布の変化を調べた。

### 3. 試験結果

上部ローム層(L0)及び凝灰質砂層(D0)の流出液中濃度及び土壤中の核種濃度の試験結果を図-2及び図-3に示す。

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。上部ローム質土壌及び凝灰質砂層における $^{60}\text{Co}$ の流出液中における検出は、前報で報告した試験結果と同じように $^3\text{H}$ の破過に対応して始まることが確認された。

図中の土壤中核種濃度は、土壤カラム表面の17箇所においてコア採取した試料<sup>3)</sup>について、それぞれ深度毎に放射能濃度を測定し、各深度における平均核種濃度で表したものである。土壤中の核種濃度分布は、どちらの地層においても $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ は土壤表面に大部分が吸着され、その後、急激に濃度は減少し、土壤表面下数cmで留り、今回の流量では特徴的な低濃度吸着領域の土壤深部での広がりは見出されなかった。これに対して、 $^{60}\text{Co}$ は、上部ローム層では土壤表面から急激に濃度が減少した後、土壤深部に低濃度領域が現れ、巾広いピークを持つと思われる分布が現れ、その後なだらかに減少を示した。凝灰質砂層では、表面から急激に濃度が減少した後、低濃度部分が続き、その後、カラム末端付近において明らかなピークが認められた。

### 4. 解析と考察

上記の試験結果において、流出した $^{60}\text{Co}$ は、 $0.45\mu\text{m}$ メンブレンフィルターにより捕集されなかったことから、濾過及び吸着され難い化学形の $^{60}\text{Co}$ が土壤層より流出したものと考えられる。また、 $^{60}\text{Co}$ の流出が $^3\text{H}$ の破過に対応して始まることは、各地層から流出した移行し易い化学形の $^{60}\text{Co}$ 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唆している。

土壤による核種の移行挙動の違いは、核種の化学形及び土壤の化学的性質の違いによるものと考えられる。 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ では、広いpH範囲で陽イオンとして存在する<sup>4)</sup>ため土壤表面で大部分が吸着され、土壤中濃度は表面から急激に減少し、流出液中には検出されなかったものと考えられ、前報で得られたこれまでの核種移行試験結果と同様であった。

一方、 $^{60}\text{Co}$ では、中性付近において大部分が陽イオン<sup>5)</sup>として存在するが、一部は非陽イオン性の水酸化物 $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ 等を生成し、これら水酸化物は凝集や高分子化によるコロイド、あるいは陰電荷を持った錯体

$^{60}\text{Co}(\text{OH})_2^-$ 等を生成する $^{60}\text{Co}^{2+}$ 。さらに、一たん核種を吸着した土壤の鉍物成分の内、比較的不安定な部分が地下水流により微細粒子となり懸濁物として再流出することが考えられる。すなわち、大部分の陽イオン性のものは大きな分配係数を示し、土壤に強く吸着されるが、ごく一部の中性または陰電荷を持った化学形の部分は、土質による影響が少なく、土壤には一般的に吸着され難く、したがって低濃度吸着領域が土壤深部まで広がり、土壤層中に広く分布する結果となる。特に、今回の試験では、 $^3\text{H}$ の流出開始直後に人工地下水の流入を停止したため、低濃度の移行し易い化学形の $^{60}\text{Co}$ の初期移行部分が土壤層より流出せず、土壤層中に留り、土壤深部において低濃度領域のピークとして認められたものと考えられる。つまり、流量の影響により初期に存在していた移行し易い化学形の $^{60}\text{Co}$ は比較的早い時期に水とともに移行し、供給地下水の土壤層からの流出開始時には低濃度領域の特徴的な分布が保存されていたと推定される。

放射性核種の低濃度部分の移行に関しては、 $^{60}\text{Co}$ 以外の核種である $^{90}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ については流出液中には検出されず、また、土壤中の低濃度部分のテーリングも見られないことから、安全評価への影響は小さいと考えられる。これに対して、 $^{60}\text{Co}$ については、土壤中において明確なピークを持つ低濃度分布が見られ、流出液中にも検出されることから、前報と同様にその挙動を詳細に検討するため新しい移行モデルを用いた解析を行った。

土壤層中の $^{60}\text{Co}$ の濃度分布において、土壤深部で低濃度部分が平坦になる傾向及び流出液中核種濃度の特徴的な時間的な変化は、吸着平衡移行モデルでは現せない現象である。前報では、吸着移行の非定常の取扱の中で最も単純な一次の吸着・脱着反応を取入れたモデルを用いて、どの程度これらの現象を説明できるのかを検討した。その結果、土壤層からの流出した核種の流出液中濃度の時間変化及び土壤層中の低濃度部分の平坦になる傾向についてはよく説明することができたが、土壤層中の放射能濃度レベルについてはかなり異なり、十分な説明ができなかった。そこで、低吸着領域における $^{60}\text{Co}$ の移行挙動について、前報で報告した拡散輸送方程式において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 $k_2$ を考慮することに加えて、さらに、対象とする移行化学形に対して土壤の最大吸着容量 $Q_M$ を取入れたモデルを用いて、汚染層中には初期に一定量 $A_w(\text{Bq}/\text{cm}^3)$ の未吸着の化学形が存在するとして解析を行った。用いた計算式を以下に示す。前報の計算式とは(2)式において、 $(1 - Q/Q_M)$ 項が追加されている点が異なっている。

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

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = k_1 \left(1 - \frac{Q}{Q_M}\right) C - k_2 Q \quad (2)$$

ここで、 $Q$  は土壤中の核種吸着濃度 (Bq/g)、 $C$  は土壤間隙水中の核種濃度 (Bq/ml)、 $Q_m$  は土壤層に特有な移行化学形の最大吸着容量 (Bq/g)、 $f$  は土壤の空隙率、 $s$  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 (cm)、 $t$  は時間 (h)、 $k_1$  は吸着に関する反応速度定数 ( $(\text{cm}^3/\text{g}) \cdot \text{h}^{-1}$ )、 $k_2$  は脱離に関する反応速度定数 ( $\text{h}^{-1}$ ) である。

解析に当たっては、空隙率  $f$ 、飽和度  $s$  については採取試料の実測値を用い、水流速  $V$  は地下水供給速度と  $f$ 、 $s$  から推定した。拡散係数  $D$ 、吸着反応速度定数  $k_1$ 、脱離反応速度定数  $k_2$ 、汚染層における初期未吸着化学形濃度  $A_w$  及び最大吸着容量  $Q_m$  をパラメーターとして (1)、(2) 式からそれぞれの試験時間  $t$  における距離  $x$  と土壤中核種濃度の関係及び流出液中濃度を計算し、土壤中濃度分布の観測データと比較して、誤差の二乗の和が最小になるようにこれらのパラメーターの値を求めた。

今回の解析に用いたモデルの概念図を図-4に示す。この図は、流出液及び土壤中の濃度分布の一例を示したものであり、破過前の土壤中に低濃度領域のピークが見られる状態 (a) 及び破過後の土壤中分布は平になり、流出液にピークが見られる状態 (b) を示したものである。

今回の試験については、 $^3\text{H}$  の破過開始後、直ちに流下を停止したため、流出液のデータは少なく、解析においては主として土壤のテーリング部分の核種濃度分布データを使用した。上記の最小二乗法により得られた結果を図-5に示す。凝灰質砂層の場合 ( $D0$ ) のように土壤中に明確なピークが見られるケースにおいては、新しい移行モデルにより核種の移行状況を良く説明できた。また、上部ローム質土壤の場合 ( $L0$ ) のように土壤中にゆるやかなピークが見られるケースにおいても、土壤中核種濃度分布ならびに流出液濃度分布を良く説明できることが分った。上記のように新しいモデルにより破過直後における土壤中核種濃度分布を良く説明できることが見出されたので、前報に報告した流量の大きい場合の試験結果についてもこのモデルを用いて同様の方法により試験データを解析した。解析には流出液の試験データと土壤のテーリングを示す部分のデータ全部を使用した。解析結果を図-6及び図-7に示す。上部及び下部のローム質土壤では、流出液及び土壤中にピークが見られない場合であるが、どちらのケースも良く説明できた。また、砂質粘土層と凝灰質砂層においては、流出液中にピークが見られ、土壤中にはピークが見られないケースであるが、流出液、土壤中分布のどちらについても良く説明できた。以上のことから新しい移行モデルにより、流出液ならびに土壤中分布の両方において、前報を含めた全ての試験結果について統一的によく説明できることが分った。

今回の解析から得られた移行パラメータをまとめて表-2に示す。表の中で凝灰質砂層の場合の水流速  $V$  については、採取試料の水分飽和度は 0.909 であったが、土壤中の動く水の飽和度を 0.527 と仮定して計算を行った。この場合、地下水供給速度と空隙率及び飽和度の測定値から計算される水流速は  $0.31 \text{ cm}/\text{h}$  となる。前述のように、 $^3\text{H}$  の破過と  $^{60}\text{Co}$  の破過がほとんど一致していることから、移行化学形は地下水とともに拡散をともしないながら移行していると考えられる。したがって、汚染層中に初期に存在した一定量の未吸着化学形に由来する低吸着領域における濃

度分布のピーク位置はほぼ水流速に対応していると推定される。試験期間162 hに土壤カラム中における移行化学形の濃度ピークは深さ約50 cmの位置まで進んでいることから、対応する水流速は $50/162 = 0.18$  cm/hとなる。すなわち、土壤中の全含水量が移動すると仮定した場合の水流速よりも濃度分布ピークの方が速く動いたことになってしまう。したがって、飽和度のうち $0.91 \times (0.18/0.31) = 0.53$ の部分の水のみが移動したと推定するのが合理的であると考えた。

解析結果において、最大吸着容量 $Q_m$ 及び汚染層中の初期未吸着化学形濃度 $A_w$ について土壤の種類により大きな変化がないことから、いずれの地層においても類似した化学形が関与しているものと推察される。今回の移行モデルにおいて新たに導入した移行化学形の最大吸着容量について、解析により求められた値は $0.2 \sim 1.3$  Bq/gと非常に小さい。用いた $^{60}\text{Co}$ の比放射能濃度 $4.85 \times 10^{12}$  Bq/gを考慮しても、 $\text{Co}$ についての最大吸着容量は $0.7 \sim 4.5 \times 10^{-12}$  mole/kgに相当し、化学量論的にも非常に小さい値である。このことは、今回得られた最大吸着容量の値は、 $\text{Co}$ 化合物そのものではなく、ごく一部が $\text{Co}$ により標識された物質に対する吸着容量を意味すると考えられる。

これらの解析結果を総合すると、移行化学形はコバルト酸化物あるいは水酸化物そのものであるよりも、間隙水中の流れの中に、かなりの量存在すると思われる土壤を構成する粘土鉱物等の微粒子が、土壤マトリックスへの弱い吸着と脱離を繰り返しながら移動している中に、 $^{60}\text{Co}$ を選択的に吸着した鉱物微粒子が混在して移行している可能性が高いと考えられる。

また、得られた汚染層における初期未吸着化学形濃度 $A_w$ と試験開始時に添加した核種の汚染土壤中の濃度 $Q_0$ との比から非陽イオン性化学形の存在割合を計算すると、 $0.05 \sim 0.15\%$ という値が得られ、移行しやすい核種の存在割合はいずれの土壤についても千分の1程度であることが分った。

このように、通気層土壤試験により明らかになされた低吸着領域における放射性核種の移行挙動は、これまでの概略的な多くの核種移行解析評価に適用されてきた吸着平衡移行モデルの適用範囲外であることを示している。したがって、放射性廃棄物処分の安全評価においては、核種の非陽イオン性化学形について、これらの実験結果の解析に基づいたより現実的な検討を行うことが必要であると考えられる。また、今回の一連の試験では、汚染層からの移行化学形の初期流出についてのみ確認できた。しかし、汚染土層と接触する地下水の流動により微量の移行化学形の流出が長期的に続く可能性も考えられ、今後の長期安全評価において重要な検討事項である。

## 5. 結 言

$^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ で汚染した土壤部を未攪乱通気土壤層上部に載せて、人工地下水による脱離移行試験における流下流量の影響に関する試験を実施するとともに、試験結果の解析を行った。

これらの結果をまとめると以下のようなになる。

1.  $^{60}\text{Co}$ の破過開始時において、低吸着領域における $^{60}\text{Co}$ の土壤中分布に濃度ピークが見い出された。また、 $^{60}\text{Co}$ の破過は、 $^3\text{H}$ の破過に対応して始る事が確認された。
2. 低吸着領域における $^{60}\text{Co}$ の移行挙動は、吸着及び脱離反応速度定数を考慮した非定常の取扱において、最大吸着容量を取入れたモデルにより、全ての試験結果について統一的に説明できた。これにより、破過開始後、浸透水により土壤中の濃度ピークが押し流され、流出曲線に明瞭な極大値を形成することが確認された。
3.  $^{60}\text{Co}$ の吸着し難い化学形は、汚染層中の $^{60}\text{Co}$ の総量に対して0.05～0.15%程度存在すると推定された。

## 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、並びに土壤採取するにあたり、多大なご協力を頂いた多くの方々に深く感謝の意を表します。

## 5. 結 言

$^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ で汚染した土壌部を未攪乱通気土壌層上部に載せて、人工地下水による脱離移行試験における流下流量の影響に関する試験を実施するとともに、試験結果の解析を行った。

これらの結果をまとめると以下のようなになる。

1.  $^{60}\text{Co}$ の破過開始時において、低吸着領域における $^{60}\text{Co}$ の土壌中分布に濃度ピークが見い出された。また、 $^{60}\text{Co}$ の破過は、 $^3\text{H}$ の破過に対応して始る事が確認された。
2. 低吸着領域における $^{60}\text{Co}$ の移行挙動は、吸着及び脱離反応速度定数を考慮した非定常の取扱において、最大吸着容量を取入れたモデルにより、全ての試験結果について統一的に説明できた。これにより、破過開始後、浸透水により土壌中の濃度ピークが押し流され、流出曲線に明瞭な極大値を形成することが確認された。
3.  $^{60}\text{Co}$ の吸着し難い化学形は、汚染層中の $^{60}\text{Co}$ の総量に対して0.05～0.15%程度存在すると推定された。

## 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、並びに土壌採取するにあたり、多大なご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 : J A E R I - 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 : J A E R I - M 89-189(1989).
- 3) 武部慎一、向井雅之、古宮友和、神山秀雄 : J A E R I - M 92-205 (1993).
- 4) Y. Fujikawa and M. Fukui : J. Contaminant Hydrology, 8 , p177-195 (1991).
- 5) H. Ogawa : J. Nucl. Sci. Technol. , 26 , p530-535(1989).
- 6) Pourbix, M. : "Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solution", Pergamon Press, Ltd(1966).
- 7) Hasany, S. M. and Qureshi, M. A. : Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32, p747-752 (1981).
- 8) Sillen, L. G. and Martell, A. E. : "Stability Constants Metal-Ion Complexes", pp. 54-58, Chem. Soc. London (1957).



表-1 採取土壌試料の性質

性質	L0	D0
土質	上部ローム質土壌	凝灰質砂層
真比重	2.68	2.67
空隙率	0.64	0.45
飽和度	0.92	0.91
飽和透水係数 ( $10^{-4}$ cm/sec)	1.3	0.9
分配係数 (ml/g)		
$^{60}\text{Co}$	4300	1500
$^{85}\text{Sr}$	250	110
$^{137}\text{Cs}$	5500	1500

表-2 解析から得られた移行パラメータ

試験名	L0	L1	L2	D0	D1	D2
水流速V (cm/h)	0.12	0.12	0.14	0.31*	0.038	0.19
拡散係数D ( $\text{cm}^2/\text{h}$ )	0.25	0.34	0.63	0.25	0.19	0.38
吸着反応速度定数 $k_1$ ( $10^3(\text{cm}^3/\text{g})\text{h}^{-1}$ )	10.0	57.0	9.5	25.0	2.7	12.0
脱離反応速度定数 $k_2$ ( $10^3\text{h}^{-1}$ )	3.3	1.0	0.67	0.02	0.04	0.9
汚染層における 初期未吸着化学形濃度 $A_w$ ( $\text{Bq}/\text{cm}^3$ )	54.4	25.7	31.2	79.0	44.3	29.7
最大吸着容量 $Q_w$ ( $\text{Bq}/\text{g}$ )	1.28	0.38	0.39	0.17	0.23	0.25
$^{60}\text{Co}$ の移行し易い化学形の 存在比 $A_w/Q_w$ ** (%)	0.10	0.05	0.06	0.15	0.09	0.06

\* D0の場合には、採取試料の水分飽和度は0.91であるが、土壌中を動く水の飽和度を0.53とした。

\*\* 汚染土壌中 $^{60}\text{Co}$ 濃度  $Q_0$  ( $\text{Bq}/\text{cm}^3$ )は52, 370  $\text{Bq}/\text{cm}^3$ であった。

地表面

試験番号

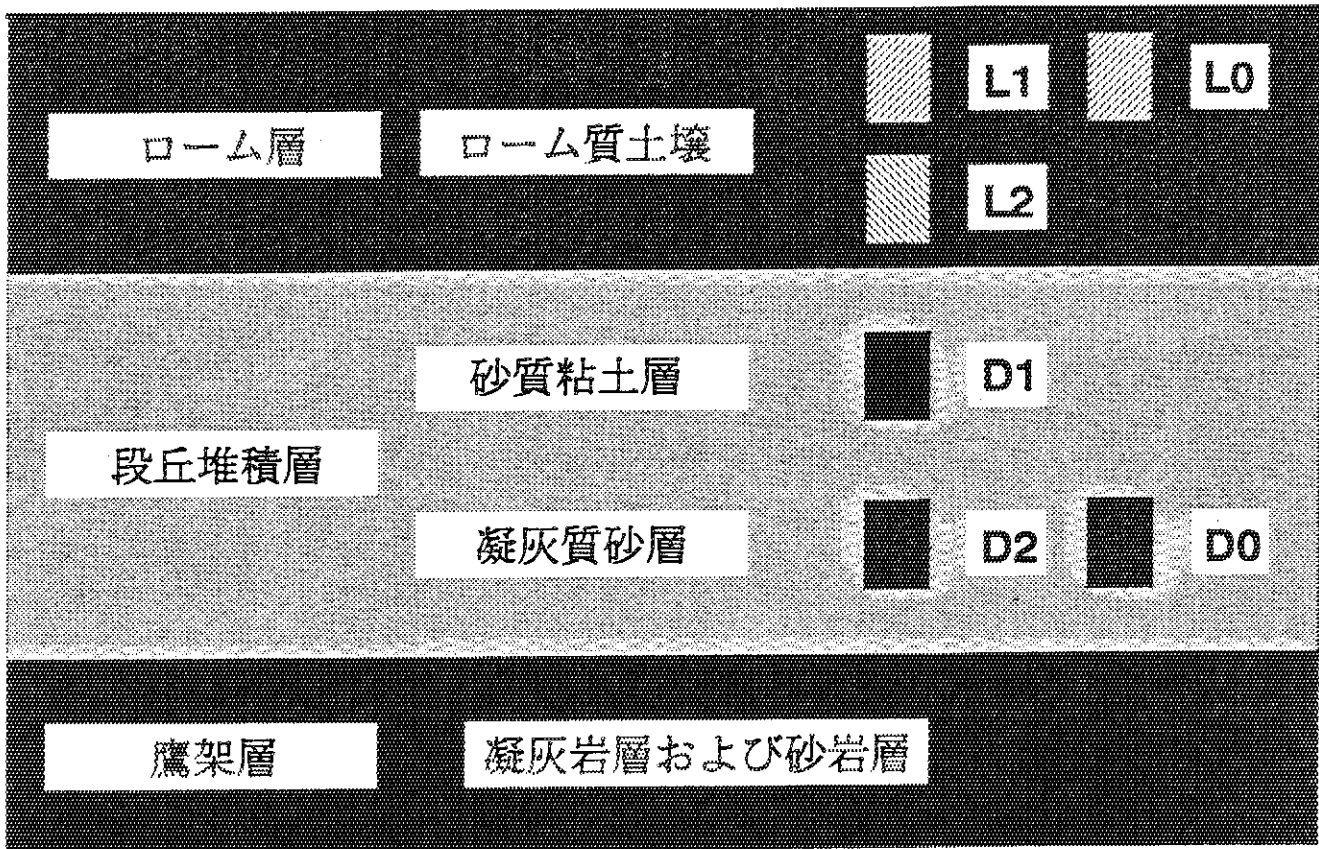


図-1 採取地点の地層図

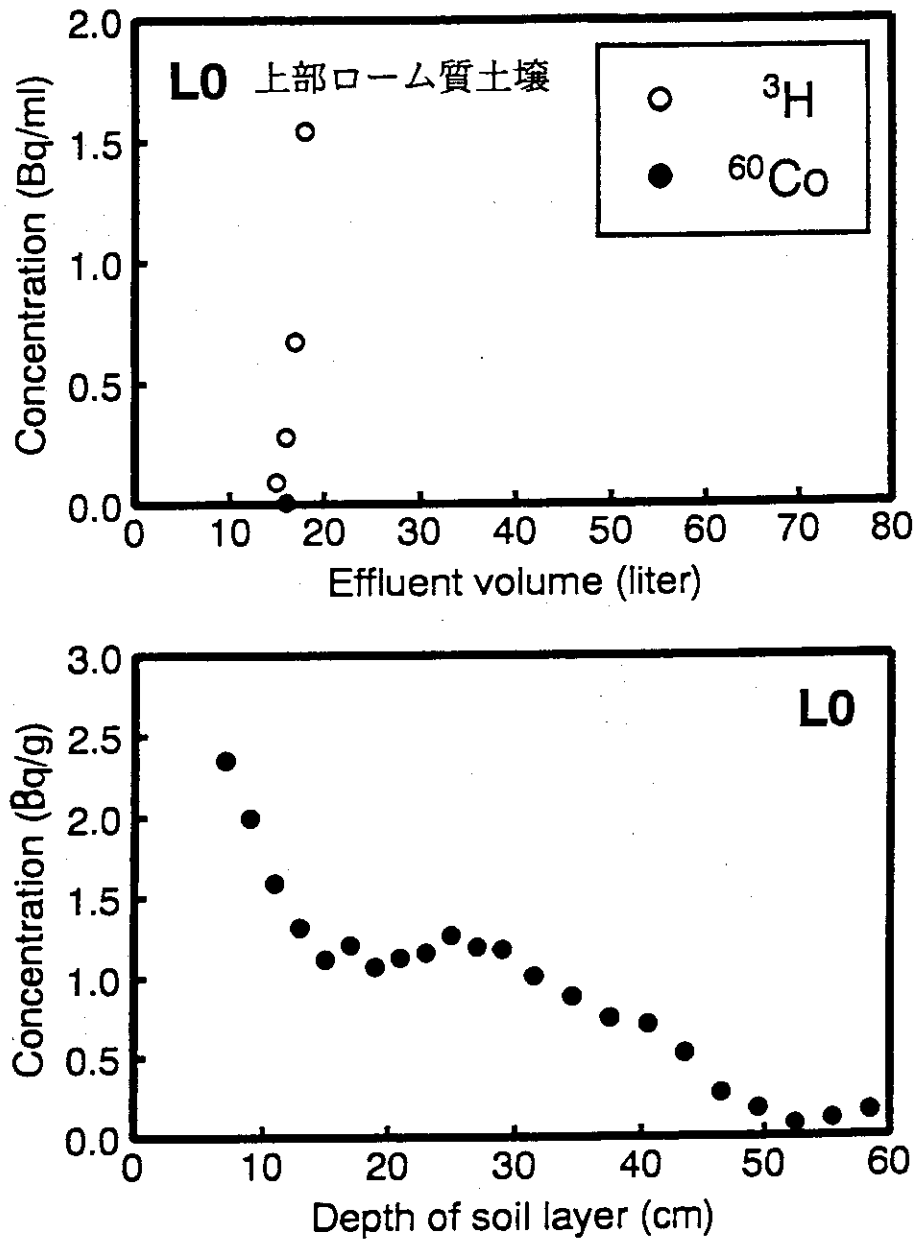


図-2 上部ローム質土壌における流出液及び土壌中の $^{60}\text{Co}$ 濃度分布

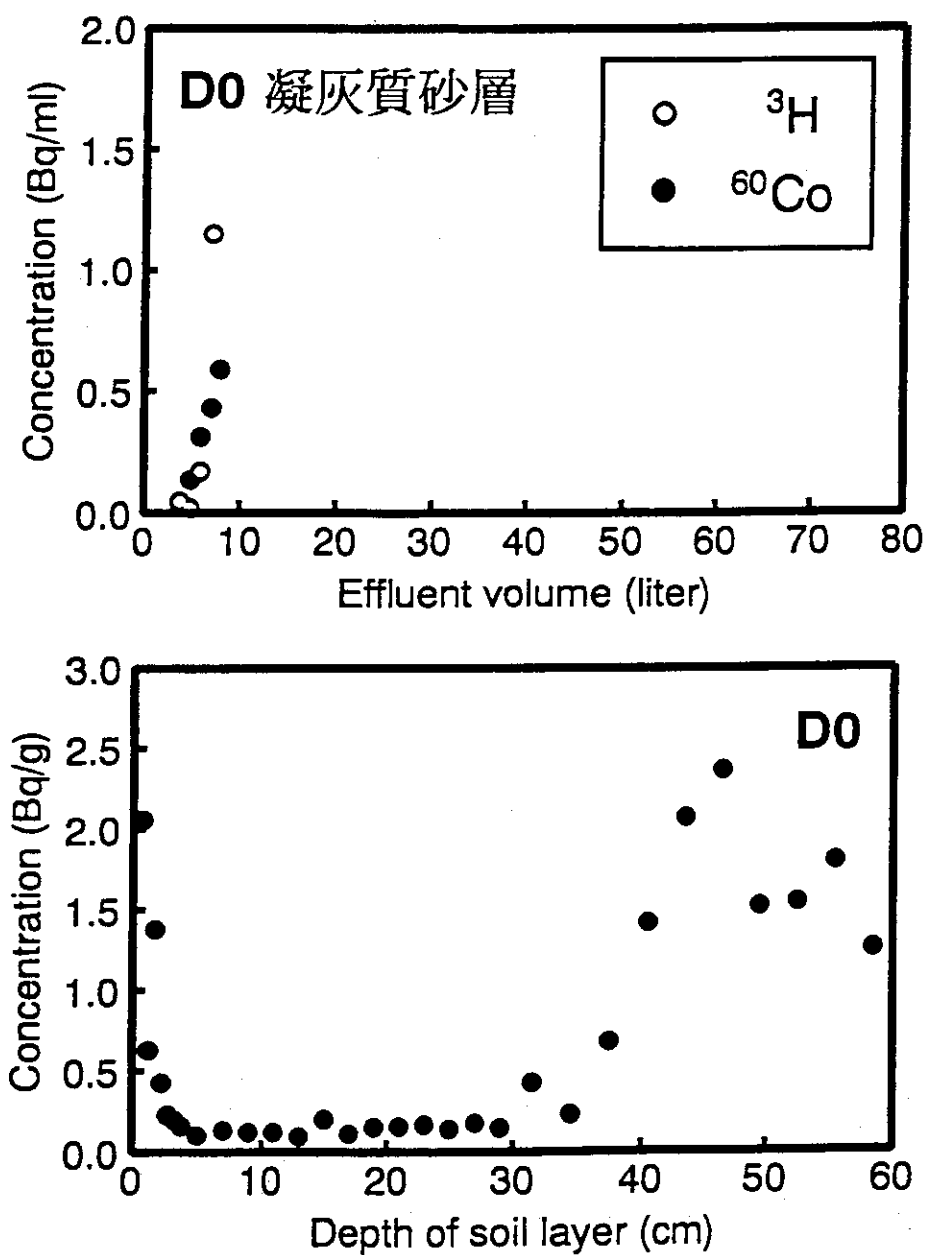


図-3 凝灰質砂層における流出液及び土壌中の $^{60}\text{Co}$ 濃度分布

- $A_v$  ; 汚染層初期化学種濃度 (Bq/cm<sup>3</sup> soil)
- $Q_M$  ; 最大吸着容量 (Bq/g dry soil)
- $Q$  ; 土壌吸着濃度 (Bq/g)
- $C$  ; 間隙水濃度 (Bq/ml)

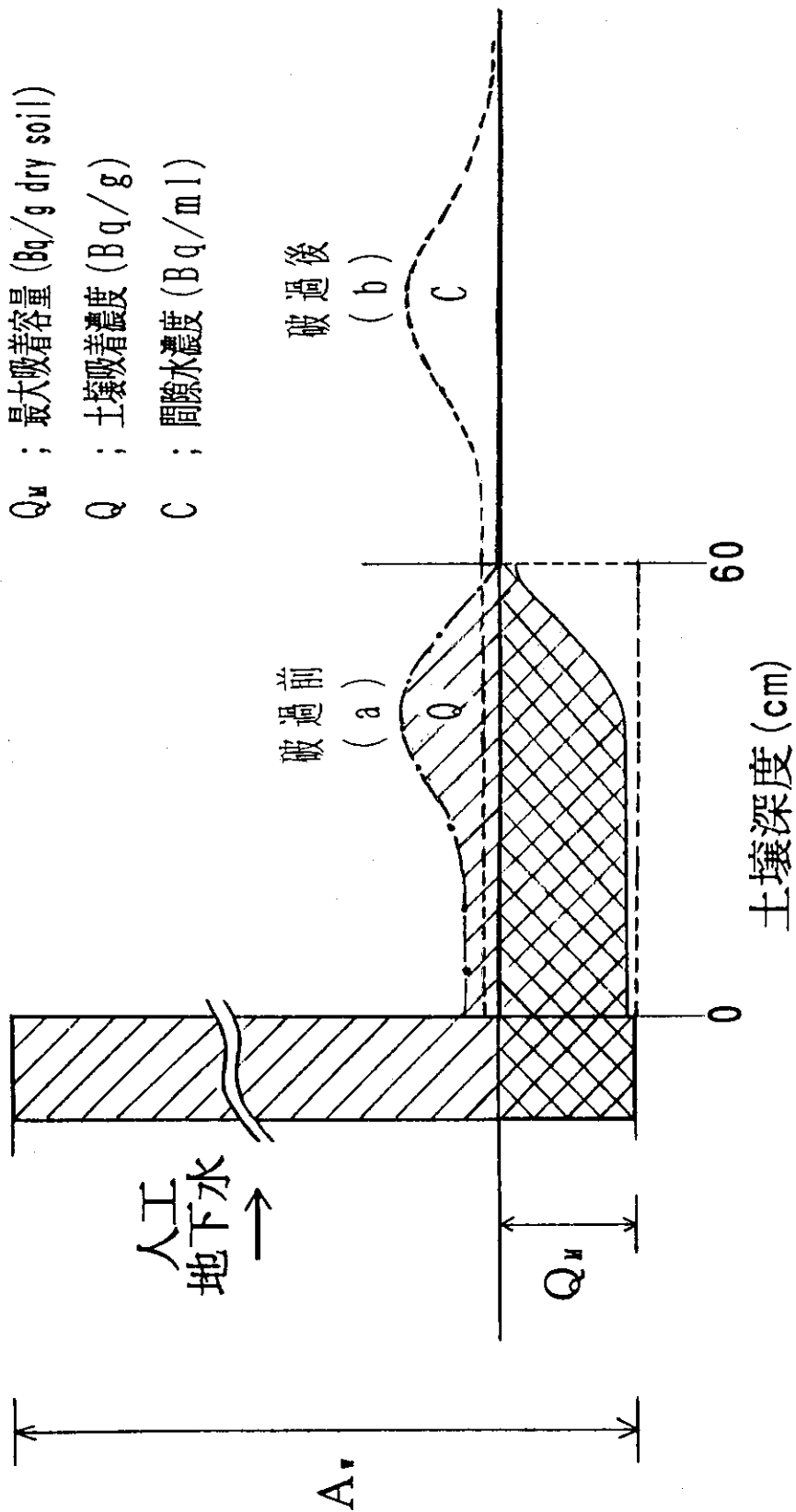


図-4 新しい解析に用いた移行モデルの概要

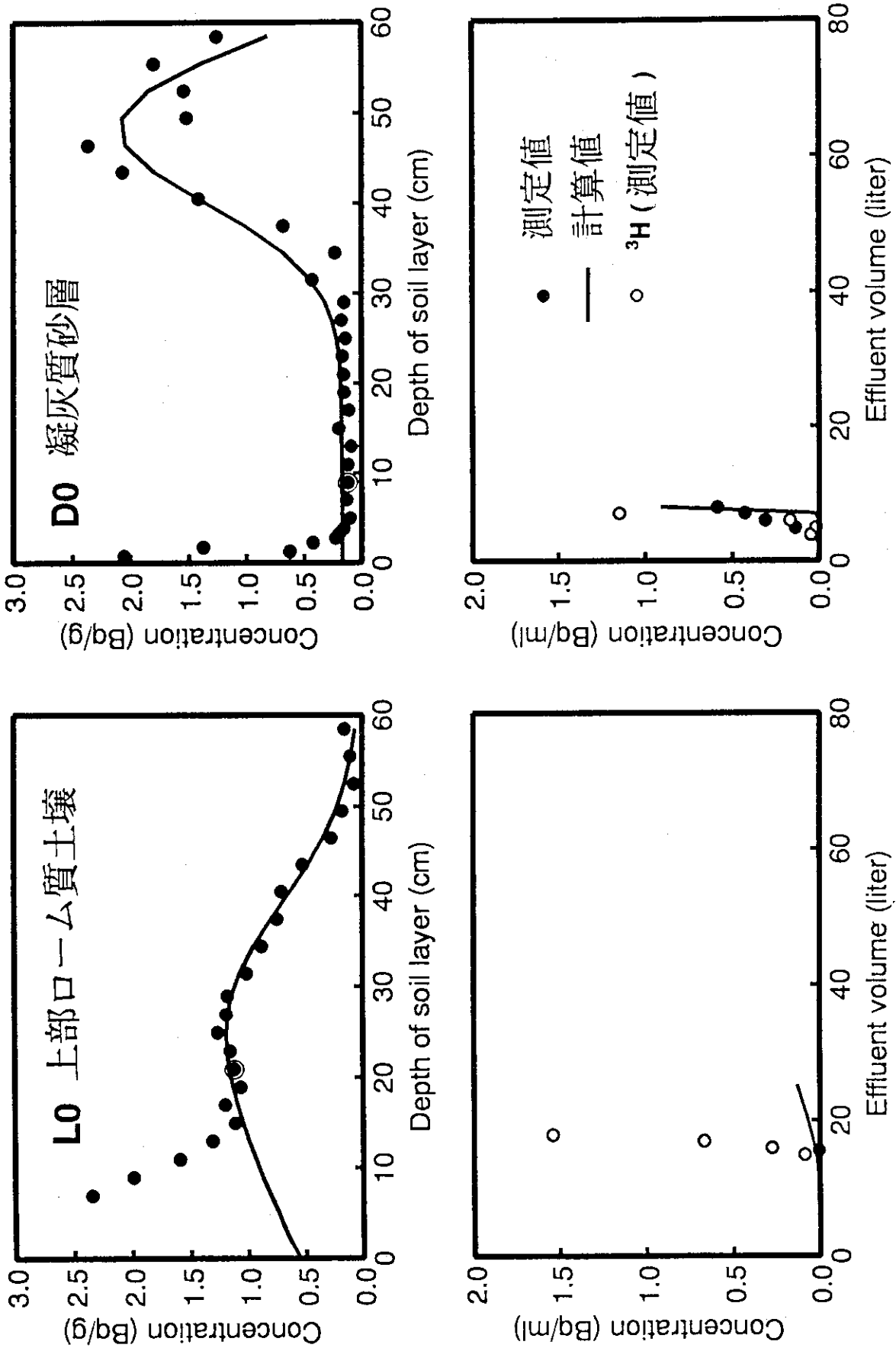


図-5 新移行モデルにより計算した<sup>60</sup>Coの流出曲線と土壌中濃度分布

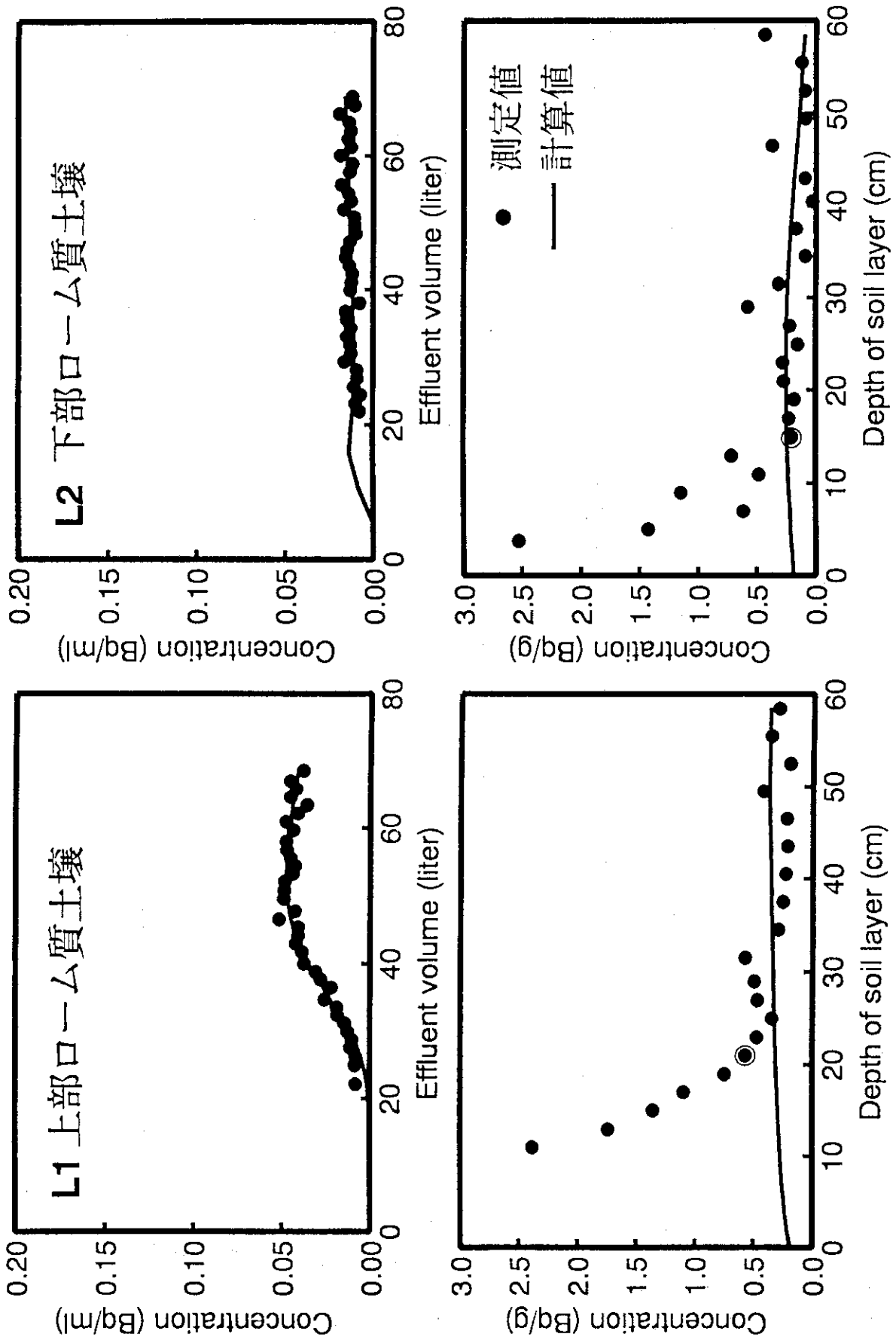


図-6 ローム質土壌における新移行モデル計算結果

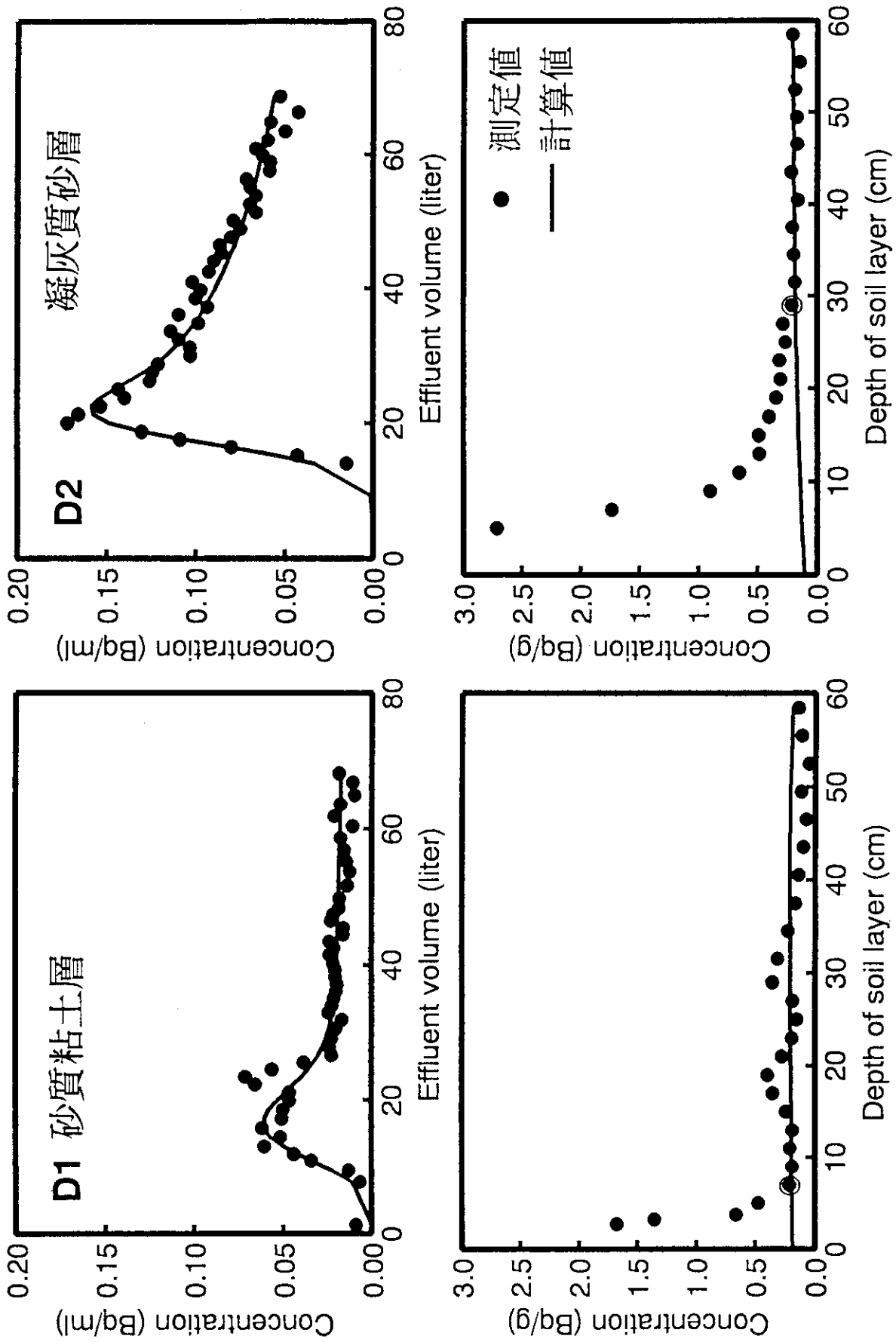


図-7 段丘堆積層における新移行モデル計算結果