

JAERI-Research

94-002



未攪乱通気砂層試料を用いた放射性核種移動試験における  
粒子性放射性核種の存在量および反応速度定数

1994年7月

小川弘道・武部慎一・妹尾宗明

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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、お申し越してください。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。

This report is 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, 1994

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 いばらき印刷(株)

未攪乱通気砂層試料を用いた放射性核種移動試験における  
粒子性放射性核種の存在量および反応速度定数

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

小川 弘道・武部 慎一・妹尾 宗明

(1994年5月9日受理)

未攪乱状態で採取した通気砂層試料に対して行った放射性核種移動試験の結果から、逆解析によって粒子性 $^{60}\text{Co}$ および粒子性 $^{137}\text{Cs}$ の存在量および反応速度定数を推定した。粒子成分量は、両核種ともに、全流入放射性核種量の数%以下であり、水流速依存性は認められなかった。粒子性 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数は $10^{-4}\sim 10^{-3}(\text{m l/g}\cdot\text{min})$ 程度、脱離反応速度定数は $10^{-5}\sim 10^{-4}(1/\text{min})$ 程度であり、吸脱着反応が平衡に到達した場合には、これらの値は数 $10(\text{m l/g})$ 程度の分配係数に相当すると考えられた。粒子性 $^{137}\text{Cs}$ の捕獲反応速度定数は、 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数と同程度の $10^{-4}\sim 10^{-3}(\text{m l/g}\cdot\text{min})$ であった。両核種とも、反応速度定数に水流速依存性が明白に認められ、特に $^{60}\text{Co}$ の脱離反応速度定数には大きな水流速依存性が認められた。

Amounts of Particulate Radionuclides and Their Reaction Constants in  
Radionuclide Migration Test Using Undisturbed Samples of  
Aerated Sandy Soil Layers

Hiromichi OGAWA, Shinichi TAKEBE and Muneaki SENOO

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

(Received May 9, 1994)

The amounts and the reaction constants of particulate  $^{60}\text{Co}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were estimated from the results of radionuclide migration tests for undisturbed samples of an aerated sandy soil layer by using inverse analysis. It was found that the amount of each particulate radionuclide was less than a few percents of the total amount of the introduced radionuclide and independent of water flow velocity. In the case of  $^{60}\text{Co}$ , the reaction constant of adsorption was  $10^{-4} \sim 10^{-3}$  ( $\text{m}\ell/\text{g} \cdot \text{min}$ ) and that of desorption was  $10^{-5} \sim 10^{-4}$  ( $1/\text{min}$ ). These values are corresponding to the distribution coefficient of several  $10^7$  ( $\text{m}\ell/\text{g}$ ), when the adsorption-desorption reaction was reached to equilibrium. In the case of  $^{137}\text{Cs}$ , the reaction constant of capture was  $10^{-4} \sim 10^{-3}$  ( $\text{m}\ell/\text{g} \cdot \text{min}$ ) and nearly the same as that of the adsorption of  $^{60}\text{Co}$ . The dependence of the reaction constant on water flow velocity was found clearly in each radionuclide and the reaction constant of desorption of  $^{60}\text{Co}$  depended upon the flow velocity strongly.

Keywords: Undisturbed Sample, Sandy Soil Layer, Radionuclide Migration,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , Particulate Radionuclide, Reaction Constant, Inverse Analysis.

目 次

|                     |   |
|---------------------|---|
| 1. 緒 言 .....        | 1 |
| 2. 反応速度定数の推定法 ..... | 2 |
| 3. 結果および検討 .....    | 4 |
| 4. 結 言 .....        | 6 |
| 謝 辞 .....           | 7 |
| 参考文献 .....          | 8 |

Contents

|  |   |
|--|---|
| 1. Introduction .....                              | 1 |
| 2. Method of Estimation of Reaction Constant ..... | 2 |
| 3. Results and Discussion .....                    | 4 |
| 4. Conclusion .....                                | 6 |
| Acknowledgement .....                              | 7 |
| References .....                                   | 8 |

## 1. 緒言

放射性廃棄物の陸地処分において、処分構造物周辺の地層は天然バリアと呼ばれており、放射性廃棄物から漏出した放射性核種が人間環境へ移行するのを遅延させる効果を有している。特に、浅地中処分においては、この効果を利用して、放射性核種の移動を遅らせるとともに、その間の崩壊により、制度的管理終了後の被曝線量を安全上許容できる線量以下に抑えて安全性を確保するシステムとなっている。このような処分システムでは、天然バリアの機能が安全確保上非常に重要であり、処分の安全評価を実施するため、土壌中における放射性核種の挙動に関して種々の研究が行われてきた<sup>1, 2, 3, 4, 5)</sup>。

原子力発電所の運転等で発生する低レベル放射性廃棄物に含まれる主要な放射性核種は $^{60}\text{Co}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ および $^{137}\text{Cs}$ とされている。これらの放射性核種の地中における移動は、水の移動に対する遅れ、すなわち遅延係数（放射性核種の移動速度に対する水の移動速度の比）で評価されることが多い。しかし、放射性核種を用いた室内での核種移動実験では、遅延係数で予想されるよりも遙かに速く土壌中を移動する $^{60}\text{Co}$ および $^{137}\text{Cs}$ の化学種が極く少量存在することが報告されている<sup>6, 7, 8)</sup>。また、米国等の放射性廃棄物処分場の周辺でも同様な現象が認められている<sup>9, 10)</sup>。したがって、低レベル放射性廃棄物浅地中処分において、人工バリアの機能が失われた後の安全性を評価するためには、特異的な移動を示す微量成分の移動を評価し、安全確保上問題ないことを確認しておく必要がある。

このような微量成分の移動に対しては、 $^{60}\text{Co}$ の水酸化物、あるいは土壌微細粒子に吸着した $^{137}\text{Cs}$ のような粒子成分の関与が指摘されてきた<sup>6, 8)</sup>。筆者らは、 $^{60}\text{Co}$ の水酸化物の移動が1次の可逆反応式によって評価できることおよび土壌微細粒子に吸着した $^{137}\text{Cs}$ の移動が1次の非可逆反応式によって評価できること等を報告している<sup>11, 12)</sup>。したがって、1次の可逆および非可逆反応式を用いれば、特異的な移動を示す微量粒子成分の移動が評価できる。しかしながら、微量粒子成分の移動については、実験データが少なく、反応速度定数と土壌特性等との関連が明白ではない。さらに、地層の不均一性、スケールアップの効果等を考慮すると、実際の処分場で放射性核種の移行試験を行い、その結果から反応速度定数を推定して、評価に用いることが最も望ましい方法である。しかしながら、屋外での大規模な放射性核種移行試験の実施は、現実的には不可能に近く、屋内に自然状態の大きな地層試料を持込んで、放射性核種

移行試験を実施し、その結果から反応速度定数を求めることが現実に採り得る最良の方法となる。日本原子力研究所では、比較的大規模の地層試料(30cmφ×120cm)を自然状態のまま実験室内に持込み、放射性核種の地中移動試験(環境シミュレーション試験)を実施しており<sup>13, 14, 15)</sup>、その結果を活用すれば、地層の不均一性等の実際の地層の有する複雑性を含んだ値として、試料採取地点近傍における微量粒子成分の移動評価にも有用な反応速度定数を求めることができると考えられる。

本報告では、通気状態の海岸砂層に関する環境シミュレーション試験での水流速、分散長および遅延係数を報告した前報<sup>10)</sup>に引き続き、同試験結果から逆解析によって推定した粒子性放射性核種の存在量および未攪乱海岸通気砂層に対する粒子性放射性核種の反応速度定数について報告する。

## 2. 反応速度定数の推定法

間隙水中放射性核種濃度をC、土壤中放射性核種濃度をQ、土壤の密度をρ、土壤層の間隙率をf、土壤層の水分率をθ、放射性核種の分散係数をD、水流速(平均間隙流速)をV、時間をt、距離をxとすると、通気層中における放射性核種の1次元移動は、放射性核種の保存から、次式で示される(崩壊は無視する)<sup>11)</sup>。

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

間隙水中粒子性放射性核種濃度と土壤中粒子性放射性核種濃度との関係は、<sup>60</sup>Coの水酸化物については、(2)式の可逆反応式で表わされ<sup>11)</sup>、土壤微細粒子に吸着した<sup>137</sup>Csについては、(3)式の非可逆反応式で表わすことができる<sup>12)</sup>。

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = K_1 C - K_2 Q \quad (2)$$

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = K_3 C \quad (3)$$

移行試験を実施し、その結果から反応速度定数を求めることが現実に採り得る最良の方法となる。日本原子力研究所では、比較的大規模の地層試料(30cmφ×120cm)を自然状態のまま実験室内に持込み、放射性核種の地中移動試験(環境シミュレーション試験)を実施しており<sup>13, 14, 15)</sup>、その結果を活用すれば、地層の不均一性等の実際の地層の有する複雑性を含んだ値として、試料採取地点近傍における微量粒子成分の移動評価にも有用な反応速度定数を求めることができると考えられる。

本報告では、通気状態の海岸砂層に関する環境シミュレーション試験での水流速、分散長および遅延係数を報告した前報<sup>16)</sup>に引き続き、同試験結果から逆解析によって推定した粒子性放射性核種の存在量および未攪乱海岸通気砂層に対する粒子性放射性核種の反応速度定数について報告する。

## 2. 反応速度定数の推定法

間隙水中放射性核種濃度をC、土壤中放射性核種濃度をQ、土壤の密度をρ、土壤層の間隙率をf、土壤層の水分率をθ、放射性核種の分散係数をD、水流速(平均間隙流速)をV、時間をt、距離をxとすると、通気層中における放射性核種の1次元移動は、放射性核種の保存から、次式で示される(崩壊は無視する)<sup>1)</sup>。

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

間隙水中粒子性放射性核種濃度と土壤中粒子性放射性核種濃度との関係は、<sup>60</sup>Coの水酸化物については、(2)式の可逆反応式で表わされ<sup>11)</sup>、土壤微細粒子に吸着した<sup>137</sup>Csについては、(3)式の非可逆反応式で表わすことができる<sup>12)</sup>。

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = K_1 C - K_2 Q \quad (2)$$

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = K_3 C \quad (3)$$



ここで、 $K_1$ および $K_2$ は、それぞれ $^{60}\text{Co}$ の水酸化物の土壌による吸着反応速度定数および脱離反応速度定数であり、 $K_3$ は土壌微細粒子に吸着した $^{137}\text{Cs}$ の土壌層による捕獲反応速度定数である。

全てのパラメータ、初期条件および境界条件が既知であれば、 $^{60}\text{Co}$ の水酸化物の土壌中における移動は、(1)式および(2)式の連立偏微分方程式を解くことにより予測できる。逆に、 $K_1$ および $K_2$ 以外のパラメータ、初期条件および境界条件が既知の場合、ある反応速度定数に対して連立偏微分方程式の解を計算し、基準となる真の反応速度定数に対する解と比較すると、Fig. 1に示すケースのように、方程式の解は真の反応速度定数からの相違に応じた誤差を持っている（図中の数値は誤差の大きさを表わしており、 $K_1(n)$ 、 $K_2(n)$ は真の値により規格化した反応速度定数を表わしている）。この誤差を小さくすれば、反応速度定数は真の値（ $K_1(n)=1$ 、 $K_2(n)=1$ ）に収束することは明らかである。したがって、試験から得られた $^{60}\text{Co}$ の水酸化物の土壌中移動に対して同様な比較を行ない、最も誤差を小さくするを $K_1$ および $K_2$ を選択すれば、その値が最も信頼性が高い反応速度定数であるといえる。このような逆解析を行うことにより、 $^{60}\text{Co}$ の水酸化物と土壌層との反応速度定数は、試験結果から推定できることになる。同様に、土壌微細粒子に吸着した $^{137}\text{Cs}$ の捕獲反応速度定数 $K_3$ も、(1)式および(3)式の連立偏微分方程式を用いて逆解析を実施することにより推定できる。

初期および境界条件が比較的単純な場合には、それらの条件も、同様に逆解析によって推定できる。例えば、定常的に放射性水溶液を土壌層内に流入する場合の初期および境界条件は、それぞれ、 $[t \leq 0 \text{ で } C=0]$  および  $[t > 0 \text{ で } C_{x=0} = C_p, C_p \text{ は流入濃度}]$  である。また、放射性水溶液の流入後、水を定常的に流入するような場合の初期および境界条件は、それぞれ、 $[t \leq 0 \text{ で } C=0]$  および  $[t_0 \leq t < t_0 + \Delta t \text{ で } C_{x=0} = C_p, t > t_0 + \Delta t \text{ で } C_{x=0} = 0, t_0 \text{ は水への切替時間}]$  である。この場合、流入濃度 $C_p$ もパラメータにして逆解析を行なえば、反応速度定数とともに、境界条件としての流入濃度も推定できる。

実際の適用例を以下に示す。東海研究所敷地内の地表から0.6~1.8mの深度において採取した通気状態の未攪乱海岸砂層試料（30cm $\phi$ ×120cm）に、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ および $^{137}\text{Cs}$ の放射性水溶液（各核種とも約110Bq/ml）を約1.5 l/hrの流量で約437時間流入した場合の土壌中濃度分布および流出液中濃度分布は、Fig. 2およびFig. 3に示す通

りであった<sup>14)</sup>。両核種とも土壌表面から10cm程度までは急激に減少し、その後は深度とともに緩やかに減少する分布を示し、流出液中にもわずかの<sup>60</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csが検出されている。イオン性放射性核種は、土壌表面付近でほとんど吸着されるため、短期間の試験では流出液中には検出されないことから、土壌深部および流出液中に検出された<sup>60</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csは、粒子成分が120cmの土壌層を通過したためと考えられる。したがって、<sup>60</sup>Coの水酸化物および土壌微細粒子に吸着した<sup>137</sup>Csの移動を評価するためには、土壌層表面付近で急激に減少する分布を除いた深度20cm以下の<sup>60</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csの土壌中濃度分布と流出液中濃度分布に対して逆解析を行なうのが妥当と考えられる。(1)および(2)式中のパラメータのうち、空隙率および密度は土壌物性測定により得た0.40および2.7 g/cm<sup>3</sup><sup>14)</sup>、水分率および水流速は高速中性子透過方式<sup>17)</sup>により実測した0.22および0.12cm/min、分散長(分散係数の水流速に対する比)はイオン性放射性核種の移動によると考えられる土壌層表面の濃度分布に対する逆解析により推定した0.13cm<sup>18)</sup>であり、各反応速度定数および境界条件以外は全て既知である(初期条件は[t ≤ 0でC = 0]である)。定常的に放射性水溶液を流入したため、境界条件を[t > 0でC<sub>x=0</sub> = C<sub>p</sub>]とし、反応速度定数とともに流入濃度もパラメータとした。土壌中および流出液中濃度分布と連立偏微分方程式の解との比較を最小二乗法によって行なうと、Fig. 2 および Fig. 3 に示した曲線が最適の濃度分布曲線として得られた。ただし、大きな値のデータのみ結果が左右されることを避け、濃度分布の形状を一致させることを目的として、濃度の対数値の誤差を最小にするようにした。<sup>60</sup>Coに対しては、K<sub>1</sub> = 3.3 × 10<sup>-4</sup> (ml/g · min)、K<sub>2</sub> = 7.5 × 10<sup>-6</sup> (1/min)が最適の反応速度定数として得られ、<sup>137</sup>Csに対して、K<sub>3</sub> = 4.3 × 10<sup>-4</sup> (ml/g · min)が最適の反応速度定数として得られた。また、粒子成分の流入濃度としては、<sup>60</sup>Coに対するC<sub>p</sub> = 2.1 (Bq/ml)、<sup>137</sup>Csに対するC<sub>p</sub> = 2.2 (Bq/ml)が最適の値として得られた。(Fig. 2において、最適の濃度分布曲線が実測値とややずれているように見えるのは、土壌中濃度分布のみでなく、流出液中濃度分布との比較も同時に行なったためである)。

### 3. 結果および検討

東海研究所敷地内において採取した通気状態の海岸砂層に対する環境シミュレーション試験<sup>14)</sup>では、異なる4深度で未攪乱土壌試料(30cmφ × 120cm)を採取し、<sup>60</sup>Co、

りであった<sup>14)</sup>。両核種とも土壌表面から10cm程度までは急激に減少し、その後は深度とともに緩やかに減少する分布を示し、流出液中にもわずかの<sup>60</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csが検出されている。イオン性放射性核種は、土壌表面付近でほとんど吸着されるため、短期間の試験では流出液中には検出されないことから、土壌深部および流出液中に検出された<sup>60</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csは、粒子成分が120cmの土壌層を通過したためと考えられる。したがって、<sup>60</sup>Coの水酸化物および土壌微細粒子に吸着した<sup>137</sup>Csの移動を評価するためには、土壌層表面付近で急激に減少する分布を除いた深度20cm以下の<sup>60</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csの土壌中濃度分布と流出液中濃度分布に対して逆解析を行なうのが妥当と考えられる。(1)および(2)式中のパラメータのうち、空隙率および密度は土壌物性測定により得た0.40および2.7 g/cm<sup>3</sup><sup>14)</sup>、水分率および水流速は高速中性子透過方式<sup>17)</sup>により実測した0.22および0.12cm/min、分散長(分散係数の水流速に対する比)はイオン性放射性核種の移動によると考えられる土壌層表面の濃度分布に対する逆解析により推定した0.13cm<sup>18)</sup>であり、各反応速度定数および境界条件以外は全て既知である(初期条件は[t ≤ 0でC = 0]である)。定常的に放射性水溶液を流入したため、境界条件を[t > 0でC<sub>x=0</sub> = C<sub>p</sub>]とし、反応速度定数とともに流入濃度もパラメータとした。土壌中および流出液中濃度分布と連立偏微分方程式の解との比較を最小二乗法によって行なうと、Fig. 2およびFig. 3に示した曲線が最適の濃度分布曲線として得られた。ただし、大きな値のデータのみ結果が左右されることを避け、濃度分布の形状を一致させることを目的として、濃度の対数値の誤差を最小にようにした。<sup>60</sup>Coに対しては、K<sub>1</sub> = 3.3 × 10<sup>-4</sup> (ml/g · min)、K<sub>2</sub> = 7.5 × 10<sup>-6</sup> (1/min)が最適の反応速度定数として得られ、<sup>137</sup>Csに対して、K<sub>3</sub> = 4.3 × 10<sup>-4</sup> (ml/g · min)が最適の反応速度定数として得られた。また、粒子成分の流入濃度としては、<sup>60</sup>Coに対するC<sub>p</sub> = 2.1 (Bq/ml)、<sup>137</sup>Csに対するC<sub>p</sub> = 2.2 (Bq/ml)が最適の値として得られた。(Fig. 2において、最適の濃度分布曲線が実測値とややずれているように見えるのは、土壌中濃度分布のみでなく、流出液中濃度分布との比較も同時に行なったためである)。

### 3. 結果および検討

東海研究所敷地内において採取した通気状態の海岸砂層に対する環境シミュレーション試験<sup>14)</sup>では、異なる4深度で未攪乱土壌試料(30cm φ × 120cm)を採取し、<sup>60</sup>Co、

$^{85}\text{Sr}$ および $^{137}\text{Cs}$ の放射性水溶液（約660 ℓ、各核種とも約110Bq/ml）を定常的に流入した。各深度の土壌試料に対して得られた反応速度定数の値を流入濃度比( $C_p/C_{in}$ 、 $C_{in}$ は流入溶液中における放射性核種の濃度)とともにTable 1に示す。Table 1のうち、試験番号1～4は放射性水溶液の流入を約1.5 ℓ/hrで実施したものであり、試験番号5～7は放射性水溶液の流入を約5.7 ℓ/hrで実施したものである。また、逆解析に用いた他のパラメータの値はTable 2に示した通りであり、各試験とも、土壌物性測定により得た空隙率および密度、高速中性子透過方式により実測した水分率および水流速<sup>14)</sup>、土壌層表面の放射性核種濃度分布に対する逆解析により推定した分散長<sup>16)</sup>を用いた（ただし、水分率および水流速は高速中性子透過方式による実測値であるため、放射性水溶液の流量とやや矛盾する場合もある）。

Table 1から明らかなように、粒子成分として挙動する割合（流入濃度比）は、概ね小さく、全体の数%以下である。しかしながら、水酸化物と考えられる $^{60}\text{Co}$ の粒子成分は、pHが高い流入溶液中で形成されると考えられるため、コンクリート接触液のような高pH液の場合、粒子成分はさらに増加するものと考えられる。また、 $^{137}\text{Cs}$ の粒子成分は、土壌中の粘土粒子、コロイド粒子等に $^{137}\text{Cs}$ が吸着されて形成されると考えられており、粘土粒子、コロイド粒子等が多い土壌の場合には、やはり粒子成分が増加するものと考えられる。したがって、流入放射性水溶液の特性と土壌の組成によっては、粒子成分の移動が顕著に観察される場合が有り得るので、今後の検討が必要と考えられる。なお、Fig. 4に示したように、粒子成分量的水流速依存性はほとんど観察されなかった。

$^{60}\text{Co}$ の反応速度定数に関しては、Table 1に示したように、吸着反応速度定数 ( $K_1$ ) が $10^{-4} \sim 10^{-3}$  (ml/g·min) 程度、脱離反応速度定数 ( $K_2$ ) はほとんどが $10^{-5} \sim 10^{-4}$  (1/min) であった。 $^{60}\text{Co}$ の水酸化物に対する反応式である(2)式において、吸脱着反応が平衡に達した場合 ( $\partial Q / \partial t = 0$ )、平衡比としての分配係数 ( $K_d$ ) は次式で定義できる。

$$K_d = \frac{K_1}{K_2} \quad (4)$$

各ケースについて分配係数を計算してみると、ほとんどが数10 (ml/g) 程度となり、

空隙率、水分率等を考慮すると、遅延係数 ( $= 1 + (1 - f) \rho K_d / \theta$ ) にして、数10～数100程度になる。したがって、海岸通気砂層の場合、反応時間が十分に長く、吸脱着反応が平衡に達すれば、数10～数100程度の遅延係数に匹敵する核種移動阻止効果が粒子性 $^{60}\text{Co}$ の移動に対して期待できる。

$^{137}\text{Cs}$ の反応速度定数に関しては、捕獲反応速度定数 ( $K_3$ ) が $10^{-4} \sim 10^{-3}$  ( $\text{ml/g} \cdot \text{min}$ ) 程度で、 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数と同程度である。 $^{137}\text{Cs}$ の場合、 $^{60}\text{Co}$ のように平衡時の分配係数を定義することはできない。しかしながら、わずか1.2mの土壤層で流出濃度比 (流入粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度に対する流出粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の比) が数%程度に減少したことおよび粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度が距離に関してほぼ指数関数的に減少すること ((1)式および(3)式参照) から判断して、帯水層も含めた土壤層の粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度減少効果はかなり大きいと考えられる。

次に各反応速度定数の流速依存性をみると、Fig. 5に示したように両核種とも水流速の影響が明白に認められ、 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数 ( $K_1$ ) と $^{137}\text{Cs}$ の捕獲反応速度定数 ( $K_3$ ) は、水流速のほぼ平方根程度に比例している。しかし、 $^{60}\text{Co}$ の脱離反応速度定数 ( $K_2$ ) の水流速依存性はさらに大きく、水流速のほぼ1.5乗程度に比例して増加している。各試験土壤の性質が同一であるとは言い難いことに加えて、前述したような放射性水溶液の流量とやや矛盾する水流速も採用されているため、流速依存性に関する厳密な検討はできないものの、水流速をさらに小さくすれば、粒子性 $^{60}\text{Co}$ はほとんど脱離しなくなり、粒子性 $^{137}\text{Cs}$ と同様の挙動を示すようになる可能性も考えられる。なお、筆者らが行なった研究<sup>10, 19)</sup>によると、各反応速度定数には、流速依存性の他、粒径依存性等も認められており、今後、さらに検討することが必要である。

#### 4. 結言

未攪乱状態で採取した通気層状態の海岸砂層に対して実施した環境シミュレーション試験の結果から、逆解析によって粒子性 $^{60}\text{Co}$ および粒子性 $^{137}\text{Cs}$ の存在量および反応速度定数を推定した。

粒子分量は、全放射性核種量の数%以下であり、水流速依存性がほとんど認められなかった。

粒子性 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数として $10^{-4} \sim 10^{-3}$  ( $\text{ml/g} \cdot \text{min}$ )程度、脱離反応速度

空隙率、水分率等を考慮すると、遅延係数 ( $= 1 + (1 - f) \rho K_d / \theta$ ) にして、数10～数100程度になる。したがって、海岸通気砂層の場合、反応時間が十分に長く、吸脱着反応が平衡に達すれば、数10～数100程度の遅延係数に匹敵する核種移動阻止効果が粒子性 $^{60}\text{Co}$ の移動に対して期待できる。

$^{137}\text{Cs}$ の反応速度定数に関しては、捕獲反応速度定数 ( $K_3$ ) が $10^{-4} \sim 10^{-3}$  ( $\text{ml/g} \cdot \text{min}$ ) 程度で、 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数と同程度である。 $^{137}\text{Cs}$ の場合、 $^{60}\text{Co}$ のように平衡時の分配係数を定義することはできない。しかしながら、わずか1.2mの土壤層で流出濃度比 (流入粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度に対する流出粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の比) が数%程度に減少したことおよび粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度が距離に関してほぼ指数関数的に減少すること ((1)式および(3)式参照) から判断して、帯水層も含めた土壤層の粒子性 $^{137}\text{Cs}$ 濃度減少効果はかなり大きいと考えられる。

次に各反応速度定数の流速依存性をみると、Fig. 5に示したように両核種とも水流速の影響が明白に認められ、 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数 ( $K_1$ ) と $^{137}\text{Cs}$ の捕獲反応速度定数 ( $K_3$ ) は、水流速のほぼ平方根程度に比例している。しかし、 $^{60}\text{Co}$ の脱離反応速度定数 ( $K_2$ ) の水流速依存性はさらに大きく、水流速のほぼ1.5乗程度に比例して増加している。各試験土壌の性質が同一であるとは言い難いことに加えて、前述したような放射性水溶液の流量とやや矛盾する水流速も採用されているため、流速依存性に関する厳密な検討はできないものの、水流速をさらに小さくすれば、粒子性 $^{60}\text{Co}$ はほとんど脱離しなくなり、粒子性 $^{137}\text{Cs}$ と同様の挙動を示すようになる可能性も考えられる。なお、筆者らが行なった研究<sup>10, 19)</sup>によると、各反応速度定数には、流速依存性の他、粒径依存性等も認められており、今後、さらに検討することが必要である。

#### 4. 結言

未攪乱状態で採取した通気層状態の海岸砂層に対して実施した環境シミュレーション試験の結果から、逆解析によって粒子性 $^{60}\text{Co}$ および粒子性 $^{137}\text{Cs}$ の存在量および反応速度定数を推定した。

粒子分量は、全放射性核種量の数%以下であり、水流速依存性がほとんど認められなかった。

粒子性 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数として $10^{-4} \sim 10^{-3}$  ( $\text{ml/g} \cdot \text{min}$ )程度、脱離反応速度

定数として $10^{-5} \sim 10^{-4}$ (1/min)程度が得られた。吸脱着反応が平衡に到達した場合には、これらの値は数10以上の分配係数に相当する。また、粒子性 $^{137}\text{Cs}$ の捕獲反応速度定数として、 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数と同程度の $10^{-4} \sim 10^{-3}$ (ml/g $\cdot$ min)が得られた。なお、両核種とも反応速度定数の水流速依存性が認められ、特に、 $^{60}\text{Co}$ の脱離反応速度定数には大きな水流速依存性が認められた。未攪乱状態の土壤層に対して粒子性放射性核種の存在量および反応速度定数を推定した例はこれまでほとんど報告されておらず、本研究で得られたデータは $^{60}\text{Co}$ および $^{137}\text{Cs}$ の土壤中移動を正確に評価する上で貴重である。しかし、反応速度定数に影響する因子等を検討するため、さらにデータの蓄積が必要と考えられる。

#### 謝辞

本報告書を作成するにあたり、貴重な助言を頂いた天然バリア研究室田中忠夫氏に深く感謝の意を表します。

定数として $10^{-5} \sim 10^{-4}$ (1/min)程度が得られた。吸脱着反応が平衡に到達した場合には、これらの値は数10以上の分配係数に相当する。また、粒子性 $^{137}\text{Cs}$ の捕獲反応速度定数として、 $^{60}\text{Co}$ の吸着反応速度定数と同程度の $10^{-4} \sim 10^{-3}$ (ml/g·min)が得られた。なお、両核種とも反応速度定数の水流速依存性が認められ、特に、 $^{60}\text{Co}$ の脱離反応速度定数には大きな水流速依存性が認められた。未攪乱状態の土壤層に対して粒子性放射性核種の存在量および反応速度定数を推定した例はこれまでほとんど報告されておらず、本研究で得られたデータは $^{60}\text{Co}$ および $^{137}\text{Cs}$ の土壤中移動を正確に評価する上で貴重である。しかし、反応速度定数に影響する因子等を検討するため、さらにデータの蓄積が必要と考えられる。

#### 謝辞

本報告書を作成するにあたり、貴重な助言を頂いた天然バリア研究室田中忠夫氏に深く感謝の意を表します。



参考文献

- 1) Y.Inoue and W.J.Kaufman : Health Phys., 9, 707(1963).
- 2) H.M.Selim, J.M.Davidson and P.S.C.Rao : Soil Sci. Soc. Am. J., 41, 3(1977).
- 3) 山本忠利、武部慎一、和達嘉樹 : Radioisotopes, 29, 373(1980).
- 4) H.Bachhuber, K.Bunzl and W.Schimmack : Nucl. Technol., 59, 291(1982).
- 5) T.Ohnuki and T.Tanaka : Health Phys., 56, 47(1989)
- 6) 大貫敏彦、和達嘉樹 : 原子力誌、25(6)、486(1983).
- 7) EICHHOLZ,G.G. et al. : Nucl. Technol., 58, 511(1982).
- 8) 大貫敏彦、和達嘉樹 : 原子力誌、26(10)、880(1984).
- 9) Kirby,L.J. et al. : NUREG/CR-3607(1982).
- 10)Fruchter,J.S. et al. : NUREG/CR-3712(1983).
- 11)Ogawa, H. : J. Nucl. Sci. Technol., 26(5), 530(1989).
- 12)Ogawa, H. : J. Nucl. Sci. Technol., 25(3), 283(1988).
- 13)山本忠利他 : JAERI-M 84-125(1984).
- 14)山本忠利、大塚芳郎、小川弘道、和達嘉樹 : 原子力誌、30、942(1988).
- 15)大塚芳郎、山本忠利、武部慎一、和達嘉樹 : 原子力誌、31(12)、1377(1989).
- 16)小川弘道、向井雅之、大貫敏彦、山本忠利 : JAERI-M 90-065(1990).
- 17)大貫敏彦、山本忠利 : JAERI-M 85-96(1985).
- 18)小川弘道 : 原子力誌、32(8)、813 (1990) .
- 19)Ogawa, H. et al. : J. Nucl. Sci. Technol (投稿予定) .

Table 1 Amount and reaction constant of particulate radionuclide.

| Run No. | Depth(m) | $^{60}\text{Co}$     |                                     |                      | $^{137}\text{Cs}$    |                                     |
|---------|----------|----------------------|-------------------------------------|----------------------|----------------------|-------------------------------------|
|         |          | $C_p/C_{in}$         | $K_1(\text{ml/g} \cdot \text{min})$ | $K_2(1/\text{min})$  | $C_p/C_{in}$         | $K_3(\text{ml/g} \cdot \text{min})$ |
| 1       | 0.6~1.8  | $2.1 \times 10^{-2}$ | $3.3 \times 10^{-4}$                | $7.5 \times 10^{-6}$ | $2.0 \times 10^{-2}$ | $4.3 \times 10^{-4}$                |
| 2       | 1.4~2.6  | $1.2 \times 10^{-2}$ | $3.2 \times 10^{-4}$                | $1.2 \times 10^{-5}$ | $1.4 \times 10^{-2}$ | $4.5 \times 10^{-4}$                |
| 3       | 1.9~3.1  | $6.9 \times 10^{-3}$ | $2.3 \times 10^{-4}$                | $1.1 \times 10^{-5}$ | $9.2 \times 10^{-3}$ | $6.4 \times 10^{-4}$                |
| 4       | 2.6~3.8  | $2.8 \times 10^{-3}$ | $2.8 \times 10^{-4}$                | $4.7 \times 10^{-5}$ | $9.4 \times 10^{-4}$ | $9.3 \times 10^{-4}$                |
| 5       | 0.6~1.8  | $1.1 \times 10^{-2}$ | $1.4 \times 10^{-3}$                | $3.7 \times 10^{-4}$ | $5.8 \times 10^{-3}$ | $1.1 \times 10^{-3}$                |
| 6       | 1.4~2.6  | $1.8 \times 10^{-2}$ | $9.3 \times 10^{-4}$                | $1.0 \times 10^{-9}$ | $1.3 \times 10^{-2}$ | $1.0 \times 10^{-3}$                |
| 7       | 2.6~3.8  | $2.7 \times 10^{-3}$ | $1.5 \times 10^{-3}$                | $2.0 \times 10^{-4}$ | $7.4 \times 10^{-3}$ | $6.9 \times 10^{-4}$                |

Table 2 Parameters used in inverse analysis.

| Run No. | Depth(m) | Porosity | Water content | Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) | Dispersion length(cm) | Water flow velocity( $\text{cm}/\text{min}$ ) | Time (hr) |
|---------|----------|----------|---------------|------------------------------------|-----------------------|---|-----------|
| 1       | 0.6~1.8  | 0.40     | 0.22          | 2.7                                | 0.13                  | 0.12  | 437       |
| 2       | 1.4~2.6  | 0.41     | 0.23          | 2.7                                | 0.16                  | 0.13  | 443       |
| 3       | 1.9~3.1  | 0.42     | 0.15          | 2.7                                | 0.21                  | 0.20  | 444       |
| 4       | 2.6~3.8  | 0.43     | 0.28          | 2.7                                | 0.17                  | 0.42  | 441       |
| 5       | 0.6~1.8  | 0.40     | 0.24          | 2.7                                | 0.27                  | 0.88  | 117       |
| 6       | 1.4~2.6  | 0.41     | 0.31          | 2.7                                | 0.17                  | 0.52  | 116       |
| 7       | 2.6~3.8  | 0.43     | 0.30          | 2.7                                | 0.32                  | 0.82  | 116       |

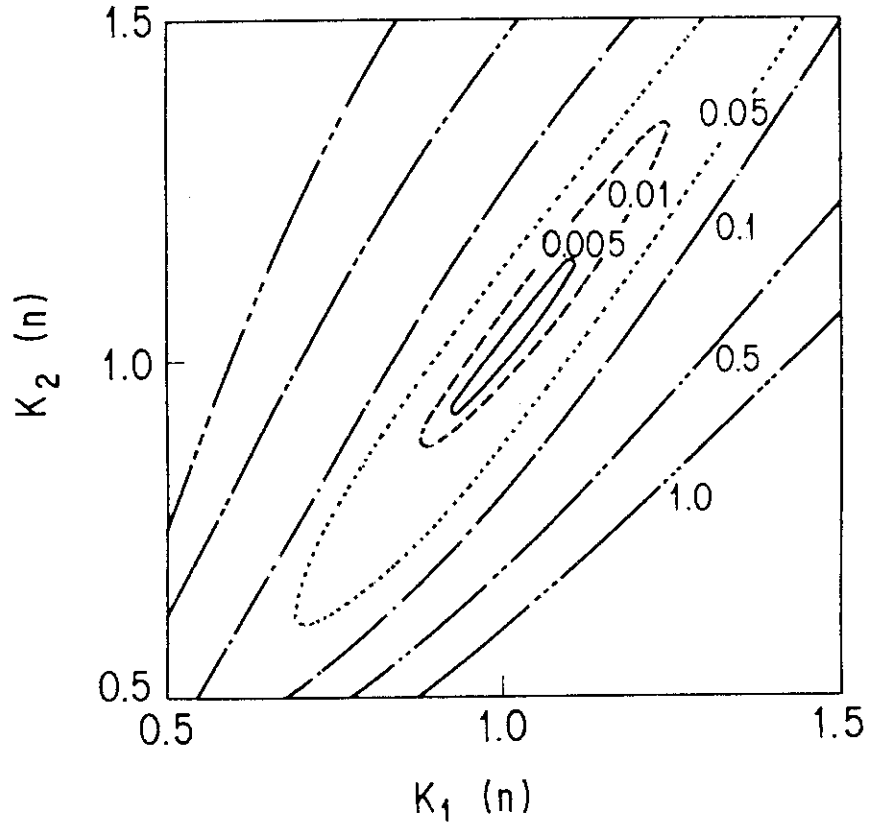


Fig. 1 Error in inverse analysis.  
 ( $K_1(n)$ ,  $K_2(n)$ ; normalized reaction constant).

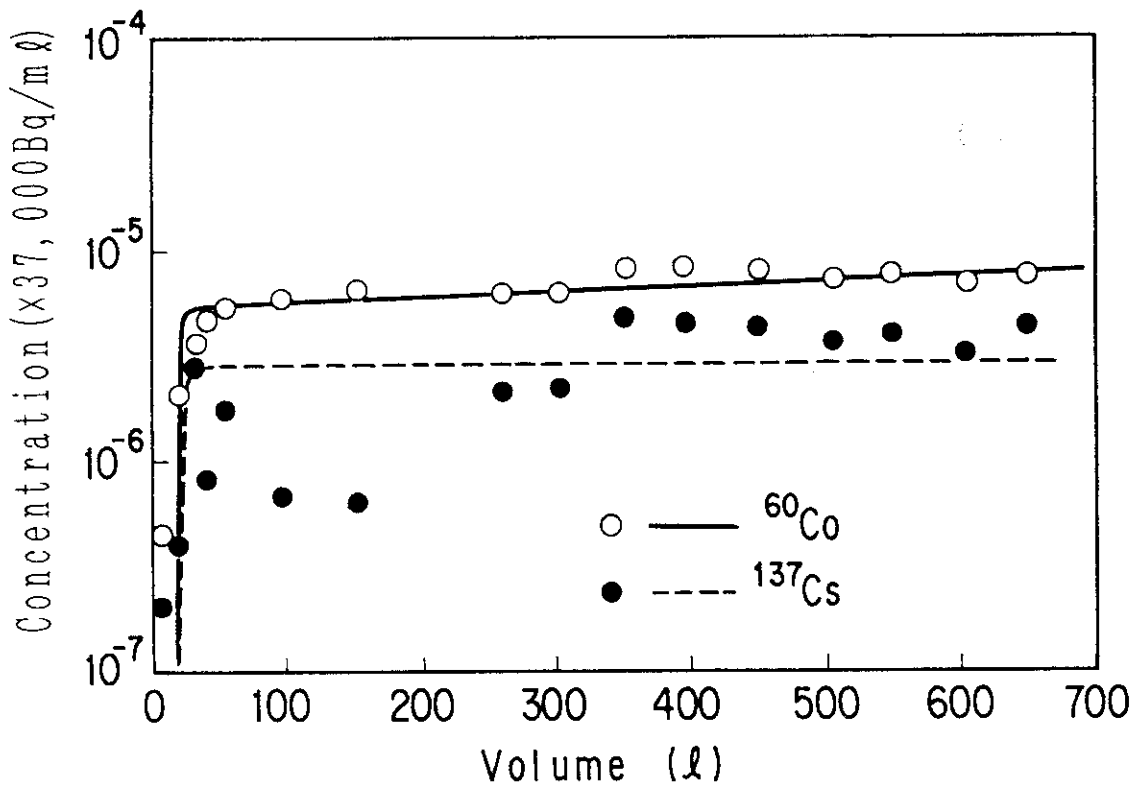


Fig. 3 An example of radionuclide concentration in effluent obtained by migration tests (Symbol: measurement, Line: estimated curve).

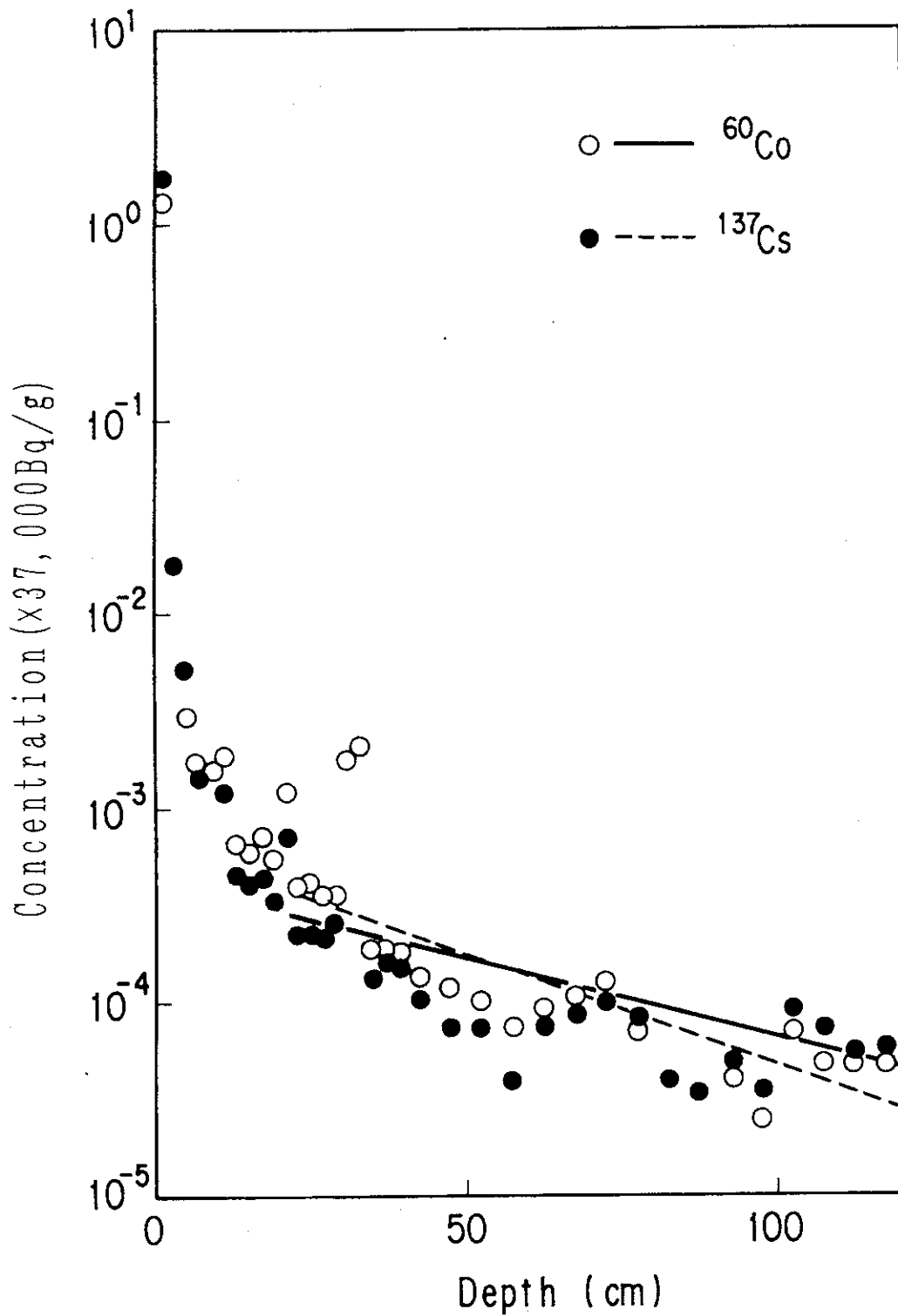


Fig. 2 An example of radionuclide concentration profiles in soil layer obtained by migration tests  
(Symbol: measurement, Line: estimated curve).

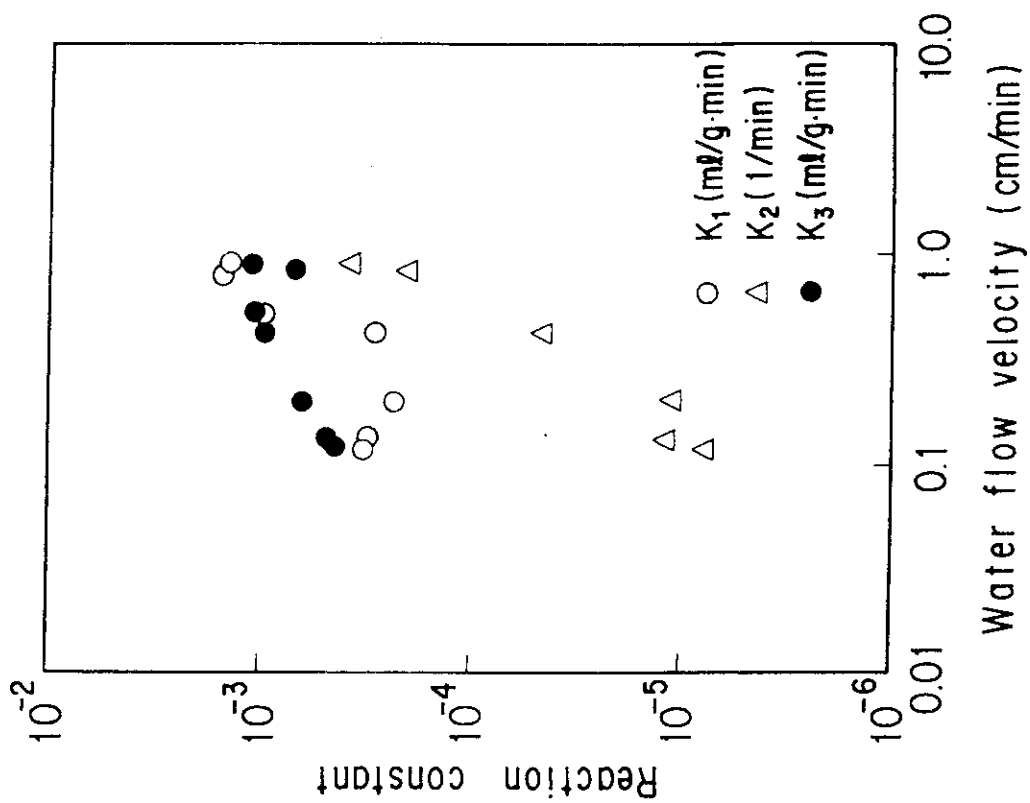


Fig. 5 Relationship between reaction constant and water flow velocity.

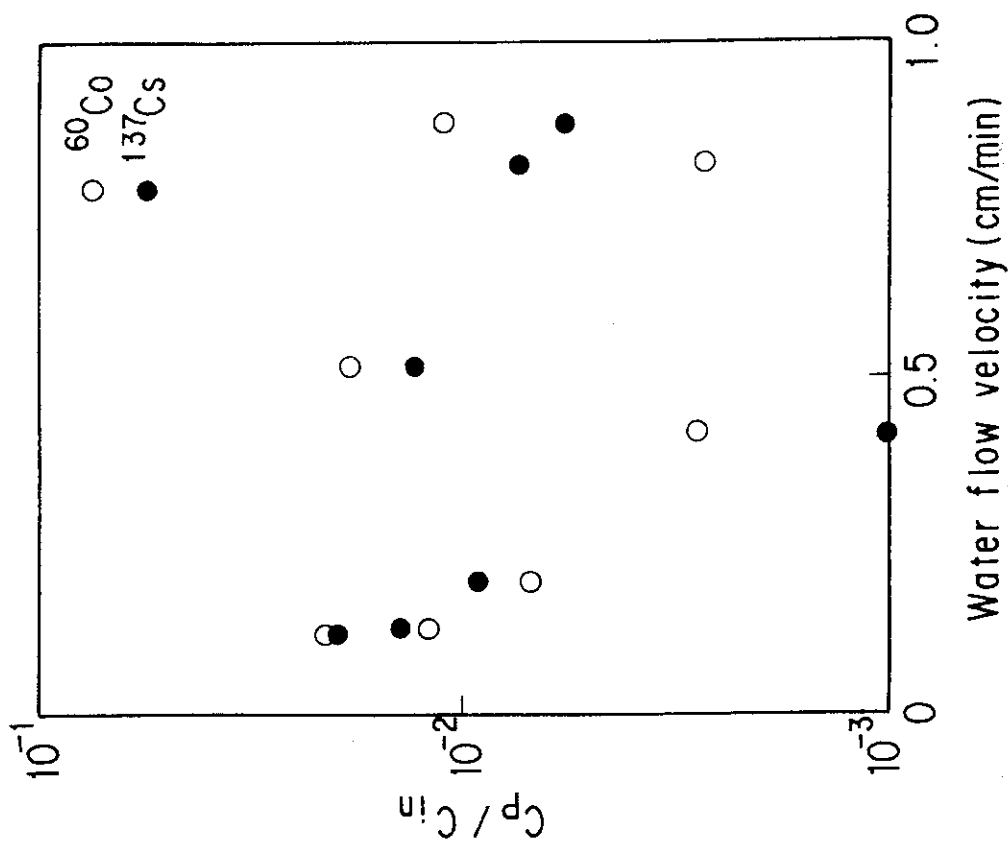


Fig. 4 Relationship between amount of particulate radionuclide and water flow velocity.