

JAERI-Research
94-010



通気層乾湿サイクルシミュレーション試験

1994年8月

田中忠夫・山本忠利

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, Tokaimura, 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 株原子力資料サービス

通気層乾湿サイクルシミュレーション試験

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

田中 忠夫・山本 忠利

(1994年7月1日受理)

低レベル放射性廃棄物の浅地中処分に関する安全性研究の一環として、天然バリア中における放射性核種の正確な移行評価手法の確立に資するため、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の砂質土壌層中における移行挙動に及ぼす自然環境下の通気層中で生じる降雨と蒸発の繰り返し(乾湿サイクル)による水の不連続な流れの影響を実証的に調べる試験を環境シミュレーション試験装置を用いて実施した。

連続した水の流れの条件下に比べて乾湿サイクル条件下では、土壌層中における陽イオン性 ^{85}Sr の移行性、粒子性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の土壌層深部への移行量、並びに間隙水中のpH及び溶存イオン濃度が増大した。乾湿サイクル条件下において、陽イオン性 ^{85}Sr の移行性が増大したことは、流れの停止期間中に ^{85}Sr の土壌への吸着能を減少させる間隙水中の Ca^{2+} 濃度の増加が生じたことに起因することが分かった。一方、陽イオン性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の移行性は乾湿サイクルの影響を受けなかった。粒子性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の土壌層深部への移行量の増大は、流れの停止期間に土壌層中を移行しやすい $\{^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ や、土壌中微細粒子に固定された ^{137}Cs 化学種の生成が進行したためであると考えられた。

本研究は、米国NRCと日本原子力研究所の間での「放射性廃棄物処理処分の安全性研究協力」に基づいて行ったものである。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

Environmental Simulation Test for Radionuclide Migration
under Wet-Dry Cycle Condition in Aerated Zone

Tadao TANAKA and Tadatoshi YAMAMOTO

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

(Received July 1, 1994)

Influence of discontinuous water flow based on repeated cycle of rainfall and evaporation (wet-dry cycle condition) on the migration behavior of ^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs in a sandy soil layer has been demonstratively investigated by using the equipment of environmental simulation test for radionuclide migration, in order to establish a reliable evaluation method of the radionuclide migration in natural barrier, in relation to the safety assessment on shallow land disposal of low-level radioactive waste.

Migration velocity of cationic ^{85}Sr , concentrations of particulate ^{60}Co and ^{137}Cs in the deeper soil layer, pH and ion concentration dissolved in the soil layer under the wet-dry cycle condition became larger than those under the continuous flow condition. Increase of the migration velocity of cationic ^{85}Sr under the wet-dry cycle condition was attributed to that the concentration of Ca^{2+} , by which the sorption ability of ^{85}Sr onto soils was reduced, increased in interstitial water during an interruption period of water flow. On the other hand, the migration velocity of cationic ^{60}Co and ^{137}Cs was not affected by the wet-dry cycle condition. Increase of the concentration of particulate ^{60}Co and ^{137}Cs under the wet-dry cycle condition was probably caused from that movable $\{^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ and ^{137}Cs fixed on fine soil particles were produced during the interruption period.

This study has been done under the agreement between US Nuclear Regulatory Commission and Japan Atomic Energy Research Institute on the safety research of radioactive waste management.

Keywords: Cobalt 60, Strontium 85, Cesium 137, Sandy Soil Layer, Discontenuous Water Flow, Radionuclide Migration, Natural Barrier, Wet-dry Cycle, Fine Soil Particles, Cobalt Hydroxide.

Contents

| | |
|---|----|
| 1. Introduction | 1 |
| 2. Test Method | 1 |
| 2.1 Equipment | 1 |
| 2.2 Soil Sample | 2 |
| 2.3 Radioactive Aqueous Solution | 2 |
| 2.4 Inflowing Procedure of Radioactive Aqueous Solution and Distilled Water | 2 |
| 2.5 Measurement of Water Velocity by Undestructive Method | 3 |
| 2.6 Sampling and Analytical Procedures of Effluent and Soil Samples | 3 |
| 3. Results | 4 |
| 3.1 Water Velocity Determined by Undestructive Method | 4 |
| 3.2 Radionuclide Concentration, pH and Dissolved Ion Concentration in Effluent | 4 |
| 3.3 Concentration Profile of Radionuclide in Soil Layer | 5 |
| 4. Discussion | 5 |
| 5. Remarks | 10 |
| Acknowledgement | 11 |
| References | 11 |
| Appendix | 27 |

目 次

| | |
|--|----|
| 1. まえがき | 1 |
| 2. 試験方法 | 1 |
| 2.1 試験装置 | 1 |
| 2.2 土壌試料 | 2 |
| 2.3 放射性水溶液 | 2 |
| 2.4 放射性水溶液及び蒸留水の流下操作 | 2 |
| 2.5 水流速の非破壊測定 | 3 |
| 2.6 流出液及び土壌試料のサンプリングと分析 | 3 |
| 3. 試験結果 | 4 |
| 3.1 水流速非破壊測定結果 | 4 |
| 3.2 流出液の放射性核種濃度, pH 及び溶存イオン濃度の変化 | 4 |
| 3.3 土壌中放射性核種の濃度分布 | 5 |
| 4. 考 察 | 5 |
| 5. あとがき | 10 |
| 謝 辞 | 11 |
| 参考文献 | 11 |
| 付 録 | 27 |

1. ま え が き

原子力発電所等から発生する低レベル放射性廃棄物の最終貯蔵・処分の安全性を評価する場合、処分サイトから様々な移行経路を経て生態系へ到達する漏出放射性核種による人間への被曝線量を最終的に求めなければならない⁽¹⁾⁽²⁾。そのため、放射性核種の人工バリア漏出モデル、天然バリア中移行モデル、一般環境中移行モデル、生態系（食物連鎖系）移行モデル及び被曝モデルを統合した総合的な安全評価モデルにより安全評価が行われる。この中で、天然バリア中移行モデルの作成には、処分サイトの通気層及び帯水層中における放射性核種の移行についての正確なデータが必要となる⁽³⁾。この目的のため、原位置で放射性及び非放射性同位元素の移行を研究する野外トレーサ試験⁽⁴⁾⁻⁽⁷⁾、自然環境条件下での放射性核種の移行を研究する実験室内模擬試験⁽⁸⁾⁻⁽¹⁰⁾、あるいは自然環境中で想定される放射性核種の移行機構を解明するための基礎実験が行われている。日本原子力研究所では、原子力発電所等から発生する低レベル放射性廃棄物の浅地中処分の安全評価への寄与を目的として、模擬自然環境条件下における放射性核種の移行試験、すなわち環境シミュレーション試験を実施してきた⁽¹⁰⁾⁻⁽¹²⁾。

低レベル放射性廃棄物の浅地中処分場の立地対象地層の1つである通気層では、地表からの浸透水の供給が連続的に行われない限り、地下水層中に比べて非定常かつ不均一な地中水の流れが発生する。特に地表面付近では、不定期に起こる降雨による湿潤と蒸発との繰り返しが生じているため、水の挙動は非常に複雑になる。このような通気層中で生じる複雑な水の挙動と放射性核種の土壤中移行との関係を明らかにするための基礎的研究として、通気層中の水分率と放射性核種の地中移行性の関係⁽¹³⁾、水の蒸発と放射性核種の地中移行性の関係⁽¹⁴⁾等が研究されてきている。筆者等は、放射性核種の通気層中移行に及ぼす降雨と乾燥の繰り返しによる地中水の不連続な流れの影響を明らかにすることを目的とした研究を行い、これまでに、不連続な流れの条件下では、移行しやすい $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ 等の粒子性化学種の存在割合が連続な流れの条件下に比べて大きくなること⁽¹⁵⁾、並びに陽イオン性 ^{85}Sr の移行速度が大きくなることを示唆する結果を得ている⁽¹⁶⁾。

本研究では、地表付近の通気層で生じる不連続な水の流れの下での放射性核種の移行現象をより自然環境に近い条件の下で調べることを目的として、放射性水溶液で表面を汚染した砂質土壌層に蒸留水を断続的に流下する乾湿サイクル実験を環境シミュレーション装置を用いて行った。

2. 試 験 方 法

2.1 試験装置

本試験に使用した通気層用環境シミュレーション試験装置の概略図をFig. 1に示す。本装置は土壌を充填したカラムを自然条件を模擬したウェザールーム内に設置し、その土壌に所定の濃度に調整した放射性水溶液及び蒸留水を流下させて土壌中における放射性核種の移行を調べるためのもの

1. ま え が き

原子力発電所等から発生する低レベル放射性廃棄物の最終貯蔵・処分の安全性を評価する場合、処分サイトから様々な移行経路を経て生態系へ到達する漏出放射性核種による人間への被曝線量を最終的に求めなければならない^{(1) (2)}。そのため、放射性核種の人工バリア漏出モデル、天然バリア中移行モデル、一般環境中移行モデル、生態系（食物連鎖系）移行モデル及び被曝モデルを統合した総合的な安全評価モデルにより安全評価が行われる。この中で、天然バリア中移行モデルの作成には、処分サイトの通気層及び帯水層中における放射性核種の移行についての正確なデータが必要となる⁽³⁾。この目的のため、原位置で放射性及び非放射性同位元素の移行を研究する野外トレーサ試験^{(4) - (7)}、自然環境条件下での放射性核種の移行を研究する実験室内模擬試験^{(8) - (10)}、あるいは自然環境中で想定される放射性核種の移行機構を解明するための基礎実験が行われている。日本原子力研究所では、原子力発電所等から発生する低レベル放射性廃棄物の浅地中処分の安全評価への寄与を目的として、模擬自然環境条件下における放射性核種の移行試験、すなわち環境シミュレーション試験を実施してきた^{(10) - (12)}。

低レベル放射性廃棄物の浅地中処分場の立地対象地層の1つである通気層では、地表からの浸透水の供給が連続的に行われない限り、地下水層中に比べて非定常かつ不均一な地中水の流れが発生する。特に地表面付近では、不定期に起こる降雨による湿潤と蒸発との繰り返しが生じているため、水の挙動は非常に複雑になる。このような通気層中で生じる複雑な水の挙動と放射性核種の土壤中移行との関係を明らかにするための基礎的研究として、通気層中の水分率と放射性核種の地中移行性の関係⁽¹³⁾、水の蒸発と放射性核種の地中移行性の関係⁽¹⁴⁾等が研究されてきている。筆者等は、放射性核種の通気層中移行に及ぼす降雨と乾燥の繰り返しによる地中水の不連続な流れの影響を明らかにすることを目的とした研究を行い、これまでに、不連続な流れの条件下では、移行しやすい $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ 等の粒子性化学種の存在割合が連続な流れの条件下に比べて大きくなること⁽¹⁵⁾、並びに陽イオン性 ^{85}Sr の移行速度が大きくなることを示唆する結果を得ている⁽¹⁶⁾。

本研究では、地表付近の通気層で生じる不連続な水の流れの下での放射性核種の移行現象をより自然環境に近い条件の下で調べることを目的として、放射性水溶液で表面を汚染した砂質土壤層に蒸留水を断続的に流下する乾湿サイクル実験を環境シミュレーション装置を用いて行った。

2. 試 験 方 法

2.1 試験装置

本試験に使用した通気層用環境シミュレーション試験装置の概略図をFig. 1に示す。本装置は土壤を充填したカラムを自然条件を模擬したウェザールーム内に設置し、その土壤に所定の濃度に調整した放射性水溶液及び蒸留水を流下させて土壤中における放射性核種の移行を調べるためのもの

であり、流下機構部、通気層カラム部、流出機構部、流出液サンプリング部、水流速測定装置から構成されている⁽¹⁷⁾。本試験においては30cmφ×60cmHの通気層カラムを使用した(Photo. 1)。

流下機構部は、試料液タンク内の放射性水溶液及び蒸留水を試料液ポンプにより通気層カラム内土壌表面に所定量流下させるためのもので、散布器にはノズル滴下方式(ノズル本数24本)を採用した。通気層カラム部は、透明塩化ビニール製の2段フランジ接合型カラムである。流下試験終了後、カラム本体を分割することによって放射能測定用土壌試料のサンプリングを容易にしている。流出機構部は、通気層カラム内の土壌の落下と流出を防止するためのフィルター並びにカラム内土壌を通過した水溶液をスムーズに流出させたためのガラスビーズの充填が施されている。流出液サンプリング部は土壌層からの流出液の採取または排水を行うもので、流出液はオートサンプラーにより所定の時間間隔ごとにサンプリングすることができる。

水流速測定装置は、水による中性子吸収の時間的变化を測定することにより水流速を求める方式であり、中性子源として²⁵²Cf、検出部として液体シンチレータ NE-213を使用している。また、全体を上下に移動することによって、各高さ位置での水流速を測定することができる。

2.2 土壌試料

本試験に使用した土壌は、原研東海研究所敷地内、高温工学特研棟の西側空地において、昭和58年10月に採取した海岸砂である。これを風乾した後、JIS標準篩で1.68 mm以上の礫分を除去しものを試験に供した。土壌試料の物理的物性値(粒度分布、比重、粘土鉱物組成、比表面積)をTable 1に、化学的物性値(化学組成、陽イオン交換容量、交換性陽イオン量、分配係数、拡散係数)をTable 2にそれぞれ示す。

2.3 放射性水溶液

試験に用いた放射性核種は Radiochemical Centre 製の⁶⁰Co、¹³⁷Cs及び New England Nuclear 製の⁸⁵Srで、いずれも塩化物形の塩酸酸性溶液である。これらを混合し、蒸留水で希釈することにより所定の放射性核種濃度を有する混合放射性水溶液を調製した。なお、放射性水溶液のpHは、0.1 N NaOH水溶液で中性に調節した。

試験に使用した放射性水溶液の放射性核種濃度は、Table 3に示すように、各々の核種について約400 Bq/mlに調製した。また、中和のために添加したNa⁺は0.2 ppm以下であり、放射性核種の吸着にはほとんど影響を与えない濃度である。

2.4 放射性水溶液及び蒸留水の流下操作

放射性水溶液及び蒸留水の流下操作の流れ図をFig. 2に示す。試験に供した土壌層は、土壌試料を60 cmの高さ(空隙率42%で土壌試料59 kg、充填容積42.4 l)に充填したカラムの下部から蒸留水を徐々にカラム上部まで浸透(Photo. 2)させた後、カラム下部より水抜きを1日間行って作製した。この土壌層カラムの上部から放射性水溶液を42.4 l(1 bed volumeに相当)流下して表面を汚染させたものを試験土壌層とした。

試験土壌層は流下機構部を脱着して7日間放置乾燥した。乾燥後、試験土壌層に106 ℓの蒸留水を平均流量は6.0 ℓ/hで流下した。Fig.3に示したようにこの操作を1サイクルとして、7日間の乾燥を挟んで4回繰り返す、全量で424 ℓ (10 bed volumeに相当)の蒸留水を流下させた(試験名: WD-4)。比較試験として、7日間の放置乾燥を行わず、放射性水溶液に続いて424 ℓの蒸留水を流下する試験を行った(試験名: WD-1)。各試験における放射性水溶液及び蒸留水の流下条件をTable 4に示す。

放射性水溶液及び蒸留水は、試料液ポンプ(ダイヤフラム式定量ポンプ)でカラム上部の流下機構部に送り、ノズル滴下方式の散布器を介して土壌表面に供給した。放射性水溶液及び蒸留水の供給は装置の汚染を避けるため、それぞれに専用の試料液タンク(容量約200 ℓ)、試料液ポンプ及び散布器をその都度設置・配管し直して行った。また、土壌表面以外に散布された放射性水溶液及び蒸留水は流下機構部流入カラムで集水し、試料液タンクに戻るようにした。流入液量は試料液タンクに取り付けられたフロート型抵抗式液面計の指示値から、また流出液量は流出カラム～オートサンプラー間の配管に設置された流量計の積算カウンターの値を一定時間間隔に読み取って得た。

2.5 水流速の非破壊測定

土壌層内の水流速は、当研究室で開発した高速中性子透過法⁽¹⁰⁾により非破壊で計測するシステム(通気層水流速測定装置⁽¹⁰⁾)を用いて測定した。通気層水流速測定装置は、照射部、液体シンチレータ等より成る放射線検出部、コンピュータより成る演算部及び線源昇降部より構成されている。本試験では、土壌層表面から10及び40cmの深さ位置において透過中性子の検出計数率の経時変化を測定した。また、7日間の乾燥に伴う土壌層中の水分率の変化量を調べるため、水浸透中及び7日間乾燥後の透過中性子の検出計数率を土壌層の10, 15, 20, 25, 35及び40cmの深さ位置において測定した。

2.6 流出液及び土壌試料のサンプリングと分析

土壌層カラムから流出した水溶液中における放射性核種の濃度変化並びに土壌層に吸着した放射性核種の濃度分布を得るため、以下に示す方法でカラム流出液及びカラム内土壌を採取した⁽¹¹⁾。

流出液のサンプリングは、オートサンプラーにより所定の時間間隔で自動的に行った。これは、流出液配管中に設けられた電磁弁をタイマーにより一定時間間隔で開くことで流出液を計量容器に導入させ、この液量が1 ℓに達するとフロートスイッチが働き自動的に弁が閉じ、その液がサンプルビンに送られる方式である。放射性水溶液及び蒸留水の流下開始時は約1時間間隔で、流下開始後18時間以降は約3～8時間の間隔でサンプリングを行った。

流下試験終了後、散布器、流入カラム等を撤去してカラム内土壌のサンプリングを次のような手順で行った。まず、サンプリング用反力板をカラム上端にのせ、支柱上部にナット締めで固定した。中空円柱状のサンプラー(サンプリング長さはカラム1段分の30cmである)を人力でカラム内土壌に押込むことにより所定の位置から数本の柱状試料のサンプリングを行った。放射性核種は大部分が土壌表面に吸着されることを考慮し、採取した柱状試料は表面付近においては鉛直方向の分割間

隔を小さく（表面から30 cmの深さまでは2 cm間隔）、深部においては間隔を大きくして（30 cm以深では5 cm間隔）切断した。土壤試料の採取位置及び分割位置はFig. 3に示す通りである。

採取した流出液及び土壤試料中の放射性核種濃度はオルテック社製 γ 線スペクトル分析装置で測定した。さらに、流出液試料については、土壤層を浸透してきたことにより混入するシルト等の懸濁物質に収着して存在する放射性核種の割合を調べるため0.45 μ mのメンブランフィルターで吸引濾過し、フィルター及び濾液双方に含まれる放射性核種濃度を測定した。また、濾液のpHをイオン電極法により、 K^+ 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 及び Ca^{2+} 濃度をイオンクロマトグラフ法により測定した。

3. 試験結果

3.1 水流速非破壊測定結果

水の浸透に伴う透過中性子の検出計数率の経時変化をFig. 4(a)及び(b)に示す。土壤層上部から水が浸透するに伴って、土壤層表面より10、40 cmにおける透過中性子の検出計数率の減少がある時点から観察された。それぞれの測定位置における透過中性子の検出計数率の減少率から土壤層中の水流速を求めた⁽¹⁹⁾。その結果、10 cmの深さ位置において0.43 cm/min、40 cmの深さ位置において0.44 cm/minの水流速が測定され、本試験条件における平均水流速として0.44 cm/minが得られた。

また、土壤層のある位置における水浸透中の透過中性子の検出計数率と7日間乾燥後のその関係は乾燥期間中における土壤層中の水分率の変化量を示しているので、中性子の水による減衰係数(0.12/cm)及び検出計数率の変化の関係から7日間の乾燥に伴う土壤層中の水分率の変化量を求めた⁽²⁰⁾。水浸透中及び7日間乾燥後の透過中性子の検出計数率を土壤層表面から10、15、20、25、35及び40 cmの深さ位置において測定した結果をTable 5に示す。また、透過中性子の検出計数率から得られた水浸透中及び7日間乾燥後における土壤層中の水分率の変化量を、試験終了後土壤層を解体して各深度から得た土壤試料の水分率を島津製作所製水分率計で測定した結果とともにFig. 5に示す。水浸透中の水分率は土壤層カラムの10~40 cmの範囲で24~28%の値が得られ、放射性水溶液及び蒸留水の流下試験中はほぼ均一な水分率条件（平均で26%）下にあることが分かった。一方、7日間乾燥後は土壤層上部ほど水分率は低くなり、表面付近での水分率は数%とほぼ乾燥状態に至っていることが分かった。

3.2 流出液の放射性核種濃度、pH及び溶存イオン濃度の変化

WD-1及びWD-4の流出液中における ^{60}Co 、 ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の濃度変化をFig. 6(a)、(b)及び(c)に示す。測定限界は各核種とも 1.0×10^{-2} Bq/ml程度であった。

WD-4における流出液中 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度はWD-1に比べ高くなる傾向を示した。この傾向は流出液量が増加するほど顕著に見られた。また、WD-4の場合、流出液中放射性核種の濃度曲線は乾燥後蒸留水を流下する度に5~6 ℓの流出液量においてピークが現れ、その後流出液量が増すに従って徐々に減少した。 ^{85}Sr は流出初期に確認されたがほぼ検出限界の濃度であり、 ^{85}Sr の

隔を小さく（表面から30 cmの深さまでは2 cm間隔）、深部においては間隔を大きくして（30 cm以深では5 cm間隔）切断した。土壤試料の採取位置及び分割位置はFig. 3に示す通りである。

採取した流出液及び土壤試料中の放射性核種濃度はオルテック社製 γ 線スペクトル分析装置で測定した。さらに、流出液試料については、土壤層を浸透してきたことにより混入するシルト等の懸濁物質に収着して存在する放射性核種の割合を調べるため0.45 μ mのメンブランフィルターで吸引濾過し、フィルター及び濾液双方に含まれる放射性核種濃度を測定した。また、濾液のpHをイオン電極法により、 K^+ 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 及び Ca^{2+} 濃度をイオンクロマトグラフ法により測定した。

3. 試験結果

3.1 水流速非破壊測定結果

水の浸透に伴う透過中性子の検出計数率の経時変化をFig. 4(a)及び(b)に示す。土壤層上部から水が浸透するに伴って、土壤層表面より10, 40 cmにおける透過中性子の検出計数率の減少がある時点から観察された。それぞれの測定位置における透過中性子の検出計数率の減少率から土壤層中の水流速を求めた⁽¹⁹⁾。その結果、10 cmの深さ位置において0.43 cm/min、40 cmの深さ位置において0.44 cm/minの水流速が測定され、本試験条件における平均水流速として0.44 cm/minが得られた。

また、土壤層のある位置における水浸透中の透過中性子の検出計数率と7日間乾燥後のその関係は乾燥期間中における土壤層中の水分率の変化量を示しているので、中性子の水による減衰係数(0.12/cm)及び検出計数率の変化の関係から7日間の乾燥に伴う土壤層中の水分率の変化量を求めた⁽²⁰⁾。水浸透中及び7日間乾燥後の透過中性子の検出計数率を土壤層表面から10, 15, 20, 25, 35及び40 cmの深さ位置において測定した結果をTable 5に示す。また、透過中性子の検出計数率から得られた水浸透中及び7日間乾燥後における土壤層中の水分率の変化量を、試験終了後土壤層を解体して各深度から得た土壤試料の水分率を島津製作所製水分率計で測定した結果とともにFig. 5に示す。水浸透中の水分率は土壤層カラムの10~40 cmの範囲で24~28%の値が得られ、放射性水溶液及び蒸留水の流下試験中はほぼ均一な水分率条件（平均で26%）下にあることが分かった。一方、7日間乾燥後は土壤層上部ほど水分率は低くなり、表面付近での水分率は数%とほぼ乾燥状態に至っていることが分かった。

3.2 流出液の放射性核種濃度、pH及び溶存イオン濃度の変化

WD-1及びWD-4の流出液中における ^{60}Co 、 ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の濃度変化をFig. 6(a), (b)及び(c)に示す。測定限界は各核種とも 1.0×10^{-2} Bq/ml程度であった。

WD-4における流出液中 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度はWD-1に比べ高くなる傾向を示した。この傾向は流出液量が増加するほど顕著に見られた。また、WD-4の場合、流出液中放射性核種の濃度曲線は乾燥後蒸留水を流下する度に5~6 lの流出液量においてピークが現れ、その後流出液量が増すに従って徐々に減少した。 ^{85}Sr は流出初期に確認されたがほぼ検出限界の濃度であり、 ^{85}Sr の

ほとんどが土壤に吸着されたことが分かる。

流出液を0.45 μ mメンブランフィルターで吸引濾過し、濾液及びフィルターの放射性核種濃度を測定した結果をTable 6に示す。いずれの流下条件でも、流出した ^{60}Co 及び ^{137}Cs の50%前後がフィルターに捕集された。

流出液のpH及び溶存イオン (K^+ , Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}) 濃度の測定結果をFig. 7及びFig. 8 (a), (b), (c), (d)にそれぞれ示す。流出液量の増加に伴うpH及び各種溶存イオン濃度の変化は、流出液中の放射性核種濃度の変化によく対応していることが分る。WD-4で乾燥後蒸留水の流下を行う度に、流出初期のpHは7.7, K^+ 濃度は2~3 ppm, Na^+ 濃度は2~3.5 ppm, Mg^{2+} 濃度は0.6~0.8 ppm, Ca^{2+} 濃度は7~10 ppmまで高くなり、その後流出液量が増すに従って徐々に減少した。

3.3 土壤中放射性核種の濃度分布

WD-1及びWD-4の流下試験後サンプリングしたコア試料について、各深度ごとに測定した放射性核種濃度の平均を土壤層の深度に対してプロットすることによって、土壤層中における放射性核種の濃度分布としてFig. 9 (a), (b)及び(c)を得た(付録参照)。

土壤層上部の高濃度領域においては3核種ともほぼ指数関数的な減少が観察された。一方、土壤層深部の低濃度領域においては ^{60}Co と ^{137}Cs の2核種にのみテーリング現象が見られた。これは、 ^{85}Sr の挙動と明らかに異なり、核種による土壤中における移行機構の違いを反映しているものと考えられる。なお、この傾向は両試験に共通していた。

WD-1とWD-4との結果を比較すると、表面付近の濃度の急激な減少が見られる領域においては、 ^{85}Sr の移行が乾湿サイクル条件下で実施したWD-4の方で大きかったが、 ^{60}Co や ^{137}Cs については有意な変化は見られなかった。一方、土壤層深部においては、WD-4での ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度はWD-1に比較して約2倍高くなり、乾湿サイクル条件の影響が明らかに確認された。

4. 考 察

WD-4の場合、Fig. 6 (a)及び(c)で見られたように流出液中の ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度曲線には、乾燥後蒸留水を流下する度に5~6 ℓ の流出液フラクシオンにおいてピークが現れた。7日間の乾燥後の土壤層中に残存する水分量は、水分率の測定結果から約5 ℓ と算出された。この7日間乾燥後に残存する水分量は、流出液中に放射性核種濃度のピークが現れるフラクシオンと一致した。土壤層表面付近に残存する間隙水は、高濃度の放射性核種を吸着している土壤との平衡により相対的に高濃度の核種を含んでいると考えられる。土壤層中の水の流れがDarcyの法則に従うピストン流であると仮定すると、土壤層表面付近に存在する高濃度の放射性核種を含有する間隙水は蒸留水の流下に伴って押し流され、5~6 ℓ のフラクシオン中に流出する。したがって、5~6 ℓ の流出液量においてピークが現れたものと考えられる。

WD-1及びWD-4の両試験において、土壤層に流下された ^{60}Co , ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の大部分は表

ほとんどが土壤に吸着されたことが分かる。

流出液を0.45 μ mメンブランフィルターで吸引濾過し、濾液及びフィルターの放射性核種濃度を測定した結果をTable 6に示す。いずれの流下条件でも、流出した ^{60}Co 及び ^{137}Cs の50%前後がフィルターに捕集された。

流出液のpH及び溶存イオン (K^+ , Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}) 濃度の測定結果をFig. 7及びFig. 8 (a), (b), (c), (d)にそれぞれ示す。流出液量の増加に伴うpH及び各種溶存イオン濃度の変化は、流出液中の放射性核種濃度の変化によく対応していることが分る。WD-4で乾燥後蒸留水の流下を行う度に、流出初期のpHは7.7, K^+ 濃度は2~3 ppm, Na^+ 濃度は2~3.5 ppm, Mg^{2+} 濃度は0.6~0.8 ppm, Ca^{2+} 濃度は7~10 ppmまで高くなり、その後流出液量が増すに従って徐々に減少した。

3.3 土壤中放射性核種の濃度分布

WD-1及びWD-4の流下試験後サンプリングしたコア試料について、各深度ごとに測定した放射性核種濃度の平均を土壤層の深度に対してプロットすることによって、土壤層中における放射性核種の濃度分布としてFig. 9 (a), (b)及び(c)を得た(付録参照)。

土壤層上部の高濃度領域においては3核種ともほぼ指数関数的な減少が観察された。一方、土壤層深部の低濃度領域においては ^{60}Co と ^{137}Cs の2核種にのみテーリング現象が見られた。これは、 ^{85}Sr の挙動と明らかに異なり、核種による土壤中における移行機構の違いを反映しているものと考えられる。なお、この傾向は両試験に共通していた。

WD-1とWD-4との結果を比較すると、表面付近の濃度の急激な減少が見られる領域においては、 ^{85}Sr の移行が乾湿サイクル条件下で実施したWD-4の方で大きかったが、 ^{60}Co や ^{137}Cs については有意な変化は見られなかった。一方、土壤層深部においては、WD-4での ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度はWD-1に比較して約2倍高くなり、乾湿サイクル条件の影響が明らかに確認された。

4. 考 察

WD-4の場合、Fig. 6 (a)及び(c)で見られたように流出液中の ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度曲線には、乾燥後蒸留水を流下する度に5~6 ℓ の流出液フラクションにおいてピークが現れた。7日間の乾燥後の土壤層中に残存する水分量は、水分率の測定結果から約5 ℓ と算出された。この7日間乾燥後に残存する水分量は、流出液中に放射性核種濃度のピークが現れるフラクションと一致した。土壤層表面付近に残存する間隙水は、高濃度の放射性核種を吸着している土壤との平衡により相対的に高濃度の核種を含んでいると考えられる。土壤層中の水の流れがDarcyの法則に従うピストン流であると仮定すると、土壤層表面付近に存在する高濃度の放射性核種を含有する間隙水は蒸留水の流下に伴って押し流され、5~6 ℓ のフラクション中に流出する。したがって、5~6 ℓ の流出液量においてピークが現れたものと考えられる。

WD-1及びWD-4の両試験において、土壤層に流下された ^{60}Co , ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の大部分は表

面付近に吸着され、砂質土壌は乾湿サイクル条件下においても高い放射性核種吸着能を有することが確認された (Fig. 9)。しかし、 ^{60}Co や ^{137}Cs には低濃度のテーリングが土壌層深部に現れ、これらの核種は ^{85}Sr とは異なった移行挙動を示した。この土壌中核種濃度分布を反映して、流出液中の放射能濃度も ^{85}Sr に比べ ^{60}Co や ^{137}Cs は2桁以上高い傾向を示した (Fig. 6)。

^{60}Co や ^{137}Cs の濃度分布に2つの領域が現れた事実は、これら核種の移行現象には土壌層表面付近に保持される吸着性の高い化学種による移行と土壌層深部へ移行する吸着性の低い化学種による移行との少なくとも2種類の移行機構があることを示唆している⁽²¹⁾。土壌に供給した放射性水溶液中では、いずれの核種も陽イオンとして存在していたと考えられる。陽イオン性化学種の土壌への吸着性は一般的に高く、その移行現象は土壌とのイオン交換や化学吸着に基づいた反応に支配されている。一方、移行し易いものとしては、加水分解により電荷のない水酸化物を形成した放射性核種、土壌中を移行可能なシルト・粘土粒子に吸着した放射性核種⁽²¹⁾⁽²²⁾、土壌中に含有される腐植等の有機物と錯体を形成した放射性核種⁽²³⁾等に代表される粒子性化学種の存在が知られている。これらの粒子性化学種の一部は、水の流れて伴われて土壌間隙中を容易に移行する。

Table 6 に示したように、流出液中の ^{60}Co 及び ^{137}Cs のかなりの量がフィルターに捕集された。もし、流出液中の放射性核種が全て解離したイオンとして存在するならば、それらの全てはフィルターには捕集されないで濾液中に存在するであろう。この結果は、流出液中の ^{60}Co 及び ^{137}Cs の一部が、明らかに粒子性化学種として存在することを示している。

以下、表面付近で急激に濃度が減少する陽イオン性化学種による移行と土壌層深部まで動く粒子性化学種による移行とに移行形態を分離して、土壌層中における放射性核種の移行に及ぼす乾湿サイクル条件の影響を検討する。

(1) 土壌層表面付近における放射性核種の移行に及ぼす乾湿サイクル条件の影響

Fig. 9 から明らかなように、土壌層表面付近においては ^{85}Sr の移行のみが乾湿サイクル条件下で増大した。

乾燥後蒸留水を流下する度に流出液中の各種溶存イオン濃度が増加した (Fig. 8) 原因は、乾燥期間中に、土壌から残留する間隙水中へイオンが離脱したことによるものと考えられる。特に、本砂質土壌の主な交換性陽イオンである Ca^{2+} (Table 2) については、乾燥後の流出液中の濃度に著しい増加が見られた。一般に、水溶液中に存在する陽イオンの土壌へのイオン交換による吸着は、共存する他の陽イオンの影響を受ける。 ^{85}Sr の場合、土壌から溶出する同じアルカリ土類金属である Ca^{2+} の影響を顕著に受けことが知られている⁽²⁴⁾。筆者等は、原研敷地内の砂質土壌について放射性核種の吸着現象に及ぼす共存イオンの影響について検討し、共存する Ca^{2+} 濃度が高くなるに従って土壌-水溶液間における ^{85}Sr の分配係数が著しく減少することを見出した⁽²⁵⁾。これらの知見から、乾燥後蒸留水の流下を行う度に流出液の Ca^{2+} 濃度が高くなる乾湿サイクル条件下では、土壌に対する ^{85}Sr の分配係数が見掛け上小さくなることが期待される。このように、乾湿サイクル条件下で実施したWD-4では、 Ca^{2+} 濃度の増加により ^{85}Sr の分配係数が減少するので、 ^{85}Sr の土壌層中移行速度がWD-1に比べ増大したものと推定される。一方、 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の分配係数は、

^{85}Sr に比較して共存イオン濃度（特に Ca^{2+} 濃度）の影響を受けない⁽²⁵⁾。したがって、乾湿サイクル条件下で共存イオン濃度が増加しても、陽イオン性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の移行は大きな影響を受けなかったものと考えられる。

一般に、土壌への放射性核種の吸着現象として可逆的な瞬時平衡が仮定される場合、土壌層中における水の移流に伴う放射性核種の一次元的移行は、Eq.(1)で示される輸送拡散式とEq.(2)で記述される土壌層間隙水と土壌間における放射性核種の反応式との連立方程式によって与えられる⁽²⁶⁾。

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = \left(D \frac{\partial^2 Q}{\partial X^2} - V \frac{\partial Q}{\partial X} \right) \frac{1}{Rf} \quad (1)$$

$$Rf = 1 + \frac{(1-f)\rho}{\theta} Kd, \quad (Q = KdC) \quad (2)$$

ここで、 C は間隙水中放射性核種濃度(Bq/ml)、 Q は土壌層中放射性核種濃度(Bq/g)、 ρ は土壌の密度(g/ml)、 θ は水分率、 D は分散係数(cm^2/min)、 V は水流速(cm/min)、 t は時間(min)、 X は長さ(cm)、 f は空隙率、 Kd は分配係数(ml/g)、 Rf は遅延係数である。

土壌層中における水流速や水の分散係数は、トリチウム等の土壌層との反応性が無いトレーサーを用いて測定することができる⁽²⁷⁾。ここでは、内径5 cm、高さ10 cmの小型土壌層カラムを調製し、トリチウム水（濃度： C_0 ）の流下実験を行った。流出液中におけるトリチウム濃度の時間変化から小型土壌層カラム中の水流速及び分散係数を求めた。流出液中におけるトリチウム濃度 C_H はEq.(3)によって得ることができる⁽²⁸⁾。

$$C_H = 0.5 C_{H0} \left[\exp(VX/D) \operatorname{erfc}\{(X+Vt)/2(Dt)^{1/2}\} + \operatorname{erfc}\{(X-Vt)/2(Dt)^{1/2}\} \right] \quad (3)$$

分散係数及び水流速は、流出液中トリチウムの濃度分布に対してEq.(3)をフィッティングさせることによって得た⁽²⁷⁾。その結果、この小型土壌層カラム中の分散係数及び水流速として、それぞれ $0.13 \text{ cm}^2/\text{min}$ 、 $0.57 \text{ cm}/\text{min}$ が得られた。

本砂質土壌については、水流速と分散係数との間に、

$$D = D_0 V^{1.2} \quad (4)$$

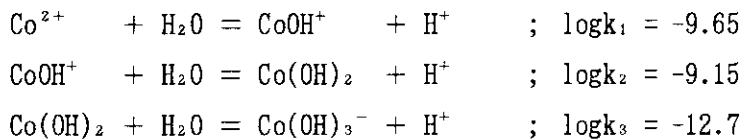
の関係が見い出されている⁽²⁹⁾。小型土壌層カラム中の分散係数及び水流速をEq.(4)に代入することにより D_0 の値として0.26が得られた。本乾湿サイクルシミュレーション試験の非破壊で測定された水流速($0.44 \text{ cm}/\text{min}$)を基に、Eq.(4)から算出された本試験条件における分散係数は $0.10 \text{ cm}^2/\text{min}$ であった。

分散係数及び水流速が既知であれば、遅延係数あるいは分配係数は試験から得られた土壤中濃度分布にEq.(1)とEq.(2)をフィッティングさせることにより決定することができる。ここでは、陽イオン性化学種の吸着に基づく移行現象に支配されていると考えられる土壤層表面付近における ^{85}Sr の濃度分布に対して、放射性核種の地中移行パラメータ算出コード(MIGSTEM-FIT)⁽³⁰⁾⁽³¹⁾を用いたフィッティングを試みた。WD-1とWD-4における ^{85}Sr の遅延係数の算出結果をTable 7に示す。なお、フィッティングさせた濃度分布曲線をFig. 9(b)に破線で示す。WD-4における ^{85}Sr の遅延係数はWD-1に比べ約1/2に減少し、乾湿サイクル条件下では土壤層中における ^{85}Sr の移行が約2倍加速されたことが明らかになった。

(2) 土壤層深部における放射性核種の移行に及ぼす乾湿サイクル条件の影響

^{60}Co は土壤中の有機物等と錯体を形成することが可能であるが、本実験に使用した土壤は腐植物質の少ない海岸砂質土壤であるので、 ^{60}Co の有機錯体についての考慮は無視できるものと期待される。しかしながら、 Co^{2+} は水溶液中で逐次加水分解し、非陽イオン性 $\text{Co}(\text{OH})_2$ あるいは $\text{Co}(\text{OH})_3^-$ を生成する。 Co^{2+} の加水分解は弱塩基性水溶液中でも進行し、移行性の高い粒子性の $\{\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ を生成することが知られている⁽³²⁾。

水溶液中での Co^{2+} の加水分解反応及び加水分解に関する安定度定数は以下に示す通りである⁽³³⁾。



水溶液中における非陽イオン性 $\text{Co}(\text{OH})_2$ の存在率 $R[\text{Co}(\text{OH})_2]$ は、 H^+ 濃度の関数で表せる(Eq.(5))。

$$R[\text{Co}(\text{OH})_2] = \frac{k_1 k_2 [\text{H}^+]^{-2}}{\{1 + k_1 [\text{H}^+]^{-1} + k_1 k_2 [\text{H}^+]^{-2} + k_1 k_2 k_3 [\text{H}^+]^{-3}\}} \quad (5)$$

WD-4の場合、乾燥後蒸留水の流下を行う度に、流出初期において流出液のpHは7.8まで高くなり、その後流出液量が増すに従って徐々に減少した(Fig. 7)。一般に、土壤は接触している平衡水中の水素イオン濃度が増加した場合、土壤表面に存在する弱塩基上の陽イオンが水素イオンと交換し、土壤溶液中の水素イオン濃度の増加を抑制する作用、すなわちpH緩衝作用を有している⁽³⁴⁾。土壤はpH緩衝作用に基づく固有のpHを持っており、土壤間隙水もその緩衝作用を受けて固有のpHに至る。Fig. 7の結果は、間隙水のpHが本砂質土壤の緩衝作用によって7日間の乾燥期間中に7.8に至ったことを示している。 $[\text{H}^+]$ が $10^{-7.8}$ における $\text{Co}(\text{OH})_2$ の存在率をEq.(5)から求めると、全 ^{60}Co の0.1%に相当することが分った。このように、乾燥期間中に間隙水中で ^{60}Co の加水分解反応は進行し、粒子性の $\{\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ が増加することが期待される。したがって、乾燥の度に移行性の大きな $\{\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ が親核種からの娘核種のmilkingのごとく生み出されたことにより、乾

湿サイクル条件下のWD-4において ^{60}Co の土壤層深部への移行が増加したものと考えられる。

一方、 ^{137}Cs は水溶液中において極めて安定な1価の陽イオンとして存在する。土壤への ^{137}Cs の収着現象の特徴として、 Cs^+ はilliteやmontmorillonite等の粘土鉱物が有する層構造の内部に選択的に進入・固定されることが知られている⁽³⁵⁾⁽³⁶⁾。本試験に用いた砂質土壤は構成鉱物としてmontmorillonite等を含んでいる (Table 1)。また粒径分布は、Table 1に示したように砂を主と有しているが微細なシルト・粘土粒子も多少含んでいるので、粗粒から成る土壤の間隙を微粒子が容易に通過できる条件、すなわちシルト・粘土粒子が移動しやすい条件にあるといえる。したがって、土壤層中に $^{137}\text{Cs}^+$ を固定した微細粘土鉱物粒子が存在すれば、 ^{137}Cs の一部が水の流れと共に土壤層深部へ移行するという現象が生じるであろう。

環境中におけるシルト・粘土粒子等の土壤微細粒子は、風化作用や降雨等による攪乱のため、主に地表面付近で発生することが知られている⁽³⁷⁾。本乾湿サイクル条件下試験WD-4では、7日間の乾燥後、放射性核種を最も多く収着している土壤層表面はほぼ乾燥状態に至っている (Fig. 6)。この乾燥した土壤表面に再び蒸留水の滴下を受けるという過酷な試験条件の繰り返しを行ったWD-4は、土壤微細粒子の流下並びに土壤構造の破壊などが生じやすい環境にあったといえる。これらを基に、”土壤層表面付近で ^{137}Cs を特異吸着した土壤微細粒子が発生し、且つ間隙水中に遊離した土壤微細粒子が ^{137}Cs を脱離せずに土壤層中を水の流れと共に移行する”という現象を想定することにより、乾湿サイクル条件下のWD-4において ^{137}Cs の土壤層深部への移行が増加した原因を説明することができる。このような疑似コロイド状化学種としての移行現象は、Fe-Mn水酸・酸化物に特異的に収着することが知られている ^{60}Co についても起こり得る⁽³⁸⁾。したがって、粒子性 ^{60}Co の移行は、 $\{\text{}^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ による移行機構と酸化物収着 ^{60}Co の移行機構との混成機構によるものと思われる。

なお ^{85}Sr は、 ^{60}Co に比較して弱塩基性水溶液中において安定な陽イオンとして存在する⁽³⁹⁾。さらに ^{137}Cs に比較して土壤微細粒子への吸着性も可逆的で且つ小さい⁽⁴⁰⁾。したがって、非イオン性 ^{85}Sr の形態での移行現象は、本試験においてほとんど観察されなかったものと考えられる。

土壤層を通過した粒子性の ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度は、流入液の濃度の1/1000~1/10000にすぎないことが、Fig. 6(a)及び(c)から分かる。しかしながら、陽イオン性化学種に先行して移行するこれら粒子性化学種の挙動は、放射性廃棄物の浅地層処分の安全評価上無視できない事象である。粒子性化学種の移行挙動を定量化するため幾つかの移行モデルが提案されている。1次の可逆反応速度式で示したモデル⁽²⁸⁾、土壤中透過率で記述したモデル⁽⁴¹⁾、濾過モデル⁽⁴²⁾、濾過理論に基づく1次の非可逆反応速度式で示したモデル⁽²⁷⁾、粒子の粒径ごとに遅延係数を設定した平衡モデル⁽⁴³⁾等があるが、最後のモデルを除くと土壤層による放射性核種の抑留に支配される濾過機構に基づいている。最も単純な清澄濾過モデルは、濾過方程式⁽⁴⁴⁾ Eq. (6)で記述される。

$$\frac{\partial C_n}{\partial X} = -\lambda C_n \quad (6)$$

ここで、 λ は土壤層による粒子性化学種の抑留率：濾過係数(1/cm)、 C_n はX cmの土壤層を通過し

た水溶液中の粒子性化学種濃度(Bq/ml)である。

抑留率を一定、 $X=0$ のとき $C_n=C_{n0}$ としてEq.(6)を解くと、

$$\frac{C_n}{C_{n0}} = \exp(-\lambda X) \quad (7)$$

X_j における土壤層中濃度 Q_n は、

$$\frac{Q_n}{Q_{n0}} = \exp(-\lambda X_j) \quad (8)$$

すなわち、

$$\ln(Q_n) = \ln(Q_{n0}) - \lambda X_j \quad (9)$$

ここで、 Q_n は土壤層中に抑留された粒子性化学種の濃度(Bq/g)、 Q_{n0} は土壤層表面に抑留されるべき粒子性化学種の濃度(Bq/g)である。

粒子性化学種の移行に支配されていると考えられるFig. 9(a)及び(c)の土壤層深部における ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度分布にEq.(9)を適応させ、濃度分布の傾き(Fig. 9に実線で示す)から濾過係数を求めた。さらに、濃度分布の傾きを外挿してY軸との切片から Q_{n0} を求め、Eq.(9)を X_j について積分することにより土壤層中における粒子性化学種量を計算した。WD-1とWD-4における ^{60}Co と ^{137}Cs の濾過係数、並びにカラム流出量と土壤層中における粒子性化学種量との和として定義した粒子性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の存在率をTable 8に示す。WD-1とWD-4での濾過係数は等しく、 ^{60}Co が0.023/cm、 ^{137}Cs が0.031/cmと得られた。また、WD-4の粒子性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の存在率は、ともにWD-1に比べ2倍程度高い値となった。

5. あとがき

自然環境下の地表付近の通気層中で生じる降雨と乾燥の繰り返しによる地中水の不連続な流れを考慮した、放射性核種の移行試験を環境シミュレーション試験装置を用いて行った。

- 1) 乾湿サイクル条件下では、土壤層表面付近に吸着した陽イオン性 ^{85}Sr の移行性が增大したが、 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の移行性に変化はなかった。陽イオン性 ^{85}Sr の移行性の増大は、乾燥期間中に ^{85}Sr の土壤への吸着能を減少させる間隙水中 Ca^{2+} 濃度の増加が生じたことに起因させられた。
- 2) 乾湿サイクル条件下において、 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の粒子性化学種の土壤層深部への移行が増大した。これは、乾燥期間中に土壤層中を移行しやすい $\{^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ や、土壤中微細粒子に固定された ^{137}Cs 化学種の生成が進行したためであると考えられた。

本試験から得られた事象は、小型カラムを用いて実施した実験結果とよく一致していた。環境シ

た水溶液中の粒子性化学種濃度(Bq/ml)である。

抑留率を一定, $X=0$ のとき $C_n=C_{n0}$ としてEq.(6)を解くと,

$$\frac{C_n}{C_{n0}} = \exp(-\lambda X) \quad (7)$$

X_j における土壤層中濃度 Q_n は,

$$\frac{Q_n}{Q_{n0}} = \exp(-\lambda X_j) \quad (8)$$

すなわち,

$$\ln(Q_n) = \ln(Q_{n0}) - \lambda X_j \quad (9)$$

ここで, Q_n は土壤層中に抑留された粒子性化学種の濃度(Bq/g), Q_{n0} は土壤層表面に抑留されるべき粒子性化学種の濃度(Bq/g)である。

粒子性化学種の移行に支配されていると考えられるFig. 9(a)及び(c)の土壤層深部における ^{60}Co 及び ^{137}Cs の濃度分布にEq.(9)を適応させ, 濃度分布の傾き(Fig. 9に実線で示す)から濾過係数を求めた。さらに, 濃度分布の傾きを外挿してY軸との切片から Q_{n0} 求め, Eq.(9)を X_j について積分することにより土壤層中における粒子性化学種量を計算した。WD-1とWD-4における ^{60}Co と ^{137}Cs の濾過係数, 並びにカラム流出量と土壤層中における粒子性化学種量との和として定義した粒子性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の存在率をTable 8に示す。WD-1とWD-4での濾過係数は等しく, ^{60}Co が0.023/cm, ^{137}Cs が0.031/cmと得られた。また, WD-4の粒子性 ^{60}Co 及び ^{137}Cs の存在率は, ともにWD-1に比べ2倍程度高い値となった。

5. あとがき

自然環境下の地表付近の通気層中で生じる降雨と乾燥の繰り返しによる地中水の不連続な流れを考慮した, 放射性核種の移行試験を環境シミュレーション試験装置を用いて行った。

- 1) 乾湿サイクル条件下では, 土壤層表面付近に吸着した陽イオン性 ^{85}Sr の移行性が增大したが, ^{60}Co 及び ^{137}Cs の移行性に変化はなかった。陽イオン性 ^{85}Sr の移行性の増大は, 乾燥期間中に ^{85}Sr の土壤への吸着能を減少させる間隙水中 Ca^{2+} 濃度の増加が生じたことに起因させられた。
- 2) 乾湿サイクル条件下において, ^{60}Co 及び ^{137}Cs の粒子性化学種の土壤層深部への移行が増大した。これは, 乾燥期間中に土壤層中を移行しやすい $\{^{60}\text{Co}(\text{OH})_2\}_n$ や, 土壤中微細粒子に固定された ^{137}Cs 化学種の生成が進行したためであると考えられた。

本試験から得られた事象は, 小型カラムを用いて実施した実験結果とよく一致していた。環境シ

ミュレーション試験装置を用いて得たより実証的な試験結果並びに得られた結果の解析手法は、乾湿サイクル条件が比較的容易に起こりやすい砂質土壌等から成る地層を対象とした放射性核種の移行現象のより正確な評価に寄与できるものとする。

謝 辞

本試験を実施するにあたり多大なご尽力を頂いた(財)エネルギー総合工学研究所の和達嘉樹氏、並びに本報をまとめるにあたり貴重なご助言を頂いた環境安全研究部天然バリア研究室の妹尾宗明室長及び武部慎一氏に深く感謝の意を表します。また、本試験の実施にご協力を頂いた天然バリア研究室の諸氏に感謝します。

参 考 文 献

- (1) IAEA: *IAEA Safety Series No.54*, 22 (1981).
- (2) *原子力工業*, 31, 10 (1985).
- (3) 鈴木篤之: *原子力工業*, 32, 9 (1986).
- (4) 中村治人, D.R.CHAMP: *原子力誌*, 31[3], 350 (1989).
- (5) 神山秀雄, 他: *JAERI-Research*, 94-009, (1994).
- (6) 五十嵐敏文, 他: *原子力誌*, 33[2], 180 (1991).
- (7) T.OHNUKI, et al.: "*Proceedings of the 1989 Joint International Waste Management Conference at Kyoto*", p.491 (1989).
- (8) J.TOROK, L.P.BUCKLEY, B.L.WOODS: "*Proceedings of Waste Management '89: Vol.2-Low-Level Waste*", p.179, Arizona, (1989).
- (9) H.W.LEVI: *IAEA-SM-243/17*, (1979).
- (10) 和達嘉樹, 他: *原子力誌*, 24[3], 182 (1982).
- (11) 山本忠利, 他: *JAERI-M 85-217*, (1985).
- (12) 武部慎一, 他: *JAERI-M 92-205*, (1993), *JAERI-M 93-034*, (1993).
- (13) G.G.Eichholz, J.Whang: "*Proceedings of Waste Management '87: Vol.3-Low-Level Waste*", p.219, Arizona, (1987).
- (14) 堀内将人, 井上頼輝, 森澤眞輔: *衛生工学研究論文集*, 22, 23 (1986).
- (15) T.Tanaka, T.Yamamoto; *J.Nucl.Sci.Technol.*, 31[4], 308 (1994).
- (16) 田中忠夫, 山本忠利: *RADIOISOTOPES*, 43[7], (1994).
- (17) 山本忠利, 他: *JAERI-M 84-125*, (1984).

ミュレーション試験装置を用いて得たより実証的な試験結果並びに得られた結果の解析手法は、乾湿サイクル条件が比較的容易に起こりやすい砂質土壌等から成る地層を対象とした放射性核種の移行現象のより正確な評価に寄与できるものとする。

謝 辞

本試験を実施するにあたり多大なご尽力を頂いた(財)エネルギー総合工学研究所の和達嘉樹氏、並びに本報をまとめるにあたり貴重なご助言を頂いた環境安全研究部天然バリア研究室の妹尾宗明室長及び武部慎一氏に深く感謝の意を表します。また、本試験の実施にご協力を頂いた天然バリア研究室の諸氏に感謝します。

参 考 文 献

- (1) IAEA: *IAEA Safety Series No.54*, 22 (1981).
- (2) *原子力工業*, 31, 10 (1985).
- (3) 鈴木篤之: *原子力工業*, 32, 9 (1986).
- (4) 中村治人, D.R.CHAMP: *原子力誌*, 31[3], 350 (1989).
- (5) 神山秀雄, 他: *JAERI-Research*, 94-009, (1994).
- (6) 五十嵐敏文, 他: *原子力誌*, 33[2], 180 (1991).
- (7) T.OHNUKI, et al.: "*Proceedings of the 1989 Joint International Waste Management Conference at Kyoto*", p.491 (1989).
- (8) J.TOROK, L.P.BUCKLEY, B.L.WOODS: "*Proceedings of Waste Management '89: Vol.2-Low-Level Waste*", p.179, Arizona, (1989).
- (9) H.W.LEVI: *IAEA-SM-243/17*, (1979).
- (10) 和達嘉樹, 他: *原子力誌*, 24[3], 182 (1982).
- (11) 山本忠利, 他: *JAERI-M 85-217*, (1985).
- (12) 武部慎一, 他: *JAERI-M 92-205*, (1993), *JAERI-M 93-034*, (1993).
- (13) G.G.Eichholz, J.Whang: "*Proceedings of Waste Management '87: Vol.3-Low-Level Waste*", p.219, Arizona, (1987).
- (14) 堀内将人, 井上頼輝, 森澤眞輔: *衛生工学研究論文集*, 22, 23 (1986).
- (15) T.Tanaka, T.Yamamoto; *J.Nucl.Sci.Technol.*, 31[4], 308 (1994).
- (16) 田中忠夫, 山本忠利: *RADIOISOTOPES*, 43[7], (1994).
- (17) 山本忠利, 他: *JAERI-M 84-125*, (1984).

ミュレーション試験装置を用いて得たより実証的な試験結果並びに得られた結果の解析手法は、乾湿サイクル条件が比較的容易に起こりやすい砂質土壌等から成る地層を対象とした放射性核種の移行現象のより正確な評価に寄与できるものとする。

謝 辞

本試験を実施するにあたり多大なご尽力を頂いた(財)エネルギー総合工学研究所の和達嘉樹氏、並びに本報をまとめるにあたり貴重なご助言を頂いた環境安全研究部天然バリア研究室の妹尾宗明室長及び武部慎一氏に深く感謝の意を表します。また、本試験の実施にご協力を頂いた天然バリア研究室の諸氏に感謝します。

参 考 文 献

- (1) IAEA: *IAEA Safety Series No.54*, 22 (1981).
- (2) 原子力工業, 31, 10 (1985).
- (3) 鈴木篤之: 原子力工業, 32, 9 (1986).
- (4) 中村治人, D.R.CHAMP: 原子力誌, 31[3], 350 (1989).
- (5) 神山秀雄, 他: *JAERI-Research*, 94-009, (1994).
- (6) 五十嵐敏文, 他: 原子力誌, 33[2], 180 (1991).
- (7) T.OHNUKI, et al.: "*Proceedings of the 1989 Joint International Waste Management Conference at Kyoto*", p.491 (1989).
- (8) J.TOROK, L.P.BUCKLEY, B.L.WOODS: "*Proceedings of Waste Management '89: Vol.2-Low-Level Waste*", p.179, Arizona, (1989).
- (9) H.W.LEVI: *IAEA-SM-243/17*, (1979).
- (10) 和達嘉樹, 他: 原子力誌, 24[3], 182 (1982).
- (11) 山本忠利, 他: *JAERI-M 85-217*, (1985).
- (12) 武部慎一, 他: *JAERI-M 92-205*, (1993), *JAERI-M 93-034*, (1993).
- (13) G.G.Eichholz, J.Whang: "*Proceedings of Waste Management '87: Vol.3-Low-Level Waste*", p.219, Arizona, (1987).
- (14) 堀内将人, 井上頼輝, 森澤眞輔: 衛生工学研究論文集, 22, 23 (1986).
- (15) T.Tanaka, T.Yamamoto; *J.Nucl.Sci.Technol.*, 31[4], 308 (1994).
- (16) 田中忠夫, 山本忠利: *RADIOISOTOPES*, 43[7], (1994).
- (17) 山本忠利, 他: *JAERI-M 84-125*, (1984).

- (18) 大貫敏彦, 山本忠利: *応用物理*, **52**, 268 (1983).
- (19) 大貫敏彦, 山本忠利: *JAERI-M 85-096*, (1985).
- (20) T. Ohnuki, T. Yamamoto and Y. Wadachi: *Jpn.J.Appl.Phys.*, **24**, 1124 (1984).
- (21) T. Ohnuki, T. Tanaka; *Health Phys.*, **56**, 47 (1989).
- (22) 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: *保健物理*, **17**, 437 (1982).
- (23) T. TANAKA, S. NI: *JAERI-M 93-185*, (1993).
- (24) 筒井天尊, 西牧研壯: *保健物理*, **10**, 79-86 (1975).
- (25) 田中忠夫, 他; *原子力誌*, **33**[4], 373-380 (1991).
- (26) Y. Inoue, W. J. Kaufman; *Health Phys.*, **9**, 705 (1963).
- (27) H. Ogawa; *J. Nucl. Sci. Technol.*, **25**[3], 283 (1988).
- (28) M. Fukui, Y. Katsurayama; *Health Phys.*, **28**, 717 (1977).
- (29) 小川弘道, 山本忠利, 和達嘉樹: *保健物理*, **22**, 421 (1987).
- (30) Ohnuki, T., Takebe, S. and Yamamoto, T.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **26**[8], 795 (1989).
- (31) 小川弘道, 大貫敏彦; *JAERI-M 86-102*, (1986).
- (32) Ohnuki, T.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **29**[10], 996 (1992).
- (33) 松鶴秀夫, 他: *JAERI-M 6361*, (1976).
- (34) C. F. Baes, R. E. Mesmer: " *The Hydrolysis of Cations*", p.238 (1976), John Wiley & Sons, Inc., New York.
- (35) 高井康雄, 三好洋: " *土壌通論*", p.28 (1977), 朝倉書店.
- (36) T. TAMURA, D. G. JACOBS: *Health Phys.*, **2**, 391 (1960).
- (37) D. W. OSCARSON, R. L. WATSON, H. G. MILLER: *Applied Clay Sci.*, **2**, 29 (1987).
- (38) 粘土ハンドブック編集委員会: " *粘土ハンドブック*", p.146 (1983), 技報堂.
- (39) M. Pourbaix: " *Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions*", p.151, P.325 (1966), Pergamon Press Ltd., London.
- (40) T. TANAKA, K. SRIYOTHA, H. KAMIYAMA: " *Proceedings of the third international conference on Nuclear fuel reprocessing and waste management (RECOD '91)*", p.1011, 仙台, (1991).
- (41) 加藤正平: " *放射性物質による陸圏の汚染と線量推定の諸問題*", p.96 (1979), 技術寄与研究会.
- (42) 加藤尚武, 他: *原子力誌*, **29**[9], 834 (1987).
- (43) 大貫敏彦, 和達嘉樹: *ibid*, **25**[6], 486 (1983).
- (44) 化学工学協会編: " *濾過技術*", p.24 (1984), 槇書店.

Table 1 Physical properties of coastal sandy soil.

| | |
|---|------------------|
| Particle size distribution (weight percent) | |
| 1.68 ~0.85 mm | 7.4 |
| 0.85 ~0.40 mm | 37.3 |
| 0.40 ~0.25 mm | 36.6 |
| 0.25 ~0.11 mm | 14.8 |
| 0.11 ~0.075 mm | 0.3 |
| 0.075~0.002 mm | 2.8 |
| 0.002 mm under | 0.8 |
| Density (g/cm ³) | 2.6 |
| Mineral composition | |
| Quartz | Major component |
| Plagioclase | Medium component |
| K-feldsper | Minor component |
| Hornblende | Trace component |
| Sericite | Trace component |
| Chlorite | Trace component |
| Specific surface area (m ² /g) | 1.5 |

Table 2 Chemical properties of coastal sandy soil.

| | |
|---|-------|
| Chemical composition (weight percent) | |
| SiO ₂ | 78.20 |
| Al ₂ O ₃ | 8.31 |
| TiO ₂ | 0.36 |
| Fe ₂ O ₃ | 2.46 |
| CaO | 1.95 |
| MgO | 0.98 |
| Na ₂ O | 2.55 |
| K ₂ O | 2.70 |
| MnO | 0.07 |
| H ₂ O | 2.04 |
| Total | 99.61 |
| Cation exchange capacity (meq/100g) | 1.9 |
| Amount of exchangeable cations (meq/100g) | |
| K ⁺ | 0.82 |
| Na ⁺ | 1.15 |
| Mg ²⁺ | 0.30 |
| Ca ²⁺ | 5.80 |
| Distribution coefficient (ml/g) | |
| ⁶⁰ Co | 180 |
| ⁸⁵ Sr | 80 |
| ¹³⁷ Cs | 440 |

Table 3 Radioactive aqueous solution.

| Test name | WD-1 | WD-4 |
|-------------------------------------|------|------|
| Radionuclide concentration (Bq/ml) | | |
| ⁶⁰ Co | 440 | 350 |
| ⁸⁵ Sr | 350 | 360 |
| ¹³⁷ Cs | 460 | 410 |
| pH | 6.6 | 6.6 |
| Na ⁺ concentration (ppm) | 0.18 | 0.10 |

Table 4 Test Conditions.

| Test name | WD-1 (Reference test) | WD-4 (Wet-dry cycle test) |
|-------------------------|--------------------------|------------------------------|
| Radioactive solution | | |
| feeding volume (ℓ) | 42.4 | 42.4 |
| Distilled water | | |
| feeding volume (ℓ) | 424 | 106 × 4 times |
| Drying period (d) | — | 7 × 4 times |
| Mean feeding rate (ℓ/h) | 6.05 | 6.10 |
| Temperature (°C) | 20~21 | 20~21 |

Table 5 Detected counting rate of transmitted fast neutron.

| Depth (cm) | Counting rate (cpm) | |
|------------|---------------------|--------------|
| | In water filtration | After drying |
| 10 | 987 | 1951 |
| 15 | 989 | 1934 |
| 20 | 897 | 1883 |
| 25 | 879 | 1570 |
| 35 | 909 | 1468 |
| 40 | 962 | 1352 |

Table 6 Radionuclide concentration in effluent filtered through membrane filter and radionuclide concentration removed from effluent by filtration.

| Test name | Cycle No. | Effluent volume (ℓ) | ⁶⁰ Co (Bq/ml) | | ⁸⁵ Sr (Bq/ml) | | ¹³⁷ Cs (Bq/ml) | |
|-----------|-----------|---------------------|--------------------------|--------|--------------------------|---------|---------------------------|--------|
| | | | Filtrate | Filter | Filtrate | Filter | Filtrate | Filter |
| WD-1 | 1 | 1 | 4.9E-1 | 4.1E-2 | D.L. | D.L. | 3.0E-2 | 2.1E-2 |
| | | 14 | 1.4E-1 | 2.4E-1 | 2.6E-2 | 6.44E-3 | 2.0E-1 | 1.0E-1 |
| | | 26 | 4.4E-2 | 7.7E-2 | D.L. | D.L. | 1.0E-1 | 5.5E-2 |
| | | 59 | 1.7E-2 | 3.0E-2 | D.L. | D.L. | 5.8E-2 | 3.2E-2 |
| | | 93 | 1.9E-2 | 1.8E-2 | D.L. | D.L. | 4.0E-2 | 2.3E-2 |
| | | 168 | 1.4E-2 | 1.9E-2 | D.L. | D.L. | 5.9E-2 | 8.0E-2 |
| | | 267 | 1.3E-2 | 4.5E-3 | D.L. | D.L. | 1.2E-2 | 1.3E-2 |
| | | 420 | 2.4E-2 | D.L. | D.L. | D.L. | D.L. | 6.6E-3 |
| | 1 | 1 | 3.6E-1 | 8.9E-2 | D.L. | D.L. | 3.7E-2 | 2.4E-2 |
| | | 7 | 2.0E-1 | 1.3 | 8.2E-2 | 9.8E-2 | 2.0E-1 | 6.4E-1 |
| | | 13 | 1.2E-1 | 5.8E-1 | 6.8E-2 | D.L. | 1.3E-1 | 3.4E-1 |
| | | 25 | 8.1E-2 | 3.3E-1 | D.L. | D.L. | 9.7E-2 | 1.7E-1 |
| | | 37 | 6.0E-2 | 1.4E-1 | D.L. | D.L. | 7.3E-2 | 8.5E-2 |
| | | 55 | 5.9E-2 | 1.1E-1 | D.L. | D.L. | 6.3E-2 | 7.2E-2 |
| | | 85 | 2.8E-2 | 4.1E-2 | 3.9E-2 | D.L. | 4.6E-2 | 2.4E-2 |
| | | WD-4 | 2 | 107 | 4.8E-2 | 2.9E-2 | D.L. | D.L. |
| 113 | 4.4E-2 | | | 1.7E-1 | D.L. | D.L. | 2.5E-2 | 1.2E-1 |
| 119 | 2.7E-2 | | | 1.1E-1 | D.L. | D.L. | 2.4E-2 | 9.0E-2 |
| 131 | 2.2E-2 | | | 6.5E-2 | D.L. | D.L. | 2.5E-2 | 5.7E-2 |
| 143 | 2.7E-2 | | | 7.3E-2 | 4.0E-2 | D.L. | 2.2E-2 | 5.2E-2 |
| 161 | 1.4E-2 | | | 5.3E-2 | D.L. | D.L. | 1.7E-2 | 4.0E-2 |
| 191 | 2.0E-2 | | | 3.5E-2 | D.L. | D.L. | 1.6E-2 | 3.0E-2 |
| WD-4 | 3 | 213 | 3.1E-2 | 1.1E-2 | D.L. | D.L. | 2.6E-2 | 9.5E-3 |
| | | 219 | 3.8E-2 | 1.2E-1 | 4.0E-2 | D.L. | 1.4E-2 | 7.2E-2 |
| | | 225 | 1.3E-2 | 7.1E-2 | D.L. | D.L. | 9.1E-3 | 5.1E-2 |
| | | 237 | 2.2E-2 | 4.3E-2 | D.L. | 1.1E-1 | 1.8E-2 | 3.4E-2 |
| | | 267 | 2.0E-2 | 3.0E-2 | D.L. | D.L. | 1.2E-2 | 2.2E-2 |
| | | 297 | 7.0E-3 | 4.2E-2 | D.L. | D.L. | 1.1E-2 | 1.6E-2 |
| | | WD-4 | 4 | 319 | 3.3E-2 | 7.7E-3 | D.L. | 1.1E-1 |
| 325 | 4.0E-2 | | | 1.5E-1 | 3.8E-2 | D.L. | 1.6E-2 | 8.9E-2 |
| 331 | 1.9E-2 | | | 9.7E-2 | D.L. | D.L. | 1.5E-2 | 6.1E-2 |
| 343 | 8.6E-3 | | | 5.9E-2 | D.L. | D.L. | 9.2E-3 | 5.0E-2 |
| 355 | 1.1E-2 | | | 5.2E-2 | D.L. | D.L. | 9.5E-3 | 4.1E-2 |
| 373 | 9.0E-3 | | | 4.4E-2 | D.L. | D.L. | 7.5E-3 | 3.3E-2 |
| 403 | 1.3E-2 | | | 3.3E-2 | D.L. | D.L. | 9.5E-3 | 2.5E-2 |

Table 7 Retardation factor of ^{85}Sr

| Radionuclide | Retardation factor | |
|------------------|--------------------|--------------|
| | WD-1 | WD-4 |
| ^{85}Sr | 200 ± 20 | 100 ± 20 |

Table 8 Filtration factor and percentage of particulate ^{60}Co and ^{137}Cs species.

| Radionuclide | Filtration factor (1/cm) | Percentage of particulate species (%) | |
|-------------------|--------------------------|---------------------------------------|------|
| | | WD-1 | WD-4 |
| ^{60}Co | 0.023 | 0.7 | 1.4 |
| ^{137}Cs | 0.031 | 0.6 | 1.5 |

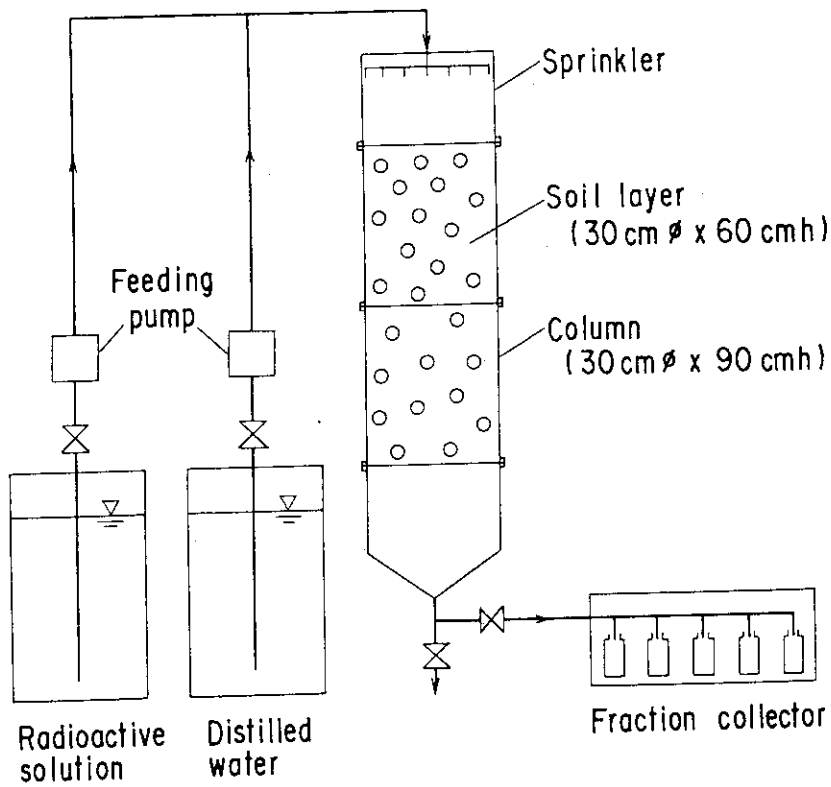


Fig.1 Schematical diagram of equipment of environmental simulation test for radionuclide migration.

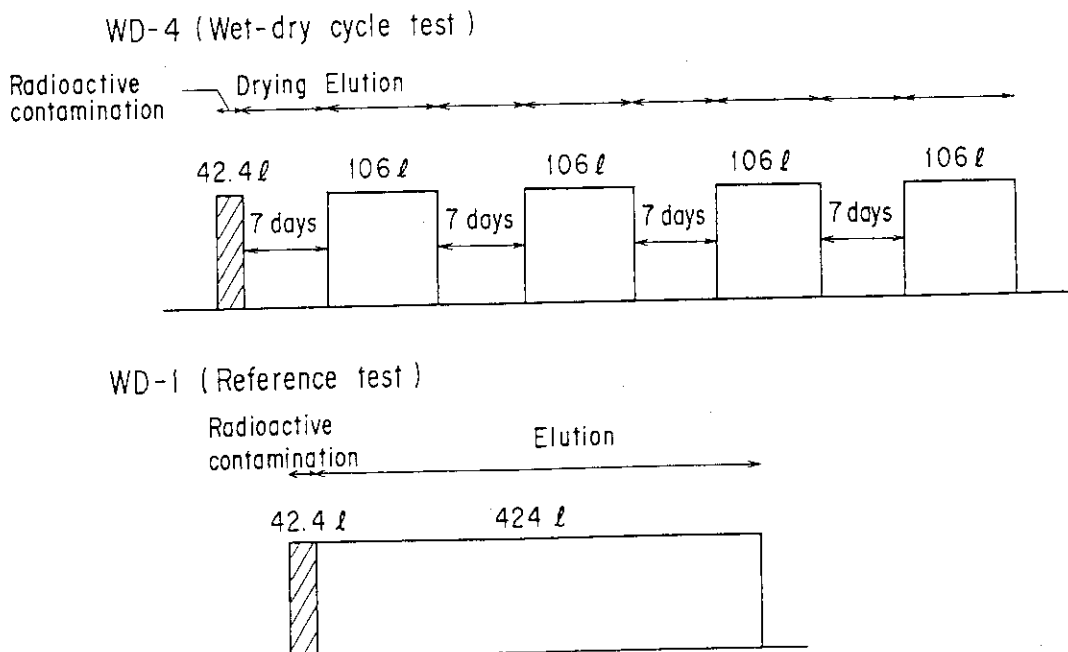


Fig.2 Test method.

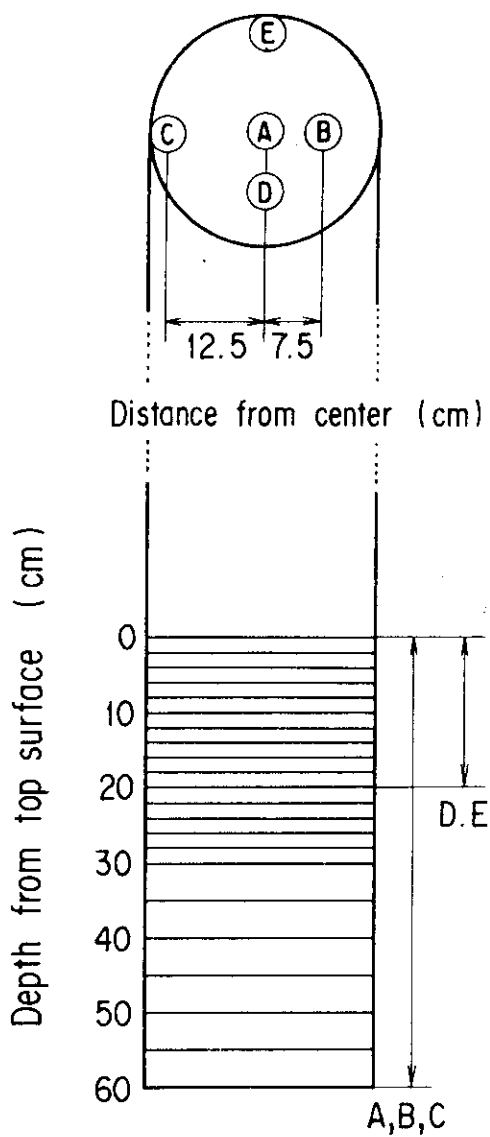
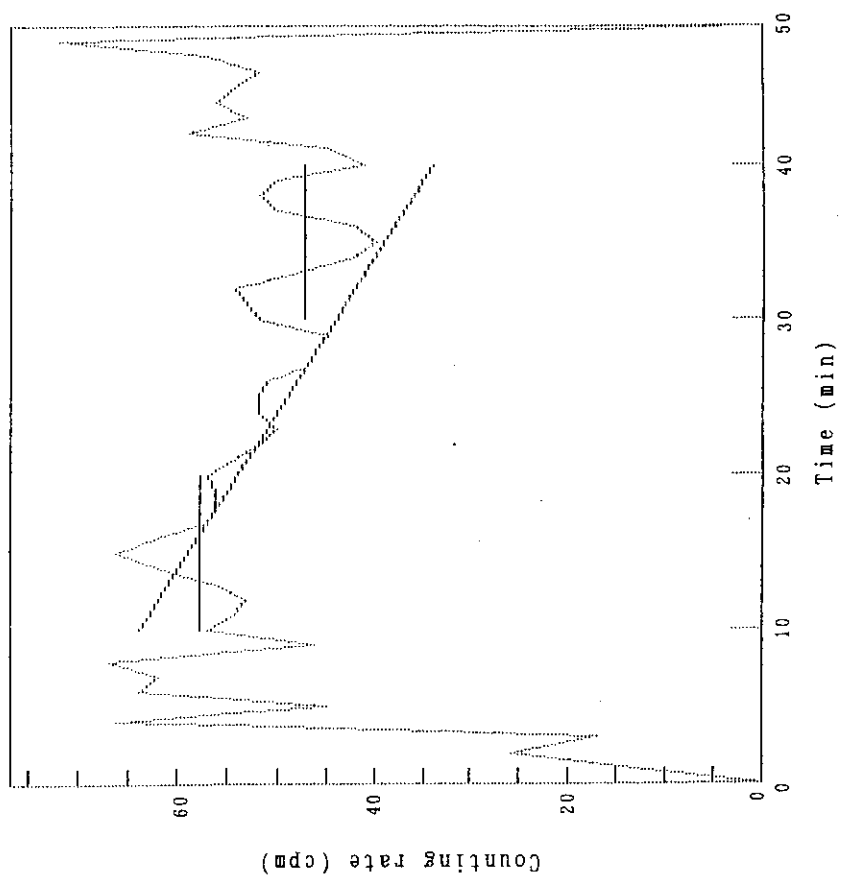
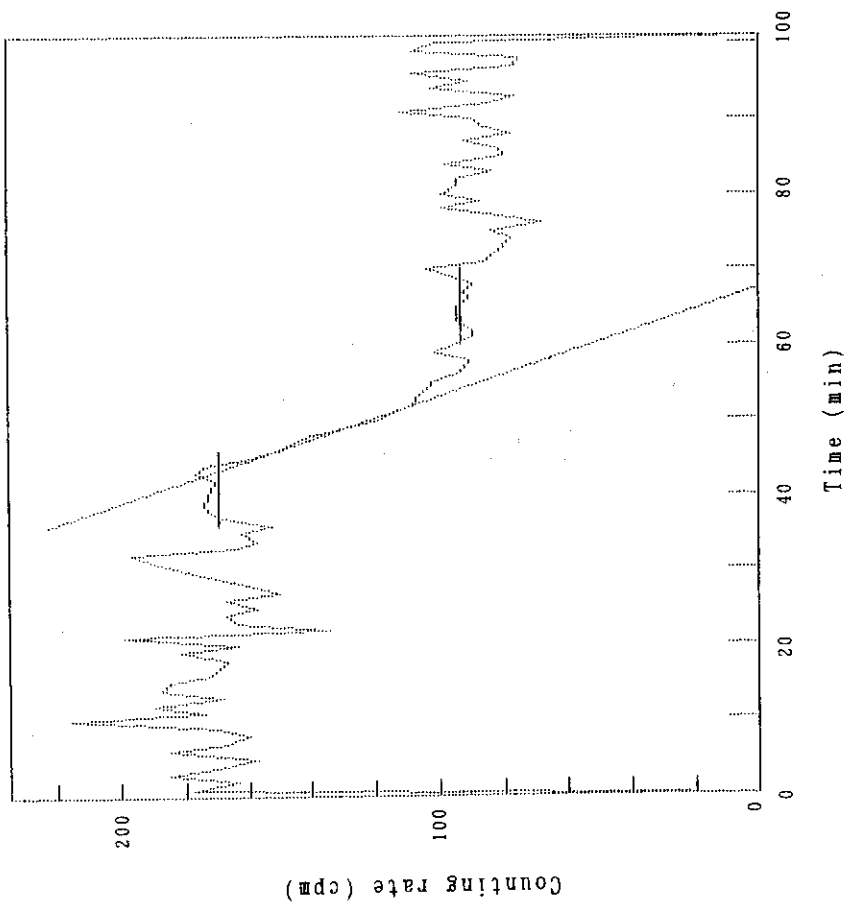


Fig.3 Sampling position and cutting method of core soil samples.



(b): 40 cm



(a): 10 cm

Fig.4 Counting rate of neutron detected with undestructive water velocity meter.

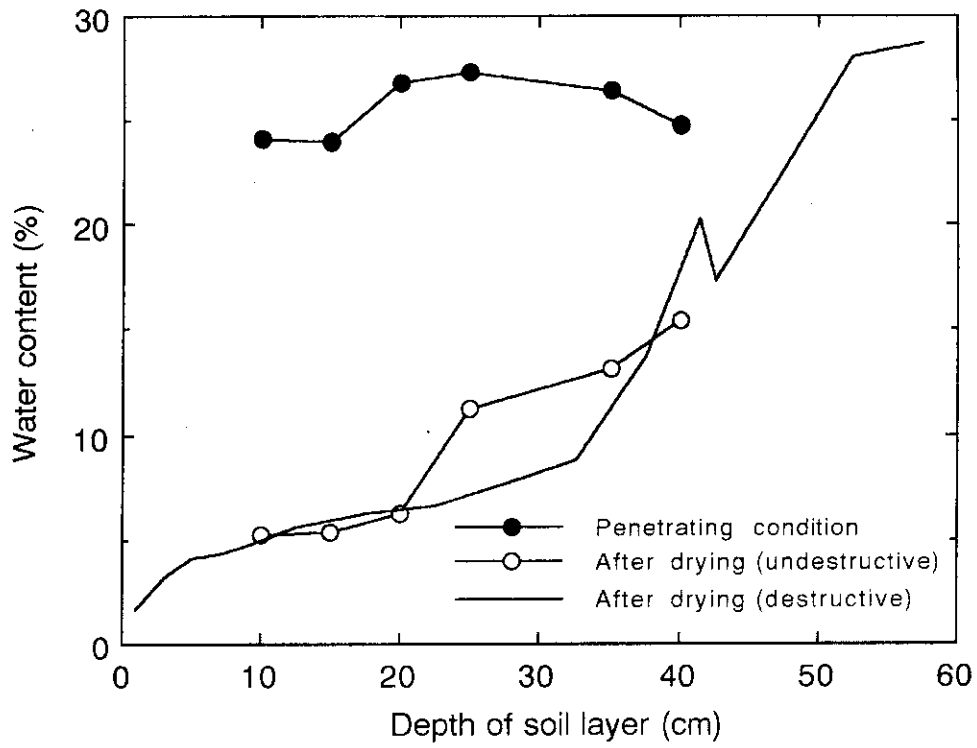


Fig.5 Water content in soil layer.

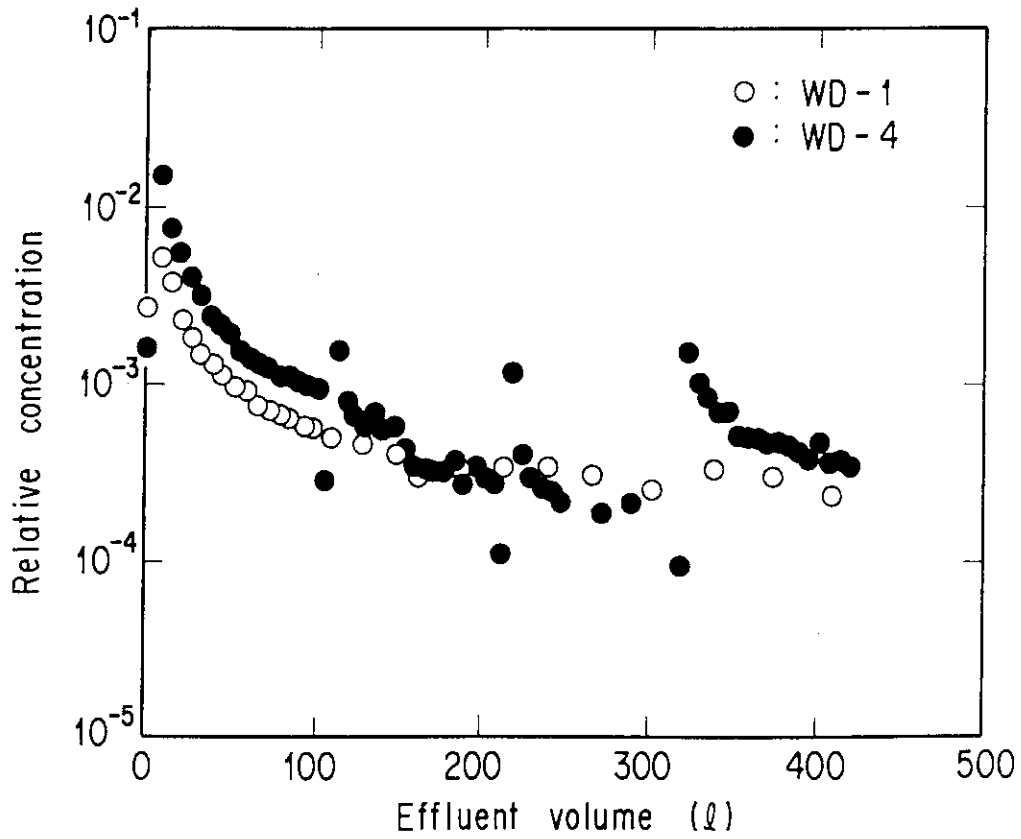


Fig.6(a) Concentration profile of ^{60}Co in effluent.

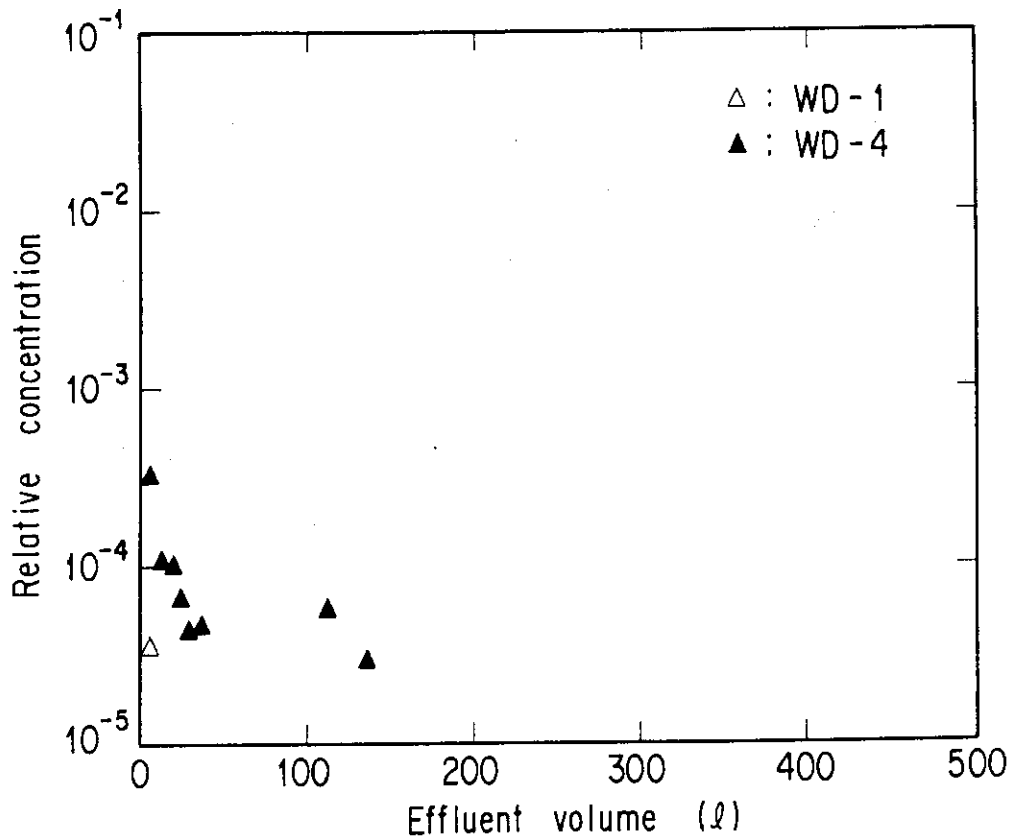


Fig.6(b) Concentration profile of ^{85}Sr in effluent.

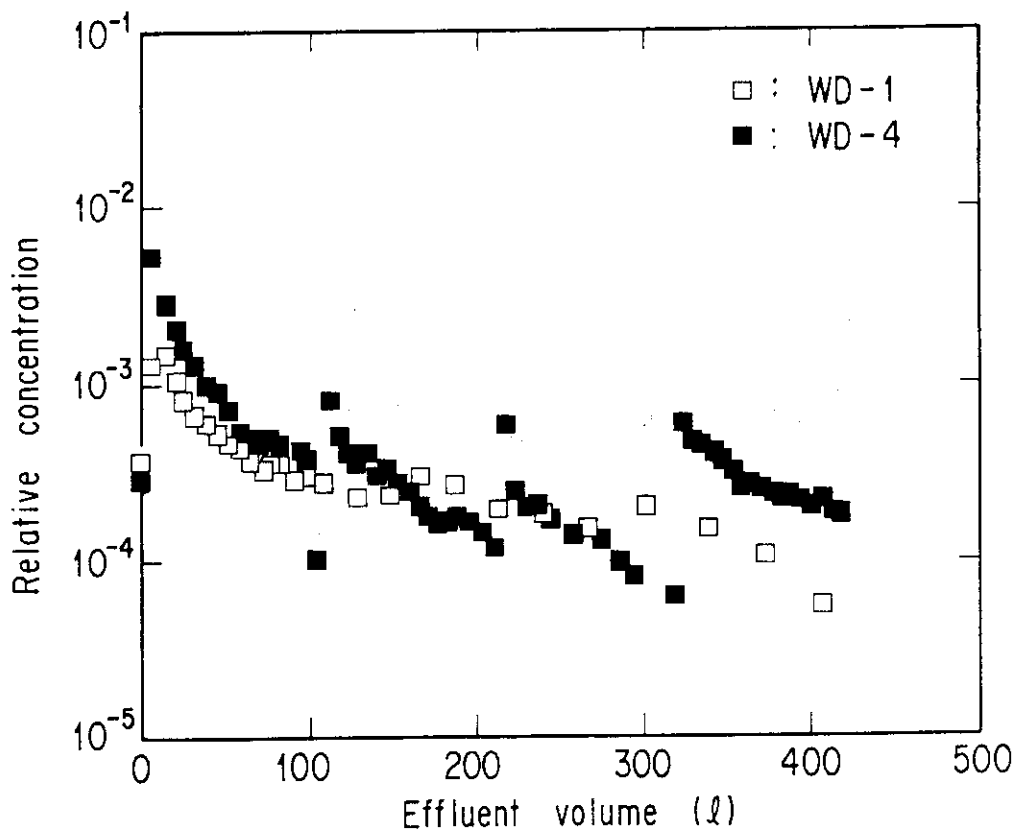


Fig.6(c) Concentration profile of ^{137}Cs in effluent.

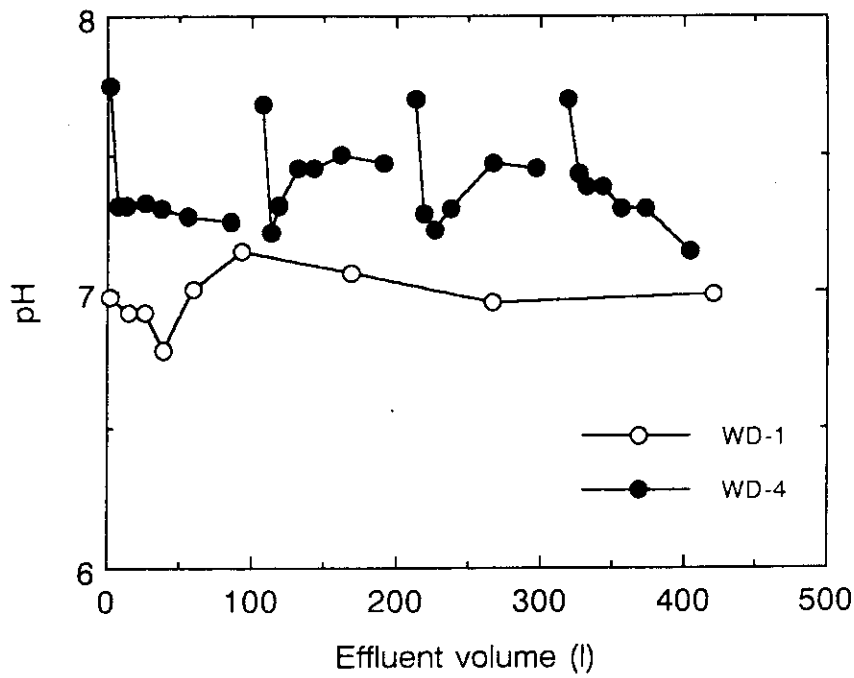


Fig.7 Variation of pH in effluent.

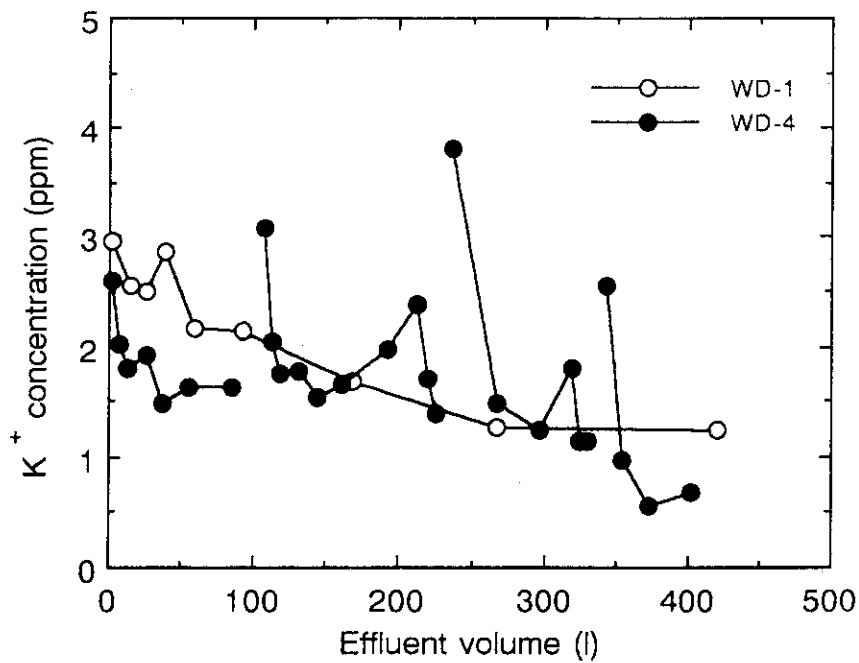


Fig.8(a) Variation of concentration of coexistent K⁺ in effluent.

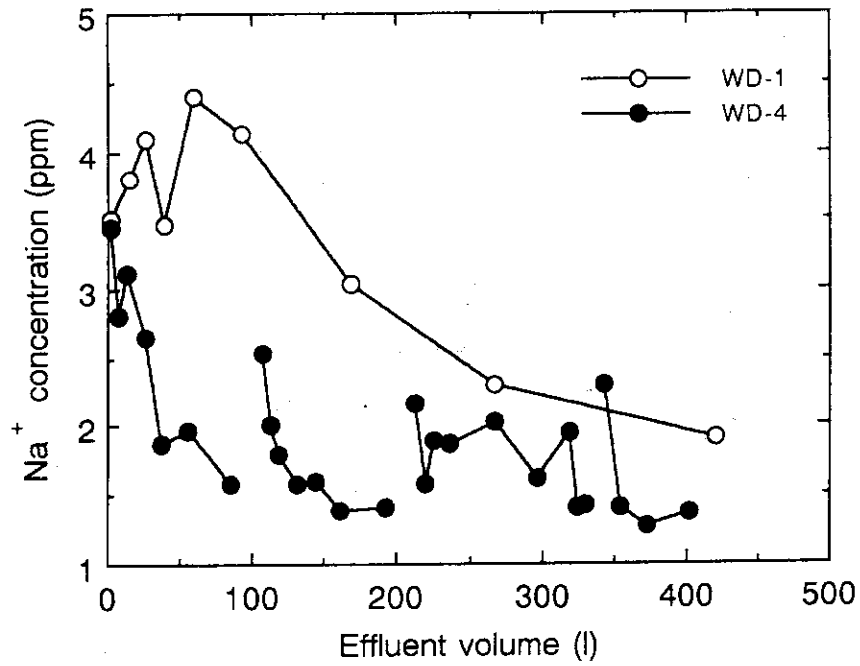


Fig.8(b) Variation of concentration of coexistent Na⁺ in effluent.

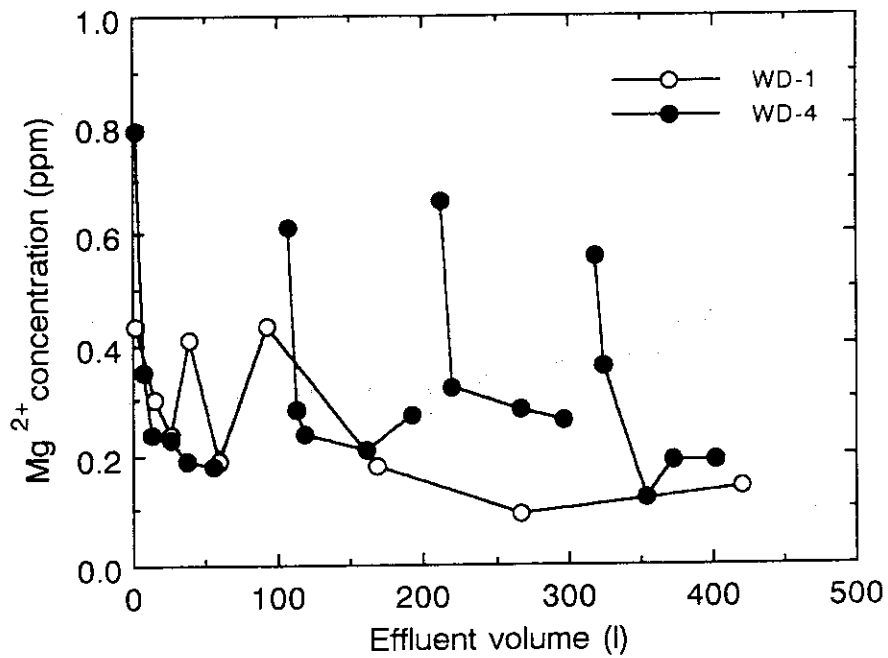


Fig.8(c) Variation of concentration of coexistent Mg²⁺ in effluent.

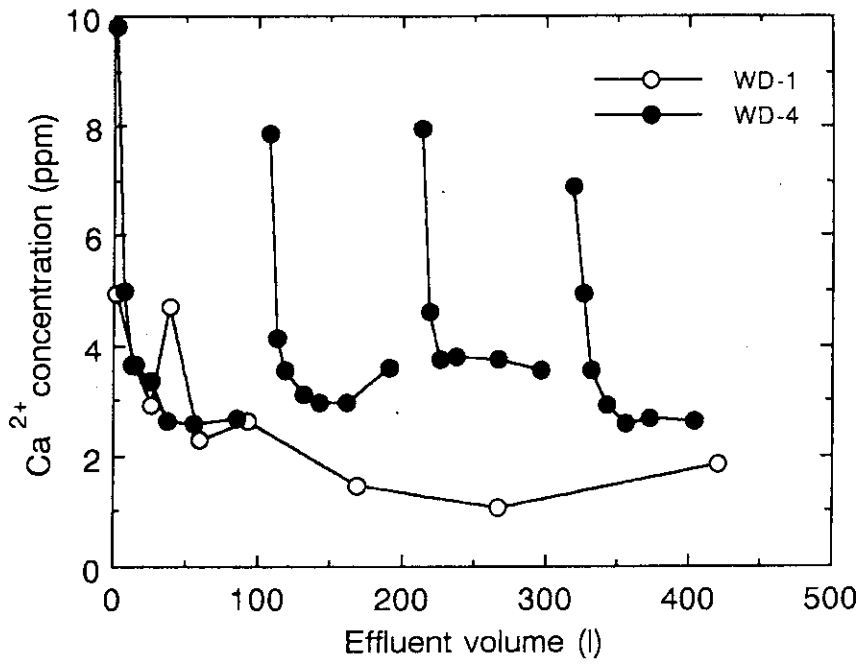


Fig.8(d) Variation of concentration of coexistent Ca²⁺ in effluent.

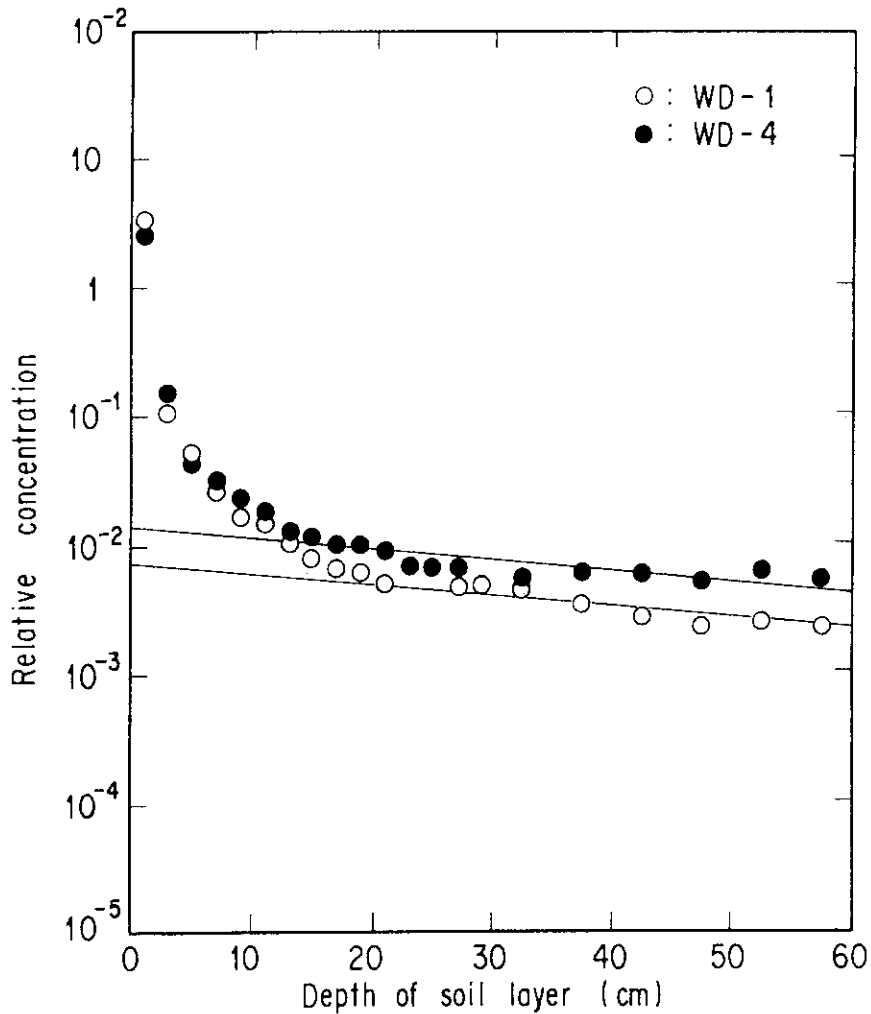


Fig.9(a) Concentration profile of ⁶⁰Co in soil layer.

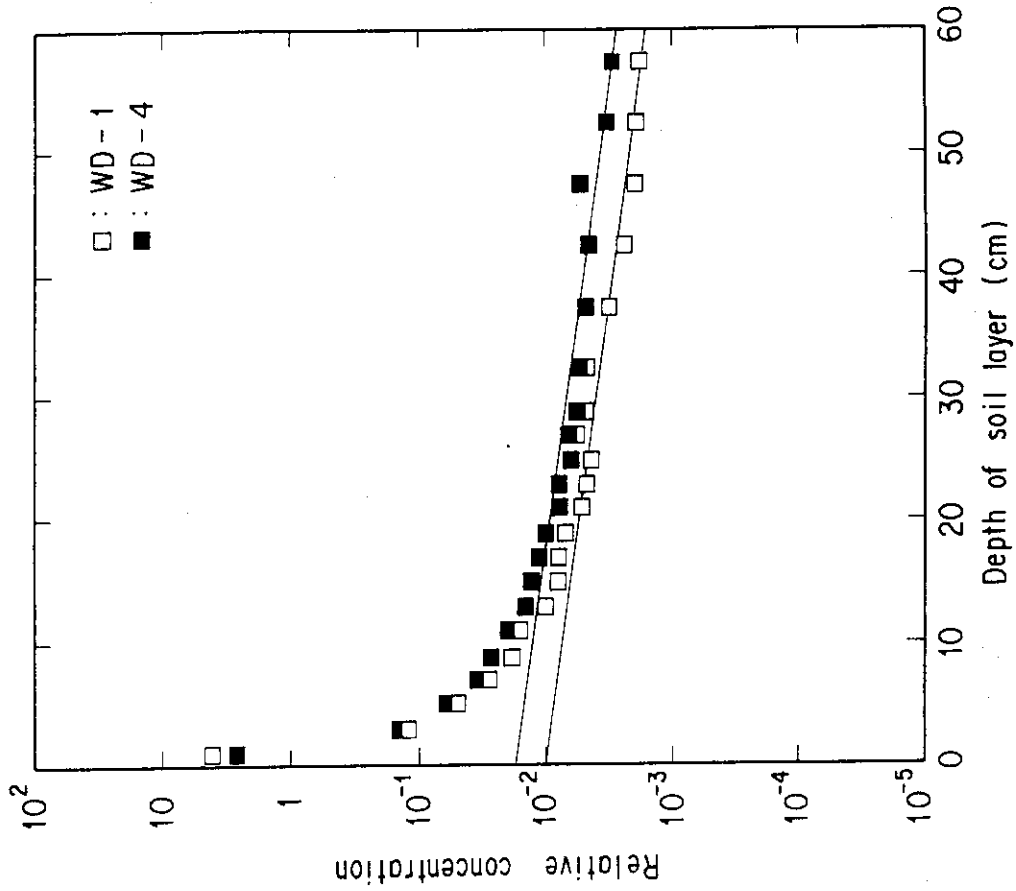


Fig.9(c) Concentration profile of ^{137}Cs in soil layer.

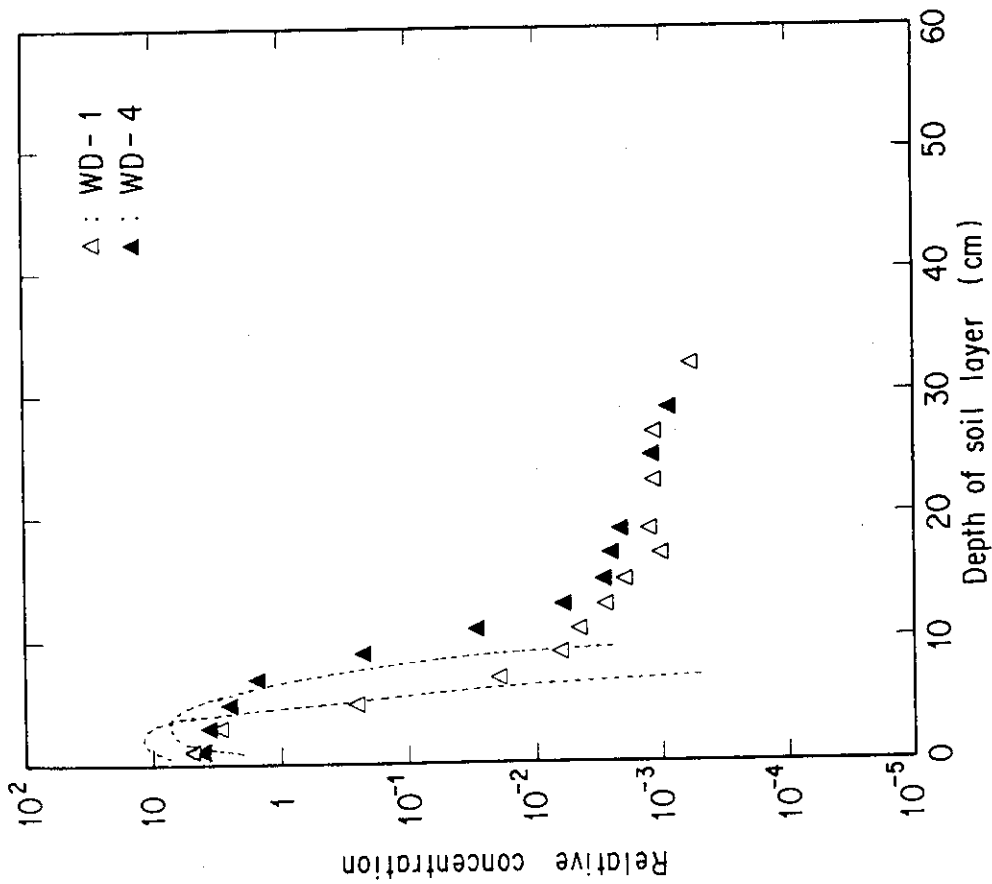


Fig.9(b) Concentration profile of ^{85}Sr in soil layer.

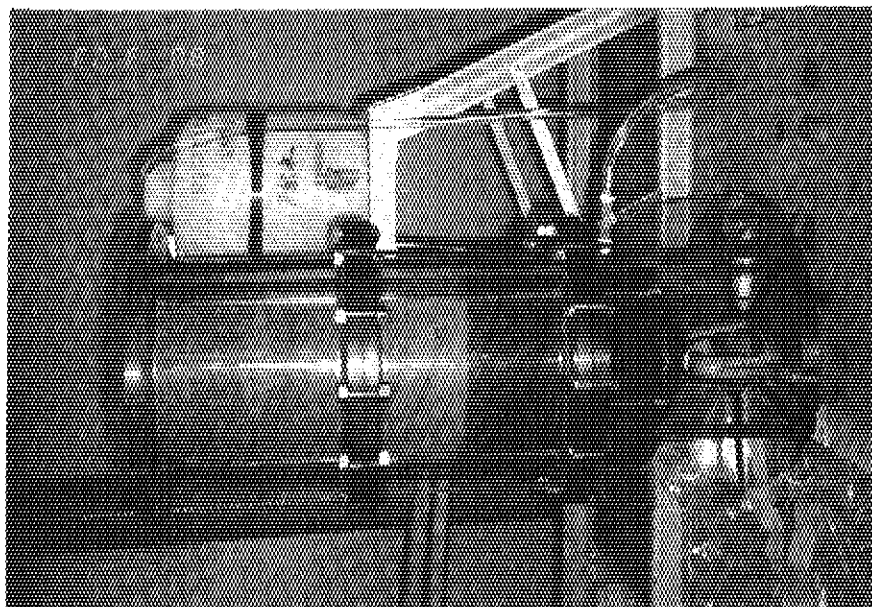


Photo.2 Preparation of soil layer.

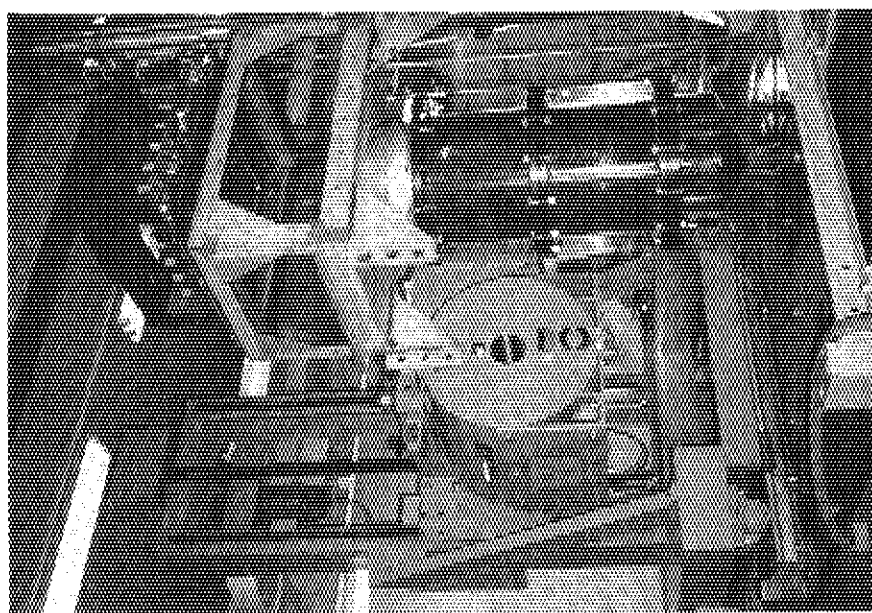


Photo.1 Equipment of environmental simulation
test for radionuclide migration.

付 録

WD-1及びWD-4の流下試験終了後、Fig.3に示すような位置からサンプリングしたコア試料を分割し、各深度ごとの試料について測定した放射性核種濃度を測定した。WD-1及びWD-4について得られた土壌層中における ^{60}Co 、 ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の濃度分布をFig.A1及びA2の(a), (b), (c)にそれぞれ示す。

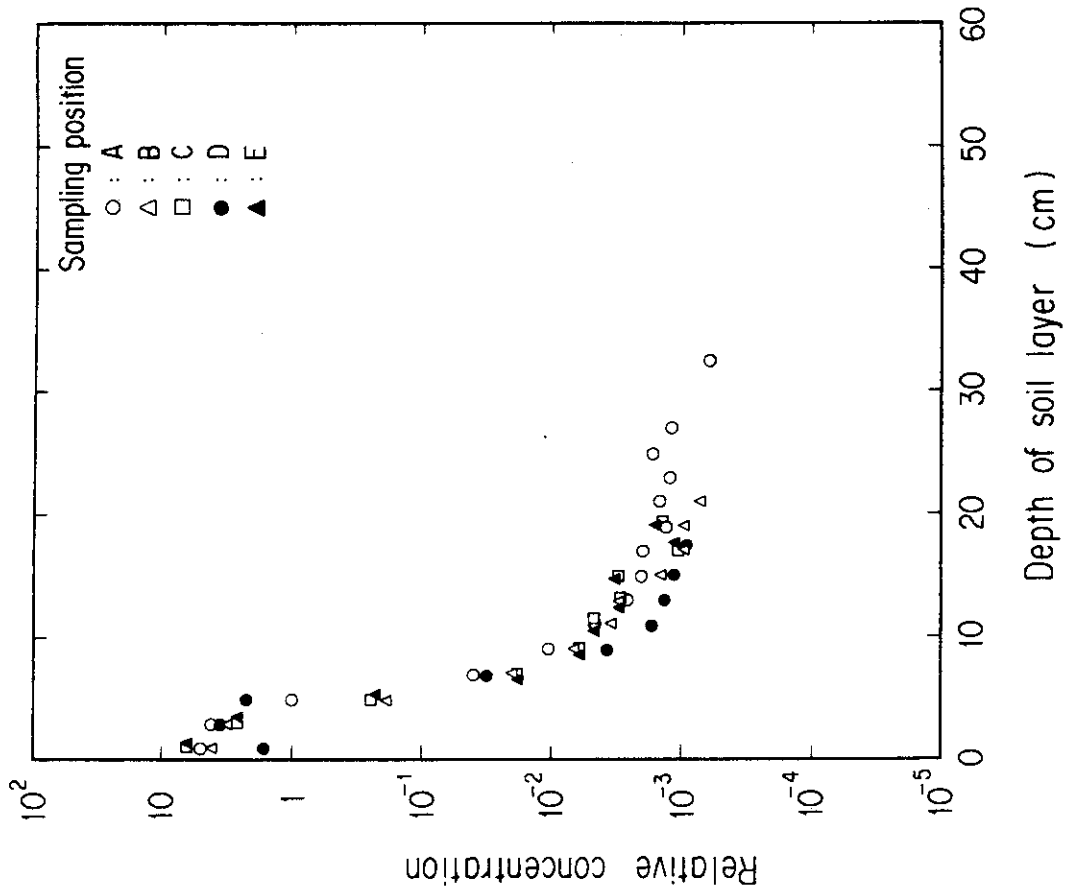


Fig.A1 (a) Concentration profile of ^{60}Co in soil layer under WD-1 condition

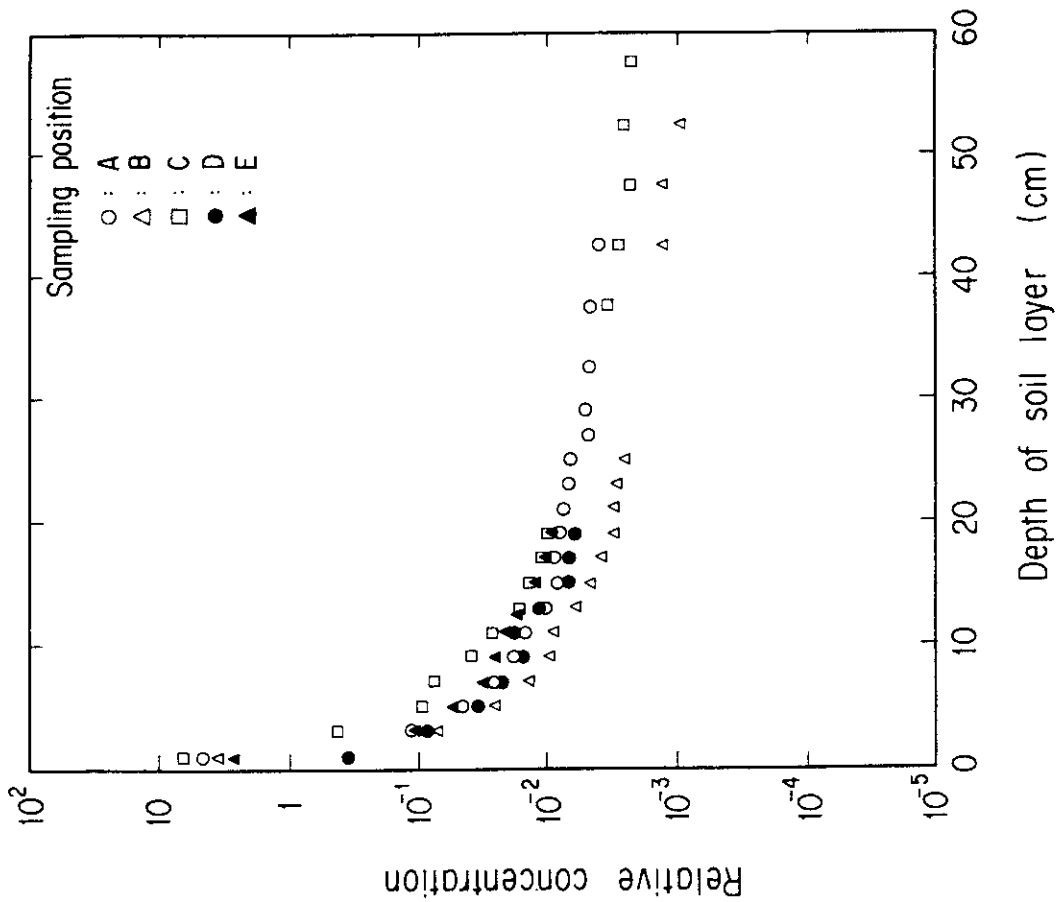


Fig.A1 (b) Concentration profile of ^{85}Sr in soil layer under WD-1 condition

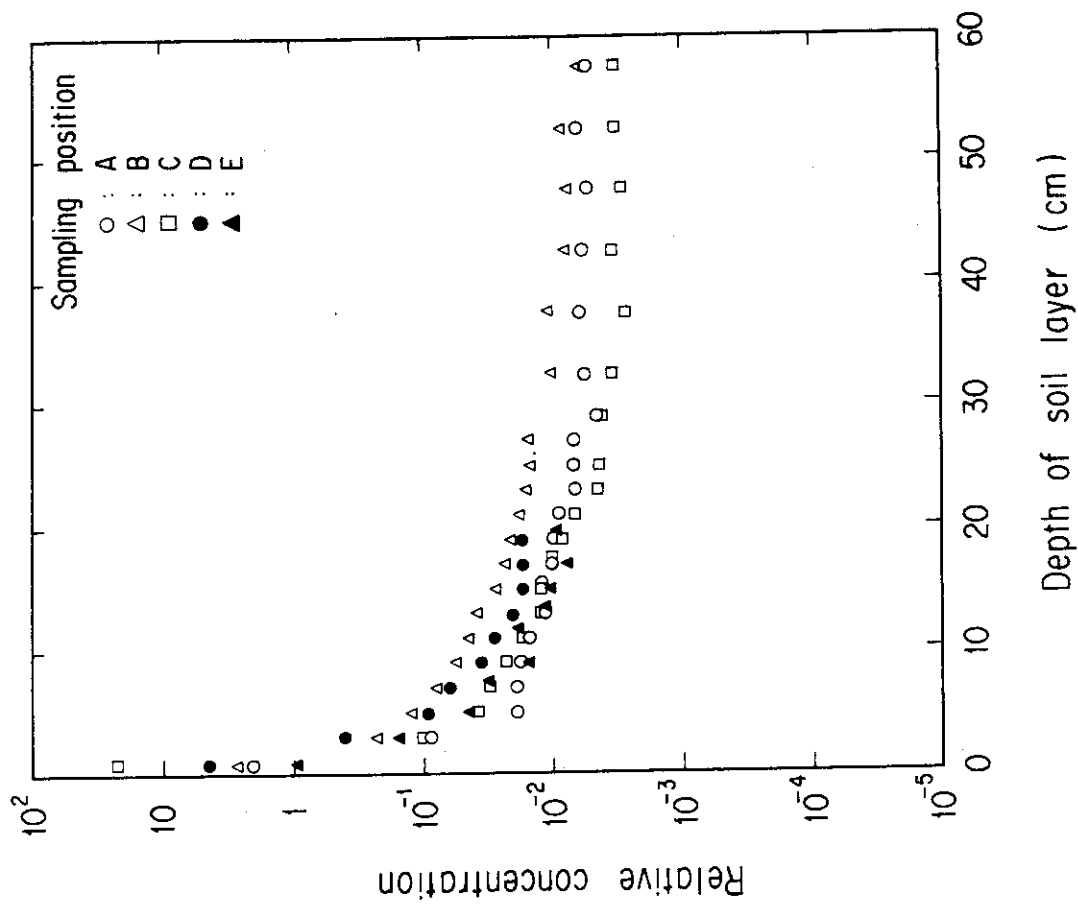


Fig.A2 (a) Concentration profile of ^{60}Co in soil layer under WD-4 condition

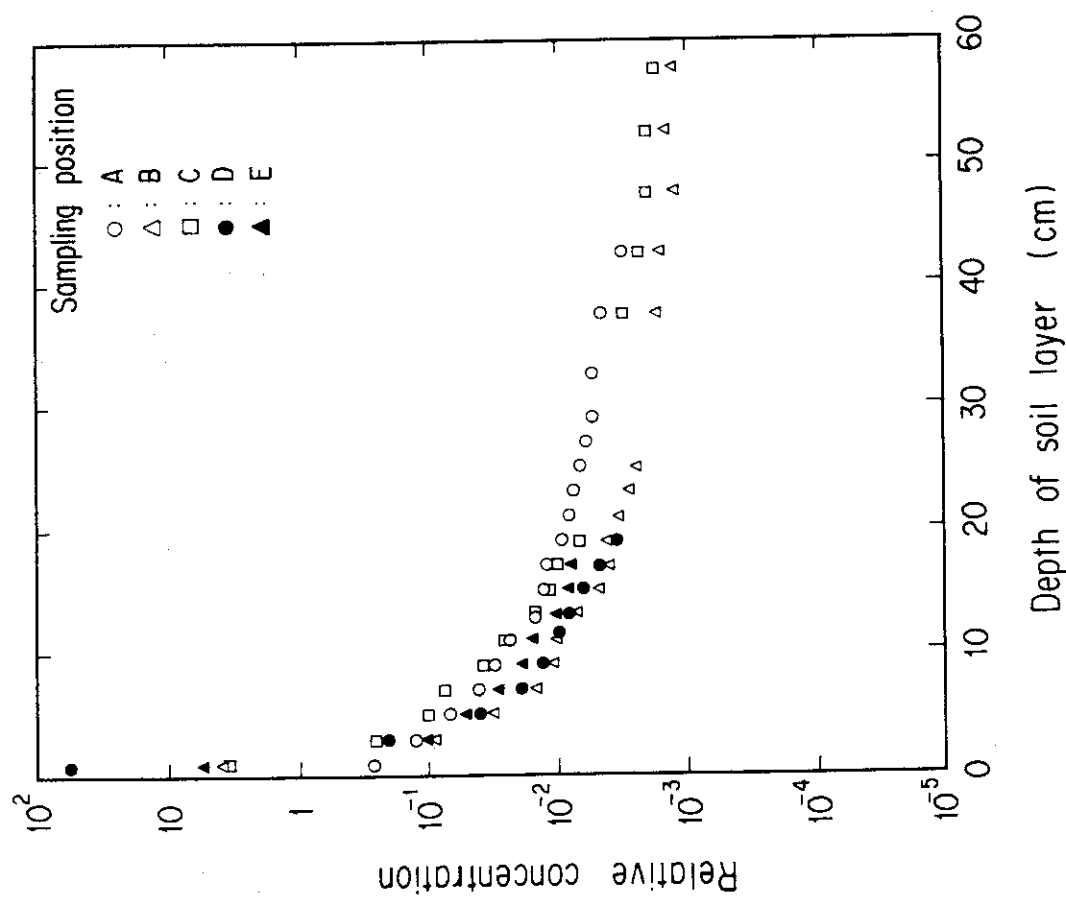


Fig.A1 (c) Concentration profile of ^{137}Cs in soil layer under WD-1 condition

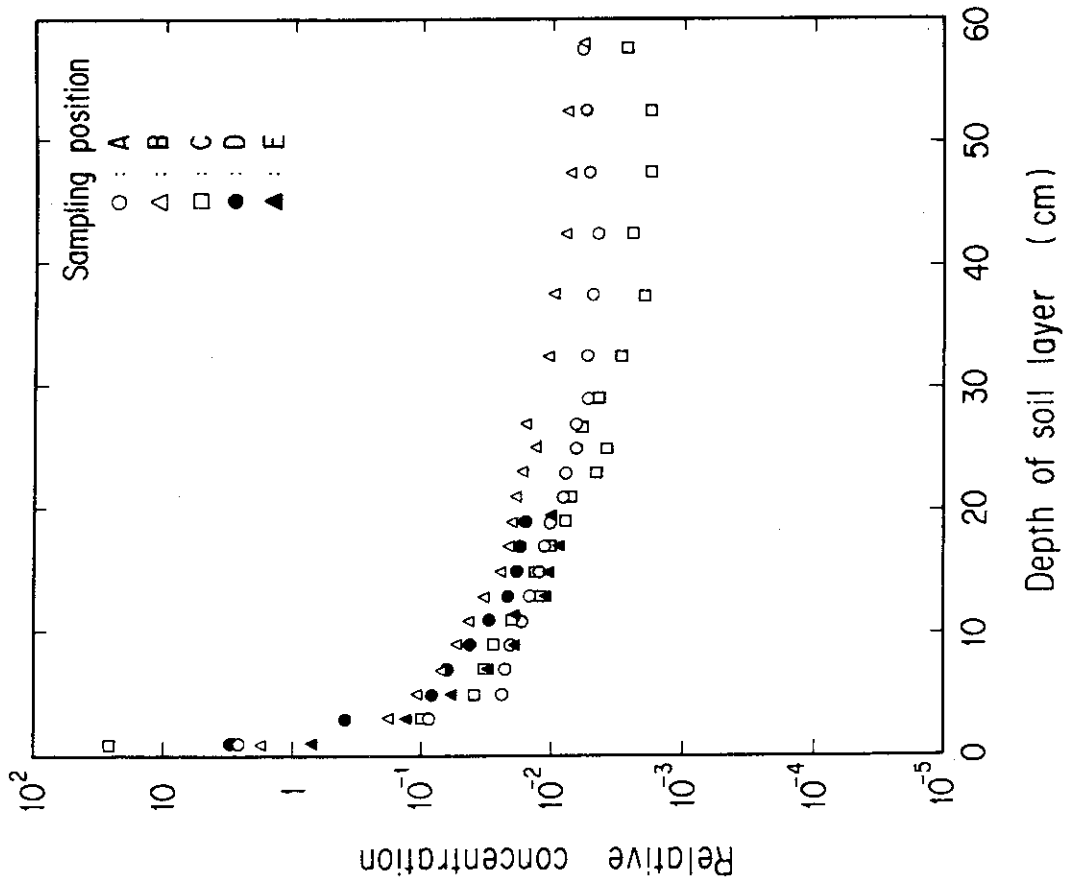


Fig.A2 (c) Concentration profile of ^{137}Cs in soil layer under WD-4 condition

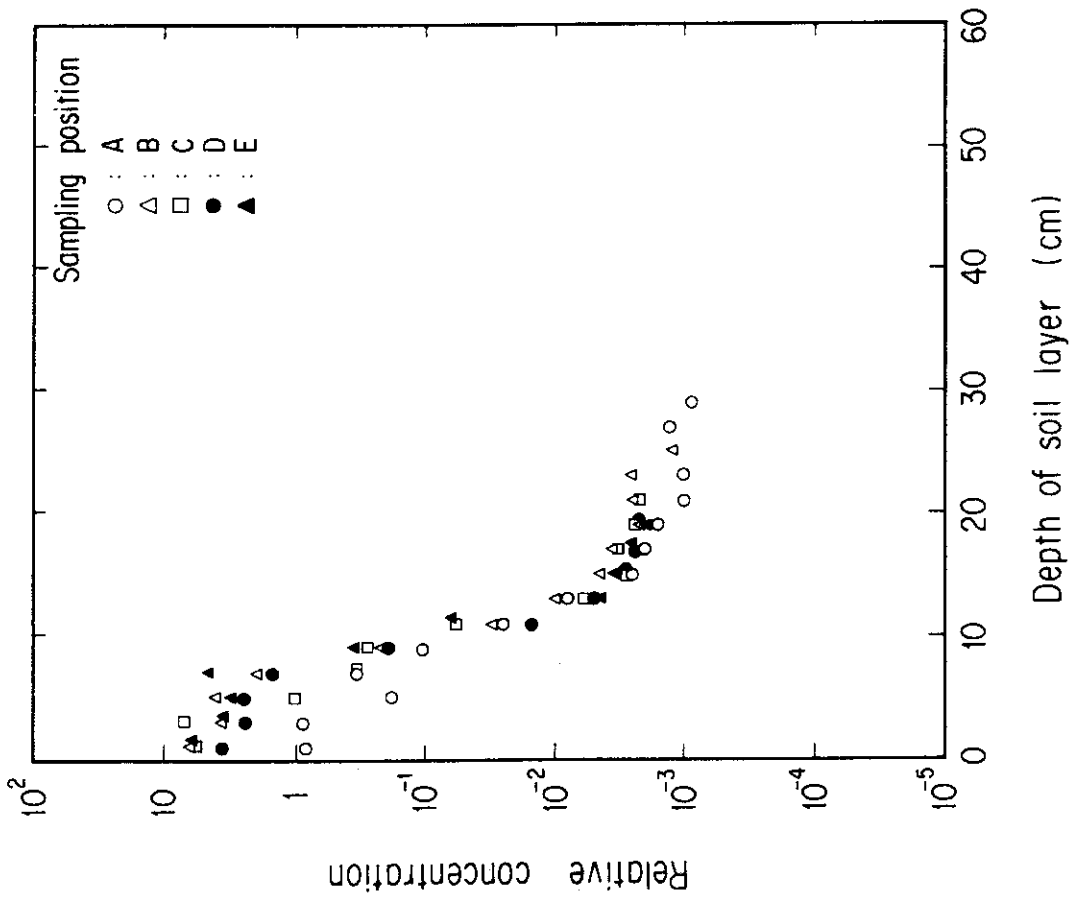


Fig.A2 (b) Concentration profile of ^{86}Sr in soil layer under WD-4 condition