JAERI-Review
95-009

分配係数の測定法及び利用法

1995年6月

内田滋夫[*1]・保田浩志[*1]
馬原保典[*2]・佐々木規行[*3]
高橋知之・木村英雄・松鶴秀夫

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）で複写による実費頒布をおこなっております。

This 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.

編集兼発行　日本原子力研究所
印　　　刷　ニッセイエブロ株式会社

JAERI-Review 95-009

分配係数の測定法及び利用法

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部
内田　滋夫[*1]・保田　浩志[*1]・馬原　保典[*2]・佐々木規行[*3]
高橋　知之・木村　英雄・松鶴　秀夫

（1995年4月27日受理）

放射性廃棄物の処分に関する安全評価において、固相と液相の間における物質の分配を示す平衡論的係数である分配係数が用いられる。この利用の例として、(1) 処分施設からの放射性核種の漏洩挙動の解析（ソースターム解析）、(2) 地層における放射性核種の移行挙動の解析、(3) 生態圏における放射性核種の動態解析などがあげられる。このように、処分システムの主要構成要素に関する解析の全てに分配係数が用いられているので、安全評価の信頼性を確保するために、適切に分配係数を測定し、かつ利用することが1つの要件となっている。

安全評価に用いるこの分配係数の測定方法と利用方法の調査研究を通して、標準的方法論を提言することを目的に、日本原子力研究所に設けられた「環境放射能研究委員会、環境放射能挙動専門部分」の安全評価用パラメータ検討WGにおいて、環境中における放射性核種の移行、安全評価における分配係数の利用、分配係数測定方法の現状と問題点、分配係数の測定例等の検討を行っている。

本報告書は、平成6年度の調査研究の成果を環境放射能研究委員会及び環境放射能挙動専門部会において審議した後、「分配係数の測定法及び利用法」として取りまとめたものである。

東海研究所：〒319-11　茨城県那珂郡東海村白方白根2－4
＊1　放射線医学総合研究所
＊2　電力中央研究所
＊3　日本原燃株式会社

JAERI-Review 95-009

Methodologies for Measurement and Application of Distribution Coefficient

Shigeo UCHIDA*1, Hiroshi YASUDA*1, Yasunori MAHARA*2
Noriyuki SASAKI*3, Tomoyuki TAKAHASHI, Hideo KIMURA
and Hideo MATSUZURU

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

(Received April 27, 1995)

The distribution coefficient, as an equilibrium parameter, which defines partitioning of a solute between a solid and liquid phase, is commonly used in safety assessment of nuclear waste disposal ; e.q.,in(1) analysis of the release behavior of radionuclides from a repository(a source term analysis),(2)analysis of the migration behavior of radionuclides in the geosphere, and(3)analysis of the transport behavior of radionuclides in the biosphere. Since the distribution coefficient is utilized in analyses of essential components involved in a nuclear waste disposal system as mentioned above, one of important requirements is appropriate measurement and application of the distribution coefficient, particularly to ensure a credibility of safety assessment.

Aiming at the recommendation of a standard methodology through studies on the methodologies for measurement and application of the distribution coefficient, the following issues are being discussed by "WG on Parameters

---

*1 National Institute of Radiological Sciences
*2 Central Research Institute of Electric Power Industry
*3 Japan Nuclear Fuel Co.,Inc.

for Safety Assessment" of "Technical Committee on Behavior of Environmental Radioactivity" which belongs to "Research Committee on Environmental Radioactivity" organized by Japan Atomic Energy Research Institute;

-Transport of radionuclides in environment

-Theoretical aspects of the distribution coefficient

-Application of the coefficient in safety assessment

-State-of-the-art of methodologies to measure the coefficient

-Review of the coefficient

The report entitled "Methodologies for Measurement and Application of the Distribution Coefficient" summarizes the achievements of the WG in 1994, which were subject to a technical review by both the Research Committee on Environmental Radioactivity and the Technical Committee on Behavior of Environmental Radioactivity.

Keywords : Distribution Coefficient, Radioactive Waste Disposal, Safety Assessment, Parameter, Nuclide Migration Model

目　　　次

Contents

1. 序論

原子力施設（原子炉、再処理施設、放射性廃棄物処分施設など）に関する環境安全評価では、直接的方法または間接的方法が採用される。直接的方法では、人間が接触及び吸入する環境媒体（または人工的な物質)、並びに摂取する食物（飲料水を含む）中の放射性核種濃度または線量率を実際に測定し、それらの値に基づいて被曝線量を算出する。この方法は、既に稼働中の原子力施設に適用される。一方、設置しようとする原子力施設の安全評価では、その施設の稼働に起因する被曝線量を事前に評価するため、当然のことながら、間接的方法が採用される。この手法では、図 1.1 に示すように、

(a) 原子力施設からの放射性核種の放出源情報
（ソースターム：放出フラックスと時間モード）
(b) 環境媒体（大気、地層、海洋など）における放射性核種の移行挙動
(c) 生態圏における放射性核種の動態

をモデルとモデルパラメータを用いて解析し、最終的には線量評価モデルまたは健康影響モデルを用いて人間に対する被曝線量またはリスクを推定する。

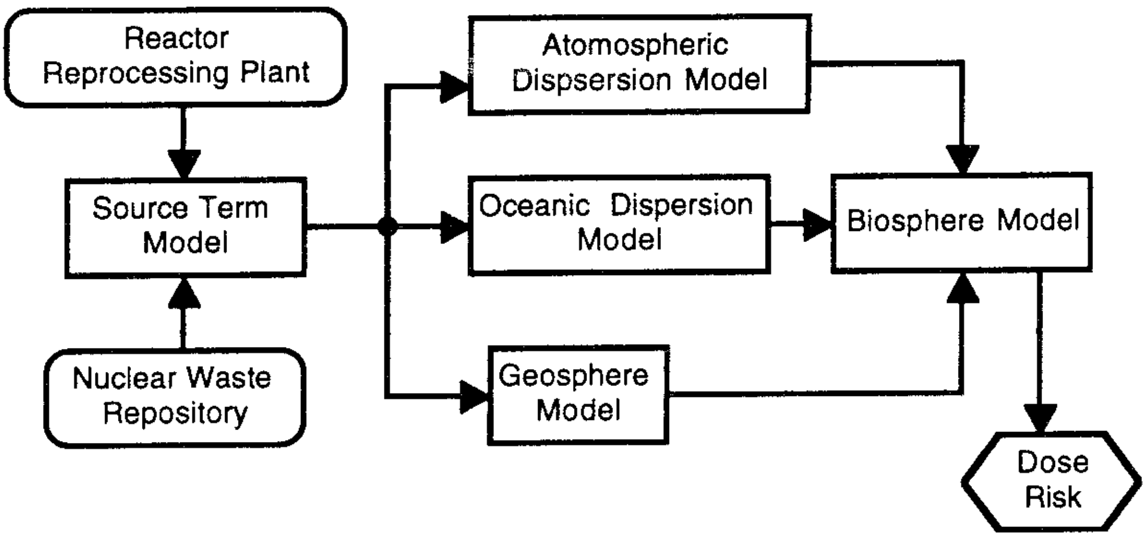


図 1.1　原子力施設の環境影響評価手法の基本的骨格

このような解析的手法（間接的方法）の場合、評価結果の信頼性は解析に用いるモデル及びモデルパラメータの妥当性に依存するので、モデルが評価対象系を適切に記述できることを検証するとともに、モデルパラメータを適切に設定する必要がある。モデルパラメータの設定には、

・パラメータ値を測定し、最良推定値（単数または複数）を選択する
・一般的データベースを用いる

の 2 つの方法がある。例えば、線量係数、移行係数（土壌 - 植物の可食部、飼料 - 畜産物など)、濃縮係数（水 - 水産物など）などでは一般的データベース（国際的機関が提案または勧告したもの）が用いられる場合が多い。しかし、安全評価の結果はサイトに特有

な環境条件に依存する場合があるので、評価対象系が明確に定義されている場合は、解析に含まれる環境系を記述するための多くのパラメータが特定のサイトにおいて実測される。

安全評価におけるパラメータの用い方は、モデルによって異なる場合がある。複雑な問題を提起する典型的な例が地層における放射性核種の移行挙動を解析する地層モデルである。地層は、地質学的に定義される単層がいくつか累重した層序構造を有している。各単層は、巨視的観点では均質な地質学的特性を有すると見なせるが、微視的には不均質な物理的・化学的特性を有している。単純な例として、単層内における放射性核種の移行を解析する場合、地下水の流れる方向について１次元的に解析する方法と、単層の有限範囲を多次元空間（例えば３次元空間）と定義して解析する方法とがある。１次元的解析では、原理的には地下水流方向についての不均質性は取り扱えるが、不均質性は３次元的であるため、本質的な不均質性は考慮できない。この種の解析では、多くの場合、単層の不均質性を考慮して、単層の全体としての特性を表現できる単一のパラメータ値が利用される。一方、３次元的解析では、境界条件で定義される有限空間を有限要素に分割し、各要素に固有な特性を付与することにより３次元空間の不均質性を取り扱うことが原理的には可能である。しかし、地質調査における種々の制約から、評価の対象となる３次元空間及び分割した有限要素の規模にもよるが、各要素毎に特性を付与するための実測データを取得することは実際上は極めて困難である。このような事情から、処分システムのような複合系の安全評価では、解析の実施可能性をも考慮して、多くの場合１次元的解析が採用されている。したがって、**ここでの課題は、測定データの分布を考慮して、評価対象の特性を全体として表現できるパラメータ値を選択することである。**

パラメータ値の分布から、適切な根拠を以て単一の値を選択できない場合、確率論的手法が用いられる。この手法では、パラメータ値の頻度分布を解析に用いるので、解析結果は求めるべき値の頻度分布または補足累積分布関数として得られる。この解析結果に基づいて、例えば、期待値、90パーセンタイル値などを与えるパラメータ値を参考にして、最良推定値を決定することもできる。この手法の利点は、

○パラメータ値の分布による不確かさを客観的に取り扱える

○他のパラメータの分布を同時に解析することにより各パラメータの相対的重要性を把握できる

ことにある。

パラメータ値の不確かさを支配する要因として、前述の空間的不均質性以外に、測定に係る因子が挙げられる。パラメータが、その利用の目的に照らして適切に測定されなければ、すなわちパラメータの利用者の意図と測定者の行為に不調和があれば、似て非なる値を求めたことになる。このような要因による**不確かさを低減するためには、モデルパラメータの性質を考慮して、モデルの意図を反映できる適切な測定方法を選択することが肝要である。**

安全評価に用いることを目的に実測されるパラメータは多くあるが、本研究では第４章に詳述するように、安全評価手法を構成する多くのモデルで用いられている分配係数を取り上げた。原子力施設に関する安全評価、とりわけ、放射性廃棄物処分施設に関す

る安全評価において、固相と液相の間における物質の分配を示す平衡論的パラメータである分配係数が用いられている。この利用の例として、

(1) 処分施設からの放射性核種の漏洩挙動の解析（ソースターム解析）

(2) 地層における放射性核種の移行挙動の解析

(3) 生態圏における放射性核種の動態の解析

などがあげられる。このように、処分システムの主要構成要素に関する解析の全てに分配係数が用いられているので、安全評価の信頼性を確保するために、適切に分配係数を測定し、かつ利用することが１つの要件となっている。

日本原子力研究所に設けられた「環境放射能研究委員会、環境放射能挙動専門部会」の安全評価用パラメータ検討ＷＧでは、主として放射性廃棄物処分施設に関する安全評価に用いる分配係数測定方法と利用方法の調査研究を通して標準的方法論を提言することを目的に、環境中における放射性核種の移行、安全評価における分配係数の利用、分配係数測定方法の現状と問題点、分配係数の測定例等の検討を始めた。本報告書は、平成６年度の調査研究の成果を環境放射能研究委員会及び環境放射能挙動専門部会において審議した後、「分配係数の測定法及び利用法」として取りまとめたものである。

なお、本報告は多数の執筆者によって作成されたため、いくつかのパラメータについては、各章毎に異なる記号が用いられる結果となった。そのため、式毎に各記号の意味を付した。

2．環境中での放射性核種の挙動と分配係数

環境に放出された放射性核種は、その物理・化学的特性と放出された先の環境媒体の物理・化学的条件に従って気圏・水圏・地圏を通じての大きな物質環境の環の中に取り込まれる（図2.1参照）。すべての元素は、地球規模での物質循環に従って環境中を動いていると考えられるが、放射性核種の場合、循環の途中で放射性崩壊によって他の核種に変換することにより、他元素の物質環境サイクルに乗り換えが生じることが安定元素の場合とは異なる。また、放射性核種の化学的量はきわめて小さく、そのために安定同位体とは異なった挙動をとったり、大量にある他元素の挙動に影響されることが予想される。このような例としては、海洋や地下水中で水酸化鉄（$Fe(OH)_3$）が沈殿する際に放射性核種を一緒に取り込んで沈殿することがある。これを共沈現象と呼んでいる。この現象は、環境中にある微量な放射性核種を集めて分析する際に実験室でも活用されている。また、これとは別に海洋や湖沼等で底質が堆積する際に微細な粘土粒子のような懸濁粒子表面に放射性核種が吸着され、粒子が成長して沈降する際に堆積層中に蓄積される。この現象は、一般に放射性核種のスキャベンジングと呼ばれている。スキャベンジングを含めた水圏環境内での核種の循環機構を図2.2に示す。このスキャベンジングによって放射性核種が水中より除去される性質を活用して、底質の堆積速度が天然放射性核種のフォールアウトである^{210}Pbの堆積層内での濃度減衰より測定されたり、河川流域の底質内におけるフォールアウト起源の^{137}Cs濃度分布の測定が農耕地の土壌浸食調査に活用されたりしている。それでは何故このように^{210}Pbや^{137}Csを用いて、このような調査が可能となるのであろうか？それはこれら放射性核種が土粒子に強く吸着される性質をもっているためである。

放射性核種の環境中での挙動の例示的な説明からも明らかなように、放射性核種の環境内での輸送（移動）を支配する大きな二つの要因が存在する。それらは、

・環境媒体の移動（空気や水の動き）

・吸着や沈殿（沈降）による移動の遅れあるいは、系外への除去

である。

ここで、環境中での核種の挙動（移動）を環境に放出された放射能による公衆への影響（図2.3参照）という観点から眺めると、核種の挙動を何らかの方法で定量化していく必要がある。その１つの例として地圏環境内での核種の移動の定量化について以下に述べることとする。地圏環境内では、放射性核種は一般に土壌水を含めた地下水の移動によって運ばれる。核種は、地下水によって運ばれる間に、核種自体の化学的な状態と核種を取りまく地下水ならびに土壌の化学的な状態によって土壌・岩盤の表面に吸着されたり、地下水中で沈殿、コロイド形成、地下水中の微細粒子等への吸着・凝集と沈殿等によって地下水中から除去される。したがって、核種は必ずしも地下水と同じ速さで地下水中を移動するとは限らない。つまり遅延効果が生じる。

地圏環境内での核種の移行のモデル化は、イオン交換反応やクロマトグラフィーによる物質移動理論を基本に展開されてきた経緯があり、核種の遅延効果をモデル化するために化学工学の分野で用いられる分配係数という概念が導入された。つまり、土壌は一般に種々の粘土鉱物を含んでおり、これら粘土鉱物は陽イオンに対し比較的大きな交換

容量（例えば、モンモリロナイト；80～150meq/100g、カオリナイト；8～15meq/100g、ハロイサイト；40～50meq/100g）を持っている。そのために、水に溶けて陽イオンとなるSr^{2+}、Cs^{+}等の核種をイオン交換反応により吸着する。

一方、土壌は一般に、陰イオンに対してはその交換容量は小さく、I^{-}やTcO_4^{-}のような化学形をとる核種に対しては吸着は小さい。いずれにせよ、核種の地中移行現象をモデル化する際には、土壌と地下水の間で核種の分配が生じ、土壌への広い意味での吸着を分配係数を用いて次式のように表すのが現状では一般的となっている。

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(C+\frac{1-f}{f}\rho q\right)=\nabla(D\nabla C)-\nabla(VC)-\lambda C \tag{2.1}$$

C　：核種の地下水中濃度 (Bq/m^3)
q　：核種の土壌中濃度 (Bq/kg)
f　：土壌空隙率 (-)
ρ　：土壌真密度 (kg/m^3)
D　：核種の地下水中での拡散係数 (m^2/s)
V　：地下水の実流速 (m/s)
λ　：核種の崩壊定数 (1/s)

式(2.1)の中で土壌中の核種濃度は、核種が地下水中から土壌に吸着により移動した量として、一般に分配係数（Kd：m^3/kg）を用いて、

$$q = KdC \tag{2.2}$$

と表すことが多い。これは、遅延効果を吸着現象と見なしてその吸着量を見積もるために、Langmuir型やFreundlich型等温吸着式の最も簡単な場合を表すHenry型の吸着評価式を用いて吸着量を表現していることになる。放射性核種の吸着量が、最も単純なHenry型で表される理由としては、一般に放射性核種の化学濃度は非常に低く、希薄濃度領域では通常、分配係数は濃度依存性のない定数として扱えるからである（第３章参照）。

また、地下水の流れは、Darcy則が成立する層流領域では一般に遅いのに対し、粘土鉱物でのイオン交換反応は非常に速く、短時間（１時間以内）のうちに吸着平衡に達するため、反応速度論的な扱いを行わなくともよく簡便に扱えるという利点が、分配係数による吸着量（土壌中核種濃度）の評価がなされる所以である。

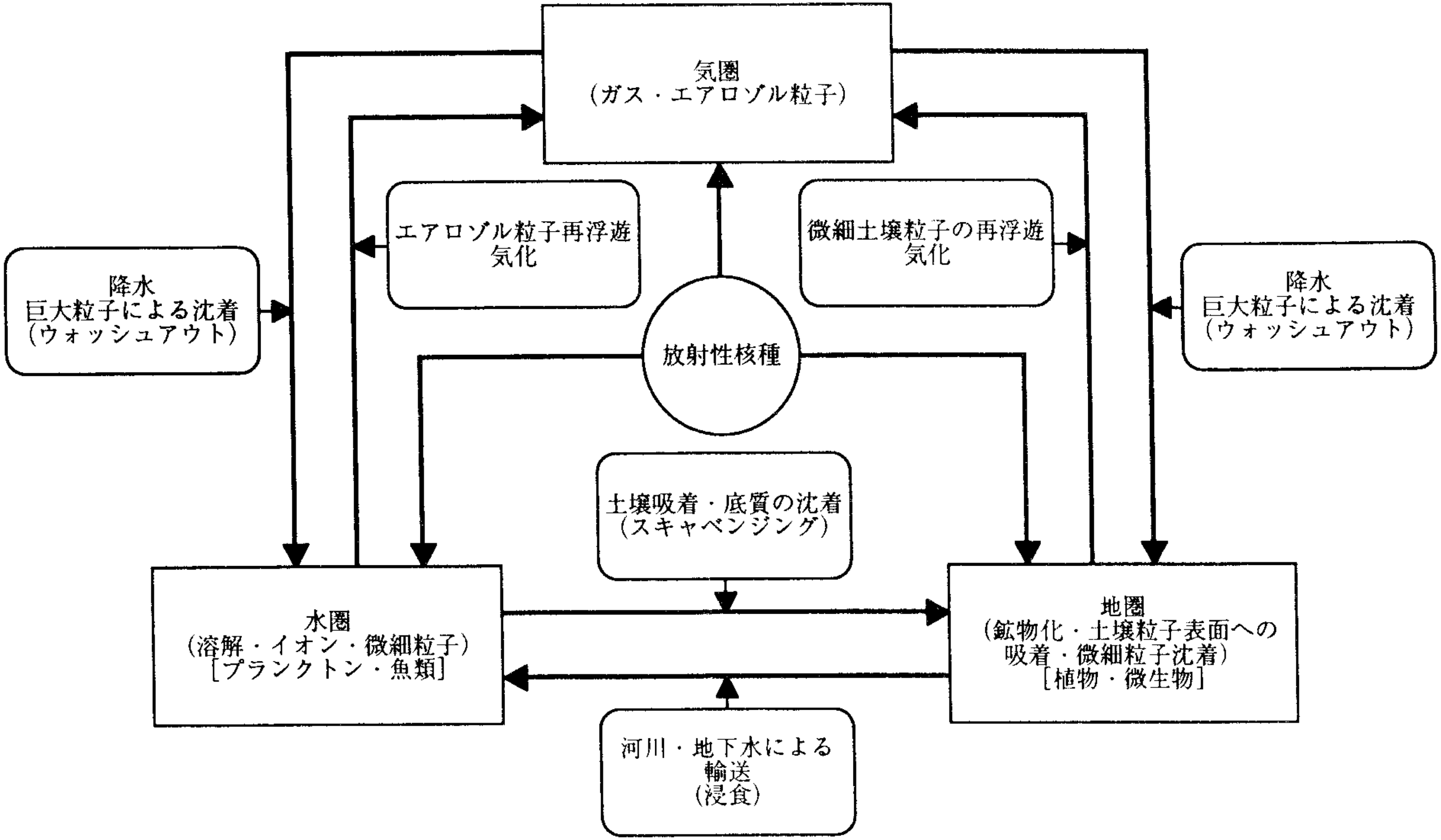


図 2.1 環境へ放出された放射性核種の挙動

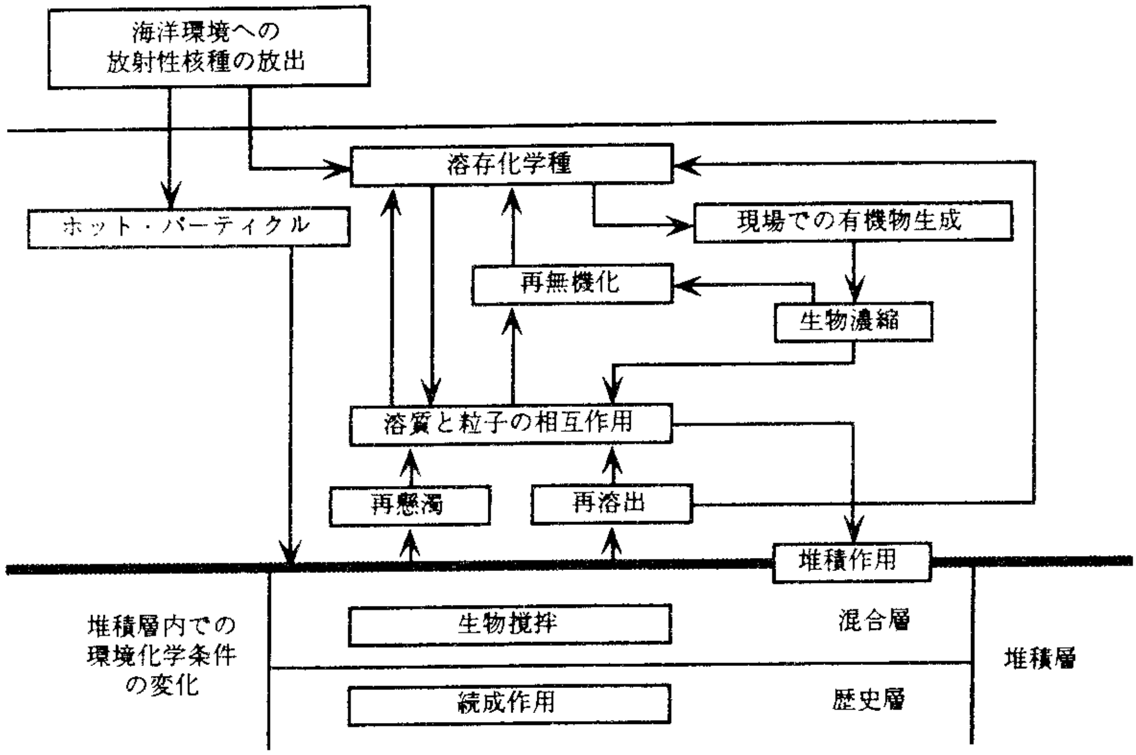


図 2.2　海洋における放射性核種のスキャベンジングと海底への放射性核種蓄積

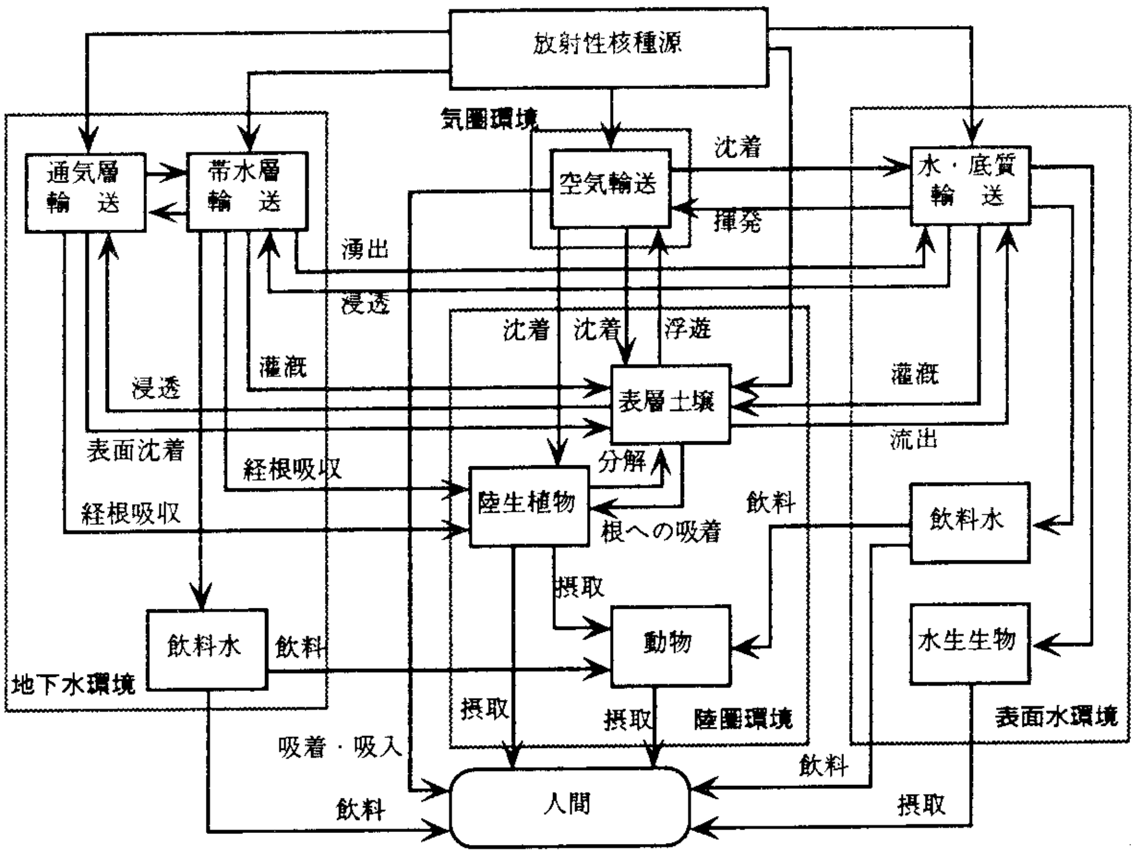


図 2.3　放射性核種の移行経路の例

3．分配係数の理論

水溶液（ここでは地下水など）と固体（ここでは地層を構成する物質など）から成る系では、種々の物理的・化学的機構により水溶液中の化学種は固相に保持される。物理的機構としては、

・静電引力による吸着
・van der Waals 力による吸着
・濾過

などが挙げられ、化学的機構としては、

・イオン交換反応
・錯対形成反応
・Mineralization
・凝集

などが考えられる。保持現象に含まれる機構について詳細な研究がなされているが、全ての機構を同定し、機構モデルに含まれる速度論的、平衡論的及び構造論的パラメータを取得することは、理論的には可能であるが、実際上は困難である。将来における研究の進展により、より機構的なモデルを用いて、放射性核種の保持現象を解析できるようになることが期待される。しかし、現在の安全評価に用いられるモデルでは、保持を比較的短時間に平衡に達する可逆的吸着現象と見なし、平衡論的な分配係数を用いて保持現象を表現している。この場合、分配係数（Kd：m^3/kg）は固相中と液相中の放射性核種濃度の比、すなわち次式で定義される[1]。

$$Kd = \frac{q_m}{C_1} = \frac{C_0 - C_1}{C_1}\frac{V}{m} \tag{3.1}$$

ここで、

q_m　：固相中の放射性核種の濃度（Bq/kg）
C_0　：水溶液中の放射性核種の初期濃度（Bq/m^3）
C_1　：水溶液中の放射性核種の平衡濃度（Bq/m^3）
V　：水溶液の容積（m^3）
m　：固相の重量（kg）

吸着現象を表現する経験式（等温吸着式）は多く提案されているが、ここでは代表的なFreundlich の式及びLangmuir の式と分配係数の関係を考察する。等温式は歴史的には、気相における分子の吸着実験に基づいて導出されてきた。Freundlich は気相吸着の分野でよく知られていた経験式（すなわち吸着量は気体の分圧の 1/n 乗に比例する）を液相吸着にも適用できることを明らかにした。このFreundlich の式は次のように書くことができる[2]。

$$q_m = KC_l^{1/n} \tag{3.2}$$

ここで、K (m^3/kg) は化学種の液相及び固相への分配を示す係数、n は実験で求められる係数で一般に1より大きい値となる。液相中の化学種濃度が、固相の吸着能に比べて十分低い場合、n=1 と近似できるので、Freundlich の式は分配係数の定義式と等しくなる。

Langmuir の式 (2) は、前述のように、気相吸着について導出されたものであるが、液相吸着に適用すると、

固相への吸着速度 $= kC(1-\theta)$

固相からの脱離速度 $= k'\theta$

ここで、k 及び k' は速度定数、C は液相中の化学種濃度、θ は消費された吸着能（気体吸着の場合は、分子で占められた固相表面の割合）である。平衡時には上記の速度は等しくなるので、

$$\theta = \frac{kC_l}{kC_l + k'} \tag{3.3}$$

が得られる。ここで、固相への吸着量が固相の消費された吸着能に比例する、すなわち、

$$q_m = k''\theta \tag{3.4}$$

と仮定すると Langmuir の式が導かれる。

$$q_m = \frac{(kk''/k')C_l}{(k/k')C_l + 1} \tag{3.5}$$

水溶液中の化学種濃度が極めて低い場合、上式分母は 1 と近似できるので、

$$q_m = KC_l \tag{3.6}$$

が得られる。ここで K は (kk''/k') である。この式も分配係数の定義式と類似の形式を持つ。

次にイオン交換反応と分配係数との関係について考察する。固相 X における陽イオン交換反応は一般に次式で表される (3)。

$$nMX + mN^{n+} = nM^{m+} + mNX \tag{3.7}$$

ここで、M は電荷 m の陽イオン、N は電荷 n の陽イオンである。この反応の平衡係数 K は質量作用の法則から次式で示される。

$$K = \frac{\left[M^{m+}\right]^{n}[NX]^{m}}{\left[N^{n+}\right]^{m}[MX]^{n}} \tag{3.8}$$

ここで、固相中のMのモル数に比べて液相中のNのモル数が十分小さければ、すなわち、反応中に反応系が変化しないと見なせれば、平衡係数は液相中と固相中の陽イオンNの濃度比で近似的に表される。これは、分配係数の定義と一致する。

このように、比較的短時間に平衡に達する可逆的反応系に対しては、前述のような種々の保持機構に対して分配係数を適用することが可能である。地層モデルの妥当性検証に関する国際協力研究（INTRAVAL）では、多くの野外及び室内トレーサ実験で得られたデータが解析された。その結果、実際の地層における地下水流速の範囲では、放射性核種の移行を分配係数を用いたモデルにより適切に表現できることが明らかにされている(OECD/NEA から出版された INTRAVAL 計画報告書を参照)。

一方、地層における地下水流速に比べて極めて大きい流速を用いたカラム実験の解析では、しばしば平衡吸着を仮定したモデルが適用できないことが経験されている。しかし、水の流速が十分遅ければ、平衡に達する速度が遅い場合であっても分配係数を適用することができる。したがって、実環境における地下水流速を把握するとともに、そのような流速条件下での実験を実施することが重要である。すなわち、平衡に達する速度と水の流速を勘案して、分配係数の適用性を判断すべきである。

地下水の流れが速くかつ平衡に達する速度が遅い反応系、及び見かけ上不可逆的な反応系を解析する際には、分配係数の適用は避け、速度論的なモデルを用いるべきであろう。平衡に達する速度が遅い保持機構が支配的な反応系であって、固相と接触する水の流速が速い場合は、逐次平衡が成立しないので、平衡論的係数で反応系を記述することはできない。また、見かけ上不可逆的な反応系では、一旦固相に保持された化学種は反応系から除外されるので、平衡論的概念は適用できず、速度論的取り扱いが必要となる。

第3章の参考文献

(1) Sibley T. H. and Myttenaere C. (ed) : "Application of distribution coefficients to radiological assessment models", Elsevier, 64-71 (1985).
(2) Glasstone S. and Lewis D. : "Elements of Physical Chemistry", D.Van Nostrand Co., 558-570 (1960).
(3) Domenico P.A. and Schwartz F. : "Physical and Chemical Hydrogeology", John Wiley & Sons, 448 (1990).

4．安全評価における分配係数の利用

ここでは､放射性廃棄物地中処分の安全評価における分配係数の利用について述べる。放射性廃棄物地中処分の安全評価手法は、一般に図 4.1 に示すように、

・処分場からの放射性核種の漏洩を解析するソースタームモデル

・天然バリアである地層中における核種移行を解析する天然バリアモデル

・生態圏における核種移行解析及び線量評価を行う生態圏モデル

から構成されている。これらのサブモデルでは、データが比較的容易に取得できる、評価結果が保守的である、モデルが簡便であるなどの観点から、分配係数を用いた平衡理論に基づく核種移行モデルが多く採用されている。

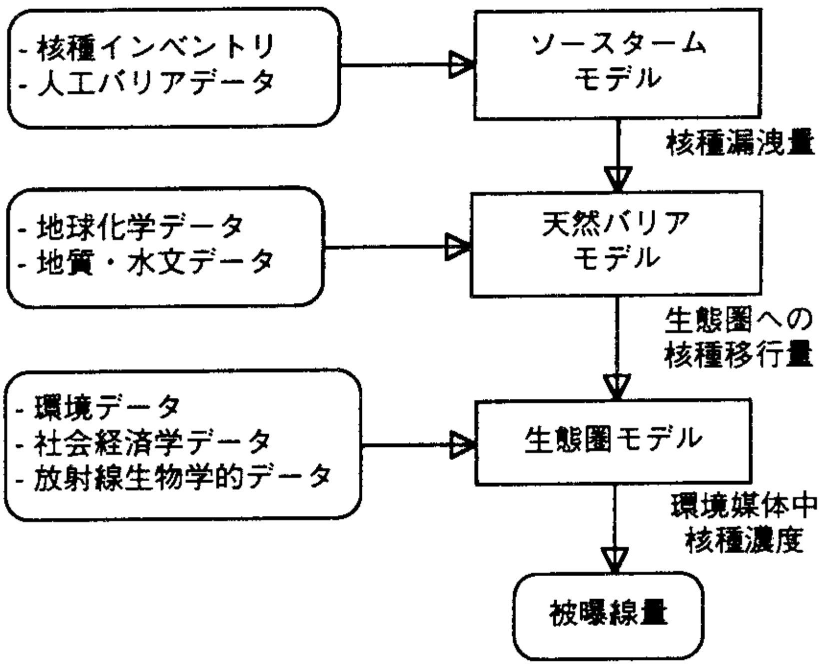


図 4.1　放射性廃棄物地中処分の安全評価手法

4.1　ソースタームモデル

ソースタームモデルは、当然のことではあるが、廃棄物の種類（低レベル廃棄物、高レベル廃棄物、α 廃棄物など）及び処分方式によって異なる概念化がなされている。例えば高レベル廃棄物の場合、固化体が難溶性のホウケイ酸ガラスであり、処分場が深地層に立地し地質環境が還元雰囲気であるため、放射性核種の漏出評価には溶解度律速モデルが多く用いられている。一方低レベル廃棄物などでは、固化体はセメント等が多く用いられ、処分場が浅地層に立地し地質環境が酸化雰囲気であるため、核種の漏出評価には分配係数モデルが多く用いられている。したがって、ここでは分配係数の利用という観点から、低レベル廃棄物地中処分の安全評価におけるソースタームモデルについて述べる [1,2]。

低レベル廃棄物のソースタームモデルでは、処分施設の構造・処分形式に応じて、以

下の3つのモデルが考えられている。

・トレンチモデル：廃棄物を直接土壌中に埋設するトレンチ処分に対応
・ピットモデル：コンクリート構造物中に廃棄物を定置する処分に対応
・モノリスモデル：処分施設と廃棄物をモルタル等で一体化した処分に対応

4.1.1 トレンチモデル

このモデルでは、固化された廃棄体からの核種の漏出と処分施設からの漏洩の2段階に分けてモデル化が行われている。廃棄体からの核種の漏出は、固化体中の核種の拡散及びドラム缶の腐食が考慮されている。処分施設からの漏洩では、定率で処分施設から漏洩するモデルと、水と土壌の吸着平衡を考慮するモデルが採用されている。

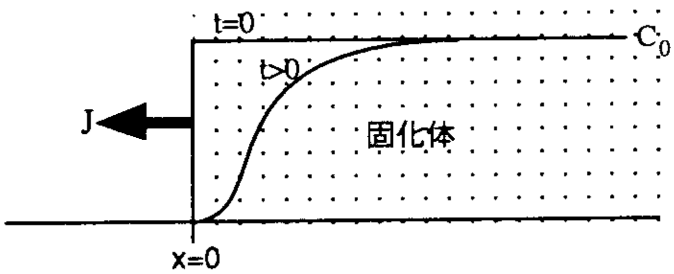
a) 固化体中の核種の拡散

固化体中の核種の拡散には、半無限平板拡散源モデルが採用され、この半無限媒体拡散源モデルでは、浸出系を巨視的にみて、放射性核種が均一に分散している半無限の固化体マトリックスと、それが浸漬されている無限で均一組成を有する液相とから成っていると仮定している。この場合、核種の崩壊を無視した物資収支は次式で与えられる。

$$\frac{\partial C}{\partial t}=D_e\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \tag{4.1}$$

C　：固化体中の核種の濃度 (Bq/m^3)

D_e　：固化体中の核種の実効拡散係数 (m^2/y)



ここで、実効拡散係数D_eは核種の吸着が考慮されたもので、実験で求められた値が評価に用いられる。また、初期及び境界条件は以下の通りである。

$$\left.\begin{array}{ll} C(x,0)=C_0 & 0\le x<\infty \\ C(x,0)=0 & x<0 \\ C(0,t)=0 & t>0 \end{array}\right\} \tag{4.2}$$

C_0　：放射性核種の初期濃度 (Bq/m^3)

上記の緒条件のもとでの、時刻0からtの間に単位面積から移動した物質量（積算漏洩量）

J (Bq/m^2) は次式で与えられる。

$$J = 2C_0\sqrt{\frac{D_e t}{\pi}} \tag{4.3}$$

b) 土壌中の吸着平衡

廃棄物中の固化されていない核種及び固化体から漏洩した核種は、地下水によって処分施設外へ運ばれる。しかし、このときに土壌との吸脱着反応によってその移動が遅延される。この地下水によって運ばれる核種の放出率は、処分施設内において土壌と地下水の間で分配平衡が成立すると仮定して、次の式で求めることができる。

$$R_L = \frac{V_L}{\varepsilon(1+\rho_W Kd/\varepsilon)V_W} \tag{4.4}$$

R_L ：廃棄物からの放出率 (1/y)

Kd ：分配係数 (m^3/kg)

ρ_W ：廃棄物（処分施設全体）の見かけ密度 (kg/m^3)

ε ：廃棄物（処分施設全体）の間隙率 (-)

V_W ：廃棄物（処分施設全体）の体積 (m^3)

V_L ：1年間に処分施設から漏洩した水の量 (m^3/y)

したがって、処分施設からの核種の漏洩量 q (Bq/y) は、物理的減衰及び漏出による核種の減少を考慮して、次の式のように評価される。

$$q = R_L Q e^{-(\lambda+R_L)t} \tag{4.5}$$

Q ：処分量 (Bq)

λ ：物理的減衰定数 (1/y)

4.1.2　ピットモデル

このモデルでは､廃棄物をコンクリートピット内に定置する処分方式を対象とし､ピット内の間隙は充填材で満たされていると仮定している。このモデルでは、施設構造物の破損または劣化部分から降雨浸透水または地下水が内部に浸入し、放射性核種は廃棄体から充填材中に浸出し、充填材中をコンクリートピットの破損部から浸入した水とともに移流拡散し、施設外へ漏洩すると考える。固化された廃棄物からの浸出は、トレンチモデルと同様に拡散支配と仮定して扱う。このモデルでは､その他に､コンクリートピットの破損モデルと充填材中での移流拡散モデルを取り扱う。

a) コンクリートピット破損モデル

コンクリートピット破損の原因については、亀裂の発生、透水係数の増加等が考えられるが、実験的なデータや解析が少ないため、その詳細については考えない。このモデルでは、処分後のある時点でコンクリートに破損が生じ、その後最大破損率に達するまで、破損率が時間に対して線形的に増加するものと仮定している。

$$\left.\begin{array}{ll} d(t)=0 & (t \le t_1) \\ d(t)=d_1+\dfrac{d_1-d_2}{t_1-t_2}\cdot(t-t_1) & (t_1<t<t_2) \\ d(t)=d_2 & (t \ge t_2) \end{array}\right\} \qquad (4.6)$$

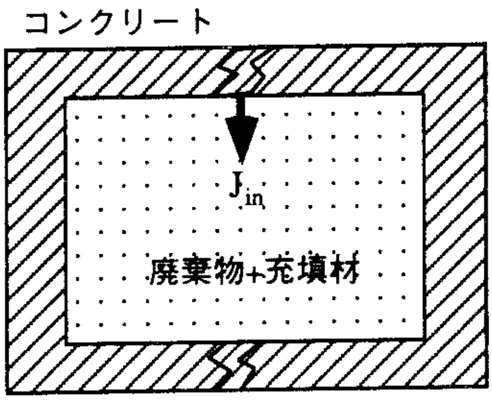
$d(t)$　：時刻 t における破損率 (-)

d_1　：初期破損率 (-)

d_2　：最終破損率 (-)

t_1　：初期破損時間 (y)

t_2　：最終破損時間 (y)



ピット内への水の流入量 $J_{in}(t)$ (m^3/y) は、次の式で与えられる。

$$J_{in}(t)=v_r L_p W_p d(t) \qquad (4.7)$$

L_p　：ピットの長さ (m)

W_p　：ピットの幅 (m)

v_r　：降雨による透水速度 (m/y)

$$v_r=(1-S)(P-E) \qquad (4.8)$$

P　：平年降水量 (m/y)

E　：平年蒸発散量 (m/y)

S　：表面流出係数 (-)

b) 充填材中の移流拡散モデル

充填材中の核種移行の評価には、核種の移流、分散、充填材への吸着及び減衰を考慮した物質輸送方程式を用いる。ピット内へ浸出した核種は、充填材中濃度と水中濃度の平衡を保ちながら移流分散移動するものとする。核種の濃度は、水平方向には一様とし、上下方向の1次元移流分散問題として充填材中の核種移動を考える。支配方程式は次式で示される。

$$R_f \frac{\partial C}{\partial t} = D_f \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v_f \frac{\partial C}{\partial x} - R_f \lambda C + \frac{q}{\varepsilon_B \theta V_B} \tag{4.9}$$

ε_B　：充填材空隙率 (-)
V_B　：充填材容積 (m^3)
θ　：飽和度 (-)
q　：固化体からの浸出量 (Bq/y)
R_f　：遅延係数 (-)

$$R_f = 1 + \frac{\rho_B Kd}{\varepsilon_B \theta} \tag{4.10}$$

ρ_B　：充填材見かけ密度 (kg/m^3)
v_f　：充填材中の透水速度 (m/y)

$$v_f = \frac{J_{in}}{\theta \varepsilon_B S_B} \tag{4.11}$$

S_B　：充填材の上部面積　(m^2)
D_f　：充填材中の分散係数 (m^2/y)

$$D_f = \alpha v_f + D_m \tag{4.12}$$

α　：分散長 (m)
D_m　：分子拡散係数 (m^2/y)

4.1.3 モノリスモデル

モノリスモデルでは放射性廃棄物を何らかの方法で固形化処理し、さらに、放射性物質を含まない物質(拡散媒体)から成る外被構造でその周りを覆った処分施設を想定する。

この施設からの核種の漏洩は、固化体・拡散媒体中を核種が拡散することによって生じると仮定し、モデル化する。この時、拡散媒体の劣化・破損等は、実効拡散係数が増加したり、実効的な表面積が増加すると考えることで、モデル上に取り入れることができる。モノリス形式の処分施設の構成は、均一固化体－容器－充填層 (モノリス) －外部コンクリート構造物という層をなしていると考えることができる。このような構造を持ったモノリス形式の処分施設からの放射性核種の浸出漏洩量を評価するとき、多重層で不連続境界を持った拡散問題と見なせる。この構造を数学的に取り扱い易くするために、構造の簡略化を行う。充填材にセメントを用いる場合、充填層と外部コンクリート構造物は近似的に同質と見なせるので、これらを一括して外被構造物と定義すれば、この構成は下記のように単純化される。

○均一固化体－容器－外被構造物

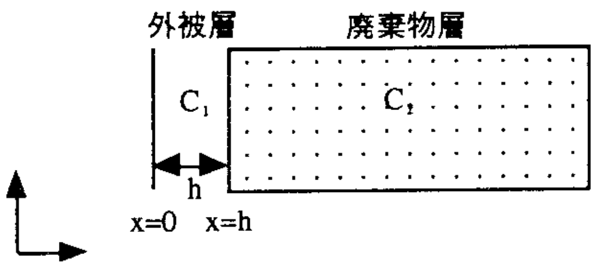
さらに、容器は腐食による損傷によって漏洩開始時刻のみを支配するものとして、この構造から容器を省略し、以下のように単純化する。

○均一固化体－外被構造物

このように簡略化された構造では、内部に廃棄物固化体があり、その外側に平板状の外被層があって、最外側を漏洩端とする「不連続境界を持つた1次元拡散問題 (2層拡散モデル)」と見なすことができる。すなわち、支配方程式は次のように示される。

$$\frac{\partial C_1}{\partial t} = D_1 \frac{\partial^2 C_1}{\partial x^2} - \lambda C_1 \qquad (0 \le x \le h) \tag{4.13}$$

$$\frac{\partial C_2}{\partial t} = D_2 \frac{\partial^2 C_2}{\partial x^2} - \lambda C_2 \qquad (h \le x) \tag{4.14}$$



初期及び境界条件は下記の通りである。

$$\left.\begin{aligned}
&C_1(x,0) = 0, \quad C_2(x,0) = C_0 \\
&C_1(0,t) = 0, \quad C_2(\infty,t) = C_0 e^{-\lambda t} \\
&C_1(h,t) = C_2(h,t) \\
&D_1 \left.\frac{\partial C_1}{\partial x}\right|_{x=h} = D_2 \left.\frac{\partial C_2}{\partial x}\right|_{x=h}
\end{aligned}\right\} \tag{4.15}$$

C_1, C_2　：外被層、廃棄物層の核種濃度 (Bq/m^3)

D_1, D_2　：外被層、廃棄物層の実効拡散係数 (m^2/y)

h　　：外被層の厚さ (m)

4.2 天然バリアモデル

放射性廃棄物処分の安全評価において評価対象となる天然バリアは、大きく土質媒体と岩盤に分けることができる。土質媒体は低レベル廃棄物などの浅地層処分の安全評価で主として評価対象となるものであり、多孔質媒体として表現できる。一方、岩盤は高レベル廃棄物などの深地層処分の安全評価で主として評価対象となるものであり、亀裂の規模及び頻度により多孔質媒体あるいは亀裂性媒体として表現される。

4.2.1 多孔質媒体中の核種移行モデル

亀裂の影響が無視できる多孔質媒体中での核種の輸送方程式は、液相における移流分散、固相における拡散及び崩壊連鎖を考慮すると、以下のように与えられる[3]。

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s N_s^i) = \nabla[D_s \nabla(\varepsilon_s N_s^i)] + \frac{R}{\rho V} + \varepsilon_s(\lambda_{i-1} N_s^{i-1} - \lambda_i N_s^i) + \varepsilon_s f_s^i(\vec{x},t) \quad (\text{固相}) \qquad (4.16)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_l N_l^i) = \nabla[D_l \nabla(\varepsilon_l N_l^i) - \vec{v}_f(\varepsilon_l N_l^i)] - \frac{R}{V} + \varepsilon_l(\lambda_{i-1} N_l^{i-1} - \lambda_i N_l^i) + \varepsilon_l f_l^i(\vec{x},t) \quad (\text{液相}) \qquad (4.17)$$

ε_s　：固相の占める割合 (-)

ε_l　：液相の占める割合　$\varepsilon_s + \varepsilon_l = 1$　(-)

N_s^i　：固相中の核種 i の濃度 (atom/kg)

N_l^i　：液相中の核種 i の濃度 (atom/m^3)

D_s　：固相中の拡散係数 (m^2/y)

R　：液相から固相へのフラックス (atom/y)

ρ　：固相の密度 (kg/m^3)

V　：考えている固相 - 液相系の体積 (m^3)

λ_i　：核種 i の崩壊定数 (1/y)

$f_s^i(\vec{x},t)$：固相における核種 i の生成率 (atom/kg/y)

$f_l^i(\vec{x},t)$：液相における核種 i の生成率 (atom/m^3/y)

D_l　：分散係数テンソル (m^2/y)

$$D_l^{ij} = D_T|\vec{v}_f|\delta_{ij} + (D_L - D_T)\frac{v_f^i v_f^j}{|\vec{v}_f|} + \varepsilon_l D_d \tau \delta_{ij} \qquad (4.18)$$

D_T　：流れに垂直な方向の分散長 (m)

$\vec{v}_f$　：地下水流速 (m/y)

D_L　：流れ方向の分散長 (m)

D_d　：水中における分子拡散係数 (m^2/y)

τ　：屈曲度 (-)

ここで固相及び液相の吸着平衡を次式のように仮定する。

$$N_s^i = Kd_i N_l^i \tag{4.19}$$

Kd_i　：核種 i の分配係数 (m^3/kg)

式 (4.16) 及び (4.17) により、フラックス項を消去すると次式が得られる。

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_l N_l^i + \rho\varepsilon_s N_s^i) &= \nabla[D_l \nabla(\varepsilon_l N_l^i) - \vec{v}_f(\varepsilon_l N_l^i)] + \rho\nabla[D_s \nabla(\varepsilon_s N_s^i)] \\ &+ \varepsilon_l(\lambda_{i-1} N_l^{i-1} - \lambda_i N_l^i) + \rho\varepsilon_s(\lambda_{i-1} N_s^{i-1} - \lambda_i N_s^i) + \varepsilon_l f_l^i(\vec{x},t) + \rho\varepsilon_s f_s^i(\vec{x},t)\end{aligned} \tag{4.20}$$

さらに、固相中における拡散を無視し、式 (4.19) により N_s^i を N_l^i で表すと、最終的に多孔質媒体中における輸送方程式は次式のようになる。

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_l R_f^i N_l^i) &= \nabla[D_l \nabla(\varepsilon_l N_l^i) - \vec{v}_f(\varepsilon_l N_l^i)] \\ &+ \varepsilon_l(R_f^{i-1}\lambda_{i-1} N_l^{i-1} - R_f^i \lambda_i N_l^i) + \varepsilon_l F_i(\vec{x},t)\end{aligned} \tag{4.21}$$

ここで R_f^i は核種 i の遅延係数であり、次式で表される。

$$R_f^i = 1 + \frac{1-\varepsilon_l}{\varepsilon_l}\rho Kd_i \tag{4.22}$$

また $F_i(\vec{x},t)$ は固相及び液相の両者からの核種 i の生成率である。式 (4.21) の輸送方程式は、計算対象及び目的に応じて 1 次元、2 次元、3 次元体系で解かれる (4-6)。

4.2.2　亀裂性媒体中の核種移行モデル

亀裂を含む媒体中では、式 (4.21) で考慮した現象の他に、核種の主たる漏出経路となる亀裂から多孔質体ブロックの間隙水中への拡散の影響を考慮する必要がある。亀裂中の核種濃度が多孔質体ブロック間隙水中核種濃度に比べて高い場合は、亀裂中から多孔質体ブロック間隙水へ拡散し、逆の場合は多孔質体ブロック間隙水から亀裂中へ拡散する。このため、亀裂を移行してきた核種のピーク濃度は減少し、またその到達時間は亀裂中の地下水流速から予想される時間よりも遅れるという現象が生じる（マトリックス

拡散、図 4.2 参照)。亀裂性媒体中での核種の輸送方程式は、多孔質体ブロックを一次元として扱い亀裂に垂直な方向のみの拡散を考えると、次式で与えられる。

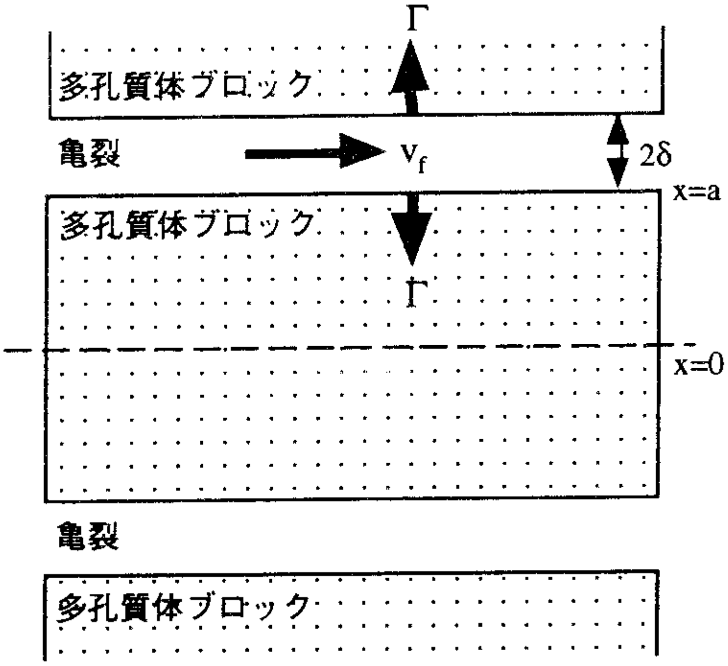


図 4.2　マトリックス拡散の概念図

亀裂中

$$\frac{\partial}{\partial t}(R_F^i N_f^i) = \nabla(D_l \nabla N_f^i - \bar{v}_f N_f^i) + R_F^{i-1}\lambda_{i-1}N_f^{i-1} - R_F^i \lambda_i N_f^i - \Gamma \tag{4.23}$$

$$R_F^i = 1 + \frac{Kf_i}{\delta} \tag{4.24}$$

多孔質体ブロック中

$$\frac{\partial}{\partial t}(R_m^i N_m^i) = D_m \frac{\partial^2 N_m^i}{\partial x^2} + R_m^{i-1}\lambda_{i-1}N_m^{i-1} - R_m^i \lambda_i N_m^i \tag{4.25}$$

$$\Gamma = \frac{\phi D_m}{\delta} \frac{\partial N_m^i}{\partial x}\bigg|_{x=a} \tag{4.26}$$

$$R_m^i = 1 + \frac{1-\phi}{\phi}\rho K d_i \tag{4.27}$$

初期及び境界条件

$$\left.\begin{aligned} N_m^i &= N_m^i && t=0 \\ N_m^i &= N_f^i && x=a \\ \frac{\partial N_m^i}{\partial x} &= 0 && x=0 \end{aligned}\right\} \qquad (4.28)$$

N_f^i ：亀裂中における核種 i の核種濃度 (atom/m^3)

R_F^i ：亀裂中における核種 i の遅延係数 (-)

Γ ：亀裂から多孔質体ブロックへのフラックス (atom/m^3/y)

N_m^i ：多孔質体ブロック間隙水中における核種 i の核種濃度 (atom/m^3)

R_m^i ：多孔質体ブロック間隙水中における核種 i の遅延係数 (-)

D_m ：多孔質体ブロック間隙水中における核種 i の拡散係数 (m^2/y)

ϕ ：多孔質体ブロック空隙率 (-)

2δ ：亀裂開口幅 (m)

2a ：多孔質体ブロック長 (m)

ここで、Kf_i は {単位面積当たりの核種iの吸着量} ／ {核種iの水中濃度} で定義される、面吸着に関する分配係数 (m) である。一方、多孔質体ブロック中の分配係数は多孔質媒体中における定義と同じである。

式 (4.23) ～式 (4.28) は個々の亀裂に対して適用されるものであり、実際はこのような亀裂が3次元的に連結した系を核種は移行するので、対象サイトをある程度忠実に評価解析するためには、3次元亀裂ネットワークモデルが必要である。現在、そのためのモデル開発及びモデルの妥当性検証（実験データとの比較）が進められている。

4.3 生態圏モデル

地下水等によって一般環境にもたらされた放射性核種は、生態圏内の様々な経路を経て、環境媒体あるいは摂取物に移行し、人体に被曝を与える。よってその被曝線量を把握するためには、生態圏内の核種の移行挙動を評価する必要ある。

分配係数はこれらの生態圏内の移行モデルの内、固液両層が移行に関与する過程を記述するモデルに採用される。具体的には、

・湖沼系における核種移行

・表層土壌における核種移行

の各モデルについて、分配係数を用いたモデルが提案されている。これらの移行過程を分配係数を用いて表したモデルについて以下に記述する。

4.3.1 湖沼系における核種移行モデル

大気中に放出された放射性核種の湖沼水への沈降や、放射性核種を含んだ河川水あるいは地下水の流入等により、湖沼水中に放射性核種がもたらされた場合、淡水性水産物

を通して人体に摂取される可能性がある。この経路による被曝線量を評価するためには、湖沼系における放射性核種の挙動を把握する必要があるが、その挙動は湖沼の形状、物理的、化学的性質の空間的、時間的変化など様々な要因に支配され、詳細に把握することは極めて困難である。そこで、湖沼中における放射性核種の挙動を数学モデルによって評価する場合、湖沼水及び湖沼底泥をそれぞれ放射性核種が均一に分布するコンパートメントとみなし、その移行速度はコンパートメント内の放射性核種量に比例するとしてモデルを構築するコンパートメントモデルが多く用いられている[7]。湖沼底泥から深部への核種の流出がないと仮定した場合、湖沼系における放射性核種の挙動は以下の常微分方程式で表すことができる[8]。

$$\frac{dY}{dt} = Q + pX - (f + s + \lambda)Y \tag{4.29}$$

$$\frac{dX}{dt} = sY - (p + \lambda)X \tag{4.30}$$

ここで、

Y　：湖沼水中放射性核種量 (Bq)
X　：底泥中放射性核種量 (Bq)
Q　：湖沼水への流入率 (Bq/y)
p　：底泥から湖沼水への移行率 (1/y)
f　：湖沼水からの流出速度 (1/y)
s　：湖沼水から底泥への移行率 (1/y)
λ　：崩壊定数 (1/y)

である。この系の概念図を図4.3に示す。これらのパラメータの内、湖沼水から底泥への移行率及び底泥から湖沼水への移行率を直接実測によって求めることは困難であるため、湖沼水中及び底泥中においてそれぞれ固液層間での分配平衡が常に保たれていると仮定し、その分配係数を用いて移行率を設定する場合が多い。

湖沼水から底泥への放射性核種の主要な移行機構として、第2章で述べたように、湖沼水中の懸濁物質に放射性核種が吸着し、その懸濁物質が沈降することに伴って沈降する経路があげられる。式(4.29)において、Yは湖沼水中に溶存している放射性核種と浮遊性物質に吸着している放射性核種の和として与えられるため、湖沼中の溶存態放射性核種と懸濁物質に吸着している放射性核種の間で分配平衡が成立していると仮定すると、湖沼水中の溶存態放射性核種量は以下の式で与えられる[8]。

$$W = \frac{Y}{1 + Kd_p C_p} \tag{4.31}$$

ここで、

W　：湖沼水中溶存態放射性核種量 (Bq)

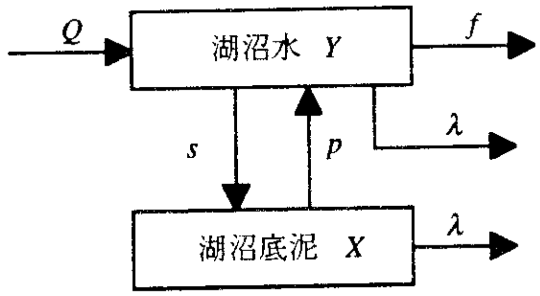


図 4.3 湖沼系における放射性核種の移行の概念図

Kd_p ：懸濁物質に対する放射性核種の分配係数 (m^3/kg)

C_p ：懸濁物質濃度 (kg/m^3)

である。よって、懸濁物質の沈降に伴う放射性核種の移行率は以下の式で表すことができる[1]。

$$s_p = \frac{Kd_p R}{H(1 + Kd_p C_p)} \tag{4.32}$$

ここで、

s_p ：懸濁物質の沈降による移行の移行率 (Bq/y)

R ：懸濁物質沈降フラックス($kg/m^2/y$)

$$R = vC_p \tag{4.33}$$

v ：懸濁物質沈降速度 (m/y)

H ：湖沼の平均水深 (m)

である。

湖沼水中溶存態放射性核種の底泥中への拡散、あるいは底泥から湖沼水への拡散、溶脱等も移行機構として考えられる。しかし、これらの移行機構を厳密に把握し、その移行率を定量的に評価することは困難である。このため、これらの相互作用が主に底泥中の濃度勾配による拡散によって生じると仮定すると、湖沼水から底泥への移行率はFickの第１法則より、底泥中の放射性核種の実効拡散係数を用いて以下の式で与えられる。

$$s_d = \frac{D_e}{TH(1 + Kd_p C_p)} \tag{4.34}$$

ここで、

s_d ：拡散による湖沼水から底泥への移行率 (1/y)

D_e ：底泥中放射性核種実効拡散係数 (m^2/y)

$$D_e = \frac{\tau\varepsilon D^*}{\rho_b Kd_s} \tag{4.35}$$

τ　：屈曲度 (-)

ε　：底泥の間隙率 (-)

D^*　：水中における拡散係数 (m^2/y)

ρ_b　：底泥の見かけ密度 (kg/m^3)

Kd_s　：底泥における放射性核種の分配係数 (m^3/kg)

T　：底泥厚 (m)

である。式(4.32)、(4.34)より、湖沼水から底泥への移行率sは以下の式で与えられる。

$$\begin{aligned} s &= s_p + s_d \\ &= \frac{1}{1+Kd_pC_p}\left(\frac{Kd_pR}{H} + \frac{D_e}{TH}\right) \end{aligned} \tag{4.36}$$

同様に、底泥から湖沼水への移行率pは以下の式で与えられる。

$$p = \frac{D_e}{T^2(\varepsilon + \rho_b Kd_s)} \tag{4.37}$$

また、湖沼水中溶存態放射性核種と底泥中放射性核種との相互作用を、物質輸送係数を用いて設定するモデルも提案されている(7)。このとき、湖沼水から底泥への移行率及び底泥から湖沼水への移行率はそれぞれ以下の式で与えられる。

$$s_d = \frac{K_L}{H(1+Kd_pC_p)} \tag{4.38}$$

$$p = \frac{cK_L}{T(\varepsilon + \rho_b Kd_s)} \tag{4.39}$$

ここで、

K_L　：物質輸送係数 (m/y)

c　：底泥間隙水中放射性核種濃度の湖沼水中放射性核種濃度に対する比 (-)

である。これらの式において、$K_L=D_e/T$、c=1とすると、式(4.38)、(4.39)はそれぞれ式(4.34)、(4.37)と同一になる。

4.3.2　表層土壌における核種移行モデル

表層土壌中に存在する放射性核種の挙動を正確に把握することは、地上で生活する人々

の安全性を評価・確保する上で不可欠な要素である。具体的には、

・表層土壌から直接
・表層土壌から下層土壌・地下水を経て
・表層土壌から植物（農作物、樹木、等）を経て

個人あるいは公衆が受ける線量の推定を行う上で、表層土壌における移行予測の高精度化が重要な課題となる。上記の３つの内どれが決定経路となるかは、様々な要因（放射性核種の半減期、土壌吸着特性、降雨量、地下水の分布や利用状況、農作物の種類や栽培密度、等）によって変化するので、実際の事例に対して柔軟に対応できる移行モデルを開発しておくことが必要である。

表層土壌に降下・沈着した放射性核種の量は時間に伴って減少する。環境影響評価に用いられる平衡型移行モデル（equilibrium model）においては、表層土壌中における放射性核種の濃度変化は、新たな放射性核種の沈着がない場合、通常次式のような指数関数型のモデルで表現される[9-13]。

$$C_{soil}(t) = C_{soil}(0)\exp(-\lambda t) \tag{4.40}$$

ここで、

$C_{soil}(t)$　：時刻 t における表層土壌中放射性核種濃度　(Bq/kg)
λ　：減衰係数　(1/y)

である。この減衰に寄与する主な要因として、物理的崩壊（radioactive decay)、下方への浸透（downward infiltration)、植物による取り込み（root uptake）の３つを挙げることができる[14]。すなわち、

$$\lambda = \lambda_d + \lambda_i + \lambda_c \tag{4.41}$$

ここで、

λ_d　：物理的崩壊定数　(1/y)
λ_i　：下方浸透率　(1/y)
λ_c　：植物への移行率 (1/y)

である。このうち、λ_d は放射性核種の半減期データから求めることが可能である。すなわち、

$$\lambda_d = \frac{\ln 2}{T_H} \tag{4.42}$$

ここで、

T_H　：対象核種の物理的半減期 (y)

である。また、λ_c は土壌－植物間の移行係数（T_f）のデータ[15,16]によって近似することができる。すなわち、

$$\lambda_c = \frac{T_f Y_c}{W_{soil}} \tag{4.43}$$

ここで、

Y_c ：作物収量 (kg/m²/y)

W_{soil} ：表層土壌の面積密度 (kg/m²)

である。上式では、収穫部位以外は土壌に戻ると仮定している。λ_iは、フィールドで得られたデータが限られていることもあり、初期には0（下方への浸透がない）と仮定したケース[10]もある。しかし、最近のモデル[13,14,17,18]では、分配係数を含むより物理的意味の明らかなパラメータからλ_iを推定する方法がとられている。一般的には、λ_iは次式で計算される。

$$\lambda_i = \frac{V_R}{d_s\left(1 + \frac{\rho_b}{\theta_v} Kd\right)} \tag{4.44}$$

ここで、

v_R ：土壌水分の実流速 (m/y)

d_s ：表層土壌の厚さ (m)

ρ_b ：土壌の見かけ密度 (kg/m³)

θ_v ：土壌水分の体積含水率 (-)

である。分配係数は土壌中濃度を土壌溶液中濃度に変換するために使われている。表層土壌の面積密度W_{soil}を用いて上式を変形すると次のようになる[19]。

$$\lambda_i = \frac{V_W}{W_{soil}(\theta_l + Kd)} \tag{4.45}$$

ここで、

V_W ：土壌単位面積当たりの浸透水の体積速度 (m³/m²/y)

θ_l ：土壌含水比 (m³/kg)

である。式 (4.41) ～式 (4.43) および式 (4.45) を式 (4.40) に代入することにより、土壌中濃度の予測式は次のように与えられる。

$$C_{soil}(t) = C_{soil}(0)\exp\left\{-\left(\frac{\ln 2}{T_H} + \frac{V_W}{W_{soil}(\theta_l + Kd)} + \frac{T_f Y_c}{W_{soil}}\right)t\right\} \tag{4.46}$$

この式では、耕作、非耕作期間があり本来非連続的である植物への移行を、一定の移行率（λ_c）で表しているため、収穫時点以外の期間では誤差が生じる。このため、ここでの時間 t は収穫間隔（通常 1 年）を基本単位として与える必要がある。

分配係数は、放射性廃棄物の地層処分に関する安全評価において地下水中での核種移行の難易を表す指標として用いられてきた経緯から、無機質土壌に対しては多くの分配係数値が既に報告され、その変動特性に関する統計学的考察が進められている[18,20-24]。しかし、耕作地土壌についての報告は少なく[23]、その変動特性について考察する基礎データは限られている[25]（第 6 章 2 節参照）。また、耕作地土壌を含む表層土壌の環境条件は、地下環境と比較して周期的あるいは不規則に大きく変動するため、フィールドでの平衡値を提示することが困難である。このような環境条件の時間変化が分配係数に及ぼす影響を評価するための手法として、ストロンチウム（Sr）およびセシウム（Cs）の分配係数の推定に電気伝導度（EC）を利用することが提案されている[26]。特に、Sr については、陽イオン交換容量（CEC）で溶液の電気伝導度（EC）を除した値（陽イオン分配比）から、土壌の違いを定量的に評価できることが報告されている[25]。今後は、このようなモデルの高精度化、すなわち、環境情報を利用して、より現実に近い分配係数を推定する手法の開発が進むと思われる。

式 (4.43) で示したように、土壌から植物への移行量は移行係数で一般に予測されている。動的移行モデル（dynamic model）においても、収穫時の移行係数値から移行率を逆算しているケースも見られる[27]。移行係数は、放射性核種濃度の作物可食部中濃度と土壌中濃度の収穫時における濃度比として、ポット実験やフィールド調査により集められてきた経験的パラメータである。既に、安全評価用に提示された推奨値を含め、多くの移行係数値が報告されている[9,10,14-16,28-30]。その変動に関する統計的考察も進められてきており[30-35]、生育条件に関する分類的情報から移行係数の信頼性をある程度向上できることが指摘されている。しかし、広範囲にわたる気象・土壌条件の変化に伴って検討すべき事項の多さと取得可能な実データの量から考えて、このような統計的手法による推定精度の向上には限界がある。

移行係数を用いる従来の移行係数法では、平衡状態における植物中濃度は土壌中濃度に比例すると仮定しており、土壌中における核種の可給性（植物に吸収される形態かどうか）については現在のところ考慮されていない。しかし、植物根が土壌溶液中に溶存しているイオン状核種を吸収するという機構[36,37]に従えば、分配係数をモデルに取り入れることによって経根移行モデルの高度化をはかることが可能であると考えられる。ただし、植物の生理機構にあまりに忠実な移行モデルでは数多くの植物生理学的パラメータが含まれる結果となり[38]、パラメータ値に関する情報の不足から予測の不確かさがむしろ拡大される可能性がある。そのような観点から、保田ら[39,40]は、Dorp のモデル[38]を基礎として、移行係数を記述する次のような簡略なモデルを提案・検証した。

$$T_f = \frac{S_c T_c}{\theta_l + Kd} \tag{4.47}$$

ここで、

S_c　：選択吸収係数 (-)

T_c　：蒸散係数（作物可食部1kg生産に要する水分量） (m^3/kg)

θ_l　：土壌含水比 (m^3/kg)

である。このモデルにより、土壌特性（すなわち分配係数）の違いによる移行係数値の変動を定量的に評価できると考えられる。選択吸収係数は植物根の透過機能に依存すると考えられ、根細胞の膜機能や浸透圧差（土壌溶液の塩濃度）に影響を受けると考えられる。この浸透圧の影響を簡便に評価するための手法として、選択吸収係数を電気伝導度（EC）の関数として与えることが提案されている[41]。移行係数は土壌溶液の養分組成や気象条件に依存すると考えられるが、標準的な耕作地（植物の生育が通常である地域）においてはその変動は小さいと思われる。また、多くの放射性核種では、$\theta_l << K_d$なので、上式は

$$T_f = \frac{S_c T_c}{Kd} \tag{4.48}$$

と簡略化でき、土壌含水比の変動を無視することが可能である。上式より、これまで独立に扱われてきた分配係数と移行係数が逆比例の関係にあるパラメータであることが指摘できる[19]。式 (4.48) を式 (4.46) に代入することにより、次式が得られる[19]。

$$C_{soil}(t) = C_{soil}(0)\exp\left\{-\left(\frac{\ln 2}{T_H} + \frac{V_W}{W_{soil}Kd} + \frac{S_c T_c Y_c}{W_{soil}Kd}\right)t\right\} \tag{4.49}$$

すなわち、式 (4.47) を導入することにより、下方への浸透だけでなく、植物の経根吸収による土壌中濃度 (C_{soil}) の変化についても、分配係数をパラメータとして記述できることが分かる。また、式 (4.47) に式 (4.46) を乗じることによって植物（可食部）中濃度が計算できる。このように分配係数は、土壌中における放射性核種の移動と、土壌から植物への放射性核種の移行の両方の評価において重要なパラメータとなる。

第4章の参考文献

(1) 松鶴秀夫, 黒沢直弘, 鈴木篤之：低レベル放射性廃棄物浅地層処分の総合安全評価に関する部分モデルの開発（II）人工バリア核種漏洩モデル（ENBAR），JAERI-M 87-124 (1987).

(2) Matsuzuru H. and Suzuki A. : Models for performance assessment of engineered disposal facility for shallow land disposal of low-level radioactive wastes, Proc. of the Symposium on safety assessment of radioactive waste repositories, 137-144 (1990).

(3) Harada M., Chambre P. L., Foglia M., Higashi K., Iwamoto F., Leung D., Pigford T. H. and Ting D., : Migration of radionuclides through sorbing media analitical solutions - I , LBL-10500 (1980).

(4) Kimura H., Takahashi T., Shima S. and Matsuzuru H. : A generic safety assessment code for geologic disposal of radioactive waste : GSRW computer code user's manual, JAERI-M 92-161 (1992).

(5) Kimura H. : The MIG2DF computer code user's manual, JAERI-M 92-115 (1992).

(6) Kimura H. and Muraoka S. : NUmerical model of radionuclide migration in geologic media, J. Nucl. Sci. Technol., 20, 503-510 (1983).

(7) BIOMOVS : BIOMOVS Technical Report 5 Scenario B5 Ageing of a lake (1989).

(8) Togawa O. : Performance of Assessment Models for Estimating the Transfer of Mercury in a Lake Ecosystem, Hoken Butsuri, 26, 225-232 (1991).

(9) USNRC : Calculation of annual doses to man from routine releases compliance with 10 CFR part 50 (Appendix 1) , Regulatory Guide 1.109, 3-4 (1977).

(10) IAEA : Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases, Safety Series 57, 61-65 (1982).

(11) Peterson H.T.Jr. : Terrestrial and aquatic food chain pathways, Radiological assessment, NUREG/CR-3332 (1983).

(12) Boone F. W., Ng Y.C. and Palms J. M. : Terrestrial pathways of radionuclide particulates, Health Phys., 41, 735-747 (1981).

(13) Muller H. and Prohl G. : ECOSYS-87 : A dynamic model for assessing radiological consequences of nuclear accidents, Health Phys., 64, 232-252 (1993).

(14) NCRP : Radiological Assessment : Predicting the transport, bioaccumulation, and uptake by man of radionuclides released to the environment, NCRP Report 76, 57-86 (1984).

(15) IUR : Vth report of workgroup on soil to plant transfer factors, 92-156 (1987).

(16) Radioactive Waste Management Center : Transfer factors of radionuclides from soils to agricultural products, RWMC-88-P-11 (1988).

(17) Hoffman F. O. and Baes C. F. III : A statistical analysis of selected parameters for predicting food chain transport and internal dose of radionuclides, NUREG/CR-1004 (1979).

(18) Baes C. F. III, Sharp R. D., Sjoreen A. L. and Shor R.W. : A review and analysis of

parameters for assessing transport of environmentally released radionuclides through agriculture, ORNL-5786 (1984).

(19) Yasuda H. and Uchida S. : Apparent non-linear relationship of radionuclide concentration in between crop and soil, Proc. of IAEA International Symposium on Environmental Impact of Radioactive Releases, IAEA-SM-339/1 (1995, in press).

(20) Sheppard M. I., Beals D. I., Thibault D.H. and O'Connor P. : Soil nuclide distribution coefficients and their statistical distributions, AECL-8364 (1984).

(21) Coughtrey P. J., Jackson D. and Thorne M. C. : " Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems : VI. A compendium of data", A.A. Balkema, Rotterdam, (1985).

(22) 加藤正平，薮田鑒：放射性廃棄物浅地中処分の安全性評価に用いる分配係数，原子力学会誌，28，344-351 (1986).

(23) Radioactive Waste Management Center : Radionuclides distribution coefficient of soil to soil-solution, RWMC-90-P-13 (1990).

(24) 福井正美：放射性廃液処分の環境影響評価における分配係数の変動要因，原子力学会誌，32，142-148 (1990).

(25) Yasuda H. and Uchida S. : Statistical Approach for the estimation of strontium distribution coefficient, Environ. Sci. Technol., 27, 2462-2465 (1993).

(26) Yasuda H. : Use of electrical conductivity to estimate effects of competing ions on radionuclide distribution coefficients, Water Air Soil Pollut., 75, 421-427 (1994).

(27) Simmonds J. R., Linsley G.S. and Jones J.A. : A general model for the transfer of radioactive materials in terrestrial food chains, NRPB-R89 (1979).

(28) Menzel R. G. : Soil-plant relationships of radioactive elements, Health Phys., 11, 1325-1332 (1965).

(29) Ng Y.C., Thompson S.E. and Colsher C.S. : Soil-to-plant concentration factors for radiological assessments, NUREG/CR-2975, 93-101(1982).

(30) Ng Y.C., Colsher C.S. and Thompson S.E. : Transfer factors for assessing the dose from radionuclides in agricultural products, Proc. of an International Symposium on Biological Implications of radionuclides released from nuclear industries : Vol.1, IAEA-SM-237/54, 295-317 (1979).

(31) Ng Y.C. and Hoffman F.O. : Selection of terrestrial transfer factors for radioecological assessment models and regulatory guides, CEC, "The environmental transfer to man of radionuclides released from nuclear installations", V/7400/84-EN,FR, 841-855 (1983).

(32) Keen A. and Frissel M.J. : A statistical analysis of soil-to-plant transfer factors, CEC, "The environmental transfer to man of radionuclides released from nuclear installations", V/7400/84-EN, FR, 841-855 (1983).

(33) Uchida S., Kamata H., Yokosuka S. and Ohmomo Y. : Variability of soil-to-crop transfer factor, Hoken Butsuri, 22, 511-522 (1987).

(34) 保田浩志，内田滋夫：移行係数（土壌－農作物）の不確実性低減に関する考察 －分類情報に基づくセシウム移行係数値の統計解析 －，保健物理，28，413-419 (1993).

(35) Yasuda H. and Uchida S. : Statistical analyses of soil-to-plant transfer factors : Strontium and cesium, J. Nucl. Sci. Technol., 31, 1308-1313 (1994).

(36) Barber S. A. : "Soil nutrient bioavailability", John Wiley & Sons, New York, 114-135 (1984).

(37) Nye P. H. and Tinker P. B. : "Solute movement in the soil-plant system", Blackwell Scientific Publ., London, 40-43 (1977).

(38) Dorp F. van, Eleveled R. and Frissel M. J. : A new approach for soil-plant transfer calculations, Proc. of an International symposium on biological implications of radionuclide released from nuclear industries, IAEA-SM-237/13, 399-406 (1979).

(39) 保田浩志，井上頼輝，森澤眞輔，堀内将人，西谷英樹：土壌－植物系における亜鉛の挙動に関する基礎的研究，1. 亜鉛の分配係数に関する実験的考察，保健物理，27，123-134 (1992).

(40) 保田浩志，井上頼輝：土壌－植物系における亜鉛の挙動に関する基礎的研究、2. 移行係数の推定手法に関する考察，保健物理，27，295-303 (1992).

(41) Yasuda H. : Electrical conductivity used for evaluation of competing ion effects on radionuclide uptake by plant roots, Environ. Technol. (1994, in press).

5．分配係数の測定法の現状と問題点

分配係数の測定法には、大別して室内試験による方法とフィールド試験・観測による方法とがある。室内試験による方法はバッチ法とカラム法とに区分され、フィールド試験・観測による方法（フィールド法）は、人工トレーサやフォールアウト核種を利用するフィールドトレーサ法と、自然環境中の安定同位元素の濃度から推定する賦存元素分析法とに区分される[1]。それぞれの測定法は、長所・短所を持っており、一概にどの方法がベストであると簡単には断言できない。どの測定法を採用するかは、土壌試料の総数、採取された土壌試料の量、さらに、得られた分配係数の精度と評価モデル全体の精度とのバランスなど、さまざまな観点から検討する必要がある。また、フィールド法のように、対象とする核種がおのずと制約を受けることもある。現実的には、単一の方法によるのではなく、それぞれの長所・短所を十分理解して、バッチ法およびカラム法、さらにはフィールド法をも併用して、最適な分配係数を選定するのが望ましいと思われる。

本章では、最初にそれぞれの測定法について、その概要及び長所・短所を述べ、最後に、それぞれの測定法の相互比較について述べる。

5.1 バッチ法

バッチ法は一定量の被吸着物質を含む溶液と土壌とを混合し、固液接触を十分に保った後に固体と液体とに分離し、液相中の被吸着物質濃度変化から固相への吸着量を算定する方法である。吸着量および分配係数はそれぞれ次式で表される。

$$q = \frac{(C_0 - C_e)V}{W} \tag{5.1}$$

$$Kd = \frac{q}{C_e} = \left(\frac{C_0}{C_e} - 1\right)\frac{V}{W} \tag{5.2}$$

ここに、

C_0 ：被吸着物質の初期濃度 (kg/m^3)

C_e ：被吸着物質の平衡濃度 (kg/m^3)

V ：溶液体積 (m^3)

W ：吸着剤（土壌）添加量 (kg)

q ：固相濃度 (kg/kg)

Kd ：分配係数 (m^3/kg)

バッチ試験の際に検討すべき項目を表 5.1[1]に示す。被吸着物質を含む溶液の作成段階では、被吸着物質濃度をどれくらいにするか、共存物質を何にして、どれくらいの濃度にするかを検討する必要がある。この場合、分配係数を用いて評価を行う対象を明確にする必要がある。すなわち、near field での挙動を対象としているのか、または、far field での挙動を想定しているのか、により、共存物質の種類やその濃度が異なる[2]。また、これに土壌を添加する段階では、土壌と作成した溶液との混合比（固液比）が問題となる。土壌添加量が小さい場合は、その添加した土壌が代表土壌としてふさわしいか等が問題

表5.1　バッチ試験の各実験ステップにおける検討事項[1]

実験ステップ	検討項目
被吸着物質を含む溶液の作成	・被吸着物質濃度 ・共存物質とその濃度 ・pH
土　壌　添　加	・固液比
固　液　接　触	・固液接触方法 ・固液接触時間
固　液　分　離	・固液分離方法

となり、逆に土壌添加量が大きい場合には十分な固液接触が確保されるか等が問題となる。一般には、固液重量比で0.001～0.1程度[3]が採用されている。図 5.1は、平衡濃度（C_e）と初期濃度（C_0）との比によって分配係数がどのように変化するかを示した図[1]である。$C_e/C_0<0.1$および$C_e/C_0>0.9$のような領域では、分配係数値が急激に変化する。精度のよい分配係数を求めるためには、このような結果とならないような固液比あるいは初期濃度条件を設定する必要がある。

次に、固液接触操作では、固液接触方法をどうするか、また接触時間をどう設定するかが重要である。固液接触方法には、マグネチックスターラーによる方法と、振とう器（レシプロ式、旋回式がある）による方法とがある。マグネチックスターラーによる方法の模式図を図 5.2に示す。どちらの方法に対しても土壌粒子の破壊、摩耗による土壌の有効吸着表面積の増加を防止する必要があり、さらにマグネチックスターラーによる方法では、回転子の摩耗も防止する必要がある。そのため、極端に激しい攪拌あるいは振とうは避けなければならない。場合によっては、攪拌操作を行わない実験も必要である。図 5.3に示すように、通常経過時間とともに被吸着物質の液相濃度が減少し、ある一定の濃度に漸近する。土壌による主要な吸着反応であるイオン交換反応は、土壌粒子内での拡散[4]や内部吸着速度[3,5]を考慮する以外は通常短期間で平衡に達するため、図 5.3の吸着平衡時間（t_e）は非常に小さい。しかし、通常は十分な吸着平衡を得るために数十分から1週間程度の固液接触時間を設定している。あまり長時間になると、微生物の影響により現実のフィールドとは異なったものとなる可能性もあり、むやみに長い固液接触時間を設定するのは避けるべきである。

固液分離方法には、遠心分離、メンブランフィルター濾過、限外濾過、膜分離等がある。被吸着物質がコロイド態を形成する場合[6,7]には、分離方法は当然分配係数値に影響する。すなわち、コロイド態として存在する成分が液相成分に相当するか固相成分に相当するかにより相違が生じる。この場合、濾紙の孔径が小さくなるほど分配係数値は大きくなるので、目的に応じて固液分離法を使い分ける必要がある。また、濾過操作においては、濾紙や器壁などに吸着し、液相濃度が低下することも報告されている。さらに、実フィールドでは、土壌間隙中をコロイド状の成分が移動すること等も考えられるため、

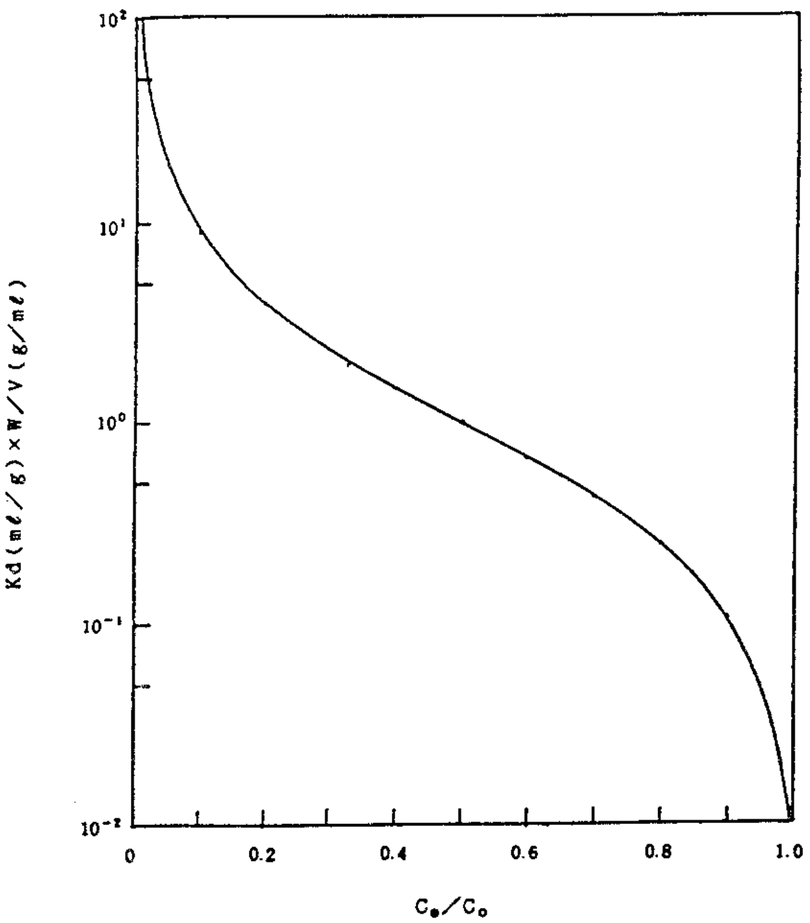


図 5.1　分配係数Kdと相対濃度C_e/C_oとの関係

むやみに微少なフィルターを用いた分離操作は、避ける方が好ましいと思われる。

5.2　カラム法

カラム法は、円筒カラムなどの容器に土壌試料を充填し、その一端から目的核種を加えた溶液を流入させ、他端から流出する溶液中の目的核種濃度を経時的に測定し、目的核種の土壌中での移動性に関する情報を得るものである。このカラム法は、バッチ法に比べSite Specific な地球化学的条件を模擬し易く、得られた分配係数によって実フィールドでの核種の移行評価が近似できる[8]と考えられる。しかしながら、測定に際し原位置地下水を用いるなど化学的な条件を十分に考慮すると共に原位置で採取した未撹乱試料を用い、さらにカラムへの溶液の通水では、フィールド条件を満足するような地下水流速を採用するなど、Siteの水理・地質的な条件についても十分に留意する必要がある。

カラム試験を実施する際の留意項目を表 5.2[1]に示す。溶液の作成においては、前述したバッチ法と同様の検討が必要である。土壌の充填時には、用いるカラムサイズや、使用する土壌を撹乱土壌とするか未撹乱土壌とするかを決定する必要がある。カラムの内径やカラム長は、カラム壁面での水の流れの乱れによる影響を小さくするために、大きくかつ長くすることが望ましい。一般に用いられているサイズは、いわゆる小カラム（内径数十mm、高さ数十cm程度）から大カラム（内径数十cm、高さ数m程度）まであり、目

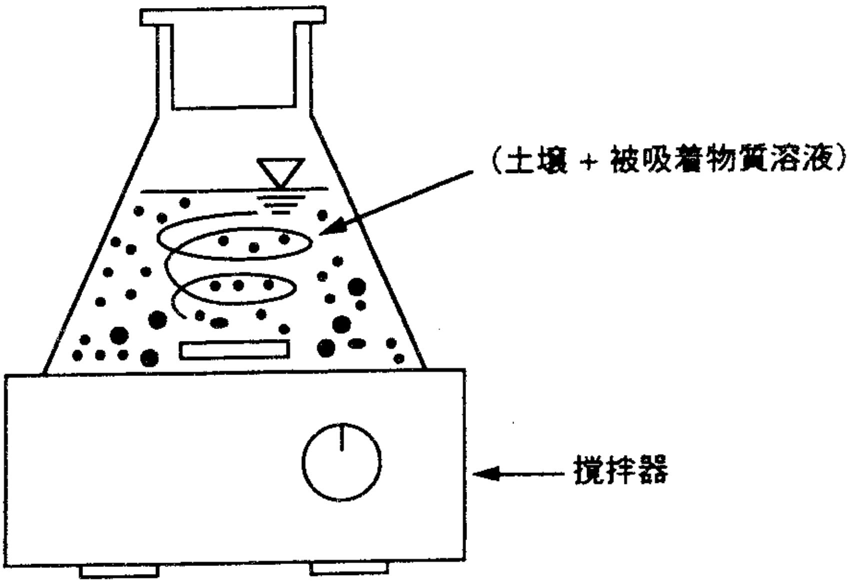


図 5.2　マグネチックスターラーを用いたバッチ試験の概要

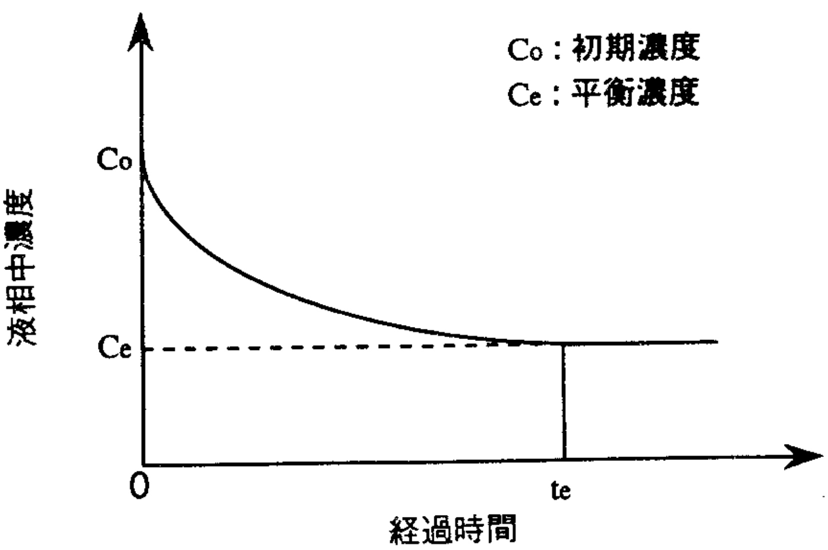


図 5.3　バッチ試験における被吸着物質液相濃度の経時変化

表 5.2 カラム試験の各実験ステップにおける検討事項[1]

実験ステップ	検討項目
被吸着物質を含む溶液の作成	・被吸着物質濃度 ・共存物質とその濃度 ・pH
カラムへの土壌充填	・カラムサイズ ・充填土壌密度 ・撹乱／未撹乱土壌
固 液 接 触 (カラムへの通水)	・通水方法 ・飽和／不飽和 ・流速
流出水・土中水の採取	・採取位置 ・採取頻度

的に応じて使い分ける必要がある。すなわち、小カラムは比較的多くのデータを得易いという利点があり、バッチ法との比較のためのデータ取得や吸着メカニズムの究明のために用いられることが多い。一方、大カラムは、実フィールドにできるだけ近い土壌環境条件を模擬し、フィールドで得られる結果を再現するために用いられる。しかし、必要なデータを得るのに相当な時間を要すること、さらに、我が国では、汚染土壌の処理が容易ではないことなどの点も十分に配慮する必要がある。

撹乱土壌を用いるか、未撹乱土壌を用いるかという点も重要な問題である。前述したように、当然、未撹乱土壌試料の方がフィールドの条件を模擬するという目的には適しているが、未撹乱土壌を使用するためにはある程度カラムサイズを大きくする必要がある。さらに、未撹乱土壌試料を用いた結果を解析する際、当然その不均一性をも考慮する必要があるが、そのためには、同一の試料による均一な土壌、すなわち撹乱土壌試料を用いたデータの解析が可能なことが前提であることは言うまでもない。逆に言えば、均一土壌中での物質移動予測ができないならば、当然不均一な媒体中での挙動予測は困難である。

通水に際しては、飽和にするか、不飽和にするか、また、通水方法は散水法やポンプによる圧入法によるか、などを検討する必要がある。流速は、フィールドと同様の流速となるように設定するのが望ましい。一般に、地下水流速は非常に小さいので、通常の散水装置やチューブポンプでは、超微流速の制御は困難である。

カラム試験の一例を図5.4に示す。また、カラム実験により得られる流出破過曲線の例を図5.5に示す。通常、この方法による分配係数の測定では、溶液中に着目核種以外に水のトレーサとしてHTOやD_2Oを加え、カラム流出液中のこれらトレーサと核種の破過曲線を比較して遅延係数（Retardation Factor）を求めるか、あるいは分配係数を変化させながら解析的に求める。ここで遅延係数とは、次のように定義される。

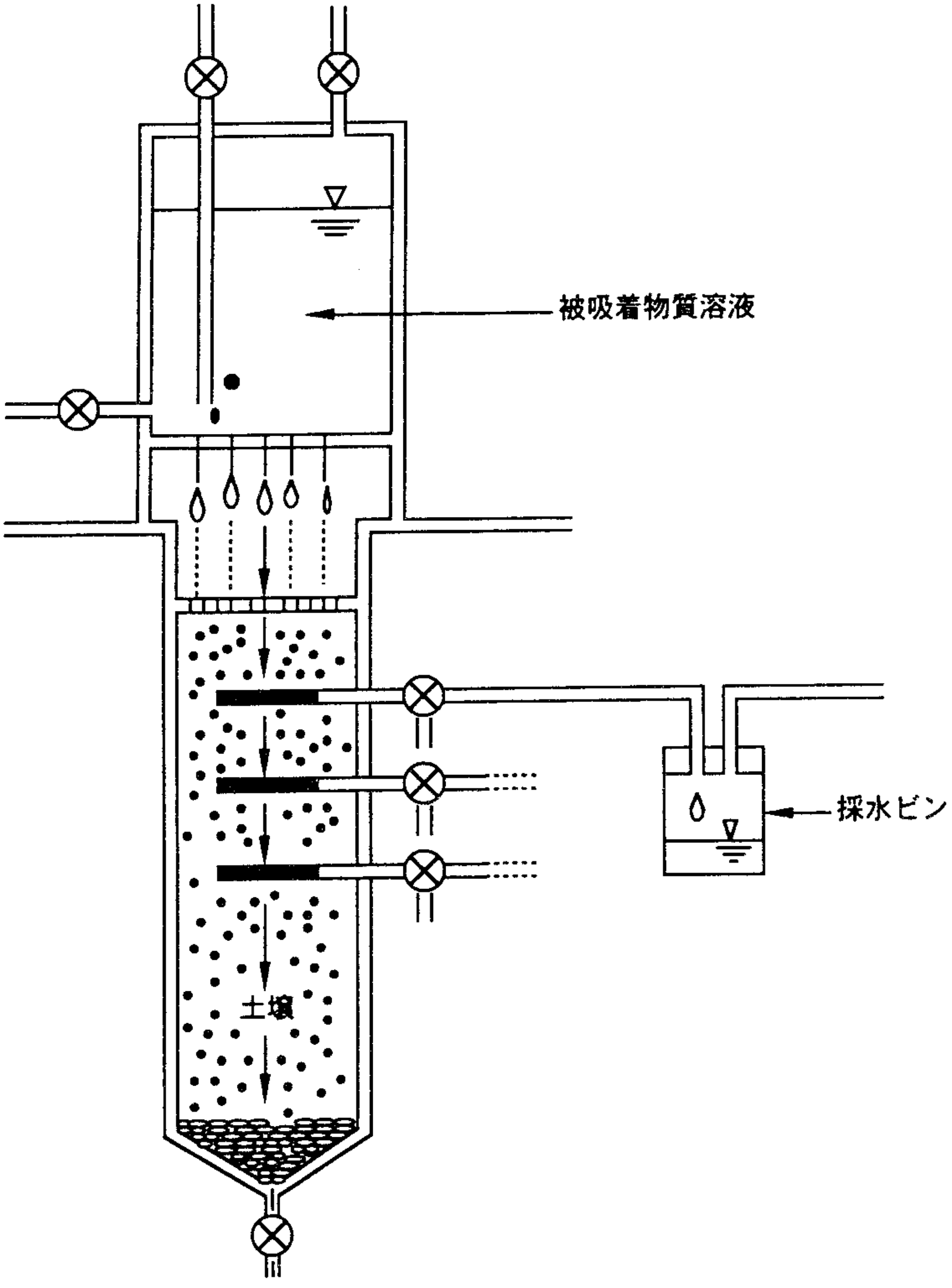
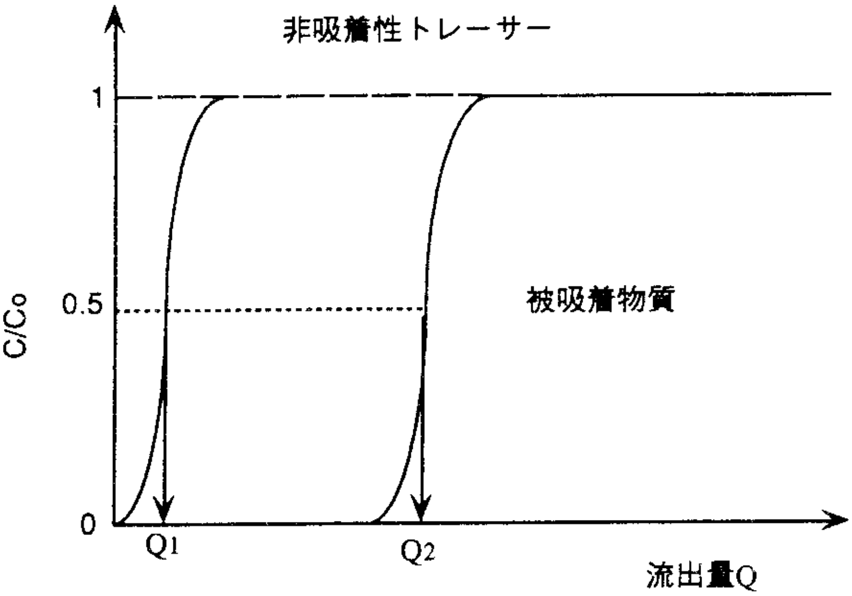


図 5.4　カラム試験概要



Rf = Q2/Q1

図 5.5　カラム試験で得られる破過曲線からの分配係数算定法

$$遅延係数\ (R_f) = \frac{地下水または土壌水の移行速度\ (m/s)}{核種の地中での移行速度\ (m/s)} \tag{5.3}$$

この遅延係数R_fは、分配係数Kd(m^3/kg)、土壌の真密度ρ (kg/m^3)、地層の空隙率f(-)ならびに飽和度S(-)（S≦1.0）を用いて

$$R_f = 1 + \frac{1-f}{fS}\rho Kd \tag{5.4}$$

と表わされ、分配係数の関数となっている。遅延係数については、第4章で記述されている（式(4.10)、(4.22)、(4.24)および(4.27)）ので、ここでは詳しくは述べない。対象とする拡散媒体により、その定義は少し異なる。式(5.4)は、地下水層だけではなく、地表近傍の通気層にも適用できるように、飽和度(S)を導入している。

また、解析的に求める方法は、次式で示される一次元移流拡散式を解き、分配係数および分散係数D(m^2/s)をカーブフィッティングから求めるものである。

$$\{f + (1-f)\rho Kd\}\frac{\partial C}{\partial t} + V\frac{\partial C}{\partial x} = fD\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \tag{5.5}$$

ここに、

V　：地下水流速 (m/s)

流出端までの距離が十分確保できる場合は、上式の初期条件および境界条件は、以下の

とおりである。

$$C(x,0)=0$$
$$C(0,t)=C_0$$
$$C(\infty,t)=0$$

この場合、比較的簡単な解析解が存在するため、分配係数をパラメータとして変化させながら解析的に流出破過曲線などにフィッティングさせ、最適な分配係数値を選定することになる。解析解が得られていない場合には、数値解析をする必要がある。

いずれにしても、破過曲線がシグモイド形とならない場合には、どの方法もそのまま適用できない。すなわち、一つの分配係数では核種の移行全体を表現できない。この場合、評価全体のバランスを考慮して、適切な分配係数を選択する必要がある。また、破過曲線がシグモイド形からはずれる移行成分について、カラム試験やフィールド試験によって十分把握しておかなければならない。さらに、複数の分配係数を用いることなど、別の算定法も考える必要がある。

最後に、カラム法のもう１つの利点について、簡単にふれておく。カラム法の場合は、流出破過曲線だけではなく、目的核種の土壌吸着分布を得られる利点がある。特に、near field における挙動は、溶液のpHや共存元素濃度が、 far field とは異なっているため、流入端付近における土壌の吸着分布を検討することにより、吸着メカニズムなどの解明に貴重な情報を得ることが期待できる。

5.3 フィールド法

フィールド法には、前述したようにフィールドにおける人工トレーサやフォールアウト核種を利用するフィールドトレーサ法と、自然環境中の（安定）同位元素を利用した賦存元素分析法の２種類がある。

1) フィールドトレーサ法

フィールドトレーサ法による分配係数測定法は、カラム法と基本的に同一であるが、フィールド条件下での地下水または土壌水の流動を利用する点が異なる。得られる分配係数は、Site Specific な地球化学条件と水理・地質的な条件を満足している点で、最も理想的なもの[(8)]といえる。このフィールドトレーサ法は、さらに次の２つに分けられる。

(a)人工トレーサ法：人工的にトレーサを自然環境中の不飽和土壌あるいは地下水中に投入し、その環境中での移動を、土壌あるいは地下水試料を定期的に採取し、その分析測定データによって追跡する方法である。

(b)フォールアウト利用法：大気圏内の核爆発実験などによって環境中に放出された核分裂生成物をトレーサとし、主に地表面から鉛直下方向の不飽和土層中の移行を、未撹乱の土壌を採取し分析測定することによって追跡する方法である。しかしながら、後述するように、この方法は使用できる核種が限られている。

これらの方法は、人為的な要因に左右されないような条件下で実験・観測を行うことができる利点を有するが、バッチ法、カラム法と比較すると実験費用がかさみ、また実験期間も長期に及ぶという欠点があげられる。

人工トレーサ法においては、国内で放射性核種をトレーサとして用いることは困難で

表 5.3 放射性^{90}Srおよび安定Srの分配係数値の比較[15]

核種	液相濃度	固層濃度	分配係数(m^3/kg)
^{90}Sr	0.96 ± 0.15 Bq/m^3 *1	0.45 ± 0.041Bq/m^3 *1	0.47 ± 0.08
安定Sr	5.6 10^{-5} kg/m^3	3.5 10^{-5} kg/m^3 *2	0.63
		4.1 10^{-5} kg/m^3 *3	0.73

*1　科技庁放射能測定法シリーズ２、放射性ストロンチウム分析法による

*2　1 NCH_3COONH_4抽出による

*3　*1と同様の前処理による（発煙硝酸法）

あるため、それを模擬した安定同位元素をトレーサとして使用せざるを得ない。このため、安定同位体が存在しないTRU核種に対しては用いられない。さらに、比較的広範囲におよぶフィールドにおいてトレーサを長期間追跡する必要があるため、たとえ検出感度が良い放射化分析を用いる方法、すなわち、アクチバブルトレーサを使用したとしても検出が困難なので、使用トレーサの投入濃度（初期濃度）は、かなり高濃度になってしまう。そのため、このような方法で測定された分配係数はトレーサ自身の濃度依存性、共存物質濃度依存性等を明確にする必要がある[9]。

フォールアウトを利用した例としては、次節で述べるように、馬原らが長崎で実施した、１９４５年８月９日のプルトニウム型原爆を起源とするプルトニウム（Pu）、セシウム（Cs）およびストロンチウム（Sr）の不飽和土壌層[10]や貯水池底泥中の濃度分布測定[11,12]の研究が、ローカル・フォールアウトの利用例としてあげられる。しかし、一般には大気圏内核爆発実験に由来するSr[13]等のグローバル・フォールアウトを対象に、不飽和土壌層中の濃度分布を測定した研究が多い。この方法を適用できる地質条件として、地下水位が深く不飽和層が厚いことが必要である。

また、１９６０年代には、地下水流速測定のために^{24}Naや^{131}Iをトレーサとして利用したアイソトープ流速計[14]を現場に適用してのフィールド実験が行われている。

2)　賦存元素分析法

ある土壌・地下水系あるいは岩盤・地下水系において、バックグラウンドとして存在する元素の固液相濃度比はほぼ一定であると考えられる。したがって、この系にバックグラウンド濃度と比較して十分に低い濃度の放射性核種が流入した場合、放射性核種の固液相濃度比は、同位体交換反応等を通して、放射性核種流入前の安定同位元素の固液相濃度比と一致すると予想される。すなわち、バックグラウンド安定同位元素の分配係数をそのまま放射性核種の分配係数として適用できることが期待される。表5.3は、不飽和ローム土壌とその土中水に対して安定Srおよび^{90}Sr濃度を測定し、それぞれの分配係数を比較したもの[15]である。この表からSrに対しては、安定Srおよび^{90}Srを分析して得られた分配係数値は比較的よく一致することがわかる。また、五十嵐ら[15]は、地下水とその帯水層試料を同時に採取し、それを放射性核種を用いたバッチ試験に供し、測定された放射性核種の分配係数値と、それら試料に含まれる安定同位元素濃度の測定値から求めた

分配係数値とを比較した。その結果、安定同位元素が極低濃度であるCsを除くSr、コバルト（Co）、ニッケル（Ni）などについては、放射性核種の分配係数と安定同位元素の分配係数とが比較的よく一致していることが分かった。

この方法を確立していくために、今後検証データを蓄積していく必要がある。特に、土壌中の安定元素濃度を決定する際の抽出剤(16)が問題となろう。当然、全分解では、地下水や土壌水中の目的元素の土壌への吸着に全く関与しないフラクション中の元素も含まれているため、分配係数値は大きくなり、物質の易動性に関しては過小評価となってしまう。適切な抽出剤を選定することがこの方法の確立に不可欠である。また、近年環境中の元素濃度の分析器の開発［誘導結合プラズマ質量分析器（ICP-MS）等］が進み、これまではかなり困難であった極低濃度の分析が比較的容易にできるようになった。この点も、この推定法が有力な方法となりつつある要因の１つである。

5.4 フィールド法とバッチおよびカラム法との比較

フィールド法によって得られる分配係数は、Site Specificな地球化学条件と水理・地質的な条件を満足している点で最も理想的なものといえる。しかし、放射性核種を直接人為的にフィールドに散布することは、法的な制限もあり困難である。放射性核種を用いずに、それに替わる安定同位体を用いたトレーサ実験は安定元素が存在しないTRU核種に対して用いることは不可能であるし、分析上の問題あるいはトレーサ濃度の影響等の問題を含んでいる。しかしながら、過去の核実験やチェルノブイリ等の事故等によって天然環境に放出された放射性核種の分布を調査し、地下水や土壌水の移動速度と比較することにより核種の分配係数を推定することができる(12)。この場合、活用できる核種としては、比較的半減期の長い^{90}Sr、^{137}Cs、$^{239+240}$Pu等に限定されている。この手法のメリットは、実環境条件下での長期の吸着挙動の結果に基づくデータが得られる場合が多い点にある。

a）Puの分配係数の測定例(10,17)について

１９４５年の長崎原爆の際に環境に放出されたフォールアウトPuを活用してのフィールド調査を、未核分裂Puが比較的高濃度で蓄積している長崎市西山地区で行った。またこの調査と並行して、フィールド調査の際に得た土壌コアー（シルト質ローム）ならびに地下水を用いて、室内でバッチ法ならびにカラム法でのPuの分配係数測定の実験を行った。この調査および実験における土壌・地下水の化学的特性ならびに各実験条件を表5.4に、得られた結果を図5.6に示す。これらの結果から、Puの環境中での挙動予測において、Puの酸化状態(Oxidation States)の違いや同位体の違いについて考慮する必要があることがわかる。この研究の場合、室内実験で用いたPuはいずれも^{239}Pu（フィールド調査の対象は$^{239+240}$Pu(^{240}Puは５％以下）であり、同位体による違いは無視できる。酸化状態については、バッチ法・カラム法に用いたPuは、TTA・キシレン抽出法によって確認した結果Pu(IV)であり、一方、フォールアウトPuは過去の報告(18)を参考に考えると多くはPu(V＋IV)であると推測される。

図5.6の結果を見ると、バッチ法で測定したPuの分配係数は、pHの変化に伴い大きく変動し、中性～弱アルカリ領域で非常に大きくかつその変動も大きくなる。カラム法で測定したPu（IV）の分配係数（8,600ml/g)は、バッチ法で測定した結果に比べて若干小さな

表 5.4 Puの分配係数測定に用いた土壌・地下水の特性とバッチ法、カラム法、フィールド法の実験条件

	土壌粒径分布(%)			土壌密度 (g/cm³)	陽イオン交換容量(meq/100g)	鉱物組成
土壌 (シルト粘土ローム)	粘土(<0.005 mm)	シルト(0.005～0.074mm)	砂(>0.074 mm)	2.59	13.2	ハロイサイト(中) 石英(中) 斜長石(中) モンモリロナイト(小) クリストバライト(中) 赤鉄鉱(小) クロライト(小) リンケイ石(小) チタン鉄鉱(小)
	43	47	10			

	電気伝導度 (μScm^{-1})	pH	溶存有機炭素 (mg/ℓ)	Ca^{2+} (mg/ℓ)	Mg^{2+} (mg/ℓ)	Na^{+} (mg/ℓ)	K^{+} (mg/ℓ)	SO_4^{2-} (mg/ℓ)	HCO_3^{-} (mg/ℓ)	$C\ell^{-}$ (mg/ℓ)
地下水	125	7.7	2.7	6.8	3.9	8.6	1.5	12.0	38.0	9.0

分配係数測定実験条件

バッチ法	① Puの化学形態： Pu(IV) ② Pu濃度： 3.7～37(Bq/mℓ) ③ 固液比： 1:100 (土壌 0.5g, 溶液50mℓ) ④ 撹拌条件： 出来るだけゆっくりと回転	⑤ 土壌は風乾状態 ⑥ 吸着実験時間： 24時間 ⑦ 地下水は原位置地下水 ⑧ pH調整は必要な場合 0.1NHCℓと0.01NNaOH にて調整	⑨ 遠心分離： 2000rpm 60分 ⑩ 0.45μmメンブランフィルターで分離
カラム法	① Puの化学形態： Pu (IV) ② Pu溶液濃度： 3.75(Bq/mℓ) ③ カラム内径： 20mm カラム長： 100mm ④ 風乾土壌 33.2gを空隙率 0.53 で充填 ⑤ 0.14mℓ/分で3000mℓ通水	⑥ Pu溶液は, 原位置地下水にPu (IV) を加えた ⑦ pHは通水前 7.85 通水完了後 7.10 に変化 ⑧ Kdは土壌内Pu濃度分布より一次元拡散方程式を解き求めた。 遅延係数は20000	
フィールド法	① Puの化学形態： Pu (V+VI) フォールアウトPu ② Pu鉛直分布は, 直径30cm, 長さ225cm 未攪乱土壌を採取し, スライスして求めた ③ Puの土壌濃度 0.037～60(Bq/kg) ④ Puの分析は, 化学分離の後電着し, α－スペクトルメトリーにて測定	⑤ 土壌水の浸透速度は, 降水中トリチウムの土壌コアー内濃度分布より, 解析的に求めた。後日, Br^- トレーサーテストにて再確認 土中水浸透速度 2.5 m/年 ⑥ フォールアウト降下後38年後のPu濃度分布と土中水浸透速度を用いて, 一次元拡散方程式を解きPuの遅延係数2000を求めた。Puの浸透速度は, 1.25mm/年である。	

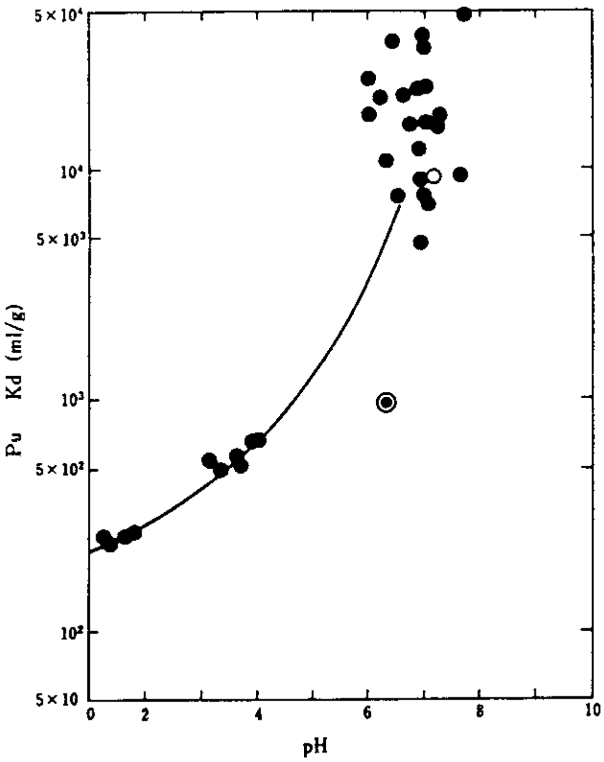


図 5.6　pHの変化に伴う^{239}Puの分配係数値（バッチ法）の変動と、カラム法およびフィールド法で測定した^{239}Puの分配係数値の比較(17)

値となるが、それでもバッチ法で測定した分配係数の変動の範囲に含まれている。

一方、フィールド調査によって得られたフォールアウトPuの分配係数は960ml/gと、バッチ法やカラム法で測定されたPu(IV)の分配係数の1/10の大きさで、これはPuの酸化状態の違いが結果に大きく影響を与えていることを示唆している。Pu(V+IV)のフィールドで測定された分配係数としては、Nelsonらがセラフィールドでの調査の中で10^3～10^4(ml/g)程度と、同一の調査でPu(IV)が10^4～10^6(ml/g)程度であったのに比べ1/10～1/100となることを報告している(19)。

b）^{90}Sr、^{137}Csの測定例について

前述の^{239}Puと同様に、長崎原爆によって環境に放出された^{90}Sr、^{137}Csの約４０年後の通気層内での鉛直分布を調査し、土壌水の浸透速度と比較することにより、これら核種の遅延係数を推定し、これより分配係数を評価した。この場合、前述の^{239}Puの推定方法に比べ若干工夫を要す。それは、フォールアウトの起源としてローカルなフォールアウトだけでなく、核実験によって地球上全体に放出されたグローバル・フォールアウト成分の分離と定量、また、^{239}Puの場合には無視できた放射性崩壊による減衰の補正を必要とする点である。これらの手法の詳細については、他所で述べているのでそれを参照されたい(12)。その結果、^{90}Sr、^{137}Csのフィールド法による分配係数はそれぞれ300ml/gと1,200ml/gであり、同一土壌・地下水系で測定したバッチ法での分配係数は^{90}Srに対し149±53ml/g、^{137}Csに対し539±124ml/gであった。これはフィールド法で求めた分配係数の方がいずれの

核種に対しても２倍以上大きいことを示している。その原因については、化学形を含め色々考慮されるべきであるが、その１つに相互反応（吸着）時間の長さも影響していると考えられる。

第５章の参考文献

(1) 五十嵐敏文：「環境パラメータシリーズ２」（原子力環境整備センター），15-29 (1990).

(2) 福井正美：放射性廃棄物処分の環境影響評価における分配係数の変動要因, 原子力学会誌, 32, 142-148 (1990).

(3) 例えば福井正美、桂山幸典：飽和砂層内におけるCsおよびSrイオンの吸着モデルに関する研究, 土木学会論文報告集254号, 37-48 (1976).

(4) 大江俊昭：岩石中へのストロンチウムおよびセシウムイオンの吸着速度, 電中研研究報告 283102 (1984).

(5) 加藤尚武, 中道孝一, 田坂広志, 浅野闘一：土壌環境における多成分系破過曲線の推算, 原子力学会誌, 25, 577-582 (1983).

(6) 井上頼輝, 森沢真輔, 宮武法善：非イオン状Y-90の地中移動, 原子力学会誌, 18, 445-451 (1976).

(7) Ohnuki T. : Migration of radionuclides (^{60}Co, ^{85}Sr and ^{137}Cs) in alkaline solution (pH:12) through sandy soil layer, J.Nucl.Sci.Technol., 23, 643-649 (1986).

(8) 馬原保典：公衆の線量評価に用いる環境パラメータ, 原子力学会誌, 34, 387-392 (1992).

(9) 五十嵐敏文, 馬原保典, 河西基他：不飽和ローム層中の物質移行に関するフィールド試験, 電中研研究報告 U87087 (1988).

(10) Mahara Y. and Miyahara S. : Residual plutonium migration in soil of Nagasaki, J. Geophy. Res., 89. No B9. 7931-7936 (1984).

(11) Mahara Y., Kudo A., Kauri T., Santry D. C. and Miyahara S. : Mobile Pu in reservoir sediments of Nagasaki, Japan. Health Physics, 54, 107-111 (1988).

(12) Mahara Y. : Storage and migration of fallout strontium-90 and cesium-137 for over 40 years in the surface soil of Nagasaki, J. Environ. Qual., 22, 722-730 (1993).

(13) 森沢真輔, 井上頼輝, 鎌田博, 内田滋夫：フォールアウトSr-90の成層通気層内移動とその分布予測, 原子力学会誌, 25, 1020-1034 (1983).

(14) 落合敏郎：放射能式地下水探査法, 昭晃堂, 203-208 (1965).

(15) 五十嵐敏文, 馬原保典, 駒田広也：自然環境中の安定核種による放射性核種分配係数推定法, 電中研研究報告 U87063 (1988).

(16) 五十嵐敏文, 馬原保典, 岡村正紀, 芦川信雄：放射性ストロンチウムの分配係数と自然環境中の安定ストロンチウムの固液相濃度分配比との関係, Radioisotopes, 41, 350-356 (1992).

(17) Mahara Y. and Matsuzuru H. : Mobile and immoble plutonium in a groundwater environment, Wat. Res., 23, 43-50 (1989).

(18) Fukai R., Yamato A., Thein M. and Bilinski H. : Oxidation states of fallout plutonium in Mediterranean rain and seawater, Geochem. J. 21, 51-57 (1987).

(19) Nelson D. M. and Louett M. B. : Oxidation states of plutonium in the Irish Sea, Nature, 276, 599-601 (1978).

6．分配係数の調査・測定例

6.1 「土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数」（原子力環境整備センター編）(1)

原子力環境整備センターでは、放射性核種の環境移行予測モデルに必要な環境移行パラメータの収集を行い、パラメータ集として刊行してきた。これまでに第4集まで刊行され、現在第5集が準備中である。その第2集は、分配係数のデータ集である。これは、1980年以降のデータを中心に、論文や学会の要旨集などに報告された分配係数値に関するデータを収集したものである。

岡林および内田は、国内外における土壌および岩石の分配係数値を文献調査により収集し、種々の整理を試みた。表6.1および表6.2に、文献調査により収集した分配係数値の一部（土壌のみ）を示す。収集した文献数は、国内：44、国外：60である。表6.1は、国内外のデータについて、主な核種ごとに整理したものである。分配係数は、核種だけでなく土壌や岩石の種類によっても異なるため、分配係数値は5桁程度の幅を示している。このような幅を有するため、安全評価を実施する際、どのような値を採用すべきかは簡単に決定できない。表6.2は、収集したデータの中からさらに、実験に使用した土壌の情報があるものだけを抽出し、分配係数値を3種類の土壌（Sand、Loam、Clay）ごとに分類したものである。このように土壌種ごとに分類すると、分配係数値の変動幅はだいたい3桁以内となり、分類しない場合と比べて1ないし2桁程度小さくなることが分かる。

このパラメータ集では、土壌については、上述の3種類の分類（Sand、Loam、Clay）の他、国外のデータについては、農耕地および泥炭も別に分類してある。岩石に関しても、花崗岩だけは単独でデータをまとめてあるが、さらに、国内では凝灰岩のデータも多かったので別に整理してある。海水および淡水の堆積物中の分配係数値も掲載してある。

また、各文献において、分配係数測定法が明らかになっているものは、参考文献のリストにその方法を示した。また、固液分離法についても、同様に個々の文献にあたり、それぞれの分離法（濾過、遠心分離および静置）を記載した。しかし、残念ながら、本パラメータ集において収集したこれらのデータを用いて、分配係数値の分布形の確認、さらにその平均値や標準偏差などの値を求めることはできなかった。それは、十分なデータ数を得ることができなかったことに加え、実験方法の違い、特に、安定元素の添加の有無や溶液中の共存元素濃度に関する詳細な記述の欠如、使用した土壌や岩石の物理的・化学的特性の記述の欠如などの理由による。特に、わが国の文献は、分配係数値以外の情報を記載しているものは少なく、データ数も限られるため、統計解析をすることが出来るだけの情報を得ることは困難と思われる。また、このような文献調査では、個々の文献中のデータの質が同一ではないことも、データ・ベース化しにくい要因の1つである。例えば、ある文献中では、幾つかのデータの平均値のみが記載されており、一方、他の文献では、個々のデータが詳しく記載されている。このパラメータ集では、各文献を調査する際、分配係数算出にあたって、1つの核種について測定した試料数が15以上のもの、および30以上のものを区別して分類したが、それ以上の検討を加えるにはいたらなかった。このように、質の異なるデータをどのように扱えばよいかということも重要な課題であろう。

表 6.1 収集された分配係数値の変動幅

	国内	国外
Sr	$0-9.0\times10^{3}$	$0-1.0\times10^{5}$
Cs	$1.0\times10^{0}-1.1\times10^{5}$	$1.0\times10^{0}-1.9\times10^{5}$
Co	$3.0\times10^{0}-1.2\times10^{4}$	$1.0\times10^{-1}-1.0\times10^{5}$

（単位：ml/g）

表 6.2 (1) 土壌種別分配係数値の変動幅（国内）

	sand	loam	clay
Co	$3.0\times10^{0}-1.0\times10^{3}$	$1.0\times10^{1}-3.3\times10^{3}$	$2.0\times10^{1}-1.2\times10^{4}$
Sr	$5.0\times10^{-1}-6.8\times10^{2}$	$5.0\times10^{-1}-2.7\times10^{3}$	$1.0\times10^{1}-9.0\times10^{3}$
I	4.0×10^{1}		
Cs	$3.0\times10^{0}-8.0\times10^{3}$	$1.0\times10^{0}-2.5\times10^{3}$	$5.0\times10^{1}-7.0\times10^{4}$
U	4.6×10^{3}		
Pu	$9.7\times10^{2}-1.9\times10^{3}$	$2.4\times10^{3}-4.6\times10^{3}$	$6.0\times10^{2}-7.0\times10^{2}$
Am	$1.0\times10^{1}-1.0\times10^{3}$	$6.0\times10^{1}-7.0\times10^{4}$	$1.6\times10^{3}-3.5\times10^{4}$

（単位：ml/g）

表 6.2 (2) 土壌種別分配係数値の変動幅（国外）

	sand	loam	clay
Co	$1.0\times10^{2}-4.8\times10^{3}$		$2.0\times10^{0}-1.2\times10^{4}$
Sr	$3.0\times10^{-1}-1.7\times10^{2}$	$9.0\times10^{-1}-1.5\times10^{2}$	$1.0\times10^{0}-1.0\times10^{5}$
I			$5.0\times10^{-1}-1.5\times10^{3}$
Cs	$6.0\times10^{0}-3.8\times10^{3}$		$4.0\times10^{-1}-1.1\times10^{5}$
U	$1.0\times10^{-1}-2.2\times10^{3}$	$2.0\times10^{0}-7.3\times10^{1}$	$2.0\times10^{0}-6.5\times10^{2}$
Pu	$3.2\times10^{1}-1.8\times10^{3}$		$4.0\times10^{1}-4.0\times10^{4}$
Am	$7.5\times10^{1}-8.0\times10^{2}$		$4.0\times10^{0}-1.0\times10^{7}$

（単位：ml/g）

6.2　耕地土壌における分配係数測定例

前節で述べたように、我が国における分配係数のデータは少なく、特に耕地土壌における分配係数のデータおよびその変動特性に関して考察した研究は限られている。その研究例として、Yasudaら[2]が、日本各地の農耕地より集めた表層土壌を対象として、マンガン（Mn）、コバルト（Co）、亜鉛（Zn）、ストロンチウム（Sr）およびセシウム（Cs）の5核種の分配係数値について統計学的な考察を行っている。以下にその概要（実験試料・方法および結果）について記述する。

実験試料および実験方法

試料土壌は、国内の農耕地（畑および水田が半数ずつ）から採取した36種類の表層土壌（深さ30cm以内）である。核種は、^{54}Mn, ^{60}Co, ^{65}Zn, ^{85}Sr, ^{137}Cs（いずれも塩酸溶液中陽イオン）を、溶媒には茨城県東海村で採取した雨水（pH4.5, EC：0.065 mS/cm）を使用している。

吸着実験は、バッチ法（第5章1節参照）による。ポリ容器（50mL）に土壌3gと溶媒30mLおよび1-10kBqの上記5核種を加え、23°Cの恒温振とう器内で7日間振とうし、遠心分離（～4,000rpm）および0.45μmメンブランフィルターによるろ過を行って採取した土壌溶液中の放射能濃度（γ線強度）を、マルチチャネル波高分析器付Ge半導体検出器（Ortec GEM-30185）によりカウントしている。分配係数は，実験前後の土壌溶液中放射性核種濃度の変化から求めている。

実験結果および考察

得られた分配係数の累積確率分布を図6.1に示す。Shapiro-Wilkの検定[3]の結果から、Mn以外の4核種（Co, Zn, Sr, Cs）について、分配係数値の分布は正規分布ではなく対数正規分布で近似できることが分かる。各核種の分配係数に関する統計値を表6.3に示す。Srの分配係数は他の3核種の分配係数よりも有意に低い値となっている。畑土と水田土の間での比較では、両群が異なる母分散の対数正規分布をするとの仮定の下でt検定を行った結果、平均値の有意差（$p<0.05$）は認められなかった。ただし、この実験は酸化的条件下で行っており、実際の水田土壌の還元的雰囲気を再現していないので、酸化還元電位の影響について今後検討を加える必要がある。

次に、分配係数と土壌特性値との関係について、両者間の順位相関係数（Spearman's rank correlation coefficient）を表6.4に示す。これらの特性値の内、イオン交換能に関与すると考えられる特性値が分配係数値と強い正の相関を示す傾向が見られる。最も高い相関が見られる特性値は核種によって異なり、交換性Ca含有量（Mn, Co）、風乾時含水率（Zn）、陽イオン交換容量（Sr）となっている。また、Csの分配係数については、交換性K含有量がゆるやかな相関（順位相関係数：0.44）を示しているが、特に相関の高い特性値は認められず、Csの土壌吸着機構の特異性が示唆されている。各核種の分配係数について、最も相関が高い特性値とのプロットを図6.2に示す。

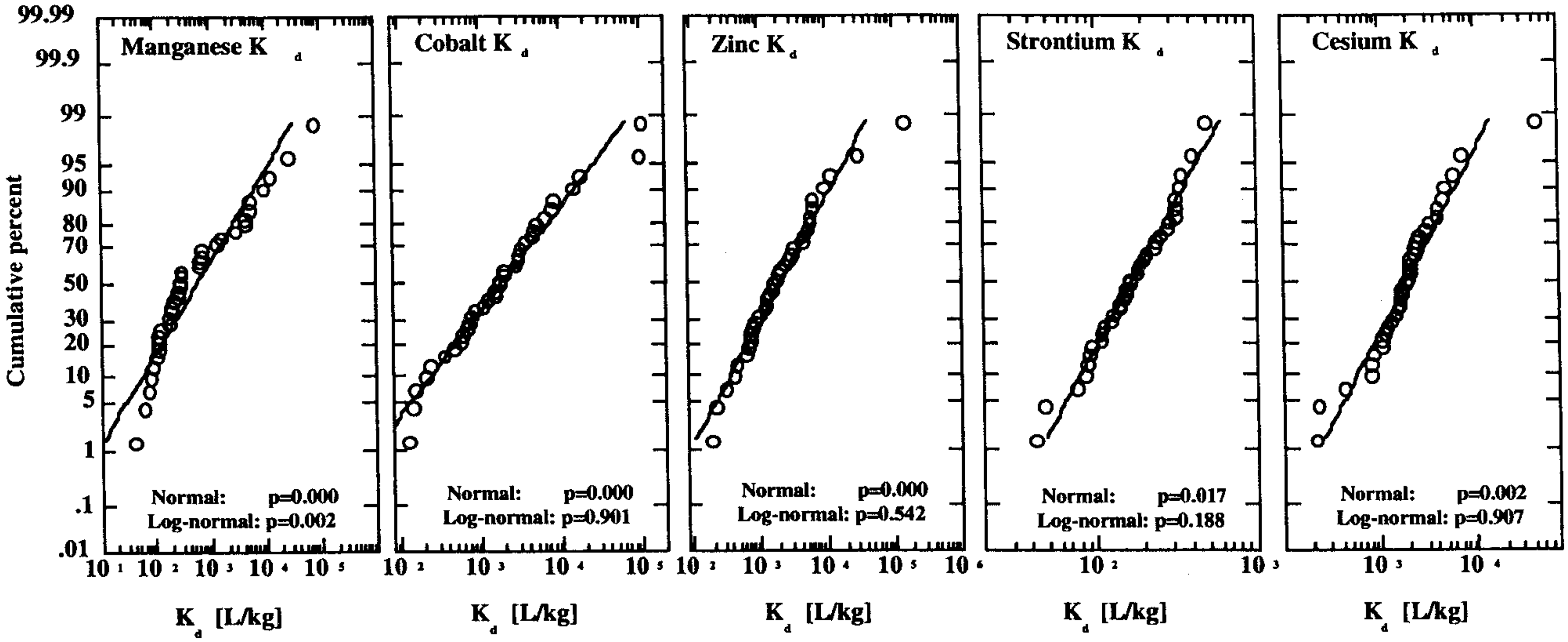


図 6.1　室内実験で得られた分配係数値の累積確率分布(2)；図中のp値は、90パーセント（5-95パーセンタイル）のデータを用いてShapiro-Wilkの検定法(3)により正規分布および対数正規分布の適合性を検定した結果を示す。

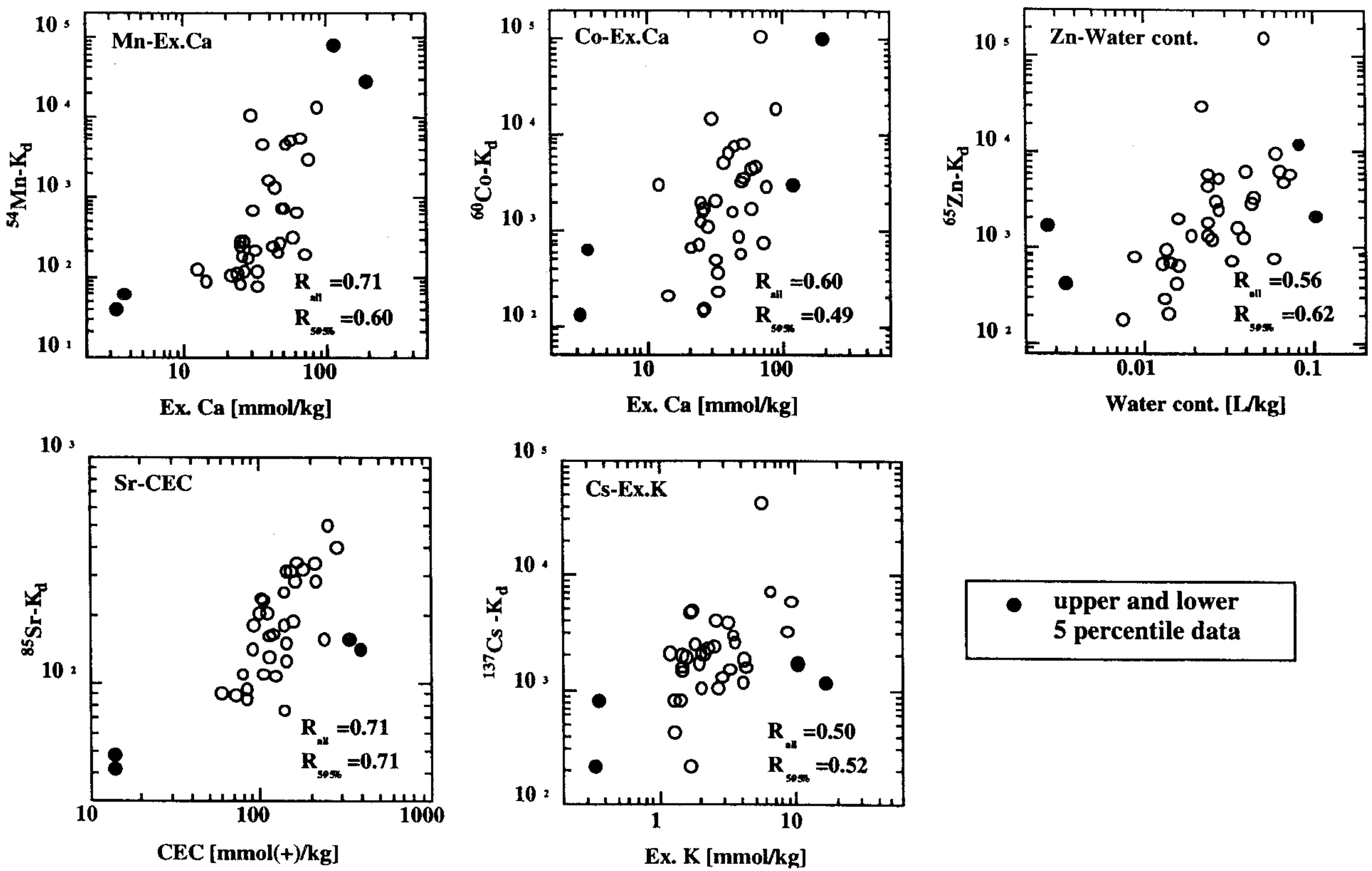


図 6.2　各核種において最も高い順位相関係数が得られた土壌特性値と分配係数とのプロット；
上段のRはピアソンの相関係数、下段はスピアマンの順位相関係数

表 6.3　バッチ実験で得られた分配係数についての統計値

nuclide	distribution type[a]	min	median	max	geometric mean	std.dev. com.log.[b]	p value in t-test[c]
^{54}Mn	-	39.7	271	79040	-	-	-
^{60}Co	log-normal	130	1735	103600	1837	0.70	0.88
^{65}Zn	log-normal	185	1756	153100	2027	0.60	0.56
^{85}Sr	log-normal	42.0	163	498	166	0.25	0.51
^{137}Cs	log-normal	215	1896	42610	1849	0.41	0.42

[a] Each distribution type was determined by the Shapiro-Wilk test with a significance level of $p>0.05$.
[b] The standard deviation of the common logarithm.
[c] The probability when the geometric means are assumed to be the same between upland and paddy soils (n=18 for each).

表 6.4　各核種の分配係数と土壌特性値とのスピアマンの順位相関係数

nuclide	water cont.	$pH(H_2O)$	CEC	exchange-able Ca	exchange-able K	total Ca	total K	total Fe	total Al	NH_4 pro-ductivity.	total C	total N
54Mn	0.55	0.57	0.58	0.75	0.48	0.23	-0.13	0.22	0.31	-0.18	0.40	0.20
60Co	0.53	0.53	0.52	0.59	0.31	0.21	-0.15	0.27	0.47	-0.27	0.37	0.11
65Zn	0.67	0.28	0.43	0.27	-0.05	0.52	-0.46	0.59	0.47	-0.41	0.26	0.15
85Sr	0.57	-0.02	0.64	0.35	0.09	0.37	-0.34	0.54	0.51	0.10	0.54	0.43
137Cs	0.12	0.18	0.12	0.19	0.44	0.22	0.04	0.20	0.24	-0.21	-0.20	-0.25

6.3 天然バリア材における分配係数測定例

分配係数測定法としてバッチ法を用いる場合、その試験方法の詳細を設定するにあたって、いくつかの項目について検討しなければならない（第5章1節参照）。そして、場合によっては、各実験条件の測定値に対する影響確認試験を行う必要がある。図6.3にバッチ法による実験手順例を示すとともに、代表的な影響確認試験について以下に記述する。

本測定に供した試料は、標高30～60mの主に第3紀層（砂岩・凝灰岩）で構成された台地からボーリング採取したものである。なお、この台地のごく表層部は第4紀層で覆われており、これも試料とした。

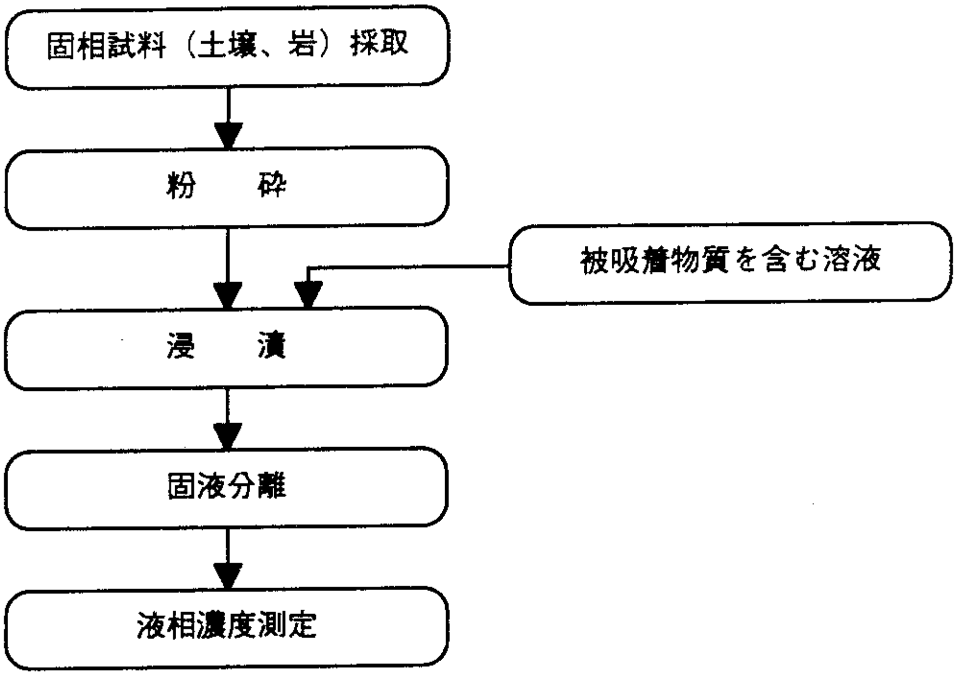


図6.3　バッチ法による実験手順例

<u>粒径</u>

固結度の高い岩試料等を粉砕する場合は、粉砕の程度や粉砕後の試料の分取の過程等において、その操作が測定結果に与える影響について十分留意する必要がある。例えば、比表面積の著しい増加を避けるために、小さな粒径成分を除去した場合、試料本来の化学組成・鉱物組成を変えてしまうことを考慮しなければならない。

各試料を粉砕、分級して、各粒径ごとの分配係数を測定した結果を図6.4に示す。図に見られるように、核種や岩種によっては、粒径の変動が分配係数値に大きく影響を与える。このような場合は特に、粉砕や分取の方法等について十分留意しなければならない。

また、浸漬時間を変化させたときの、各粒径ごとの^{137}Csの分配係数値及びその液相中濃度を、それぞれ図6.5、図6.6に示す。分配係数値はいずれの粒径においても時間とともに上昇し、かつ時間とともにその粒径依存性が相対的に減少する傾向を示している。図6.6に示すように、10,000ml/gを超える分配係数値は、液相中^{137}Cs濃度が数十cpm以下という低濃度の分析結果をベースとしているため大きな測定誤差を含んでいるが、時間と

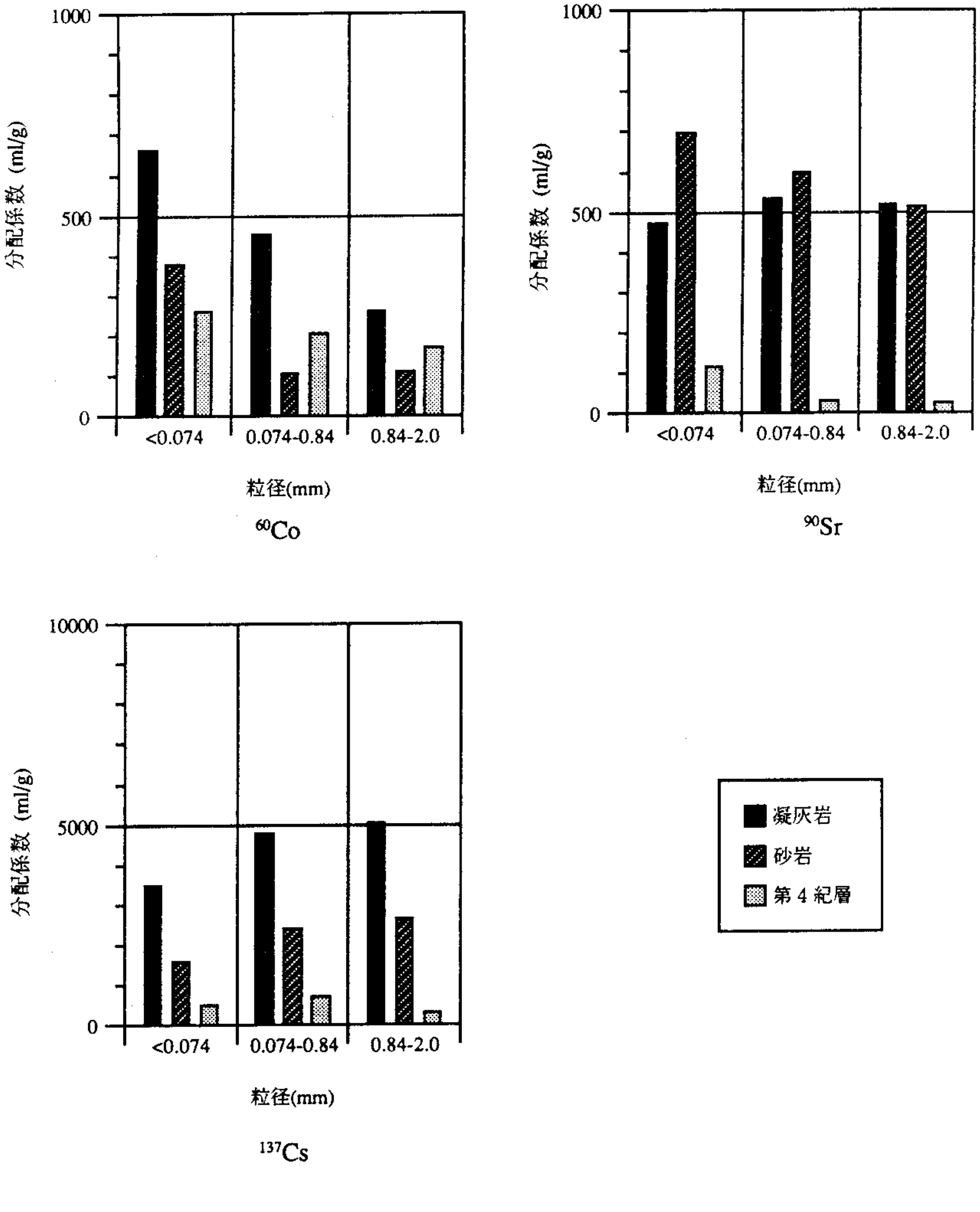


図 6.4　試料の粒径による影響確認試験結果（1 週間浸漬、固液比 1 : 10）

ともに液相中濃度の粒径依存性が減少する傾向が同様に認められる。つまり十分な接触時間を確保することにより、分配係数の粒径依存性が小さくなることもあり得る。その理由として、図6.5より、平衡到達時間が14日以上と長いと考えられることから、試料の亀裂内への拡散・吸着が生じていることも推察される。このように、岩石等を粉砕した試料の場合は、吸着平衡時間についても十分検討する必要があろう。

固液比

固液比を変えた場合の分配係数値への影響確認試験の例を図6.7に示す。固液比が増加するのに従い、分配係数値が小さくなる傾向が見られ、特に砂岩と凝灰岩でその影響が大きい。すなわち、固液比の増加に伴い、共存イオン等、溶液中に溶存する物質の濃度が高くなることにより、分配係数値は小さくなると考えられる。特に、固液比が1:10を下回る条件で固液比の影響が大きく表れているが、その理由として、極度に固液比を小さくした場合には、固相への吸着量が少なくなることにより、固相以外への吸着の影響が相対的に大きくなることが考えられる。

また、固液比が比較的高い条件においては、上述の溶存物質濃度の影響の他に、いわゆる「ぬれ性」(固相の増加によって固相表面が液相とが十分に接触しにくくなる）の影響が加わっていると考えられる。固液比の設定においては、これらの影響を十分に検討する必要があろう。

「ぬれ性」の影響について検討した結果を図6.8に示す。これは、浸漬中の振とう操作の有無による^{137}Csの分配係数の差異を検討したものである。この図より、固相と液相とが十分に接触するための操作を加えることにより、固液比が比較的大きな条件においても分配係数が大きな値となることが示唆される。このことは、粒径の影響と同様に、浸漬時間を十分に確保することにより、固液比の影響が小さくなる可能性があることを示唆している。しかし、むやみに長い浸漬時間は、微生物による影響を招く可能性がある。また、強い振とう操作では、土粒子の破壊などによる影響が生じることもある。よって、このような影響を十分に考慮した上で、固液両相の十分な接触を確保することが重要である。

浸漬温度

浸漬温度が分配係数に及ぼす影響の試験結果を表6.5に示す。表中のデータは十分な平衡値であるとは言いがたいが、平衡定数は一般に絶対温度の関数と言われるように、ここでは温度と分配係数の間に若干の正の相関が見られる。特に、地表近傍で採取した第4紀層の分配係数は、他の2つの試料よりも温度の影響が大きく、その中で最も影響の大きい^{90}Srは、10℃から25℃へわずか15℃の増加で、分配係数が40ml/gから570ml/gへと10倍以上高くなっている。これは、温度の上昇により微生物の活動が活発になったことが理由の1つとして考えられる。したがって、フィールドにおける温度変化を十分考慮して、バッチ実験の温度設定をする必要があろう。

浮遊物・沈下物形成等による損失

被吸着物質が溶解度を超えて存在する実験系においては、沈殿の生成が分配係数の測

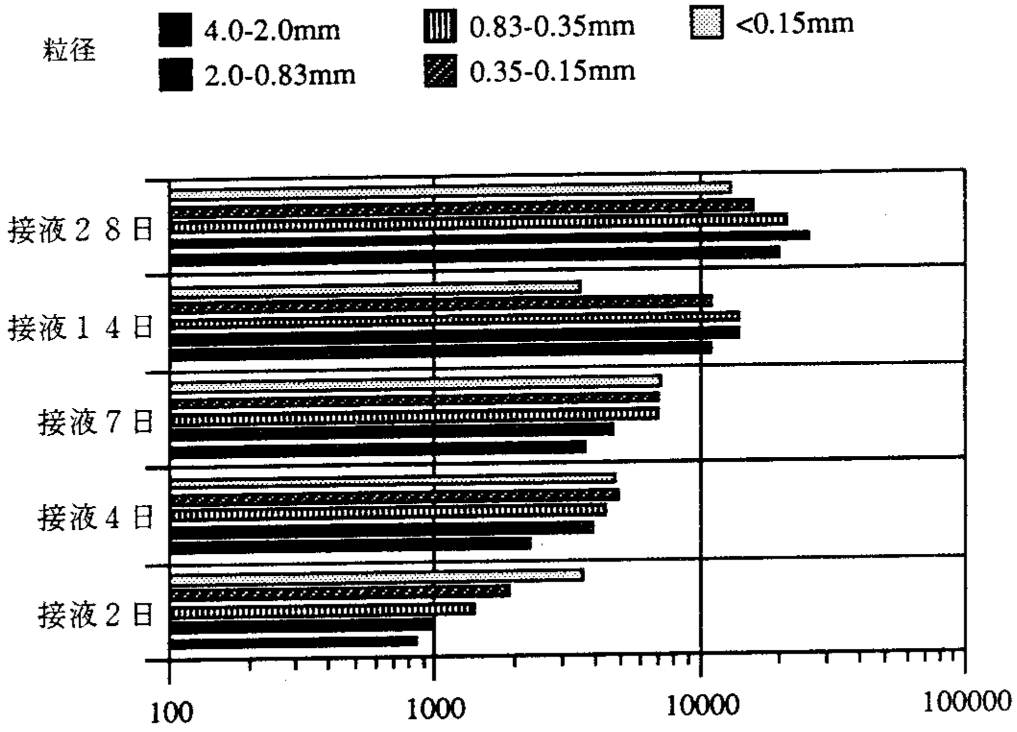


図 6.5　^{137}Cs の凝灰岩に対する分配係数の経時変化

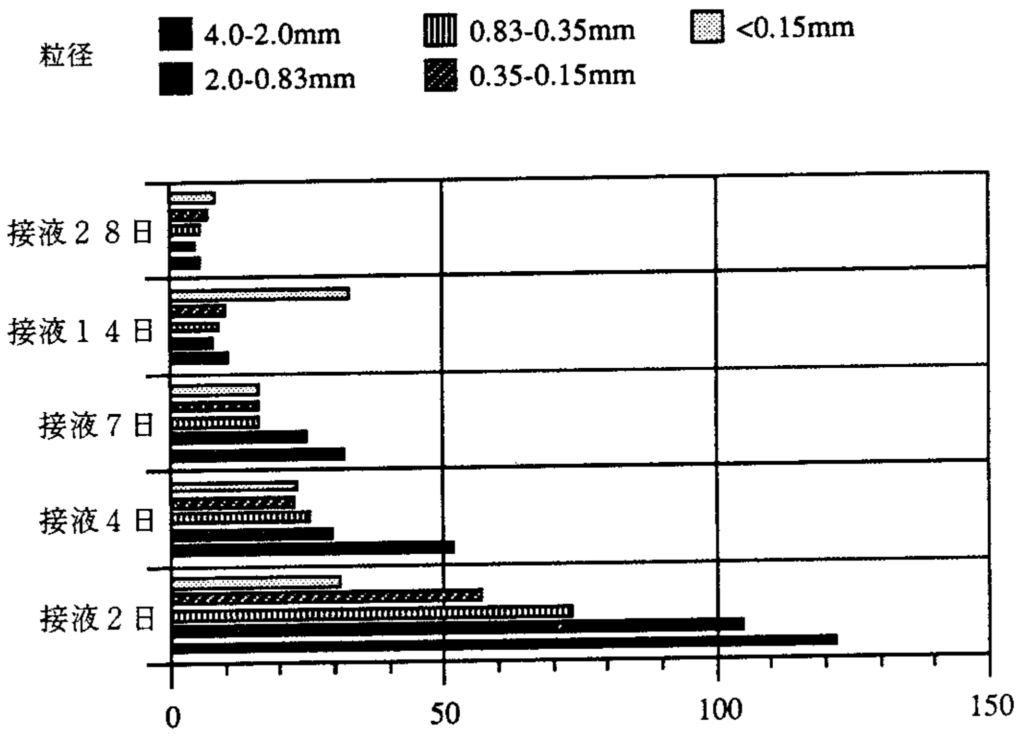


図 6.6　^{137}Cs の凝灰岩に対する分配時の液相中 ^{137}Cs 濃度の経時変化

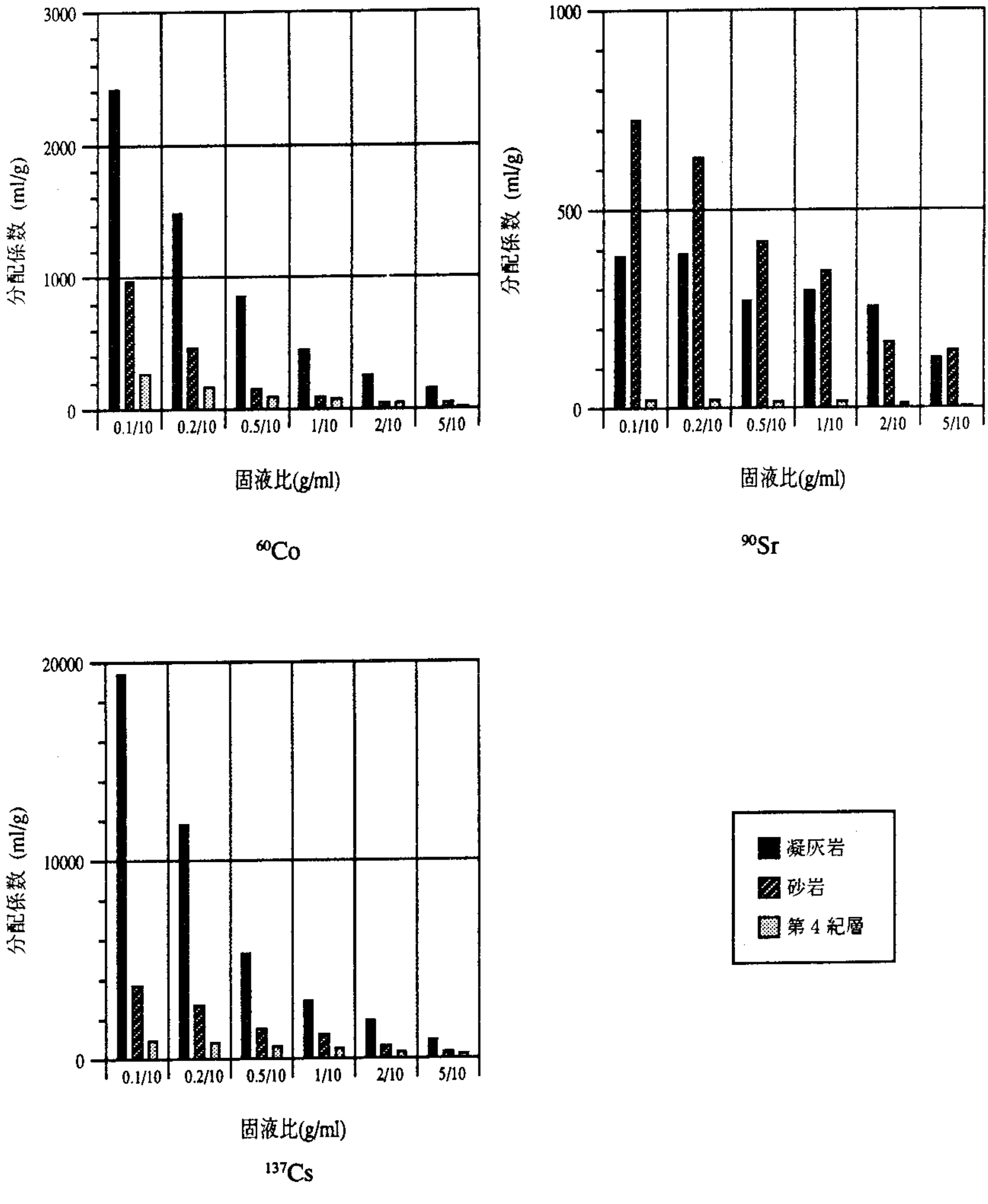


図 6.7　固液比による影響確認試験結果（1 週間浸漬）

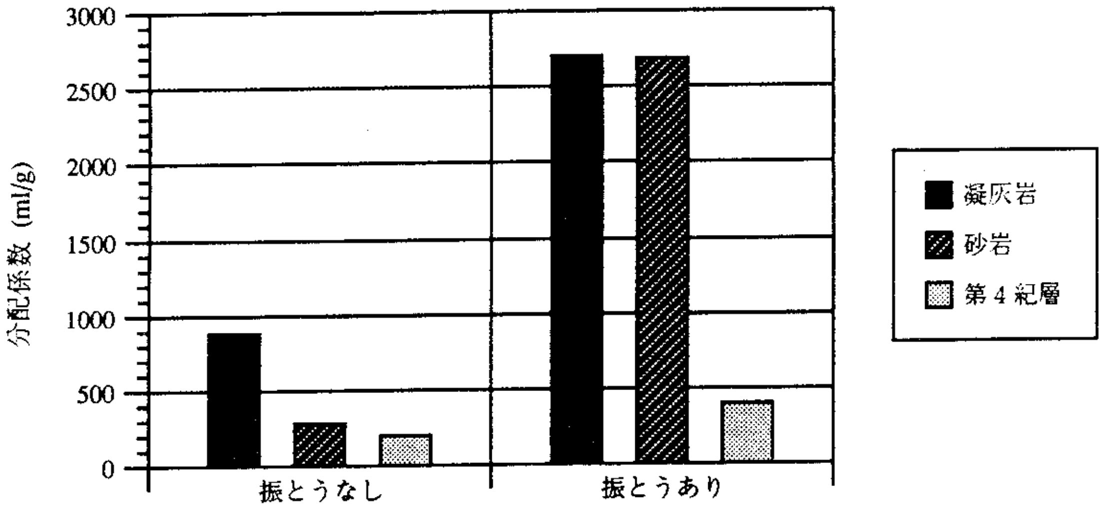
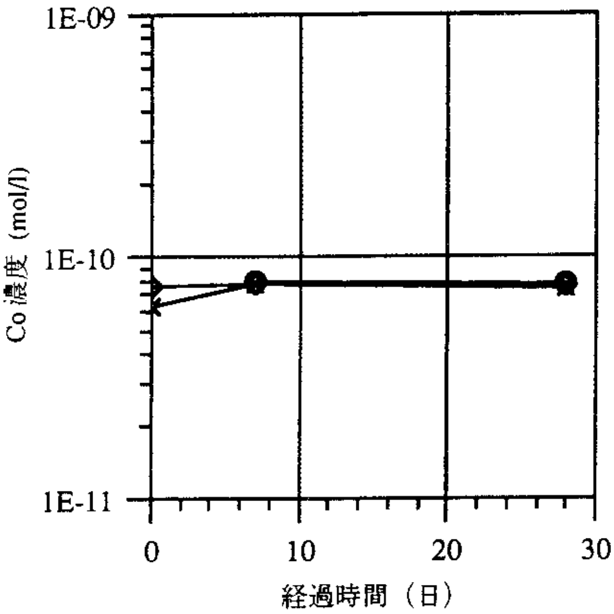


図 6.8 振とうによる分配係数値の変化（137Cs、固液比 5 : 10）

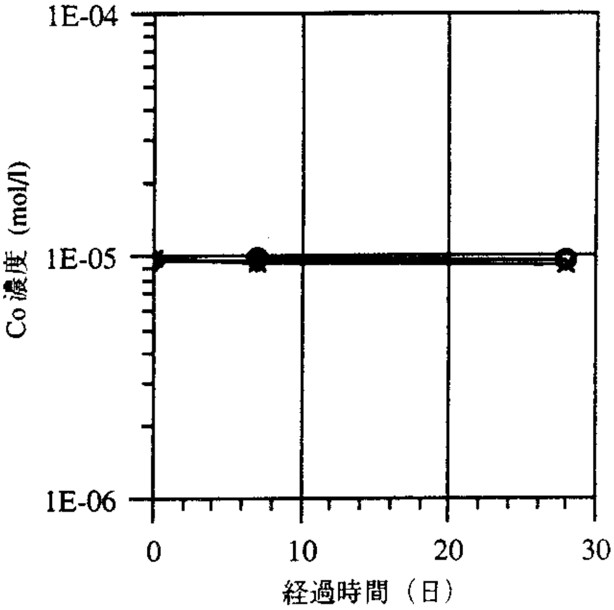
表 6.5 浸漬温度の変化による分配係数の変化

層名	温度（℃）	Co-60	Sr-90	Cs-137	Ni-63
第4紀層	10	180	40	460	99
	15	180	50	470	100
	20	530	380	3,000	70
	25	640	570	2,200	92
凝灰岩層	10	250	200	1,900	57
	15	360	230	2,300	64
	20	450	230	1,800	79
	25	450	350	2,000	86
砂岩層	10	140	110	1,100	52
	15	280	280	1,600	59
	20	390	300	2,200	100
	25	560	380	4,200	120

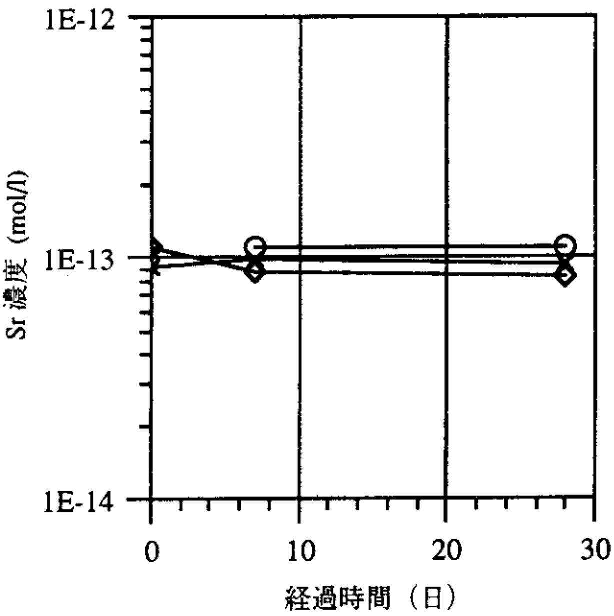
（単位：ml/g）



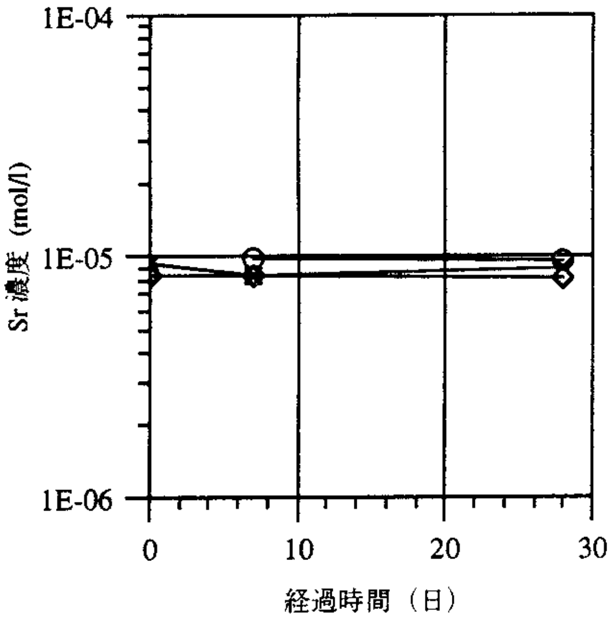
地下水＋^{60}Co（8.1 × 10^{-11} mol/l）



地下水＋^{60}Co＋$CoCl_2$（1.0 × 10^{-5} mol/l）



地下水＋^{90}Sr（1.2 × 10^{-12} mol/l）



地下水＋^{90}Sr＋$SrCl_2$（1.0 × 10^{-5} mol/l）

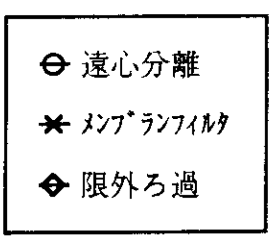


図 6.9　溶解度測定試験結果

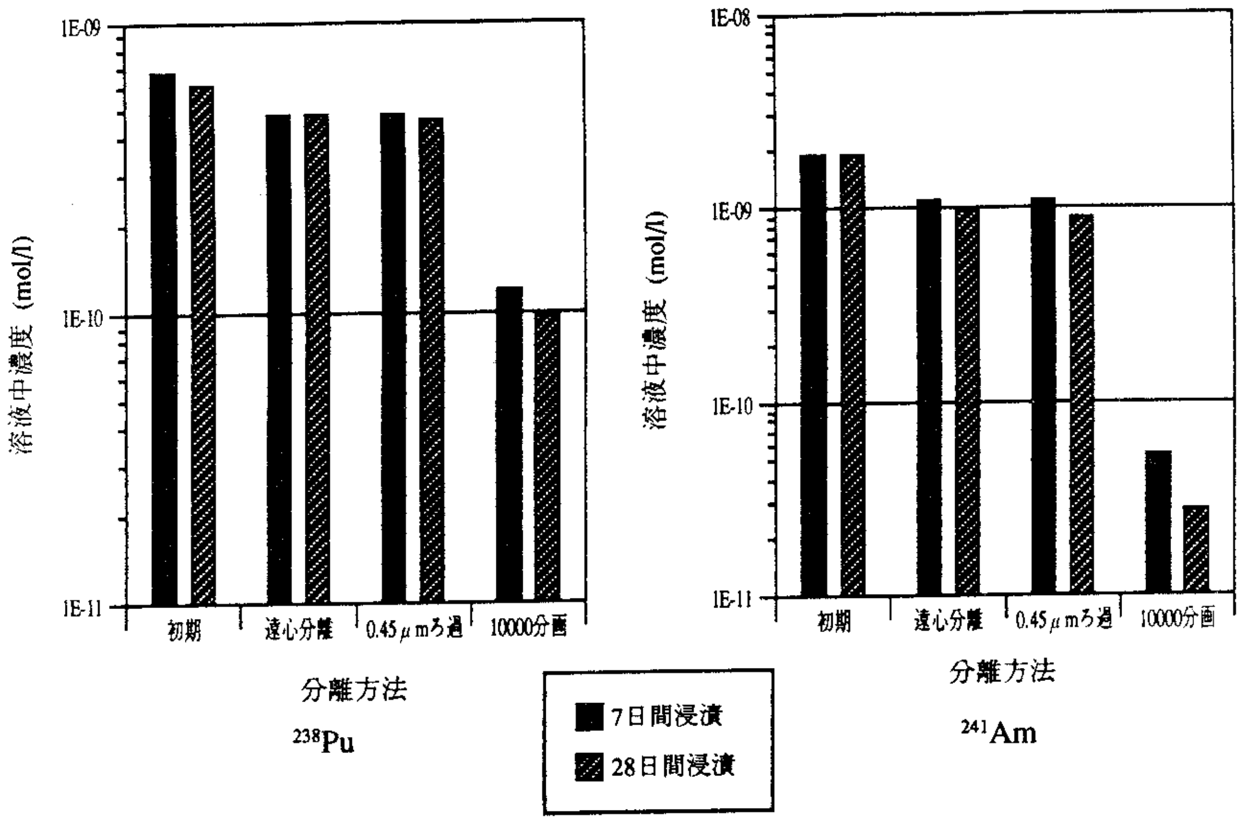


図 6.10　溶解度測定試験結果（Pu,Am）

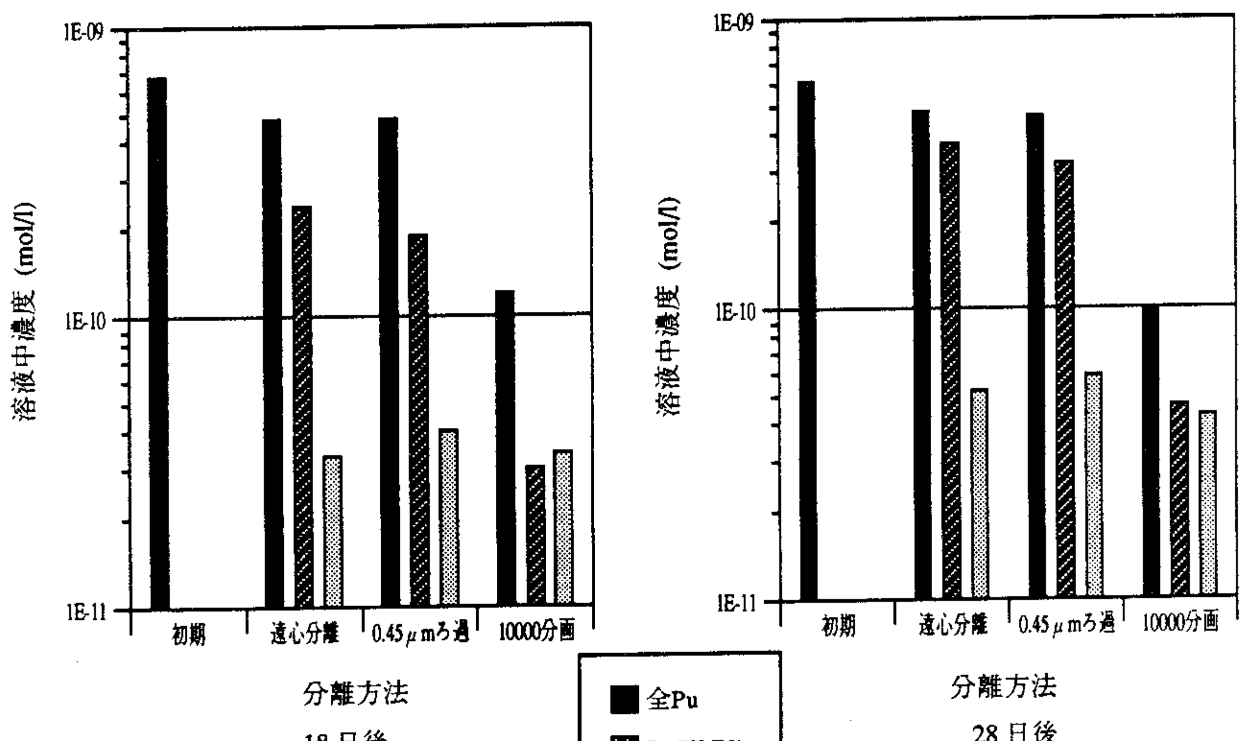


図 6.11　Pu の原子価分析結果

定値に影響を与えるので、実験は溶解度以下で行う必要がある。

図6.9～図6.11は、固液分離法とRI添加量を分配係数に影響がないように選択するための基礎試験の一例を示している。ここでは、土壌試料を加えず、一定量のRI（化学量で確認）を現地から採取した地下水に添加している。

図6.9は、^{60}Coおよび^{90}Srについて、いくつかの分離法を試みたときの液相濃度の経時変化を示している。いずれの核種、いずれの分離法も分離操作後に濃度変化がなく、沈澱による影響を受けていないと考えられ、キャリアー共存下であっても10^{-5}mol/lを問題なく添加できると考えられる。

しかし、実験系によっては、理論的な溶解度以下の添加量であっても、コロイド化等の影響を検討する必要がある元素もある。そのため、特にバッチ法を採用するにあたっては、その影響の程度を確認し、固液分離法等を選択しなければならない。典型的な例として、^{238}Pu、^{241}Amにおける溶解度測定試験の結果を図6.10に示す。これらの元素はいずれも系内にキャリアーとなるような類似の化学挙動を示す共存元素が存在しないこともあり、コロイド化すると一般にいわれている。本実験においても、10,000分画を分離方法として採用した場合は、他の分離方法に比べ明らかに濃度が低くなっている。よって、10,000分画を分離法として採用する場合は、添加量を少なくとも10^{-9}mol/l以下にすべきであることが示唆される。一方メンブランフィルターを用いる場合においては、コロイドは液相中の成分として評価されるため、10^{-9}mol/l程度の添加量であっても固相への吸着量を過大に評価するおそれはない。

なお、図6.10と同一の実験系における、Puの原子価ごとの測定結果を図6.11に示す。ここで、初期添加時の原子価はIV価に調整している。この図より、濃度変化に最も大きく寄与しているのはPu (IV) であり、環境中でより安定とされるPu (V) はあまり影響しないことがわかる。さらに、図6.10において、7日後と28日後の結果にほとんど差が認められないことから、図6.11に見られるような化学形の変化は7日以内に生じていることが推測される。このように、化学形の変化が生じるような核種については、実験を実施する上で注意が必要である。

容器壁への吸着等による損失

固液比の項で記述したように、容器壁など固相以外への吸着が分配係数の測定値に影響を与える場合があることが考えられる。このため、その影響を少なくする方法として、以下の手法があげられる。

○ブランクテストによる影響の排除

バリア材を投入しないブランクを並立して、一連の操作を行い、検出された濃度を初期濃度とする。

○固相・液相分析による分配係数算出

浸漬後、固相・液相両相を分析することによって分配係数を求める。

容器にテフロンを用いた場合の吸着損失による影響確認の実験結果を、Puの例について表6.6に示す。ここで、テフロン容器の洗浄には弱酸を用いている。吸着媒体を入れない場合は相当量が容器壁へ吸着するが、吸着媒体が共存している場合は容器への吸着は極めて小さくなっている。この理由はいくつか考えられるが、岩試料を加えることによ

表6.6 Puの容器壁への吸着損失等評価結果

試　料	初期濃度（Bq/cm^3）	吸着損失率（硝酸洗浄）%
地下水（成分合成）	30.0±1.19	94.4
地下水＋凝灰岩	30.0±1.19	0.14
地下水＋第4紀層	30.0±1.19	0.14

り、岩試料に含まれる幾つかの元素が水溶液中へ溶出し、水溶液中の元素のマトリックスが変化するのも理由のひとつと考えられる。この実験結果は、ブランクテストを実施する際に、ブランクテストで得られた器壁への吸着損失と、系内に土壌や岩試料がある場合の容器への吸着損失が必ずしも同じではないことを考慮する必要があることを示唆している。

測定値の分布

分配係数の測定においては、同一の実験条件であっても、実験誤差や分配係数の空間的分布等、測定値に影響を与える様々な要因が存在する。よって、その測定値の代表性の検討等においては、測定された分配係数値の分布型や分布幅等について検討する必要がある。

各試料における分配係数測定値の度数分布を図6.12に示す。これらの図から、今回測定を行った4元素の分配係数値の分布型はすべて対数正規分布であることが推察される。これらの測定値に対し、正規性の検定等統計的処理を加えることにより、さらに情報を得ることが可能であるが、ここではその詳細は省略する。

本節では、分配係数を測定する際に必要とされる主な影響確認試験について、試験例およびその結果を列挙した。分配係数の妥当性を評価する際は、評価を行う対象を明確にし、これらのことについて十分に考慮した上で、実験条件の設定および測定値に対する考察を行わなければならない。

第6章の参考文献

(1) 原子力環境整備センター編：環境パラメータ・シリーズ2　土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数，RWMC-90-P-13 (1990).

(2) Yasuda H., Uchida S., Muramatsu Y. and Yoshida S. : Sorption of manganese, cobalt, zinc, strontium, and cesium onto agricultural soils ; Statistical analysis on effects of soil properties, Water Air Soil Pollut., 79 (1995).

(3) Shapiro S.S. and Wilk M.B. : An analysis of variance test for normality (complete samples) , Biometrika, 52, 591-611 (1965).

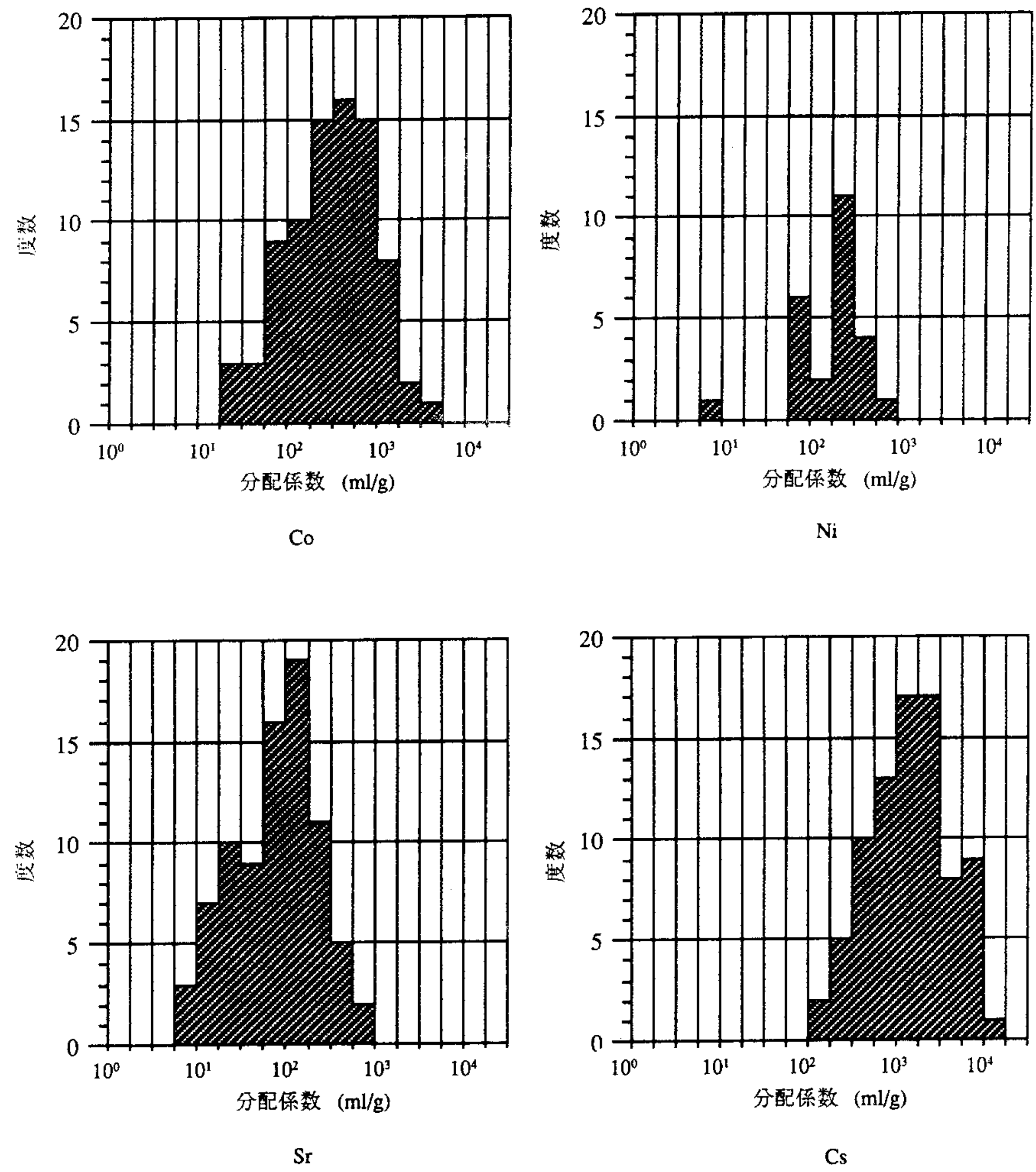


図 6.12 (1)　分配係数値の分布（第 4 紀層；2 日間浸漬、固液比 1 : 50）

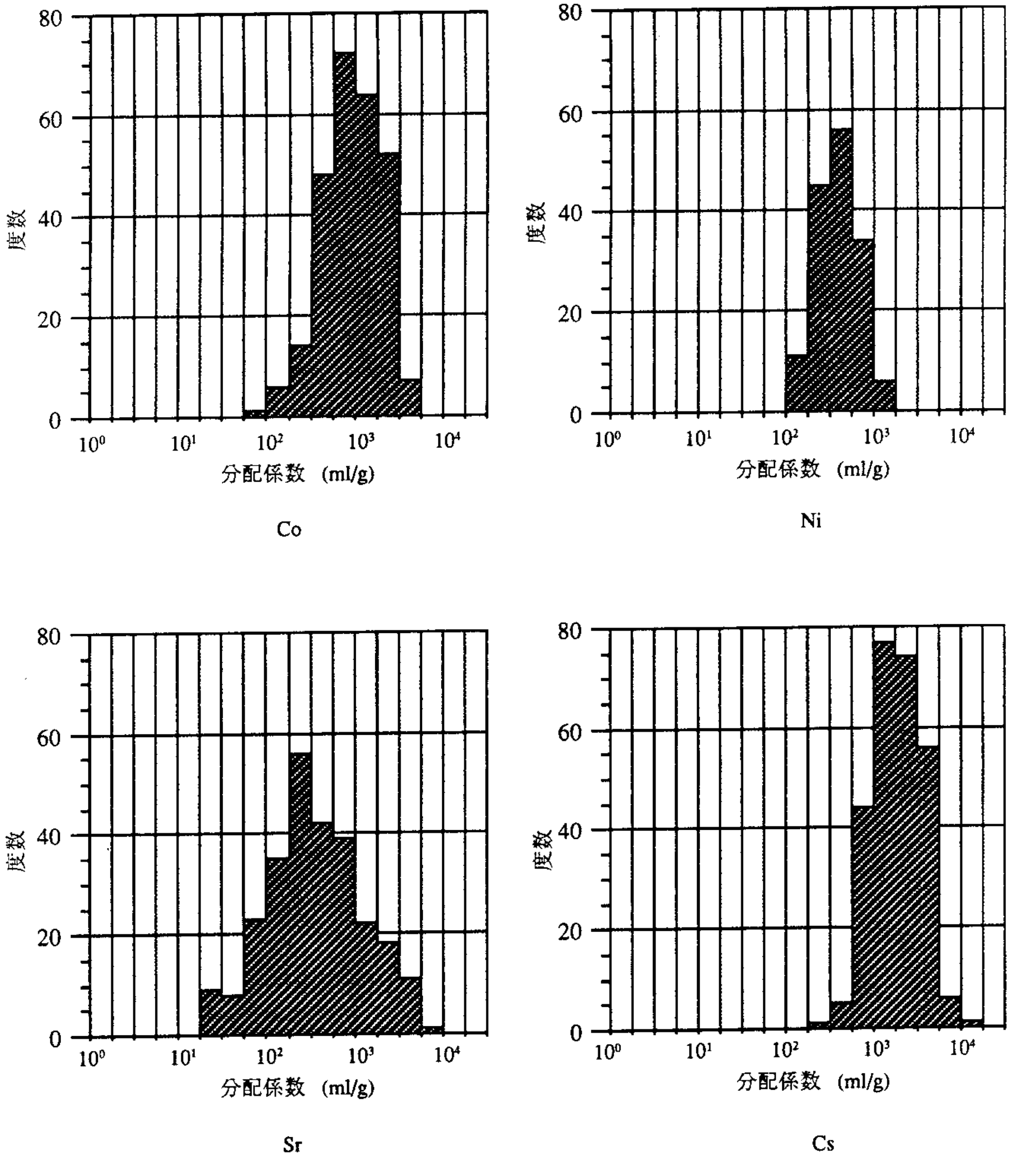


図 6.12 (2)　分配係数値の分布（凝灰岩；2 日間浸漬、固液比 1 : 50）

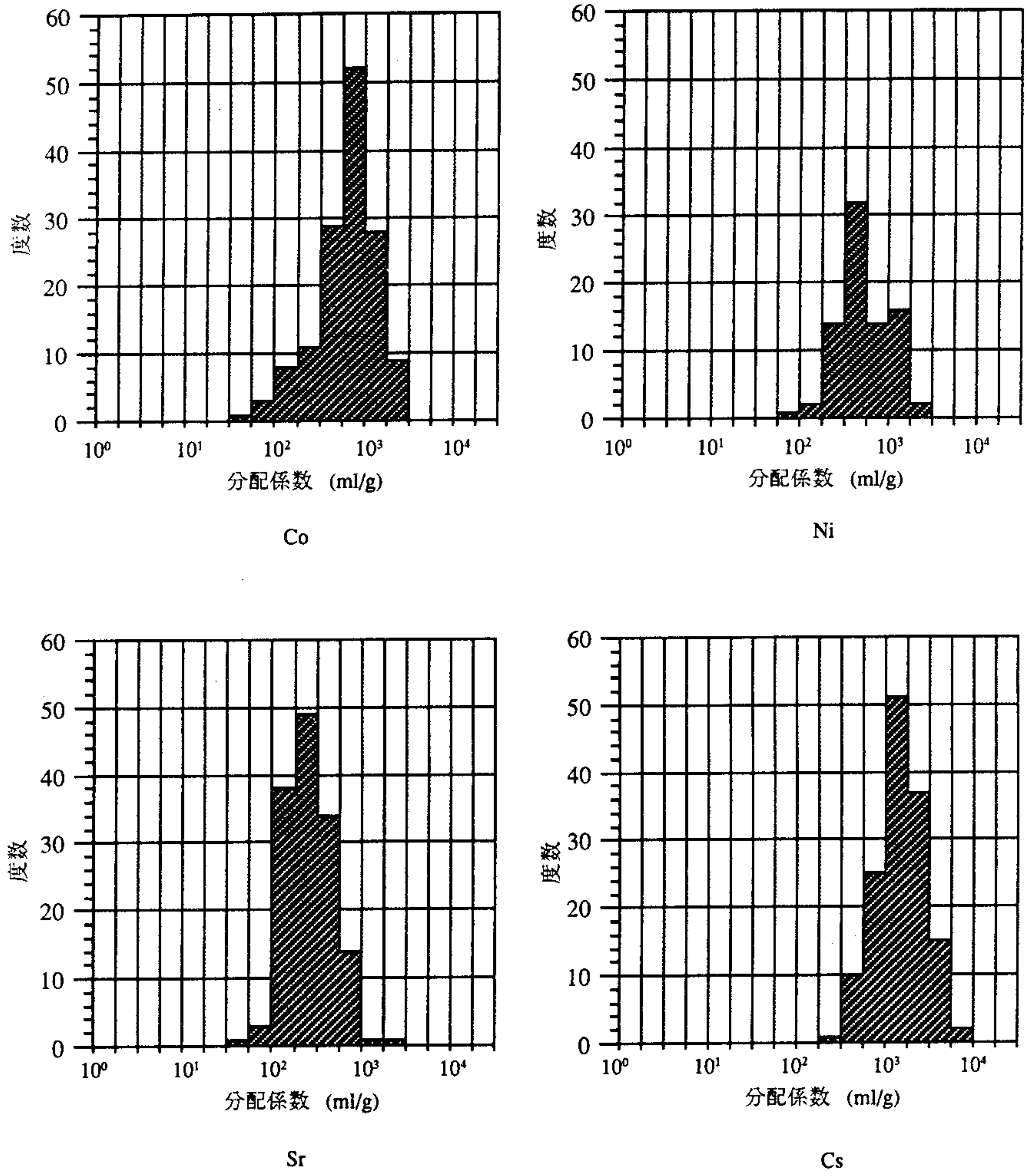


図 6.12 (3)　分配係数値の分布（砂岩；2日間浸漬、固液比 1 : 50）

7．結言

安全評価用パラメータ検討ＷＧでは、多くの安全評価モデルでパラメータとして利用されている分配係数を当面の課題として取り上げ、測定法及び利用法に関する技術的検討を開始した。本計画の初年度である平成６年度には、分配係数に関する基本的事項の調査研究を実施し、以下の項目に成果を取りまとめた。

○環境中での放射性核種の挙動と分配係数
○分配係数の理論
○安全評価における分配係数の利用
○分配係数の測定法の現状と問題点
○分配係数の調査・測定例

【環境中での放射性核種の挙動と分配係数】では、人間の生活に直接関与する環境媒体である気圏、水圏及び陸圏における放射性核種の移行経路について概説するとともに、陸圏における放射性核種の移行挙動の解析に、分配係数を用いる理論的背景を論述した。

【分配係数の理論】では、固相と液相における物質（溶質）の分配に関与する可能性のある物理的・化学的機構の多様性について述べるとともに、分配係数の定義式と代表的な機構から導出される平衡式との関連を考察し、分配係数の適用範囲、利用上の制約等について論述した。

【安全評価における分配係数の利用】では、放射性廃棄物の陸地処分に関する安全評価において利用される代表的なモデルとして、ソースタームモデル、天然バリアモデル（地層モデル）及び生態圏モデルを取り上げ、支配方程式中での分配係数の役割について概説した。

【分配係数の測定法の現状と問題点】では、室内試験による分配係数測定法の代表例であるバッチ法及びカラム法、並びにフィールド法の現状を取りまとめるとともに、各測定法で留意すべき問題点について概説し、それぞれの長所・短所を比較検討した。結論として、分配係数の測定に際しては、各測定法の特徴を理解した上で、複数の方法を併用することを推奨した。

【分配係数の調査・測定例】では、種々の機関で実際に分配係数を調査・測定した経験を紹介する目的で、測定法及び測定結果を例示した。ここでは、測定法及び測定結果に考察は加えなかった。