


分置

PNC  J 1409 93-010

社内資料

放射性核種の環境中挙動に関する 調査研究報告書

本資料は 〇/年 〇月 〇日付けで登録区分、
変更する。

[技術情報室]

平成5年5月

株式会社 ペスコ

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

この資料は、動燃事業団内における検討を目的とする社内資料です。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒 107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉 核燃料開発事業団

安全部 安全研究課



放射性核種の環境中挙動に関する 調査研究報告

瀬川 猛
鈴木 進
大内 新一

要 旨

原子力施設から大気中に放出された放射性核種は、大気中に拡散し、地表に降下する。地表面に降下した放射性核種は表層土壤に沈着し、その後、再浮遊、地中浸透、植物への取り込み等の挙動を示す。

本研究では、放射性核種の挙動について、土壌学、および水文学的観点を考慮にいたれた物理的・化学的挙動の解明と評価モデルおよびパラメータの現状を調査し、環境放出核種の地表から生物圏および地中への影響リスク評価に資する。

本年度は次の3項目に着いて調査研究を行った。

(1) 表層土壤における放射性核種の挙動に係わる基礎調査

降下・沈着した放射性核種の表層土壤中への沈着及び土壤中への浸透、植物への取り込み、空気中への再浮遊、表層土壤から浅地中への移行に係わる挙動を調査した。

(2) 浅地中における放射性核種の浸透挙動に係わる基礎調査

放射性核種の浅地中における浸透挙動について、岩石その他の地層構成鉱物への吸着特性、コロイドの形成、移行等に係わる挙動を調査した。

(3) モデルの現状

モデルの現状について、収集した文献をもとに、土壌内での浸透、植物への移行、表層土壤から再浮遊による植物への沈着経路を中心とした、コンパートメントによる線量評価モデルと地中内での固・液相間の収着と移流・分散による挙動に関する物理モデルに分けて調査・整理した。

本報告書は(株)ペスコが動力炉・核燃料開発事業団殿の契約に基づき実施した業務の成果である。

契約番号: 040D0327

事業団担当部署: 安全部安全研究課

Investigation on Behaviour of Radionuclides in Environment

Takeshi SEGAWA
Susumu SUZUKI
Shin-ichi O-UCHI

A B S T R A C T

Radionuclides discharged from nuclear facility is dispersed into the air and fallen out on the ground surface. Those precipitated radionuclides are absorbed and adsorbed on surface soil, and then behaves in such manners of resuspension, permeation into ground and plant-intake.

This investigation is intended to contribute to risk evaluation on the effect of the ground discharged radionuclides to the biosphere and underground through investigation on the present status of behaviour of radionuclides, and includes presentation of their physical and chemical behaviour considering geological and hydrological viewpoints, and their evaluation models with the relevant parameters.

Following three survey items were selected and done for this fiscal year.

(1) Basic study on behaviour of radioactive nuclides in surface soil.

Behaviour of those radionuclides fallen out followed by precipitation and permeation to the surface soil, the plant-intake, resuspension onto the air and migration into shallow underground.

(2) Basic study on permeation of radionuclides in shallow underground

Permeation of radionuclides in shallow ground is surveyed, concerned with the sorption characteristics on rocks and minerals of geologic formation, colloid formation, migration and so on.

(3) Present status of modelling.

The collected literatures were surveyed for understanding of the present status of modelling by classifying into two categories; dose evaluation model by compartment and physical behaviour model. The former includes permeation into soil, plant-intake and resuspension from surface soil to the air resulting to the plant-intake, while the latter comprises the behaviour related to sorption between liquid and solid phase, advection and dispersion in underground.

Work performed by PESCO Co. Ltd. under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison; Safety Research Section, Safety Division.

目 次

1. 目 的	1
2. 研究内容概要	2
3. 表層土壌における放射性核種の長期蓄積効果等を考慮した物理・化学・ 生物学的挙動に係る基礎調査	3
3.1 表層土壌への沈着	5
3.2 植物への取り込み	14
3.3 空気中への再浮遊と表層土壌への沈着	22
3.4 表層土壌から浅地中への移行	30
3.5 まとめ	39
4. 浅地中における放射性核種の浸透等長期蓄積効果を考慮した物理・化学・ 生物学的挙動に係る基礎調査	41
4.1 土壌への吸着特性	42
4.2 核種の移行挙動	50
4.3 まとめ	70
5. モデルの現状	71
5.1 線量評価モデル	72
5.2 物理モデル	83
5.3 まとめ	89
6. 今後の問題	93
6.1 表層土壌及び浅地中における放射性核種の挙動に係る基礎調査	93
6.2 モデルの現状	95
添付資料－1：委員会議事録	1
添付資料－2：収集文献リスト	1
添付資料－3：収集文献抄録	1

放射性核種の環境中挙動に関する研究報告書

1. 目的

原子力施設から大気中に放出された放射性核種は、大気中において拡散し、地表に降下する。地表面に降下した放射性核種は表層土壤に沈着し、その後、再浮遊、地中浸透、植物への取り込み等の挙動を示す。

本研究では、放射性核種の挙動について、土壌学および水文学的な観点を考慮にいたれた物理・化学的挙動の解明の現状と評価モデル及びパラメータの現状を調査し、環境放出核種の地表から生物圏及び浅地中における浸透挙動等を考慮した影響リスク評価に資する。

2. 研究内容概要

以下の項目に関する調査・検討・評価を行い、環境へ放出された放射性核種の表層土壌への沈着・空中への再浮遊、表層土壌から植物への取り込み及び浅地中への浸透等長期蓄積効果を考慮した物理・化学的挙動に係わる評価モデル作成のための詳細仕様を明らかにする。なお、本研究の対象とする放射性核種は再処理施設で取り扱われる核反応生成物のうち含有量が多く、半減期が長く、人間への被曝線量として影響を与える核種を次の3グループに分けて9核種とした。

- (a) H-3、Tc-99 (易動性の大きい核種)
- (b) Sr-90、I-129、C-14 (土壌への収着性の比較的小さい核種)
- (c) Cs-137、Pu-239、Am-241、Np-237 (土壌への収着性の比較的大きい核種)

従って、最近の文献サーベイを行って、以下のように取りまとめた。

(1) 表層土壌における放射性核種の挙動に係わる基礎調査

降下・沈着した放射性核種の表層土壌中への沈着及び土壌中への浸透、植物への取り込み、空気中への再浮遊、表層土壌から浅地中への移行に係わる挙動と評価モデル及びパラメータを調査・整理する。

(2) 浅地中における放射性核種の浸透挙動に係わる基礎調査

放射性核種の浅地中における浸透挙動について、岩石その他の地層構成鉱物への吸着特性、コロイドの形成、移行等に係わる挙動と評価モデル及びパラメータを調査・整理する。

(3) モデルの現状

モデルの現状について、収集した文献をもとに、土壌内での浸透、植物への移行、表層土壌から再浮遊による植物への沈着の経路を中心とした、コンパートメントによる線量評価モデルと地中内での固・液相間の収着と移流・分散による挙動に関する物理モデルに分けて調査・整理する。

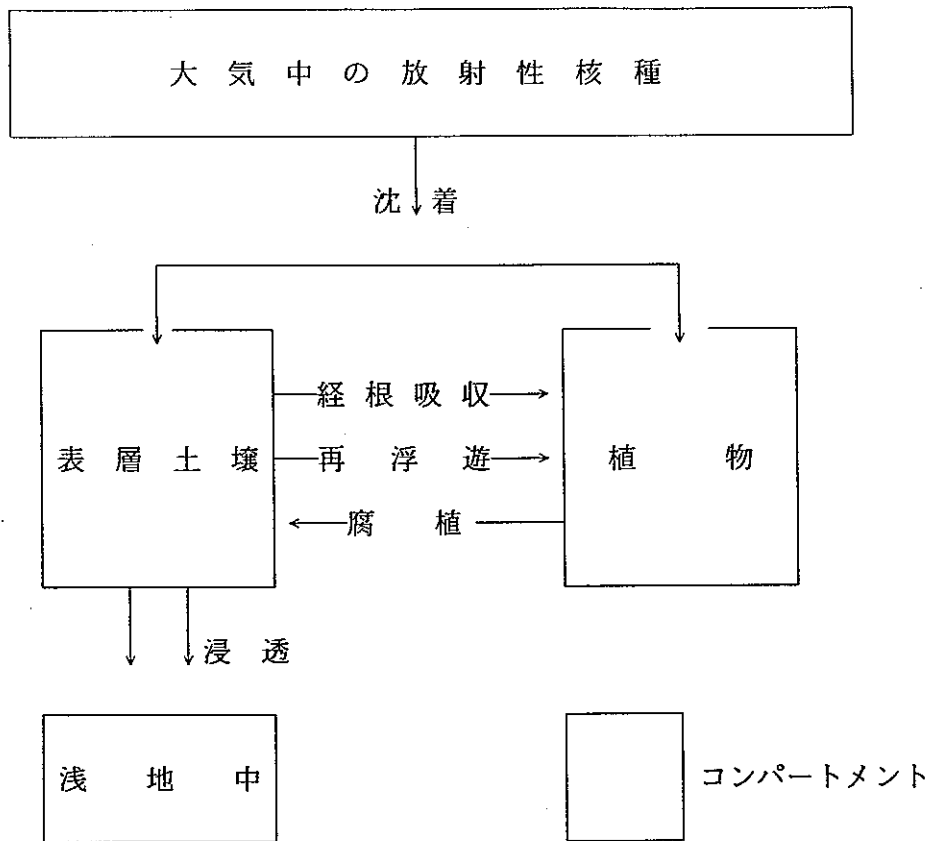
3. 表層土壤中における放射性核種の長期蓄積効果等を考慮した物理・化学・生物学的挙動に係る基礎調査

放射性核種により土壤が汚染された場合、降水により放射性核種は移動するが、移動の様相は降水量の大小により異なり、過剰な降雨では土壤表面粒子に収着していた放射性核種は土壤粒子と共に「表面流出」し、溶脱されながら低地に移動して、水系に流出する。「有効降雨」となった水分は、土壤表層から徐々に深部へ浸透し、土壤に収着されている放射性核種を溶出しながら地下水系へ流出する。

ここでは、農地等として有効利用されている土壤への汚染を想定して、放射性核種の移行挙動のシナリオを構成することとする。

林地汚染を想定した場合には林地土壤から「きのこ」等への濃縮、畑地の場合には葉菜、根菜、果樹等への移行、田地の場合には主食である米への移行を考えなければならないが、田地の湛水のための灌漑用水の水源は、「涵養域」が放射性核種放出源から遠方であるので、バックグラウンドデータとしての核実験等による既存のフォール・アウト汚染だけを考慮することとし、また、水田土壤は還元性に乏しく、米への核種の移行率が大きいデータを利用することにより、安全評価が可能であると思われる。牧草地汚染の場合には、乳牛による牧草摂取による牛乳汚染を考慮しなければならないが、日本の牛乳産業の実情からして、欧米豪などのような牧草地飼育よりも、他所から移入された牧草や濃厚飼料等による牛舎飼育の方が多いいことを勘案しなければならない。

本章では、表層土壤中に収着されている放射性核種の移行挙動について、下図に示すような現実的な移行過程を想定して、移動挙動に関するモデルの現状についての調査結果を記述することにする。



核種移行経路

3.1 表層土壌への沈着

(1) 易動性の大きい核種 (H-3, Tc-99)

i) H-3 : H-3は大気圏内の天然核反応 ($^{14}\text{N} + n \rightarrow ^{12}\text{C} + ^3\text{H}$) および大気中の N_2 、 O_2 、Arなどの破砕反応によって生成するので、古くから地球上に存在しており、その存在量はUNSCEAR (国連科学委員会) の1982年報告書の中に $1.3 \times 10^{18}\text{Bq}$ と推測されている¹⁾。

1950年代以後の核爆発実験、原子力発電所の稼働によりH-3が環境中に放出され環境試料中の濃度が増大してきた。前記の報告書によれば、核爆発実験による放出量は北半球で $1.9 \times 10^{20}\text{Bq}$ 、南半球で $0.5 \times 10^{20}\text{Bq}$ と推定されている。

また、原子力発電所によるH-3の放出量は、1975年～1979年の間の世界の平均値として、PWRでは年間に大気中に $7.8 \times 10^{12}\text{Bq}/10^3\text{KW}_{(e)}$ 、廃水中に $3.8 \times 10^{12}\text{Bq}/10^3\text{KW}_{(e)}$ 、BWRでは大気中に $3.4 \times 10^{12}\text{Bq}/10^3\text{KW}_{(e)}$ 、廃水中に $1.4 \times 10^{12}\text{Bq}/10^3\text{KW}_{(e)}$ がそれぞれ放出されたと報告されている¹⁾。なお、年間の放出量は設備の改善などによって年々減少している。

大気圏内のH-3はその99%が水の形で存在し、降雨とともに地上に降下し一般の水循環系に入る。従って土壌に付着したものは表層から深部へ浸透し、地下水系に流出し、または蒸発して再び大気圏に入る。このためH-3は長時間土壌に付着することは少ないと思われる。これまで測定された環境試料としては、降水、河川水、地下水、海水が殆どである。

核爆発実験開始前の大陸地表水中H-3濃度は $200 \sim 900\text{Bq}/\text{m}^3$ 、海水中濃度は $100\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度であったとUNSCEARの1982年報告に発表されている¹⁾。

核爆発実験、原子力発電所の稼働により環境中のH-3濃度は増加したが、核爆発実験の中止、原子力発電所からの放出量抑制によって、その濃度は年々減少している。例えば、1991年に千葉市で採取した降水中のH-3濃度の平均値は $0.59 \pm 0.03\text{Bq}/\ell$ で、最近10年間にほぼ半減した²⁾。

茨城県東海村の降水には原子力施設から放出されるH-3が含まれるので、若干高い値が認められている。1991年に村内各地で採取した降水H-3濃度の年間平均値では、最高値として $2.6 \pm 1.7\text{Bq}/\ell$ という値が報告されている。

また県内の河川水、地下水中のH-3濃度は $1 \sim 2\text{Bq}/\ell$ で、最近10年間に1/3に減少した²⁾。

ii) Tc-99 : Tc-99 は半減期 2.14×10^5 年、最大エネルギー 0.291MeV の β 線放出核種で、核爆発実験によって生成するほか、核燃料サイクル施設から放出されるので今後の環境中レベルが注目されている。

核爆発実験によって生成したTc-99は、核爆発による核種の生成率から計算すると約 200TBq に達すると推定される³⁾。

原子力発電所からの放出量としてUNSCLEARの1982年報告には、1979年の米国の原子力発電所からの年間液体放出量として、PWRからMo-99^{*})が $0.38\text{GBq/GW}_{(e)}$ 、Tc-99m^{*})が $0.087\text{GBq/GW}_{(e)}$ 、BWRからはMo-99が $0.066\text{GBq/GW}_{(e)}$ 、Tc-99mが $0.51\text{GBq/GW}_{(e)}$ と報告されている¹⁾。

環境試料についての測定値は少ない。

1986年～1988年に青森県、秋田県で採取した環境試料中の⁹⁹Tc濃度を表 3.1.1 に示した¹⁾。

(*) Mo-99 は 65.9 時間の半減期で β 崩壊をして Tc-99となる。

Tc-99m はIT崩壊により Tc-99となる。

表 3.1.1 環境試料中の⁹⁹Tc濃度¹⁾

試料名	採取場所	採取年月日	供試部位		供試量	⁹⁹ Tc濃度 (mBq)			
水田土壌	秋田県農試 (秋田市)	1986. 11. 20	還元性乏田 還元性富田		1 kg風乾土 0.9kg風乾土	12 ± 4 41 ± 5	/kg風乾土 /kg風乾土		
	六ヶ所村千樽 (青森県)	1987. 11. 25	上層 還元層		1 kg風乾土 1 kg風乾土	14 ± 2 102 ± 10	/kg風乾土 /kg風乾土		
灌漑用水	秋田県農試 (秋田市)	1986. 11. 20	用水貯水槽		37 ℓ	0.18 ± 0.10 / ℓ			
	六ヶ所村千樽 (青森県)	1987. 11. 25	用水路		20 ℓ	0.27 ± 0.10 / ℓ			
米	秋田県農試 (秋田市)	1986. 11. 20	還元性 乏田産	精白米 糠	2 kg 0.2kg	22 ± 4 94 ± 26	/kg /kg		
			還元性 富田産	精白米 糠	3 kg 0.4kg	6.1 ± 3.3 70 ± 21	/kg /kg		
	六ヶ所村千樽 (青森県)	1987. 11. 25	精白米 糠		3kg 0.5kg	7.7 ± 2.6 75 ± 15	/kg /kg		
水	放医研那珂湊支所	1988. 2	水道水 (地下水)		1000 ℓ	0.0085 ± 0.0089 / ℓ			
湖沼水	尾鮫沼	1988. 7. 19	湖央表面水		100 ℓ	0.12 ± 0.03 / ℓ			
懸濁物	尾鮫沼	1988. 7. 19	湖央表面水中		100 ℓ分	0.063 ± 0.015 / ℓ			
藻類 (アマモ)	尾鮫沼	1988. 7. 19	日本原燃産業 排水口予定地近傍		856.4 g生	45 ± 10	/kg生		風乾物115 g
湖底堆積物	尾鮫沼	1988. 7. 19	湖央地点		500 g風乾	210 ± 13	/kg風乾		
			二又川河口近傍		500 g風乾	62 ± 8	/kg風乾		
			日本原燃産業 排水口予定地近傍		500 g風乾	29 ± 5	/kg風乾		

(2) 土壌への吸着性の比較的小さい核種 (Sr-90, I-129, C-14)

- i) Sr-90 : 核爆発実験によって生成したSr-90は広範囲に分布している。SrはCaと同族で生体内では骨に蓄積し、Sr-90の半減期が28.8年と比較的長いために、人体への影響を考慮して核爆発実験開始当初から降下量、環境試料の濃度など多くの結果が発表されている。

気象研究所では、1954年から年間のSr-90降下量を測定している。1963年には705.9MBq/km²に達したがその後減少し、1990年の測定値は0.075MBq/km²となった⁵⁾。

核爆発実験が中止されたために、降下量は減少してきたが、土壌中には現在もなお蓄積されている。

日本全国各地で採取した土壌について、Sr-90濃度を日本分析センターで測定した最近5ヶ年の結果は表 3.1.2の通りである。

表 3.1.2 日本全国各地の土壌中Sr-90濃度の平均値⁶⁾ (単位はBq/kg乾土)

採取年	1987	1988	1989	1990	1991
深さ					
0～5 cm	6.0	6.3	5.2	4.6	4.0
5～20 cm	4.9	4.6	3.8	3.3	2.9

表層土壌中の濃度は、年々減少している。また、5～20cmの深さの土壌濃度が0～5cmの深さの土壌中濃度の70%以上を占めているのは、Sr-90の土壌吸着が比較的小さいことを示すものである。

- ii) I-129 : この核種は、大気中のXeと宇宙線による反応や、U、Thの自発核分裂によって生成されるほか、核爆発実験、原子力発電の際に環境中に放出される⁷⁾。

半減期が 1.57×10^7 年で、核燃料再処理施設から平常時放出される可能性があるもので特に注目されている。

自然界で生成された量としては水圏で約1TBq、岩石圏で約0.3TBqという値が推定されている⁷⁾。

原子力発電の場合には1GWの原子炉が1年間稼働した時に約45GBqが生成されると推測される⁷⁾。

環境試料中の濃度測定結果は表 3.1.3、表 3.1.4の通りであった⁸⁾。

表 3.1.3 降水中 I-129濃度

採取場所	採取期間	I-129濃度 ($\mu\text{Bq}/\ell$)
茨城県東海村	1979年9月～1981年3月	110 ± 4
〃	1981年8月～1982年11月	5.2 ± 0.4
茨城県那珂湊市	1982年8月～1982年11月	2.5 ± 0.2
茨城県東海村	1982年7月～1983年9月	2.1 ± 0.3
千葉県千葉市	1983年6月～1983年9月	0.48 ± 0.07

表 3.1.4 土壤中 I-129濃度

採取場所	採取期間	土壤深度	I-129濃度 (mBq/kg 乾土)
茨城県東海村	1981年9月	0～5 cm	33 ± 0.59
〃	〃	10～15 cm	1.5 ± 0.15
〃	〃	20～25 cm	0.41 ± 0.11
茨城県勝田市	1983年7月	0～10 cm	14 ± 0.33
茨城県水戸市	1981年11月	0～5 cm	11.4 ± 0.3
東京都府中市	1981年10月	0～5 cm	0.78 ± 0.11
長野県(戸隠村)	1982年8月	0～5 cm	0.13 ± 0.03
秋田県(寒風村)	1982年11月	0～5 cm	0.78 ± 0.11
長崎市(西山)	1983年	0～10 cm	0.13 ± 0.04
〃	〃	10～20 cm	0.056 ± 0.04

東海村の降水試料が対象地区の試料に比べて、高い値が検出されたことがあるが、これは原子力施設からのI-129放出によるものと考えられる。

1982年以後に採取した試料は1981年に採取した試料よりも低濃度である。これは高性能ヨウ素吸着フィルター装着によるヨウ素除去効果の増大を示すものである。

原子力施設からの距離が大きくなると、表層土壌中のI-129濃度は少なくなる。

- iii) C-14 : C-14は宇宙線による天然の核反応 ($^{14}\text{N} + n \rightarrow ^{14}\text{C} + \text{P}$) によって生成するので、古くから地球上に存在している。核爆発実験、原子力発電が開始される前に木材の試料から測定したC-14の濃度は炭素 1 kg 当り $227 \pm 1 \text{ Bq}$ で、これに対応する大気圏内のC-14量は 140 PBq と推定される。炭素は生物圏、岩石圏、海洋中に含まれ、これらすべてを合計すると、地球上には 8500 PBq のC-14が存在していたことになる¹⁾。

核爆発実験によって生成したC-14は約 220 PBq 、原子力発電から放出される量は $1 \text{ GW}_{(e)}$ 当り年間にBWRから 518 GBq 、PWRから 222 GBq 、GCRから $1,100 \text{ GBq}$ 、HWRからは 17 TBq と推定されている¹⁾。

これら人工放出によって環境中のC-14量は増加したが、核爆発実験の中止、化石燃料の燃焼による安定CO₂の増加により炭素 1 g 当りのC-14量は1963年をピークに減少している。

(3) 土壌への収着性の比較的大きい核種 (Cs-137, Pu-239, Am-241, Np-237)

- i) Cs-137 : Cs-137は核爆発実験によって広範囲に分散している。半減期が30年で、人体内ではKと同様に全身に分布蓄積されるので、Sr-90とともに核爆発実験開始当初から降下量、蓄積量、環境中での挙動などが測定されている。

気象研究所の測定⁵⁾によれば、東京におけるCs-137の年間降下量は1963年に $1,936.7 \text{ MBq/km}^2$ に達した。その後核爆発実験の中止により減少していたが1970～1980年代の中国により実験によりやや増加した年があったが、1985年には 0.67 MBq/km^2 まで減少した。然し1986年にはチェルノブイリ原子力発電所事故の影響で 135 MBq/km^2 まで増加した。その後は減少をつづけ1990年の降下量は 0.19 MBq/km^2 となった。

Cs-137は土壌粒子との収着性が比較的高いために、表層土壌中濃度は表 3.1.5

に示すように降下量にみられるような急激な減少は認められない。

表 3.1.5 日本全国各地の土壤中Cs-137濃度の平均値⁵⁾ (単位はBq/kg乾土)

採取年 \ 深さ	1987	1988	1989	1990	1991
0～5 cm	29	31	28	25	22
5～20 cm	11	11	9.8	9.0	7.5

表層土壤中濃度が年々減少していることはSr-90の場合と同様である。然し、深さ5～20cmの土壤濃度が0～5cmの深さの土壤濃度の約35%で、Sr-90の場合(70%以上)と比べて、Cs-137が土壤中では移行しにくいことを示している。

- ii) Pu-239^{*}) : 核爆発実験、核燃料再処理によって環境中に放出されるPuの同位体は、Pu-238、Pu-239、Pu-241が主要なものである。

Pu-239は天然の核反応によって生成する事が知られており、ウラン鉱石中にウラン量の 10^{-12} オーダーのPu-239が認められている。

現在環境中に存在するものは、核爆発実験、人工衛星事故により放出されたものである。気象研究所で測定した東京における降下量は、1963年に7.4MBq/km²という最高値を示した。以後減少し1984年には0.013MBq/km²となった⁵⁾。

Pu-239は、土壤に収着される割合が高く、長崎市西山地区において電力中央研究所が実施した調査結果によれば、土壤への総収着量の97%が表層から30cmまでの所に存在し、その移動速度は0.125cm/年であった¹⁰⁾。

1983年～1990年に茨城県東海村周辺で採取した表層土壤中のPu-239は(0.2～0.7)Bq/kg乾土の程度であった¹¹⁾。

- iii) Am-241 : 核爆発実験、核燃料再処理によって環境中に放出されるほかに、Pu-241のβ壊変によって生成する。

核爆発実験によって生成したAm-241の地球上での蓄積量は、表3.1.6の通り報告されている¹⁾。

*) Pu-239、Pu-240から放出されるα線のエネルギーは非常に接近しているので、通常のα線スペクトロメトリーでは識別することができない。従ってPu-239の濃度として示した値は、特にことわりのない限りPu-239とPu-240の放射能の和である。

表 3.1.6 Pu-238、Pu-239、Pu-241、Am-241の蓄積量積算値（単位はBq/m²）

	Pu-238	Pu-239	Pu-241	Am-241
全世界	0.90	35	440	15
北半球	0.98	39	480	17
南半球	0.25	9.7	120	4.2

表 3.1.6にあるように、Pu-239の10倍以上放出されたPu-241からAm-241が生成するので、最終的にはAm-241の量は 5.5×10^5 Bqに達するであろうと推定されている¹¹⁾。

また、煙探知機に Am-241 が使われているので、今後の環境試料中の Am-241 の濃度には注目すべきである。

1983年～1990年の茨城県東海村周辺表層土壤中Am-241濃度は(0.1～0.3)Bq/kg 乾土の程度である¹¹⁾。

- iv) Np-237：核爆発実験、核燃料再処理の際に環境中に放出され、半減期は 2.4×10^6 年の α 線放出核種である。

Am-241が432年の半減期で壊変するとNp-237となる。Am-241の環境中濃度増加に伴ってNp-237の濃度も高くなると思われる。

使用済燃料中でのNp-237生成量として次のような値が発表されている。すなわち、1GWの軽水炉使用済燃料（燃焼度30,000MWD/MTHM、冷却期間150日）中のNp-237の生成量は、年間 2.04×10^1 kg、53.3GBq と推定されている¹³⁾。

(4) まとめ

調査に取り上げた9つの放射性核種には、人工核種の他に、天然の核反応によって生成したものが含まれている。また、人工核種も、核爆発実験、原子力平和利用、核燃料サイクルから一般環境中に放出されている。

天然の核反応によって生成した核種は、地域による環境中濃度に大きな差はないと考えても良いが、核爆発実験によって生成した核種の降下量は、地域によりかなりの差が認められている。

また、原子力施設から放出されるものについても、施設周辺と施設から離れた所では大きな差があるので、人工放射性核種による被ばく曝線量を評価する場合には、地域差を考慮する必要がある。

3.1 の引用文献

- 1) 国連科学委員会 (UNSCLEAR) 1982年報告
- 2) 井上・宮本他：“環境中のトリチウムの測定調査” 第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (平成3年度) 1992.
- 3) 渡部・鎌田：“テクネチウムのラジオエコロジー” 保健物理 20 227-240, 1985
- 4) 鎌田・渡部他：“陸圏試料の調査研究—テクネチウムに関する調査研究—” 放射能調査研究報告書 (昭和63年度) N I R S - R - 18, 1989.
- 5) ・環境放射能調査研究成果論文抄録集, 第1回(1959)～第33回(1990)
・三宅：“大気中の放射性塵とその降下” 檜山編「放射線影響の研究」1971.
- 6) 環境放射能調査研究成果論文抄録集 第30回(1987)～第34回(1991)
- 7) 村松・大桃：“環境中でのヨウ素の分布と挙動について” 放射線科学 31 199-203, 1988.
- 8) Y. MURAMATSU and Y. OHMOMO : “IODINE-129 AND IODINE-127 IN ENVIRONMENTAL SAMPLES COLLECTED FROM TOKAIMURA/IBARAKI JAPAN.”
The Science of the Total Environment. 48 33-43, 1986.
- 9) G. T. シーボーグ著 品川・根津訳：“人工超ウラン元素” 1965.
- 10) Y. MAHARA and S. MIYAHARA : ”Residual Plutonium Migration in Soil of N Nagasaki”, J. G. R. Vol. 89, No. B9, pp7931-7936, (1984)
- 11) 森澤・渡部他：“環境中Pu及びAmの濃度水準に関する調査” 第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (平成3年度) 1992.
- 12) 動燃・東海：日本保健物理学会 第27回研究発表会要旨集 1992.
- 13) 鈴木・清瀬：核燃料サイクル工学 1981.

3.2 植物への取りこみ

(1) 易動性の大きい核種 (H-3, Tc-99)

- i) H-3 : H-3 は多くの場合、水の形で環境中に存在するで、降水、地下水、灌漑水に含まれ、これらを通して植物に吸収される。根から吸収されたH-3は導管を通して上昇し、葉から蒸散される。この間の移動はかなり早いので、降水中の濃度が植物中の濃度に反映する場合が多い。例えば福井市の雨水中濃度が1.3 Bq/l で、同市内で同じ時期に採集した松葉の組織自由水濃度が1.2Bq/l と報告されている¹⁾。

植物体内に入ったH-3 は一部植物成分に取り込まれるので、土壌から農作物への移行係数として、米国NRCのRegulatory Guide 1-109(1977) では4.8、IAEA TECDOC-401(1987) では5という値が与えられている²⁾。

- ii) Tc-99 : Tc-99の植物への移行については、その化学形によって非常に異なることが知られている³⁾。酸化性の雰囲気では TcO_4^- が安定で溶解性となり土壌中での易動性は大きい。然し還元状態が進んだ土壌中では還元されて不溶性の TcO_2 となり易動性は小さくなる。

3.1 の表 3.1.1⁴⁾ に示した通り還元性の強い土壌中では不溶性となり、土壌中での移行が少なくなるので土壌中の濃度は高くなり、そのような土壌で生育した植物への移行は小さくなる。還元性の少ない水田で生育した精白米への移行係数が1.8 であるのに対して、還元性の強い水田で生育した精白米への移行係数は0.15 となった。

各種の植物によるTc-99 の移行係数が発表されている³⁾ が、土壌の性質、実験の方法、Tcの植物に対する化学的毒性など移行係数を支配する要因が多いので、これらの要因を正しく判断して移行係数を利用することが必要である。

(2) 土壌への収着性の比較的小さい核種 (Sr-90, I-129, C-14)

- i) Sr-90 : 農作物の可食部へのSr-90 の移行係数は作物の種類によって差がある。ただ食用作物の可食部としたNCRPの報告⁴⁾ では、 $1.6 \times 10^{-3} \sim 1.7 \times 10^0$ の範囲でばらついている。

農林水産省農業環境技術研究所が1990年度に実施した「土壌及び米麦子実の放射能調査」⁵⁾ によれば、日本各地で収穫採取した農耕地(水田、畑)土壌及び米

麦実についてのSr-90の移行係数は、玄麦（8試料）で $(5.1\sim 15.8) \times 10^{-2}$ 、玄米（13試料）について $(0.68\sim 5.0) \times 10^{-2}$ となり、米、穀類の値と近い数値になっている²⁾。このようにSr-90の移行係数についても植物による差、生育地を含めた生育条件などを明らかにしなければならない。

- ii) I-129：ヨウ素の食用作物への移行係数はかなり広い範囲に分散している。例へばNUREG/CR⁶⁾では $2.0 \times 10^{-4} \sim 1.2 \times 10^{-1}$ 、NCRP⁴⁾では $2.2 \times 10^{-4} \sim 4.9 \times 10^{-2}$ という範囲の移行係数が示されている。CEC⁷⁾は穀類、根菜、葉菜に対していずれも 2×10^{-2} という値を勧告しているが、作物種にかかわらず同じ移行係数を与えるのは不適當と思われる。

日本では米が主要農産物であるために、水稻に対するヨウ素の移行係数が測定されている。水稻へのヨウ素の経根吸収による移行を考えた場合には、非湛水期間に水田土壌に蓄積されたヨウ素が移行する場合と、生育期間中にヨウ素が田面水に混入し、それが水稻に移行する場合が考えられる。湛水期間を模したポット実験の結果では土壌から玄米への移行係数は $(2\sim 3) \times 10^{-3}$ となり⁸⁾、土壌中の安定ヨウ素と白米中の安定ヨウ素の濃度比から求めた移行係数⁹⁾と同じような結果となった。

原子力発電所から放出されるヨウ素の約10%は元素状ヨウ素で、それ以外の揮発性無機および有機ヨウ素が約90%と推定されている¹⁰⁾。これらのヨウ素は環境中で種々の化学形に変わることが考えられ、化学形の相異によって植物への移行が異なることが知られている。

例えば、小松菜を用いたヨウ化物とヨウ素酸塩の移行割合を測定した結果、表3.2.1のような移行割合が測定された¹⁾。ヨウ化物の移行がヨウ素酸塩より圧倒的に大きいことがわかる。

表 3.2.1 小松菜組織液へのヨウ素の化学形の相異による移行割合 (%)

小松菜の組織液	ヨウ素酸 (IO_3^-)	ヨウ素イオン (I^-)
葉	10.3	89.7
根	4.8	95.2

茨城県東海村、那珂湊市で採集した松葉に含まれているI-129の濃度は、表3.2.2の通りであった¹²⁾。

表 3.2.2 松葉の I-129濃度

採取場所	採取時期	I-129濃度 (mBq/kg・生)
茨城県東海村 (村松)	1981年 9月	32±1.8
” (照沼)	”	21±0.8
茨城県那珂町 (笠松)	”	7.8±0.3
茨城県那珂湊市 (磯崎)	”	1.2±0.03
静岡県伊東市	”	<0.04
茨城県東海村 (枯葉)	1981年 4月	26±0.3
茨城県那珂湊市 (”)	7月	4.8±0.1

原子力施設から離れる程松葉中の I-129濃度は低くなり、降水中の濃度と同じ傾向を示し、施設から放出されたものを松葉が蓄積したものであり、松葉が環境中 I-129の指標になると思われる。

- iii) C-14：植物へのC-14の移行は、大気中にCO₂として存在する炭素が同化作用によって植物にとりこまれる時に一緒にとりこまれるものである。従って植物体に含まれるC-14の量は大気圏内の¹⁴CO₂の量に支配される。

特に一年生植物の精油および醗酵アルコール中のC-14濃度は、その植物が生育した年の大気中C-14の濃度をよく反映する。

3.1でも述べたように、天然の核反応によって生成したC-14の濃度は、核爆発実験、原子力発電所操業開始前の大気圏内で、炭素1g当り0.227Bq (13.6dpm)であった。この大気圏内のC-14濃度変化が植物精油醗酵アルコール中の濃度変化によって示されている。その結果は表 3.2.3に示す通りである¹³⁾。

表 3.2.3 最近5ヵ年の醗酵アルコール中のC-14濃度 (dpm/g・炭素±S.D.)

植物生育年	C-14濃度
1987	16.62±0.45
1988	16.28±0.11
1989	15.58±0.08
1990	15.6±0.4
1991	15.63±0.14

なお、1985年、1986年に収穫したブドウを使用したイタリア産ワイン中のC-14濃度は、夫々 15.99 ± 0.09 、 15.93 ± 0.09 dpm/g・C \pm S.D.であった。

核爆発実験が連続的に行われた1960年代には、植物精油、醱酵アルコール中のC-14濃度が高くなり1963年には自然平衡レベルである13.6dpm/g・Cの約90%増しの26dpm/g・Cという最高値を示した。核爆発実験の停止、化石燃料の燃焼による安定CO₂の増加などにより大気圏内の炭素1g当りのC-14の放射能は減少の傾向を示し、その状況が表3.2.3に示すように醱酵アルコール中のC-14濃度に現れている。

然し、現在の濃度は自然平衡レベルに比べて約15%増しの状態である。

(3) 土壌への収着性の比較的大きい核種 (Cs-137, Pu-239, Am-241, Np-237)

- i) Cs-137 : Sr-90 のところでのべた通り、この核種は核爆発実験開始当初から注目され、種々の環境試料中の測定値も多く、植物への移行係数も色々の値が発表されている。

食用作物の可食部についてNCRPが発表した値⁴⁾は、 $1.5 \times 10^{-5} \sim 2.9 \times 10^{-1}$ という広い範囲に分散している。然し、作物を種類別(穀類、いも類、根菜類、葉菜類、果葉類、種実類)に分けると、環境パラメータシリーズ・1²⁾に示すように、そのばらつきの範囲が2桁程度におさまっている。

同じ作物でも生育条件などで移行係数に差がみられる。例へば全国各地で収穫採取した農耕地(水田、畑)土壌および米麦子実について測定したCs-137の移行係数⁵⁾は、玄麦(8試料)で $(1.1 \sim 5.3) \times 10^{-3}$ 、玄米では12試料で $(0.5 \sim 29.3) \times 10^{-3}$ 、白米は12試料で $(0.4 \sim 12.1) \times 10^{-3}$ となった。玄麦は玄米・白米にくらべてばらつきが小さい。

Cs-137はSr-90よりも土壌への収着性が大きいために、植物への移行係数は小さくなる。

- ii) Pu-239 : Pu-239はその化学形によって挙動が非常に異なる。NCRPの食用作物の可食部への移行係数⁴⁾は $1.2 \times 10^{-7} \sim 2.0 \times 10^{-2}$ という広い範囲にばらついている。これを作物の種類別に分けると、その範囲が小さくなることはCs-137の場合と同様である³⁾。

核爆発実験で生成したPu-239は酸化物と思われ水に不溶性であるから植物への

移行も少ない。使用済燃料再処理の場合は、燃料を硝酸で処理するのでPu-239は硝酸塩の形となり水に可溶性である。従ってこの形で環境中に放出された場合には、植物への移行係数は酸化物の場合よりも大きくなる。

このようにPu-239の植物への移行は、Pu-239の生成過程、土壌中での存在条件などを考慮して移行係数を取り扱う必要がある。

- iii) Am-241 : Am-241の植物への移行係数を測定した報告は少ない。M. Pimpl 等は作物の種類別に移行係数を報告している¹⁴⁾。その報告によれば作物の種類によって移行係数は異なるが、全作物を通して $3 \times 10^{-3} \sim 3 \times 10^{-6}$ の範囲で、移行係数としては小さい値である。

Am-241を土壌に投与して植物への移行を測定した実験で 10^{-7} という移行係数が算出されているが、この実験では環境中濃度に比べて異常に多量のAm-241が投与されている。実験によって求められた移行係数を使う場合には、その実験条件を明かにすることが必要である。

- iv) Np-237 : 参考文献14では、Np-237の移行係数として、全作物を通して $6 \times 10^{-2} \sim 4 \times 10^{-4}$ という比較的狭い範囲の値が発表されている。

Pu-239、Am-241にくらべてやゝ高い移行係数が発表されている。然し、CEC¹⁾の発表した穀類についての移行係数は 1×10^{-6} という低い値になっている。

(4) まとめ

放射性核種の植物への取り込みは、普通「移行係数」で示される。移行係数は、一般に「土壌中放射性核種濃度」に対する「植物中放射性核種濃度」の比で表されるが、移行係数を変動させる要因としては、次のようなものが考えられる。

- ① 土壌、植物中の放射性核種濃度の算出方法（乾燥物重量当たりか、生重量当たりか、など）。
- ② 放射性核種の違いと、これらの物理的、化学的存在形態の相違、また、共存する同位元素や類似元素の濃度と存在形態。
- ③ 土壌の性質の相違（pH、無機成分・水分・有機物および交換性K・Ca量、粒径組成、酸化還元電位など）。
- ④ 農作物の種類之差と栽培条件（気象条件、施肥など）。

- ⑤ 実験条件の相違（R I トレーサ実験か、フォールアウト核種の分析によるものなのか、また、トレーサ実験の場合には実験の規模、サンプリング条件など）。

現実には、これらの要因がいくつか複合した結果として移行係数が算出されるのであるから、移行係数を用いる場合には、その係数が算出された条件を明らかにしておかなければ、判断を誤ることになる。

3.2 の引用文献

- 1) 徳山・泉：“福井県敦賀地区における陸上試料中のトリチウム濃度”第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成3年度）1992.
- 2) ”土壤から農作物への放射性物質の移行係数”環境パラメータシリーズ1、原子力環境整備センター、1988.
- 3) 渡部・鎌田：“テクネチウムのラジオエコロジー”保健物理、20 227-240, 1985.
- 4) N C R P Report 76, 1984.
- 5) 駒村・結田他：“土壤及び米麦子実の放射能調査（平成2年度）”第33回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成2年度）1991.
- 6) Y. C. Ng and S. E. Thompson：“Soil-to-plant concentration factors for radiological assessments.” N U R E G / C R - 2975, 1982.
- 7) C E C：“Methodology for evaluating the radiological consequences of radioactive effluents released in normal operations” Commission of the European Communities. 1979.
- 8) 内田・村松他：“放射性ヨウ素の土壤から水稻への移行に関する基礎的研究”RADIOISOTOPES 38 57-62, 1989.
- 9) 高城・木村他：“水田土壤から米への安定ヨウ素の移行について.”保健物理 20 251-257, 1985.
- 10) 成富：“環境へ放出されてからの化学形”第7回放送研環境セミナー「最近の環境における放射性ヨウ素の諸問題」1979.
- 11) Y. MURAMATSU and D. CHRISTOFFERS et al：“Influence of Chemical Forms on Iodine Uptake by Plant.” J. Radiat. Res. 24 326-338 1983.
- 12) Y. MURAMATSU and Y. OHMOMO：“IODINE-129 and IODINE-127 in ENVIRONMENTAL SAMPLES COLLECTED from TOKAIMUTA/IBARAKI JAPAN.” The Science of the Total Environment 48 33-43, 1986.
- 13) ・岩倉・井上：“環境中の¹⁴C濃度調査”放射能調査研究報告書（昭和63年度）N I R S - R - 18, 1989.
・環境放射能調査研究成果論文抄録集 第30回（1987）～第34回（1991）
- 14) M. Pimple and M. Schmidt：“Soil-to-plant transfer studies of neptunium, plutonium, americium and curium.” IVth International Symposium of

Radioecology of Cadarache on the Impact of Nuclear Origin Accident on
Environment, Cadarache, France, 1988.

3.3 空気中への再浮遊と表層土壌等への沈着

(1) 現象とその影響^{1, 2)}

土壌表面沈着粒子状物質が、風や人間活動のようなメカニズムで空気中に、再伴出(RE-ENTRAINED)するようなプロセスを再浮遊(RESUSPENSION)と呼ぶ。

植生のない乾燥環境においては、粒子状物質は、初めて沈着した後長期間にわたり再浮遊することが実証されてきている。再浮遊した物質は風で他の地域に運ばれ、再び土壌表面に沈着したり、農作物の表面に沈着したりする。この物質が放射性核種の場合は、長期間にわたり放射線被ばく経路となりうる。特にプルトニウムのような長寿命の放射性核種は、土壌への取着性が大きく、植物による経根吸収はほとんどないが、この再浮遊という現象の結果、舞い上がった土壌による汚染空気の吸入や、汚染農作物の経口摂取による内部被ばく因子が、相対的に重要な被ばくとなってくる。再浮遊に影響する因子は、表3.3.1に示す通りいろいろあり、これ等が複合的に関係するので、再浮遊という現象には不確定要素が多く、評価方法としてモデルで理論的に表現することは難しく、まだ確定された考え方は国際的には示されていない。

表 3.3.1 再浮遊に影響する各種因子

沈着後経過時間 風速 地表面の性状；植生、建物等 表面水分（湿分） 土壌化学及び構成 汚染粒子の粒径分布 汚染物質の化学的特性 沈着プロセス；湿／乾、風速、降雨量等 交通、農業等による機械的妨害 耕作深度及び方法 降雨の強度及び頻度 地表の覆雪又は凍結

(2) 再浮遊に関するモデル

再浮遊に関する理論式として確定したものはまだなく*、国際的（IAEA等）³⁾には、次に示す経験式としての再浮遊係数（K）が使われている。

$$K \text{ (m}^{-1}\text{)} = \frac{\text{再浮遊空気中放射性核種濃度 (Bq} \cdot \text{m}^{-3}\text{)}}{\text{土壌表面沈着放射性核種濃度 (Bq} \cdot \text{m}^{-2}\text{)}} \quad (3.3.1)$$

*モデルの開発状況の詳細は5.1を参照のこと。

この式の分子の算定にあたっては、地上の高さ、空気試料採取速度等の測定条件のほかに、再浮遊以外の影響、例えば成層圏からの落下粒子の影響の考慮等が必要であ

る。また分母の算定に当たっては、地表土壌の厚さをどのようにとるかが問題であるが、実際的には事故等汚染直後の評価の場合は、垂直混合やウエザリングによる欠損の配慮の必要はなく、ごく表面の初期沈着量を使用することとなる。地表汚染の低い所はその場所の再浮遊よりは、汚染の高いところからの再浮遊により風で運ばれてくる影響のほうが大きくなる。いずれにしてもこの統一的表示方法はまだ決まっていない。従ってこのKの使用は物理的プロセスを示すものではなく、観測的結果を示すものである。最近のレビューではKの時間依存性の形態は2つのコンポーネントの指数関数で示される。

$$K = A \exp(-\lambda_1 t) + B \exp(-\lambda_2 t) \quad (3.3.2)$$

ここでA、Bはコンスタント、 λ_1 は短期の有効除去率、その半減期は通常数週間のオーダーである； λ_2 は長期の有効除去率、その半減期は50～100年のオーダーである。Aの文献値は $10^{-4} \text{ m}^{-1} \sim 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ であるのに対しBのそれは $10^{-8} \text{ m}^{-1} \sim 10^{-10} \text{ m}^{-1}$ である。(1)式の Reference値を次に示す (I A E A)。

$$\begin{aligned} A & : 1 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1} & B & : 2 \times 10^{-9} \text{ m}^{-1} \\ \lambda_1 & : 1 \times 10^{-2} \text{ d}^{-1} & \lambda_2 & : 2 \times 10^{-5} \text{ d}^{-1} \end{aligned}$$

(3) 再浮遊係数の実測例²⁾

再浮遊係数 (K) はこれまでのいろいろな調査研究で最も多く使用されてきたパラメータであり、そしてまた地表面汚染の影響を物語るものである。フィールドの測定結果では沈着の直後Kは $10^{-6} \sim 10^{-4} \text{ m}^{-1}$ のオーダーであるが、数年後になれば約 10^{-9} m^{-1} に減少する。いくつかの実験モデルは、この挙動を示している。これを図 3.3.1 に示す。

図 3.3.1の最下段の一点鎖線は、「風洞」実験に基づくものである。

これら調査はフィールド実験と一致しており、Kは風速と共に増加し、沈着後の時間と共に減少している。Kは1～5 μm の範囲で粒子径と共に増加する。Kの時間経過減少の様子は時間と逆数の関係にあることを示している。

沈着長期間経過後のKの情報は、核兵器爆発テストについての測定から少しづつ集められる。地表レベルの空气中放射性核種濃度は常に、成層圏という貯蔵所からある程度の供給の影響を受けており、従って、Kは上限値しか得られないということになる。UK全土における空气中Cs-137についてのデータによれば、Kはピーク沈着後13

年で $2 \times 10^{-9} \text{ m}^{-1}$ 、22年後で $5 \times 10^{-10} \text{ m}^{-1}$ 未満であった。空気及び土壤中の放射性核種濃度比及び微量元素濃度を使って、この測定限度の向上が図られてきている。Garland と Ga-nebray et al. は、沈着の15年及び18年後Kはそれぞれ 7×10^{-11} または $2 \times 10^{-10} \text{ m}^{-1}$ より大きくはないと言っている。

1966年スペインの Palomaresにおけるプルトニウム核兵器燃焼事故についてもKの測定がなされ、最初の1年の平均のKは $(0.2 - 2) \times 10^{-9} \text{ m}^{-1}$ と報告されているがこれは汚染表面土壌の削除が事故直後になされた後の値であろうとされている。

(4) チェルノブイリ事故のデータ²⁾

チェルノブイリ事故についての再浮遊のモデリングの検証については IAEA/CECの共同研究プログラムが組まれている。

この調査の第1報によれば得られているのは長期平均の空气中濃度なので表 3.3.1 に示す各種のパラメータに対するレスポンスとしてのKは、短期の天候よりはむしろ

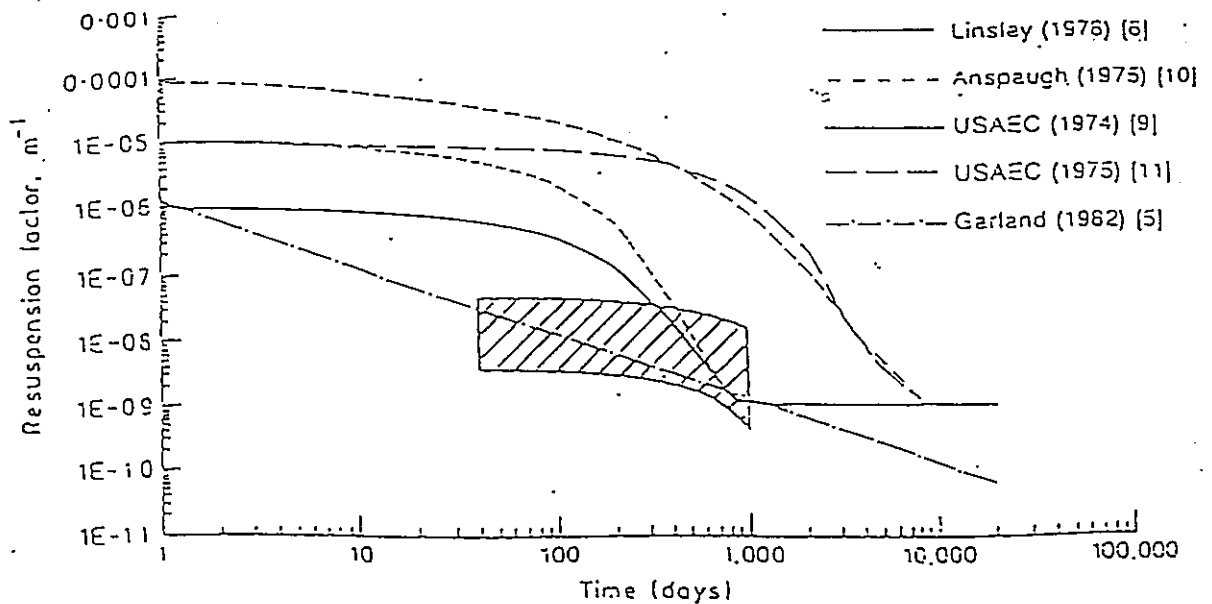


図 3.3.1 チェルノブイリ事故に係る再浮遊係数(K) のヨーロッパ各地での測定値 (斜線部) 及び各種モデル値

Linsley $K = 10^{-6} \exp(0.01t) + 10^{-9}$
 Anspaugh $K = 10^{-1} \exp(-0.15t^{1/2}) + 10^{-9}$
 USAEC(1974) $k = 10^{-5} \exp(-0.0139t) + 10^{-9}$
 USAEC(1975) $k = 10^{-5} \exp(-0.00185t) + 10^{-9}$
 Garland $K = 1.2 \times 10^{-6} / t$
 t : 沈着後時間(d), Kのディメンション: m^{-1}

長期の気候に支配されている。また、この調査で全般的に取り上げられたのはセシウムだけである。

他の核種についてはZr-95/NbとCe-144についてのみ限られたデータが得られたぐらいで十分なデータが得られていない。

Cs-137とCs-134の比も検討されたが、Cs-134の半減期は短く、有用なデータは得られなかった。限られたデータではあるが、核種別の差はあまりないようである。Cs-137について得られたデータから言えることは次のとおりである。

- ① 過去のデータと比べれば、Kは最も小さい（図 3.3.1の斜線部分）。
- ② 時間と共にKは減少する。
- ③ 土壌表面沈着量とKは対数表示で逆数関係にある。
- ④ 再浮遊の起源物質はサンプリングサイトのまわりからのものである証拠が示された。
- ⑤ 道路交通の影響が著しい。
- ⑥ 交通状況、風向等により距離的場所の違いの影響が大きい。
- ⑦ 沈着量の少ないエリアでは、成層圏から戻ってくる寄与が少しあるらしい。
- ⑧ いくつかのサイトについての汚染直後の汚染空気吸入による被ばく線量と再浮遊による汚染空気吸入線量を比べてみた結果、すべてのケースについて、事故後2年間の再浮遊による線量は、事故直後の空気汚染のその10パーセント未満であった。
- ⑨ 再浮遊物質が事故後1年間に再び沈着した割合は0.01~1.0パーセントであった。農作物及び非汚染区域地表を汚染する可能性はかなりあると思われる。

(5) その他の着目すべき研究報告

- ① 米国のネバダ核実験場周辺の食物連鎖による被爆計算コード「PATHWAY」がダイナミックモデルとして発表されているが再浮遊を考慮している⁹⁾。
- ② 米国サバンナリバー核燃料化学分離施設敷地周辺におけるとうもろこし、その他の穀物に対するプルトニウムの経根吸収、空气中塵埃からの直接作物汚染、再浮遊沈着作物汚染の重要度の相対比較調査結果の報告がある¹⁰⁾。

上記の評価モデルではいずれも、再浮遊係数（K）を使用し、作物の汚染による内部

被ばく線量を評価している。

(6) 最近の国際研究

再浮遊をパラメータの1つとしてとり挙げている研究報告を次に示す。

① BIOMOV5 SCENARIO B2¹¹⁾

Irrigation with contaminated groundwater.

スウェーデン国立放射線防護研究所により始められた国際共同研究の一環であり15のモデルの比較研究。

農業用のスプレイ灌漑に使用する地下水中に存在するNp-237及びTc-99について評価比較している。

土壌の再浮遊に伴う作物の間接汚染についてDETRA (フィンランド)、BIOPATH (スウェーデン)及びECOS (UK)の3つのモデルについて、又空気汚染については、BIOSPHERE (ベルギー)、BIOS (UK)、IAEA及びECOS (UK)の4つのモデルで再浮遊係数をパラメータとして使用している。

② Intercomparison of the terrestrial food chain models FOOD-MARC and ECOSYS¹²⁾

CEC ContractのもとでのモデルでFOOD-MARC (ドイツ)とECOSYS (UK)の国際間比較

③ Modelling of resuspension, seasonality and losses during food processing.

First report of the VAMP Terrestrial Working Group

Validation of Environmental Model Predictions (VAMP)に関するIAEA/CECの共同研究プログラムの一部。

内容については(4)で説明済み。

(7) 環境安全評価モデルにおける再浮遊の取り扱い

原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種の生態圏中の移行を推定する食物連鎖モデルとしては、米国原子力規制委員会（U.S. NRC）規制指針 1.109のモデル¹³⁾ が現在最も広く利用されている。このNRCモデルは元来軽水炉からの核種放出に適用するために開発したものである。しかし、このモデルは再浮遊を考慮していない。

そこでNRCモデルを基礎とし、軽水炉以外の原子力施設に対してもより現実的な評価が行えるよう改良・拡張を加えたモデルが報告がされている^{14, 15)}

(8) まとめ

再浮遊に関連するパラメータは、上述のようにいろいろあり、その状況によって線量評価上のウェイトは異なってくるであろうが、最も重要と思われるのは、やはり農作物の表面汚染と考えられる。特にプルトニウムのような長半減期の核種がそうである。

汚染発生時風上に位置する等、汚染発生箇所の直近のエリアで、汚染の低いところであっても、その後の気象条件や人間活動により、農作物や地表面に再浮遊の影響を受けることがあり得る。解析評価にあたっては、気象や人間活動、交通等の考慮が必要である。

3.3 の引用文献

- 1) 佐伯誠道 (編) : “環境放射能—挙動・生物濃縮・人体被ばく線量評価—” ソフトサイエンス社、(1984)
- 2) Garland J. A., N. J. Pattenden and K. Playford : “Modelling of Resuspension, Seasonality and Losses during Food Processing — First Report of the VAMP Terrestrial Working Group”, IAEA-TECDOC-647, pp9-33, (1992)
- 3) IAEA : “Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides form Routine Releases”, IAEA Safety Series No. 57, (1982)
- 4) LINSLEY, G. S., Resuspension of the Transuranium Elements— A Review of Existing Data, NRPB-75, HMSO, London (1978).
- 5) ANSPAUGH, L. R., SHINN, J. H., PHELPS, P. L., KENNEDY, N. C. Resuspension and redistribution of plutonium in soil, Health Phys. 29 (1975) 571-582.
- 6) UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION, Proposed Final, Environment Statement, Liquid Metal Fast Breeder Reactor Programme, Part II G-19, WASH-1535, USABC, Washington, DC (1974).
- 7) UNITED STATES ATOMIC ENERGY COMMISSION, Peactor Safety Study— An Assessment of Accident Risks in US Commercial Nuclear Power Plants— Appendix IV, E-13, WAHE-1400, USABC, Washington, D. C. (1975).
- 8) GARLAND, J. A., Resuspension of Particulate Material from Grass, Experimental Programme 1979-1980, AERE-R 10106, HMSO, London (1982).
- 9) Whicker F. W. and Kirchner T. B. : “PATHWAY: A Dynamic Food-chain Model to Precict Radionuclide Ingestion After Fallout Deposition”, HEALTH Phys. 52, pp. 717-737, (1987)
- 10) Pinder III J. E., K. W. Mcleod, D. C. Adriano, J. C. Corey and A. L. Boni : “Atmospheric Deposition, Resuspention, and Root Uptake of Pu in Corn and Other Grain-Producing Agroecosystems near a Nuclear Fuel Facility”, Health Physics, Vol. 59, No. 6, pp. 853-867, (1990)

- 11) BIOMOVs : "Irrigation with Contaminated Groundwater", BIOMOVs Technical Report 6, (1989)
- 12) Prohl G., et al. : "Intercomparison of the Terrestrial Food Chain Models FOODMRC and ECOSYS" GSF-Bericht 18/86, (1986)
- 13) U. S. NRC: U. S. NRC Regulatory Guide 1.109, (1977)
- 14) 外川織彦 : "原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種による公衆の被ばく線量を算出するための計算コード TERFOC-N", JAERI-M 89-145, (1989)
- 15) TOGAWA, O. "Computer code TERFOC-N", to calculate doses to public using terrestrial foodchain models improved and extended for long-lived nuclides", J. Nuclear Science and Technology, 27[4], pp.360-374, (1990)

3.4 表層土壌から浅地中への移行

表層土中の放射性核種は、様々な化学形をとって、固相と液相、時には気相にも分配されて存在する。降雨、降雪、地下水面の上昇等による水分移動に伴って、液相中の核種および固相から脱離された核種は浅地中へ移行する。表層の土壌は植生、土地利用形態、気候、酸性雨等の地表面における自然現象・人間活動の影響をうけるため、核種の分布特性はサイトに依存して多様であり、フィールドと実験室にまたがって広汎な研究が必要とされる。

地質媒体に収着された核種の脱離は、主として核種の土壌溶液中の存在形態および固相との結合機構に支配される動力学的過程である。核種の浅地層への移行速度は、土壌溶液中の核種と固相の間の相互作用に依存する。脱離された核種は、地下水面上方の不飽和帯を經由して浅層地下水に至るため、その不飽和領域における移行を考慮しなければならない。不飽和領域における物質移行現象の研究は、農学、水文学、水質化学等の諸科学の境界領域にあって未解明の課題も多く、放射性核種の挙動を把握し、定性モデルおよび定量モデルの構築に至るまでには多くの課題が残されている。

さらに、表層付近の核種の移動は、降雨、降雪、日照等の気象条件や土地利用形態の変遷、各種の生物活動等に支配されて時間的に変化するため、非定常問題としての取扱いが必要とされる。

以上の観点をふまえて、ここでは、表層土壌から浅地層中への放射性核種の移行に関わる諸現象のうち、核種の土壌溶液中の存在形態および固相との結合の機構について核種移行との関連から整理する。

(1) 核種の存在形態・結合機構と再移動

土壌-土壌溶液系中の放射性核種は、イオン、分子、コロイド、あるいは微粒子に収着した状態で土壌溶液中に存在し、また固相との間でイオン交換、錯体形成、結晶格子中への拡散、沈殿形成・沈降等の反応を行って、様々な形態で存在する。熱力学的平衡時の核種の溶液中存在形態については、数々の地球化学計算コードが開発され、実験による平衡定数の算出が行われている。しかし、現実の土壌溶液中の核種は熱力学的平衡状態に到達していない場合も多く、核種の存在形態変化の動力学に関するデータの集積が今後の課題である¹⁾。核種と固相の結合形態は、マイクロX線回折法²⁾、イオンビーム法³⁾、等による

核種の結合対象鉱物の調査、あるいは選択的抽出試験¹¹⁾、脱離試験⁵⁾の実施により間接的に推定できる。

液相中に溶存する核種の移行速度は、固相への収着の大きいほど小さい。またコロイドを形成した核種は、水中拡散係数が減少する一方で⁹⁾、土壌孔隙の幾何学的構造とコロイドおよび固相表面の荷電状態に依存して、間隙水に比して移行が促進されることがある。微粒子に収着して浮遊する核種についてはコロイドの場合と同様に移行促進の見られる場合⁷⁾と粒径により濾過されて移行遅延の生じる場合⁸⁾がある。還元性鉱物や微生物活動等による酸化還元反応、有機物等との錯体形成、あるいは未平衡であった化学反応の進行等により、移行の途中においても核種の存在形態は動的に変化する。存在形態により固相との結合特性や結合量は異なるため、形態変化に連動して移行速度の変化がおこることが考えられる。

固相に一旦収着された核種のうち、イオン交換による可逆収着成分は水分移動に伴い脱離され、その脱離速度は収着係数の大きいほど小さい傾向がある⁹⁾。沈殿成分および粘土などの微粒子に収着した成分に関しては、系の物理的な攪乱により微粒子として浮遊・移動することが考えられる。それ以外の成分については、近年世界的に問題となっている酸性雨による浸出¹⁰⁾、湛水条件の変化・微生物活動による酸素雰囲気やpHの変化に伴う形態変化・脱離、等による再移動が考えられる。さらに土壌の風化・地下水水質変化等の地球化学的過程が進行するとともに、収着された核種の再分配、液相中への溶脱、微粒子としての再浮遊等がおこることが考えられるが、このような長期的過程についての研究はきわめて少ない¹¹⁾。

(2) 易動性の大きい核種の挙動

H-3 は、HTO の形態で存在する場合は、土壌水分とともに移動するためその移動性は大きい。

Tc-99 は、環境水中で好気性条件下では TcO_4^- 、嫌気性条件下では TcO_2 として主として存在すると考えられている。前者は一般に地質媒体への収着性が低くかつ可逆収着であるが、後者は比較的収着性が高く有機物と共沈する場合もあり非可逆的に収着される¹²⁾。従ってTc-99 の脱離・再移動は好気性条件下では高く嫌気性条件下では低くなる。但し、 TcO_2 の TcO_4^- への酸化はpHにもよるが概して緩慢である¹³⁾ ため好気性条件下でも TcO_2 と TcO_4^- が混在し短期的には再移動が起こりにくい場合もあると考えられる。

(3) 土への収着性の小さい核種

I-129 は環境水中で主に I^- 、 IO_3^- として存在し、一般に IO_3^- のほうが土壌への収着性が高いと言われている^{14, 15)}。再処理工場から空気中に放出され地表面に降下したI-129 についての調査例では、表層 30cm における平均滞留半減期は 20 年から 30 年であり、主として水酸化物と有機物に収着され、深くなるほど土壌の収着性が低下するとの報告がある¹⁶⁾。また、微生物によるI-129 の収着を実験的に確認した報告もある¹⁷⁾。ヨウ素の安定同位体については平均滞留半減期を数千年とする研究がある^{18, 19)}が、これは再処理工場由来のヨウ素との存在形態の違いによると考えられる。従ってI-129 については、半減期が 1.57×10^7 年であることを考慮すれば、全般に移動性は高く、特に有機物・微生物の少ない土壌ではかなりの部分が表層から浅地層に移行もしくは空気中に再浮遊する可能性があり、フィールドにおいてさらに研究を積み重ねていくことが必要である。

Sr-90 については、その土壌溶液中の存在形態は、2 価の陽イオンであって、土壌への収着性はCsに比べて低く²⁰⁾、イオン交換性の収着であるため²¹⁾、表層土壌中においても比較的高い移動性を有すると考えられる。実際、フィールド調査においても Sr-90はCs-137やPu-239, -240 に比べて、下方向への移動度が大きいことが確認されている^{22, 23)}。

C-14は、多くは炭酸ガスとして存在し、その一部が植物体に同化されて、植物体の腐朽に伴って、腐植物質等の有機物として土壌中に移行すると考えられる。腐植物質は、不溶性の成分（腐植）と高分子量の可溶性の成分（腐植酸、フルボ酸）に分けられるが、この可溶性成分は、土壌への収着性が大きいことが知られている^{24, 25)}。一方, Jardineら²⁶⁾は、可溶性有機物の土壌への収着機構について、25%程度が陰イオン交換反応であり、それ以外は物理収着であるとしている。また、腐植酸は、金属と結合してコロイドを作り、pHやイオン強度に依存して凝集沈殿する⁶⁾。以上のことから、有機物として浅地中へ移行するC-14は、短期的にはそれほど多くないと考えられるが、長期的には有機物の分解、土壌の風化や雨水による浸出が進行するにつれて移行が生じることが予測される。

(4) 土への収着性の大きい核種の挙動

Pu-239、Am-241、Np-237等のアクチニド系列の元素の挙動については、高レベル廃棄物の地層処分に関連して、近年数多くの研究が実施されている。アクチニド系列元素は、環境水中で、加水分解・酸化還元反応・有機物との反応等、様々な反応を受け易く、しばしば異なる原子価数・存在形態のものが共存する。また、これらの反応は比較的緩慢で動力

学的な取扱いを要するものが多い^{27, 28, 29)}。表層土壌における存在形態と移行挙動に関連して特に注目されるのは、これらの元素と表層土壌中に豊富な有機物、特に不溶性の腐植物質、可溶性の腐植酸、フルボ酸、の相互作用である。Pu, Am については、土壌（固相）中の有機物に特に高い比率で存在すると言われている^{30, 31)}。フォールアウトのPu, Am についてのフィールド調査によれば、沈着後10年以上経過した時点で表層の 0~20cmの層に有機物および水酸化物と結合して95%以上が残留している^{23, 30, 32)}。

一方、土壌溶液中のPu, Am は可溶性の有機物と結合してコロイドとして存在し^{6, 33)}、pH、イオン強度、陽イオンとの結合に依存して凝集沈殿する⁶⁾。環境水中でのPuは、通常IV価またはV 価の価数をとるとされている³⁴⁾。Pu(III、IV)の淡水中堆積物からの脱離については、迅速なイオン交換に支配される成分は僅かであって、大部分は緩慢な速度で脱離され、また可溶性有機物の溶液中添加によりコロイドとして溶出される成分が増加することが観察されている。一方でPu(V、VI)はイオン交換により比較的脱離されやすく、有機物の添加による脱離の促進は認められていない⁵⁾。

以上のことからPu, Am については、土壌中有機物による固相への保持効果が大きい一方で、土壌溶液中の可溶性有機物との錯体形成が脱離を促進することが考えられる。その結果溶液中に生成する有機物コロイドの移動性は、溶液と土壌間隙の特性により変化し、間隙水より速く移行する場合、濾過により移行遅延が生じる場合の双方が考えられる。なおNpについては有機物との反応が観察されているが³⁵⁾、その液相での反応性・固相への吸着性ともに、Pu, Am と比べて弱いことから、移動性は比較的大きいと考えられる。

Csは通常溶液中で1価の陽イオンとして存在し、イライト等の粘土に特異的に吸着されることが知られている³⁶⁾。また有機物-粘土複合体への吸着の可能性についても報告がある³⁷⁾。従って、Csは大半の土壌に含まれる粘土成分への吸着に支配されて表層土壌中に保持され、その移動性は低いと考えられる。実際、フィールド調査から、Cs-137について、表層近傍の土壌に強く吸着保持されていることが報告されている^{30, 37, 38)}。

(5) 放射性核種の脱離・再移動の数値モデルの構築

放射性核種の脱離・再移動の割合や速度を、その固相との結合機構と関連させて数値モデル化した研究は、極めて少ない。核種と土壌の結合機構は、本項で述べてきたように、土壌および土壌溶液の状態に依存して変動するため、数量的な取扱いに際しては様々な困難がある。最も簡便な方法は、核種の固相からの脱離について瞬間平衡を仮定し、核種の

脱離に関する固液間分配係数を核種の収着に関する固液間分配係数と別の値に設定することである。ただし、これらの分配係数値は、収着および脱離時の液相の条件と固相の性質により大きく変動することに注意する必要がある。

- 1) Grenthe, I., 1991. Thermodynamics in migration chemistry. *Radiochim. Acta*, 52/53: 425-432.
- 2) 亀頭直樹, 1986., 4. 吸着メカニズムに関する実験的研究, 4.2 XMAを用いた研究. 地層処分研究成果報告会論文集. 動力炉核燃料開発事業団・原子力安全研究協会, 74-80.
- 3) 伊藤憲昭, 森田憲治, 1986., 4. 吸着メカニズムに関する実験的研究, 4.2 イオンビーム分析法を用いた研究. 地層処分研究成果報告会論文集. 動力炉核燃料開発事業団・原子力安全研究協会, 81-86.
- 4) Fujikawa, Y. and Fukui, M., 1991b. Variations in adsorption mechanisms of radioactive cobalt and cesium in rocks. *J. Contam. Hydrol.*, 8:177-195.
- 5) Mudge, S., Hamilton-Taylor, J., Kelly, M. and Bradshaw, K. 1988. Laboratory studies of the chemical behaviour of plutonium associated with contaminated estuarine sediments. *J. Environ. Radioactivity*, 8: 217-237.
- 6) Choppin, G. R., 1992. The role of natural organics in radionuclide migration in natural aquifer systems. *Radiochim. Acta*. 58/59: 113-120.
- 7) Eichholz, G. G. and Craft, T. F., 1982. Role of particulates in subsurface migration of wastes. 541-555. In *Environmental migration of long lived radionuclides*. IAEA, Vienna, 831p.
- 8) Lieser, K. H., Ament, A., Hill R., Singh, R. N., Stingl, U. and Thybus B., 1990. Colloids in groundwater and their influence on migration of trace elements and radionuclides. *Radiochim. Acta*, 49:83-100
- 9) Fujikawa, Y. and Fukui, M., 1991a. Analysis of radioactive cesium and cobalt adsorption to rocks using the two-site kinetic model equations. *J. Contam. Hydrol.*, 8:43-69.
- 10) Louzao, M. J., Leiros, M. C. and Guitian, F., 1990. Study of buffering systems in soils from Galicia, N. W. Spain. *Water, Air, and Soil Pollution*. 49:17-33.
- 11) Koons, R. D., Helneke, D. A., Jackson, M. L., 1980. Association of trace elements with iron oxides during rock weathering. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 44:155-159.
- 12) Sheppard, S. C., Sheppard, M. I., and Evenden, W. G., 1990. A novel method used to estimate variation in Tc sorption among 34 soils, aerated and anoxic.

- J. Environ. Radioactivity, 11:215-233.
- 13) Stalmans, M., 1986. The behavior of technetium in the environment. Physico-chemical aspects. In: Dissertations de Agricultura. No.148: Faculteit der Landbouwwetenschappen van de Katholieke Universiteit de Leuven, Belgium.
 - 14) Couture, R. A. and Seitz, M. G., 1983. Sorption of anions of iodine by iron oxides and kaoline. Nuclear and Chemical Waste Management. 4:301-306
 - 15) 内田滋夫, 1987. 放射性ヨウ素(I-129)の農作物への移行に関する研究. 京都大学博士学位論文
 - 16) Robens, E., Hauschild, J., Aumann, D. C., 1989. Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant:IV. 129I and 127I in undisturbed surface soils. J. Environ. Radioactivity. 9:17-29.
 - 17) Bors, J. and Martens, R., 1992. The contribution of microbial biomass to the adsorption of radioiodide in soils. J. Environ. Radioactivity, 15:35-49.
 - 18) Kocher, D. C., 1981. A dynamic model of the global iodine cycle and estimation of dose to the world population from release of iodine-129 to the environment. Environ. Int., 5:15-31.
 - 19) Smith, G. M. and White, A. F., 1983. A revised global-circulation model for iodine-129. National Radiological Protection Board Report NPRB-M 81, Chilton, UK.
 - 20) Lieser, K. H., Gleitsmann, B. and Steinkopff, Th., 1986. Sorption of trace elements or radionuclides in natural systems containing groundwater and sediments. Radiochim. Acta, 40: 33-37.
 - 21) 福井正美, 桂山幸典: 飽和砂層内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, 第 254号, 37-48, 1976.
 - 22) Cline, J. F. and Rickard, W. H., 1972. Radioactive Strontium and Cesium in Cultivated and Abandoned Field Plots. Health Physics, 33: 317-324.
 - 23) Price, K. R., 1991. The depth distribution of Sr-90, Cs-137, and Pu-239, -240 in soil profile samples. Radiochim. Acta, 54:145- 147
 - 24) Sibanda, H. M. and Young, S. D., 1986. Competitive adsorption of humus acids and phosphate on goethite, gibbsite, and two tropical soils. J. Soil Sci., 37:197-204

- 25) Leenheer, J. A., 1980. Study of sorption of complex organic solute mixtures on sediments by dissolved organic carbon fractionation analysis. In: R. A. Baker(ed.) Contaminants and Sediments. Vol.2. Ann Harbor Science, Ann Arbor, MI.
- 26) Jardine, P.M., Weber, N.L., and McCarthy, J.F., 1989. Mechanisms of dissolved organic carbon adsorption on soil. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 53:1378-1385.
- 27) Choppin, G.R., 1988. Humics and radionuclide migration. *Radiochim. Acta*, 44/45: 23-28.
- 28) Cleveland, J.M., 1970. The chemistry of Plutonium. Amer. Nucl. Soc., La Grange Park, Illinois.
- 29) Katz, J. J., Seaborg, G. T. and Morss, L. R., 1986. The Chemistry of the Actinide Elements, 2nd edn.. Chapman and Hall, London.
- 30) Livens, F. R. and Baxter, M. S., 1988. Chemical associations of artificial radionuclides in cumbrian soils. *J. Environ. Radioactivity*, 7:75-86.
- 31) Livens, F. R. and Singleton, D. L., 1991. Plutonium and Americium in soil organic matter. *J. Environ. Radioactivity*, 13:323-339.
- 32) Bunzl K. and Kracke W., 1988. Cumulative deposition of Cs-137, Pu-239, 239+240 Pu and 241Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria(FRG). *J. Environ. Radioactivity*. 8:1-14.
- 33) Nisbet, A. F., Salbu, B. and Shaw, S., 1993. Association of radionuclides with different molecular size fractions in soil solution: Implications for plant uptake. *J. Environ. Radioactivity*, 18: 71-84.
- 34) Morse, J. W. and Choppin, G. R., 1986. Laboratory studies of plutonium in marine systems. *Mar. Chem.*, 20: 73-89.
- 35) Hursthouse A. S., Baxter, M. S., Livens, F. and Duncan H. J., 1991. Transfer of Sellafield-derived ²³⁷Np to and within the terrestrial environment. *J. Environ. Radioactivity*. 14:147- 174.
- 36) Tamura. T. and Jacobs. D.G., 1960. Structural implications in cesium sorption. *Health Physics*, 2:391-398.
- 37) Thiry, Y. and Myttenaere, C., 1993. Behavior of radio cesium in forest multi-

layered soils. J. Environ. Radioactivity. 18:247-257.

38) Polar, E. and Bayulgen, N., 1991. Differences in the availabilities of cesium-134, 137 and ruthenium-106 from a Chernobyl-contaminated soil to a water plant, duckweed, and to the terrestrial plants, bean and lettuce.

J. Environ. Radioactivity, 13: 251-259.

3.5 まとめ

水は放射性核種の環境移動の媒体となっているが、土壌水中の H-3 の実測例がなく、今後のデータの取得が期待されている。土壌中の H-3 は植物に水と共に取り込まれたのちの一部は植物成分として固定される場合もあり、移行係数として 4.8~5 という値が与えられている。Tc-99 は一般環境中では TcO_4^- として存在することが多く易動性は大きい。

還元性の強い環境では TcO_2 となり、不溶性のため易動性は欠如する。しかし、植物体へ吸収された場合は植物成分の一部となり、濃縮される場合があり、褐藻類が濃縮の割合が高く、一般的には、葉緑素の一員として固定されるようであり、ホーレン草への移行係数が他の植物より高い値を示している。

I-129 の環境中の移行挙動はその化学形と各移行過程の有機物の存在に寄与しているところが大きく、各移行過程における化学形態とその組成を明らかにすることが望まれている。

C-14 は、 CO_2 として大気中に存在した場合は、植物の炭酸同化作用により固定化されるので、地域特産物としては、米やイモ類中の濃度に注目しなければならない。

Sr-90 や Cs-137 の環境中における諸データは、各核種の中で最も豊富であり、この核種の環境中移行挙動に関する調査研究はほぼ終了している感がある。

Pu-239, Am-241, Np-237 については、環境データおよびトレーサー実験例も他の核種に比較して非常に少なく、特に再浮遊に関連する移行挙動は、農作物の表面汚染に注目しなければならず葉菜が重要視される。解析評価に当たっては、汚染地域とその周辺の気象や人間活動等、自然現象と社会活動等の考慮が必要である。

天然の核反応によって生成した放射性核種については、環境中濃度は地域によって大きな差はないと考えて良いが、核実験や原子力施設に起因する放射性核種については、気象条件等の差により地域特性が認められているので、人工放射性核種による被曝線量を評価する場合には、地域差を考慮する必要がある。

放射性核種の植物への移行係数は、土壌の土性・土質と植物種と栽培条件により異なるが、基本的問題として取り上げなければならないのは、土壌中放射性核種の存在形態であり、全濃度を分母として取り扱ったのか、可給態だけを対象として取り扱ったのかによって、この値は大きく異なってくる。従って、モデルの中のパラメータの値の算入に当たっては、係数算出条件をよく見極めて整合性がとれるよう注意しなければならない。

放射性核種の環境挙動・移行や、線量評価するためのモデルの、運用に際しては、地域

特性を把握できるような多くの実験例を得て、 K_d や移行係数や濃縮係数等多くの環境パラメータを取得することを必要とし、移行挙動の解析精度と被曝線量推定の精度を向上せしめるよう努力を要する。

4. 浅地中における放射性核種の浸透等長期蓄積効果を考慮した物理・化学・生物学的挙動に係わる基礎調査

未利用地の汚染及び前章3.1 に続いて農地汚染の場合の根圏域より深部へ放射性核種が浸入した場合を想定すれば、有効降雨の浸透により放射性核種は徐々に深層に移動し、やがて不圧地下水層へ流出することを先づ考えなければならない。これらの土層は地域により砂層や火山灰層等、多種多相の土性・土質があるので、それぞれについて移動の様相を解析して、移行挙動を論じる必要がある。これら通気層土壌は、水の飽和度は季節的にみて雨期と乾燥期では異なるが、高温多湿な日本の場合には、大陸のような砂漠が無いことを考慮し、また、不圧地下水深度が浅くて地下水が豊富なことから、放射性物質の浸透速度を過少評価しないようにすることが安全側につながる移行挙動のBest Estimationであると考えられる。また、土壌中に降水が浸透した場合には、土壌の土性・土質により異なるが、土壌溶液の液性の影響により移行してきた放射性核種の種類によっては不溶性になって沈着し、コロイド化されることも考えられる。また、腐植物の存在により、腐植酸等と錯体化を生じ、不溶性となって停留し、自然消化により徐々に溶出してくる核種も考えられる。

上記のような放射性核種の諸移行挙動を考慮して、浅地中の放射性核種の土壌（岩石その他の地層構成鉱物）への収着特性と核種のコロイド化、錯体化等を含んだ移行挙動についての基礎的調査結果を踏まえて、移行挙動モデルの現状とまとめについて記述することにする。

4.1 土壌への収着特性

元素が土壌に収着される程度は分配係数(K_d) という値で示される。分配係数は元素の種類、土壌の性状、土壌水の性質、分配係数を算出する実験方法など多くの因子によって大きく変動する。

分配係数の変動要因は「環境パラメータシリーズ2」¹⁾にまとめられている。なお、以下に示す分配係数値の単位は ml/g である。

(1) 易動性の大きい核種

- i) H-3 : 環境中に放出された H-3は大部分が水として挙動するので、土壌と接触しても収着されず土壌水中に存在し、流れ去り、あるいは蒸発して大気圏内に入る。従って分配係数の報告はない。
- ii) Tc-99 : Tc-99 の分配係数について、日本と諸外国で測定された値は表 4.1.1の通りである。

表 4.1.1 日本と諸外国におけるTc-99 の分配係数測定値

土 壤 ・ 岩 石 等		日 本 の 測 定 値	諸外国の測定値
岩石	花崗岩	$2.7 \times 10^0 \sim 6.0 \times 10^1$	$0 \sim 6.0 \times 10^1$
	凝灰岩	$3.0 \times 10^0 \sim 5.9 \times 10^2$	—————
	その他の岩石	$1.9 \times 10^0 \sim 6.4 \times 10^2$	$1.0 \times 10^{-1} \sim 6.0 \times 10^2$
砂		—————	2.0×10^{-1}
ロ ム		—————	$0 \sim 9.0 \times 10^{-1}$
粘 土		—————	$0 \sim 1.0 \times 10^0$
土 壤	農耕地	—————	$1.5 \times 10^{-1} \sim 8.9 \times 10^{-1}$
	その他の土壌	—————	$1.0 \times 10^{-1} \sim 2.3 \times 10^0$
泥 炭		—————	2.0×10^0
淡水中堆積物		—————	1.0×10^2

3.1 の表 3.1.1²⁾に記したように土壌の還元性によって収着量が変わる。還元性の強い土壌は弱い土壌の3～7倍のTc-99 を収着している。

これは酸化性の条件では陰イオン(TcO_4^-) となって移動し易くなるのに対して還元性の条件では TcO_2 となり移動しにくくなるからである³⁾。

農耕土壌の分配係数が低いのは、耕作により酸化性の条件が大きいからであり、

水中堆積物の分配係数が大きいのは水に覆われて空気に触れず還元性条件にあるためである。還元性環境では花崗岩に対する分配係数が50倍も大きくなることが指摘されている¹⁾。

(2) 土壌への収着性の比較的小さい核種

i) Sr-90 : Sr-90 の土壌収着については多くの測定値が発表されている。日本と諸外国で測定した各種土壌に対する Sr-90の分配係数を表 4.1.2に示す。

表 4.1.2 日本と諸外国における Sr-90の分配係数測定値

土 壌 ・ 岩 石 等		日 本 の 測 定 値	諸外国の測定値
岩石	花崗岩	$0 \sim 2.0 \times 10^1$	$0 \sim 9.0 \times 10^1$
	凝灰岩	1.5×10^3	—————
	その他の岩石	1.8×10^1	$0 \sim 6.8 \times 10^4$
砂		$5.0 \times 10^{-1} \sim 6.8 \times 10^2$	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.7 \times 10^2$
ロ ー ム		$5.0 \times 10^{-1} \sim 2.7 \times 10^3$	$9.0 \times 10^{-1} \sim 1.5 \times 10^2$
粘 土		$1.0 \times 10^1 \sim 9.0 \times 10^3$	$1.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^5$
土 壌	農耕地	—————	$1.3 \times 10^1 \sim 3.5 \times 10^1$
	その他の土壌	$3.0 \times 10^1 \sim 4.0 \times 10^2$	$1.0 \times 10^{-1} \sim 3.0 \times 10^3$
泥 炭		—————	$2.0 \times 10^2 \sim 4.8 \times 10^3$
淡水中堆積物		—————	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^3$

日本で測定された結果¹⁾では、岩石で凝灰岩に対する分配係数が花崗岩及びその他の岩石に対するものよりも2桁程度高い値が得られている。砂に対する分配係数は $5.0 \times 10^{-1} \sim 6.8 \times 10^2$ と分散しているが、これは砂の種類、砂の粒子径の相違などが影響しているのである。

ロームに対する分配係数は $5.0 \times 10^{-1} \sim 2.7 \times 10^3$ と広い範囲に分散しているが、これもロームの性状の相異などによるものと思われる。

粘土への収着は大きく $1.0 \times 10^1 \sim 9.0 \times 10^3$ という分配係数が与えられている。農耕地以外の土壌に対しては $3.0 \times 10^1 \sim 4.0 \times 10^2$ という値が報告されている。

これら日本で測定した各種土壌に対する分配係数は諸外国で測定した結果と同じような傾向を示している。

- ii) I-129: 日本で土壌に対するヨウ素の分配係数を測定した報告は少ない。日本と諸外国における各種土壌に対するヨウ素の分配係数の測定値を表 4.1.3に示す。

表 4.1.3 日本と諸外国における I-129の分配係数測定値

土 壌 ・ 岩 石 等		日 本 の 測 定 値	諸外国の測定値
岩石	花崗岩	—————	0 ~ 7.9×10 ¹
	凝灰岩	1.9×10 ²	—————
	その他の岩石	—————	3.0×10 ⁻¹ ~ 1.0×10 ³
砂		4.0×10 ¹	—————
粘 土		—————	5.0×10 ⁻¹ ~ 1.5×10 ³
土 壌	農耕地	6.8×10 ¹ ~ 1.9×10 ²	5.2×10 ⁰ ~ 1.8×10 ¹
	その他の土壌	—————	1.0×10 ⁻¹ ~ 3.7×10 ²
泥 炭		—————	2.0×10 ⁻¹ ~ 3.1×10 ²
淡水中堆積物		—————	3.0×10 ² ~ 3.0×10 ³

その他の岩石、粘土の値にばらつきが大きいのは、岩石、粘土の構成成分に色々な種類があるためであろう。

ヨウ素の化学形と土壌への収着を測定した報告⁵⁾がある。その報告では日本の表層土壌の約50%を占める所謂くろぼく土壌 (ando soils) と鹿沼土に対するヨウ化物(I⁻)とヨウ素酸塩(IO³⁻)の収着実験の結果が発表されている。すなわち、くろぼく土壌では2日以上に接触させたときに I⁻、IO³⁻はどちらも殆んど100%収着した。

然し、鹿沼土の場合には2日以上接触させるとIO³⁻は約90%が収着するがI⁻は約40%程度が収着され接触時間を延長すると徐々に収着量は増加するが30日後には約60%程度であった。

このように土壌の種類とヨウ素の化学形が収着量に影響を与え、またヨウ素溶液のpHがアルカリ性になると両土壌へのヨウ素収着は両化学形とも減少する事が認められた。

- iii) C-14: C-14の土壌への収着については、分配係数の測定値は少なく、日本での測定値はない。諸外国のデータを表 4.1.4に示す。花崗岩以外の岩石に対しては非常に広い値が与えられているが、花崗岩、砂、粘土に対しては低い分配係

数が得られている¹⁾。

表 4.1.4 諸外国における炭素の分配係数の測定値

土 壤 ・ 岩 石 等		諸 外 国 の 測 定 値
岩石	花 崗 岩	0
	その他の岩石	$3.5 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$
砂		$8.0 \times 10^{-1} \sim 2.6 \times 10^0$
粘 土		$1.3 \times 10^0 \sim 8.6 \times 10^0$

岩石に対する C-14 の収着は、収着というよりも、岩石形成の際に炭酸塩が岩石中にとりこまれる時に、炭酸塩中に含まれていた C-14 が岩石中に取り込まれると考えられる。従って、分配係数の値としては炭酸塩を多く含む岩石が高い値を示すことになるものと思われる。

(3) 土壌への収着性の比較的大きい核種

- i) Cs-137 : Cs-137の分配係数測定値は非常に多くの結果が発表されている。それらの値を土壌の種類別にまとめてみると、同じ種類の土壌の分配係数が広い範囲にばらついていることがわかる。日本において測定した値と、諸外国での測定値を比較してみると表 4.1.5 のようになる¹⁾。

また、普通の地下水と高塩分地下水に接触した岩石の分配係数を比較すると、高塩分の場合には3～4桁低いCsの分配係数が観測されている¹⁾。また溶液中のCs濃度が大きくなるとCsの分配係数が小さくなることが実験的に示されている¹⁾。

このようにCs-137の土壌収着については、実際の条件によく合った実験結果から得られた分配係数を用いるべきである。

また、現位置試験で得られた結果は、その地域の特性を知るのに有効である。

- ii) Pu-239 : Pu-239はその化学形および存在する環境の条件によって異った挙動をとる。

土壌への収着性は大きく、長崎市西山地区では35年経過した後でも、総沈着量の97%が表層から30cmの所に留っていたことは3.1でのべた通りである。収着量が大きいので分配係数を算出すると大きな値となる。

Puの分配係数¹⁾を日本での測定値と諸外国の測定値と比較すると表 4.1.6 のようになる。日本での測定結果は少ないが、 $10^2 \sim 10^3$ のオーダーで良く一致して

いる。

表 4.1.5 日本と諸外国におけるCs-137の分配係数の測定値

土 壌 ・ 岩 石 等		日 本 の 測 定 値	諸 外 国 の 測 定 値
岩 石	花 崗 岩	$2.6 \times 10^0 \sim 1.5 \times 10^3$	$1.0 \times 10^0 \sim 8.4 \times 10^3$
	凝 灰 岩	$1.0 \times 10^0 \sim 1.1 \times 10^5$	
	その他の岩石	$3.3 \times 10^1 \sim 6.0 \times 10^3$	$1.0 \times 10^0 \sim 1.9 \times 10^5$
砂		$3.0 \times 10^0 \sim 8.0 \times 10^3$	$6.0 \times 10^0 \sim 3.8 \times 10^3$
ロ ー ム		$1.0 \times 10^0 \sim 2.5 \times 10^3$	
粘 土		$5.0 \times 10^1 \sim 7.0 \times 10^4$	$4.0 \times 10^{-1} \sim 1.1 \times 10^5$
土 壌	農 耕 土		$2.0 \times 10^2 \sim 1.7 \times 10^4$
	その他の土壌	$5.0 \times 10^1 \sim 3.0 \times 10^3$	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^4$
泥 炭			$8.0 \times 10^0 \sim 1.5 \times 10^5$
淡 水 中 堆 積 物			$3.6 \times 10^0 \sim 2.5 \times 10^3$

表 4.1.6 日本と諸外国におけるPu-239の分配係数の測定値

土 壌 ・ 岩 石 等		日 本 の 測 定 値	諸 外 国 の 測 定 値
岩 石	花 崗 岩		$1.5 \times 10^1 \sim 9.4 \times 10^2$
	凝 灰 岩	$3.6 \times 10^3 \sim 3.7 \times 10^3$	
	その他の岩石		$1.5 \times 10^1 \sim 1.7 \times 10^5$
砂		$9.7 \times 10^2 \sim 1.9 \times 10^3$	$3.2 \times 10^1 \sim 1.8 \times 10^3$
ロ ー ム		$2.4 \times 10^3 \sim 4.6 \times 10^3$	
粘 土		$6.0 \times 10^2 \sim 7.0 \times 10^2$	$4.0 \times 10^1 \sim 4.0 \times 10^4$
土 壌	農 耕 土		
	その他の土壌		$7.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$
淡 水 中 堆 積 物			$1.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^7$

諸外国では各種の土壌について分配係数値が発表されているが、花崗岩以外の岩石では4桁、水中堆積物では5～7桁の範囲でばらついた値が示されている。このばらつきは、先にのべたような分配係数測定の際の変動要因によるものと思われる。

Pu-239の分配係数を扱う場合には、その値が得られた経過を明かにすることが必要である。

- iii) Am-241: AmはPuと同様に土壌への収着性は大きく、分配係数としては大きな値が発表されている。日本および諸外国で測定・発表された分配係数を表 4.1.7に示す¹⁾。

日本での測定値ではロームで3桁のばらつきがあるほかは、2桁の範囲のばらつきにおさまっている。諸外国での測定値をみると、花崗岩以外の岩石で6桁、粘土で7桁に及ぶばらついた値が発表されており、分配係数を用いる時にはよく注意をすることが必要である。

表 4.1.7 日本と諸外国におけるAm-241の分配係数の測定値

土壌・岩石等		日本の測定値	諸外国の測定値
岩石	花崗岩	$1.7 \times 10^2 \sim 1.7 \times 10^4$	$2.5 \times 10^3 \sim 3.2 \times 10^4$
	凝灰岩	$5.0 \times 10^1 \sim 4.9 \times 10^3$	
	その他の岩石	4.2×10^3	$1.0 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^7$
砂		$1.0 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^3$	$7.5 \times 10^1 \sim 8.0 \times 10^2$
ローム		$6.0 \times 10^1 \sim 7.0 \times 10^4$	
粘土		$1.6 \times 10^3 \sim 3.5 \times 10^4$	$4.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^7$
土壌	農耕土		
	その他の土壌		$6.9 \times 10^0 \sim 1.2 \times 10^6$
泥炭			$1.2 \times 10^5 \sim 4.5 \times 10^5$
淡水中堆積物			$1.0 \times 10^3 \sim 1.7 \times 10^6$

- iv) Np-237: Npは土壌への収着性が比較的大きい核種として分類されているが、分配係数の測定値をみるとPu、Amにくらべて低い値が報告されている。

日本と諸外国の土壌別分配係数測定値を表 4.1.8に示す¹⁾。日本での測定値は少ないが、凝灰岩で得られた 7.5×10^0 という値が最高である。諸外国の測定値では、その他の岩石で 1.0×10^4 という値が報告されているが、最高でPu、Amよりも3桁程度低い値が得られている。

Npの土壌吸着については更に検討する必要がある。

表 4.1.8 日本と諸外国におけるNp-237の分配係数の測定値

土 壤 ・ 岩 石 等		日 本 の 測 定 値	諸 外 国 の 測 定 値
岩 石	花 崗 岩	$8.0 \times 10^{-1} \sim 2.2 \times 10^0$	$1.0 \times 10^1 \sim 2.2 \times 10^2$
	凝 灰 岩	$2.1 \times 10^0 \sim 7.5 \times 10^0$	
	その他の岩石	$4.0 \times 10^{-1} \sim 2.0 \times 10^0$	$2.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$
砂			$8.0 \times 10^0 \sim 3.9 \times 10^1$
ロ ー ム			$3.0 \times 10^0 \sim 1.4 \times 10^2$
粘 土			$2.0 \times 10^1 \sim 2.7 \times 10^2$
土 壤	農 耕 土		$7.9 \times 10^2 \sim 9.3 \times 10^2$
	その他の土壌		$1.6 \times 10^{-1} \sim 9.3 \times 10^2$
泥 炭			$3.1 \times 10^1 \sim 2.6 \times 10^3$

(4) まとめ

同じ種類の土壌であっても、分配係数を算出する場合に、その実験・測定条件によって非常に大きな変動を与えることが知られている。

例えば、①固・液量比、②溶液中における着目物質の初期濃度、③平衡到達前後の溶液のpH、④固体の粒度、⑤接触時間、⑥溶液濃度測定前の2相の分離法、⑦接触期間中の攪拌条件、⑧ K_d 算出に用いた相（液相のみか両相か）、⑨容器壁への収着損失、⑩溶液中の他のイオンによる阻害、⑪固体試料の前処理法（水洗、乾燥、篩別法等）、⑫溶液中の酸化・還元電位、⑬難溶性化学物質などの沈澱物生成、⑭微生物活動、⑮有機物との結合、⑯温度、光など。

このように、種々雑多な要因が複雑に絡み合っ、分配係数が算出されている。従って、分配係数を使う場合には、その係数の算出された条件を明らかにして、実際の条件になるべく近い条件による分配係数を使用しないと誤りを犯すことになる。

4.1 の引用文献

- 1) “土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数” 環境パラメータシリーズ 2, 原子力環境整備センター, 1990.
- 2) 鎌田・渡部他: “陸圏試料の調査研究 — テクネチウムに関する調査研究 — ” 放射能調査研究報告書 (昭和63年度), N I R S - R - 18, 1989.
- 3) 渡部・鎌田: “テクネチウムのラジオエコロジー” 保健物理, 20 227-240, 1985.
- 4) 熊田・T. T Vandergraaf: “深地層条件下における放射性核種の移行実験” 平成3年度地質条件評価技術の高度化に関する調査研究, 日環協, 1992.
- 5) S. YOSHIDA and Y. MURAMATSU et al: “STUDIES on the SORPTION of I^- (IODIDE) and IO_3^- (IODATE) ONTO ANDSOLS.” Water, Air, and Soil Pollution, 63 321~329, 1992.
- 6) K. Anderson and B. Torstenfelt et al: “Sorption behaviour of long-lived radionuclides in igneous rock.” Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle. IAEA-SM-257/20, 111~131, 1982.
- 7) 福井正美, 桂山幸典: 飽和砂層内における Cs 及び 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, 第 254号, 37-48, 1976.

4.2 核種の移行・挙動

環境にとって有害な物質による土壌汚染は人類が「意識する・しない」にかかわらず発現し、近年、鉱工業の発展に伴って増加してきたことは周知のとおりである。しかしながら有害な物質と言ってもその種類は多く、一例としては無機・有機物質について以下のよう

- ① 酸、アルカリ、② Cd、Zn、Pbなどの重金属類、③ 農薬類、④ 親水性および疎水性有機化学物質（有機溶媒、PCB など）、⑤ 炭化水素化合物（ガソリン、軽油、重油など）、⑥ 引火性物質、⑦ 放射性物質、⑧ し尿・肥料、など。

これらの物質のうち、その多くは生活環境に関連が深く、使用に際してメリットが大きい反面、農作物や地下水・飲料水の汚染源として身近な経路でフィードバックされるリスクが存在する。生活環境の身近にない有害物質でも廃棄物として適切に処分・管理された場合は近い将来のリスクは小さいが、健全性期間が保証されない処分場への投棄は問題を後世に委ねる結果となり、これら化学物質の開発・利用にあたっては本来、その長期にわたるリスクベネフィット評価が行われるべきである。しかしながら環境中におけるこれら有害物質の分析・定量は容易ではなく、所轄官庁の異なる有害物質の総合的な汚染調査は行われていない。放射性物質に関しては、わが国では核実験やチェルノブイリ事故に伴う地表環境での核種の定量、放射性廃棄物埋設センターの操業に伴うモニタリング等が行われている。

一般的に地圏における自然環境は複雑であり、土壌／岩石と土壌水／地下水で代表される不均質系での移行・挙動の機構およびそれを評価するための精度の高いモデルは十分に開発されているとは言えない。このような評価・汚染防止研究の進展を妨げてきたのは汚染現象がボーリングや掘削などアクセスの困難な地中で発生し、かつ土壌の緩衝効果のために地下水汚染として顕在化するのに時間を要することやこれまで自然の浄化機構が不明であってもブラックボックスとして経験的にはあるが地中への多くの汚染物廃棄が効果的であったことなどによる。そこで以下では、従来室内試験として行われてきた移行・挙動研究を含めてこのような不均質系における物質移動に影響する諸過程とその問題点について言及する。

(1) 土壌中における物質移動の諸過程

1) 物理過程

地下水中での溶質挙動に影響を及ぼす物理過程には移流および拡散（分散）があり、この現象に対応したパラメーターには間隙内流速および拡散（分散）係数がある。分散係数は溶質が多孔性媒体を移動する場合、その異方性や幾何学的形状により機械的に分散される現象をモデル化するために導入されたパラメーターであり、厳密には濃度勾配により生ずるフラックスの比例定数として定義された分子拡散係数とは異なる。これらのパラメーター値は本来、その現象の大きさの程度を表す物理量でなければならない。溶液中における分子拡散定数は古来より多くの測定例があり、拡散する溶質に固有の値が報告されている。他方、土壌物理やその他の分野でも分散係数についての測定例は多いが、その結果は分散係数値が流速に依存する（比例もしくは正の相関がある）とされている^{1, 2)}。このことは例えば、カラムによる溶出曲線において流速を大きくすれば分散量が大きくなると理解されるべきである。また本来、分散係数とその物理量を表すパラメーターであれば、この理解は正しい。

しかしながら、水のトレーサーとしてよく用いられるトリチウム水を豊浦細砂充填カラム(32cm)に通水した破過曲線の結果（図 4.2.1）が示すように³⁾、 $10^{-2} \sim 10^{-3} \text{ cm/s}$ のオーダーで間隙内流速を変化させても分散の程度はほとんど変わらない。そしてこの結果から各流速に対応した分散係数を算定すれば、フィッティングされたペクレ数($VL/4D$)が一定である（分散が同程度である）ことから、必然的に $D \propto V$ の関係が成立する。このことは分散係数そのものが実際の分散量を表すパラメーターではなく⁴⁾、その比例定数である D/V が多孔性媒体の物理量と関連する分散の程度を表す基本のパラメーターであることを示している。

溶質の輸送媒体である地下水の流速が大きい場合は分子拡散による分散の程度は無視できるが、 $2 \times 10^{-3} \sim 10^{-4} \text{ cm/s}$ 以下となる流速域では分子拡散による移動現象が卓越する^{3, 5)}。たとえば豊浦細砂を充填したカラム内中央で、流入させたトリチウム水フロントを2、7、30日と停止させ、その後流出させた結果³⁾により分子拡散の影響が明らかにされている。このように滞留時間が長い地下環境における溶質移動の解析に分子拡散項を無視することはできない。以上のような拡散（分散）、移流のほかに、汚染物質の地中における重要な過程に物理吸着がある。これは van der Waals力に基づき、とくに汚染物質が疎水性有機化学物質の場合には、その土壌への吸着が土壌の有機炭素量に比例するとされてお

り、含有炭素重量比率とオクタノール／水への分配係数⁶⁾から推定できる収着係数が定量的評価に用いられている。

不飽和水分領域における土壌中の溶質移動研究では、水分移動そのものに diffusivity を導入した飽和流と同様の拡散型方程式で解析する手法が用いられてきた³⁾。しかしながら飽和領域に比べて降雨浸透や蒸発散による水分移動は非定常性が強いいため、溶質濃度と連立させた解析は後述する溶質－媒体間の interaction を線形と仮定した場合に限られ、かつ時間・空間スケールが大きくなれば水分移動もピストン流として単純化して解析せざるをえないことが指摘されている⁷⁾。この原因の1つは、被吸着能が弱い溶質でも媒体に対する interaction が線形として単純にモデル化できず、水分移動を厳密に解析することが溶質移動の予測精度を高くすることにはならないためである。このことは換言すれば移動現象に普遍的なモデルはなく、評価期間を考慮した定常－非定常モデルを構築する必要があることを示唆している。

飽和－不飽和領域の界面では土壌中に広く分布する揮発性物質たとえばラジウムの崩壊生成物であるラドン^{8, 9)}（不活性ガス）や米国の放射性廃棄物処分場で容易に検出されているトリチウム¹⁰⁾ さらに共に廃棄されている有機化学物質（トルエン、ベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンなど¹¹⁾）については、液相から気相への物質移動現象としての蒸発・揮散も考慮する必要がある。たとえば放射性廃棄物の浅地層処分場のトリチウムは土壌水中から蒸発、同位体交換¹²⁾ などにより容易に土壌水分として地上に移行し、環境が汚染される¹³⁾。このような移行過程では一般的に物質固有の溶解度、蒸気圧、気－液相間のヘンリー定数などのパラメーター¹⁴⁾ や気－液相界面の面積、間隙率とその分布などが関連する。さらに液状炭化水素系化学物質の場合は密度が水よりも軽いか重いかにより、地下水面上に浮かんだり、ケロシンのように汚染フロントが亀裂に沿って重力沈降する fingering のような現象のモデル化が問題となっている¹⁵⁾。

以上のほかにも多孔性媒体中の間隙の分布や亀裂などにより発生する卓越流などの現象があり、その解析には高レベル放射性廃棄物の深地層処分を想定した岩石中における亀裂やマトリックス内拡散などを考慮したモデル化^{16, 17)} 手法が役立つと考えられるが今後の研究課題である。

2) 生物過程

土壌中の生物はバクテリア(1~10 μm)、放線菌、fungi、藻類、小動物などに分類され

ている。微生物を滅菌することにより、CsやTcの土壤への分配が小さくなるとの報告¹⁸⁾はあるが、脱窒、腐植化、固定などの現象にかかわる微生物の活動が直ちに汚染物質の移行に大きな影響を及ぼすことは一般的には考えにくい。しかしながら微生物活動の結果が土壤の化学的環境を規定する場合には、その影響は大きい。例えば炭素や窒素化合物の分解・固定(CO₂やN₂の生成とその固定による循環サイクル)、有機酸の生成などの結果として土壤水のpH、酸化還元環境の変化や反応性の増加が考えられる。一般的には土壤中有機物分解の過程で H⁺ 濃度が上昇し、酸素が消費されることにより還元環境になり、微量金属元素の地中での易動性は大きくなる。この酸化・還元反応には電子の受容体として数多くの微生物が関与し、このような有機物の無機化は mineralization、その逆の過程(微量金属元素が有機物に取り込まれて減少する)は bio-immobilization といわれている²⁰⁾。したがって微生物が関与する生物過程は化学過程にも密接に関連し、明確に区別することは困難であり、複雑な生物作用を汚染物質の移行に組み込んだ挙動モデルはまだ開発されていない。そこで以下には微量金属元素の地中移行に関連する土壤有機物について言及する。

動物や植物が微生物により分解される過程でフルボ酸(分子量300-2,000)やフミン酸(分子量1,000-5,000)および分解され難い腐植質(分子量5,000-100,000)が生成される。フルボ酸は可溶性であるが、フミン酸は低 pH 域で凝集・沈殿し、腐植質は強い還元性を有することが知られている。また分子量の小さいフルボ酸よりも大きいフミン酸のほうが多くの官能基を有しているため反応性に富み、溶存有機物濃度が高い水中ではフミン酸の占める割合が大きい。新しい沖積層などで続成作用が十分に進行していない地層ではカルボキシル基、アミン基、水酸基などの種類は多いが、続成が進行するにつれて土壤有機物中のカルボキシル基、ケトン基が増加するとともにフェノール性およびアルコール性水酸基が減少する。このような官能基の質的・量的変化は汚染物質の土壤に対する等温吸着線すなわち挙動に影響する。また汚染物質がイオン性であるか電気的に中性であるかもしくは極性の有無などによって吸着特性が著しく変わることは言うまでもない。

このように地中に微量元素や有機化学物質などの汚染物質が存在する場合、①無機物質への親和性が小さい汚染物質が、不溶性の腐植物質に吸着されて不動化される、②溶存性のフルボ酸やフミン酸などと錯体を形成して、溶存有機物と挙動を共にするなどのケースが考えられる。従来提案されているモデル^{21)・22)}ではこのような有機物の消長は考慮されておらず、このためには凝集や沈殿などpH、塩分濃度、イオン強度などと関連する土壤

有機物の性状をさらに究明し、挙動の観点から水を媒介とした土粒子-有機物-汚染物の反応と移動をモデル化する必要がある。図 4.2.2²³⁾にはドイツの深層地下水における微量金属元素濃度を溶存有機物質濃度(DOC)の関数として実測した結果を掲げる。

3) 化学過程

土壌水中のpH、酸化還元電位および土壌の交換容量や鉄・マンガン酸化物などは微量元素の土壌中における易動度に影響をおよぼし、これらの変化は自然環境では水質、溶存酸素、有機物、微生物活動と分解ガスの生成などにより変動する。

微量元素が金属イオンの場合、交換による土壌への吸着は質量作用の法則から誘導される分配係数(=選択係数×陽イオン交換容量/主成分イオンの水中濃度)により定量化される²⁴⁾。従って、交換容量の大きい土壌中では分配係数が大きくなり、移行速度が遅くなることは良く知られているが、超ウラン元素はこの法則に従わないとする報告もある²⁵⁾。このような法則は比較的単純な系では成立するが、廃棄物処分場のように種々雑多な汚染物が処分されるような複合汚染環境では、沈殿生成や溶解度が挙動を律速する場合もあり、移行と関連させたモデル研究は今後の課題である。

土壌溶液のpHは土粒子の表面電荷の状態を規定することから、溶質の溶存状態に応じた挙動に大きな影響を及ぼす。例えば珪酸が主成分である石英砂のzero point chargeのpHは2程度であることから、pH5~7程度の土壌水溶液中では粒子表面はnegative chargeとなり、カチオンに対する親和性は大きい。例えば図 4.2.3²⁶⁾は3種類のCa-Csの濃度溶液(合計:1 μ eq/ml)をCaCl₂溶液(1 μ eq/ml, 1 ℓ)によりコンディショニングしたカラム(石英砂 100g 充填、20cm長さ)に264ml(10 pore volume(τ))だけ通水した場合の相対吸着濃度分布(流入端での吸着濃度に対する比率)である。これによれば流入させるCs濃度が高くなるにつれてフロントの移行速度が大きくなり、分配係数が一定でないことを示している。図 4.2.4は同様の実験で、2本のカラムに0.1 μ eq/mlのCs溶液を流出/流入濃度比がほぼ等しくなるまで(50 τ 程度)流入させ、その後それぞれCaCl₂溶液(1 μ eq/ml:○印)と蒸留水(●印)で溶出させた場合の相対流出液濃度である。これによれば●印の場合は2 τ 以後からテーリングの効果が著しく、蒸留水による物理的な脱離(結晶格子内拡散)現象の生じていることが明らかにされている。この場合、図 4.2.4でのCaイオン水と蒸留水との脱離曲線の面積の差がイオン交換による吸着成分と考えられることから、カラム砂層への総吸着量を基にして、粒子内拡散量も評価することが可能とされている。

る。

図 4.2.5²⁷⁾ は同様の方法でコンディショニングした石英砂充填カラム(20cm)に、無担体状ヨウ素イオン(I^-)を添加した原液 (pH:4.1, 6.1, 8.1、各 8 τ) を流入させた場合の吸着分布である。どの場合も流出液の破過点は 1 τ 付近であり、 I^- フロントは水流速と同じすなわち砂層に吸着されない様相を呈している。しかしながら破過曲線では流出/流入濃度比が 1 に漸近せず 0.7-0.8 でプラトーを形成し、この不可逆的に吸着された成分のカラム内分布が図 4.2.5の流入端に現われている。また流入溶液のpHが低いほど流入端での吸着濃度は高い。さらにこの不可逆的に吸着されたヨウ素イオンの成分は蒸留水や $CaCl_2$ 溶液(1 $\mu eq/ml$)により容易に脱離されない。また、土壌への吸着量が極性を帯びない疎水性農薬と同様に、土壌の有機炭素含有量と正の相関があることも報告されている (図4.2.6)²⁸⁾。従って挙動そのものは従来提案されている可逆および不可逆反応を含めた合成モデル²¹⁾ による破過曲線と類似していることから定量的な評価は可能であるが、その不可逆性も含めて I^- の吸着機構はまだ十分に解明されていない。

同条件のカラムにS-35をトレーサーとした希薄な硫酸イオンを、各 5 τ 流入させ、ヨウ素と同様にして $CaCl_2$ 溶液(1 $\mu eq/ml$)および蒸留水により溶離した破過曲線の結果が図4.2.7²⁷⁾ に示されている。これによれば一旦吸着された成分が、蒸留水により著しく高い濃度 (流入させた濃度の 4 倍以上) 成分として流出されている (Δ 印) ことから、イオン交換に基づく反応に類似した形状で $CaCl_2$ 溶液により流出される硫酸イオンの成分 (\times 印) は、土粒子表面でCaと化学反応に基づいて吸着されていることが明らかにされている。

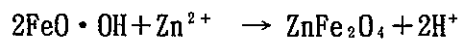
図 4.2.8²⁹⁾ はやはり同じ条件でコンディショニングしたカラム(20cm)に希薄な十数種の放射性カチオン(0.001~0.04ppm)を混合した溶液を 2 τ だけ流入させた場合のCo-60 の吸着分布が示されている。流入液のpHが 4~8 の範囲では移動速度への影響は少ないが、全般的な傾向としてはアニオンであるヨウ素イオンとは逆の (pHが低くなるほど吸着され難くなる) 妥当な結果が示されている。特にpHが 4 以下でその影響の大きいことは、最近指摘されている酸性雨による土壌の劣化現象を予期したものといえる。他方、pHが11と高くなれば、流入端近傍での吸着濃度が低pHに比べて高くなるものの、加水分解によるコロイド成分 $Co(OH)_2$ が増加し、低濃度ではあるが水と同程度の速さで間隙水中を移動する現象も発現している²⁹⁻³¹⁾。このように機構が異なる吸着現象が複合する場合は吸着速度定数の異なる合成モデル³²⁾ を適用することが必要と考えられる。また溶質が放射性核種のように質量濃度として非常に希薄な場合で、かつ不可逆的な吸着現象も生ずる場合はそれ

を簡略化した1次反応モデルと可逆線形モデルとを流れ系内の反応式に取り入れる^{31, 33)} ことにより量的評価が可能になる。

以上のように挙動の観点から見れば個々の核種の吸着・移動は種々の機構や条件により異なっており、バッチ法やカラム法などにより得られた知見³⁴⁻³⁶⁾ をさらに累積すると共に、フィールドにも適用可能なそれらのモデル化が今後の課題である。

(2) 原位置での挙動と問題点

鉄・マンガン(水)酸化物は、例えば以下のような反応により微量金属元素を吸着する²⁰⁾。



このような反応は酸化物が被吸着物質を長期にわたって被覆するaging^{37, 38)} 現象の一種と考えられる。他方、元素によっては還元環境において溶解度が小さい化学形態をとるもの(Tc, U, Puなど)もあるが、一般的には有機物の分解により生成発生する有機酸やCO₂の結果として溶液中のpHが若干低下することから、微量金属元素の土壤による捕捉効果が低下して易動度が大きくなることが推定される。したがって、微量金属元素を吸着した土壤に有機物の豊富な廃棄物、例えば下水汚泥を混合して廃棄した場合、金属元素の還元的溶出現象の生ずることが考えられ、廃棄物処分に際しては処分後の物理・化学・生物学的影響を考慮した処分方式を確立する必要がある。

低レベル放射性廃棄物の処分場では紙、布、ゴム、ガラス、金属、動植物遺体など種々雑多な廃棄物のほかにオイルや除染用の界面活性剤など有機化学物質も投棄され、トレンチの浸透水中に検出されている¹¹⁾。このような廃棄物処分場の浸出水を採取してsephadex-15により分離したフラクション溶液には、図4.2.9に示すように、Pu-239, Co-60が錯体剤(BDTA)と共に流出し、Cs-137, Sr-90は疎水性化学物質と共に流出することが報告されているが³⁹⁾、土壤有機物の影響とともにこれら人工有機化学物質への吸着とその挙動についてもまだ解明されていないことが多い。

有機物の挙動とも関連するが、最近、colloidal enhanced transport として注目されているのが10⁻³~1 μmのコロイドである⁴⁰⁾。室内実験では数mmの移動と推定されたPu, Amが、ロスアラモス研究所の廃棄物処分場で鉛直方向に33m、水平方向にはその100倍程度の地点から検出されたことが報告されている⁴¹⁾。一般的に土壤水・地下水でのコロイド生成には以下のような機構が考えられている。

- ① pHや酸化還元電位の変化による土壌の溶解・風化
- ② 溶液中における無機成分の過飽和による沈殿物の生成
- ③ 汚染物注入、地下水の汲み上げ、雨水の浸透などによる流速・地下水面の変動などによる乱れ
- ④ ウイルスやバクテリアの移動・分解
- ⑤ 有機溶媒によるエマルジョン生成
- ⑥ 土壌有機物の凝集・分解

このようなコロイド挙動の解明には古典的な過作用に関連するコロイドの粒径やその分布、コロイドの安定性、易動性などに関連する表面電荷状態などのコロイド科学分野の情報・知見が必要である。最近ではヘマタイトやポリスチレン製ラテックス粒子^(2, 43)を用いたコロイド移行研究により、間隙水よりも移行が速いコロイド粒子成分の確認や van der Waals や電気二重層ポテンシャルを含む DLVO 理論によりコロイドと地質媒体表面間の斥力からコロイド移行の評価が試みられている。

(3) まとめ

核種の地中での挙動は土壌という複雑な媒体と interact することから、その挙動解明にはまだ多くの時間を必要とするが、わが国でも浅地層処分施設の操業が開始されたばかりであり、公衆にフィードバックされるリスクが管理期間終了後も十分低減されていることを現在の科学的手法を用いて今後も絶えず確認していく必要がある。そこで単なる評価モデルに依るだけでなく、汚染物質の移行過程を素過程として個々の機構を解明する研究は、今後、フィードバック経路を遮断するもしくは汚染土壌修復の方策を確立するためにも重要かつ不可欠と考えられる。

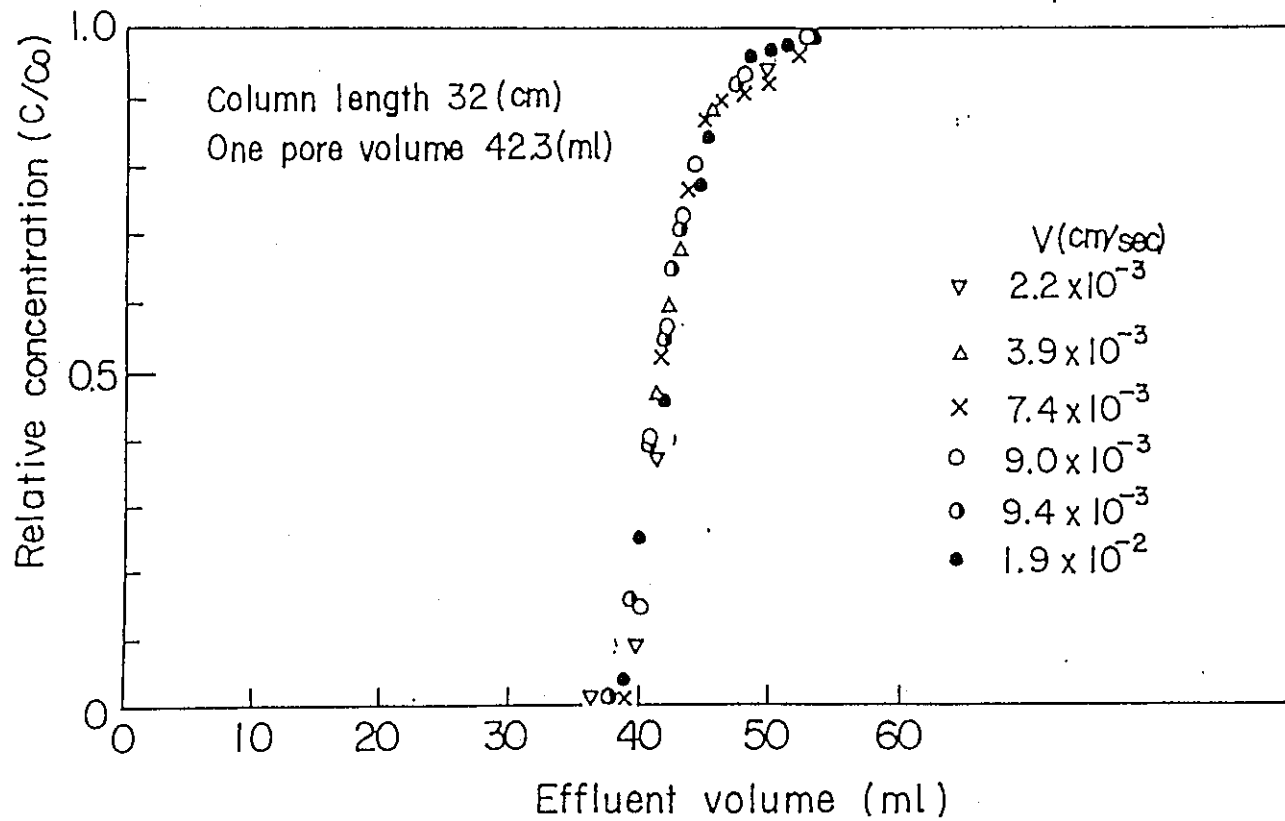


図4.2.1 豊浦砂充填カラム (32cm) によるトリチウム水の破過曲線

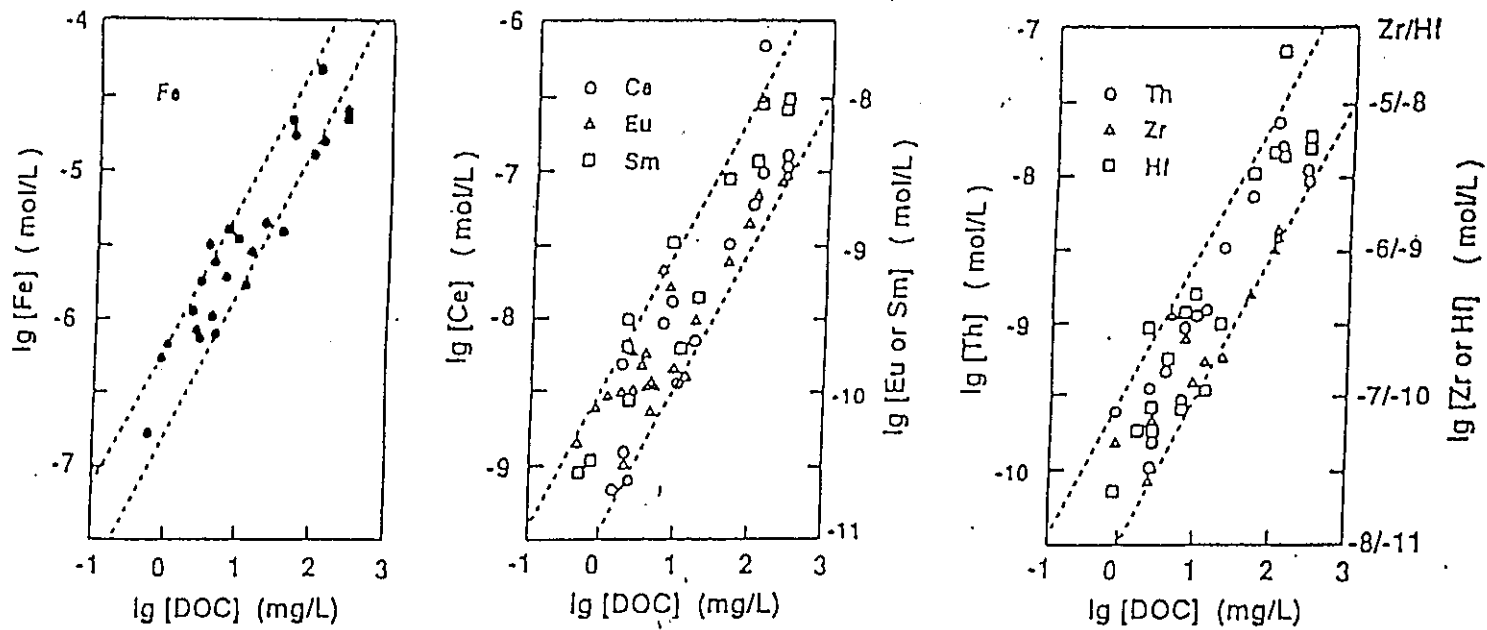


図4.2.2 深層地下水におけるDOC と微量元素濃度

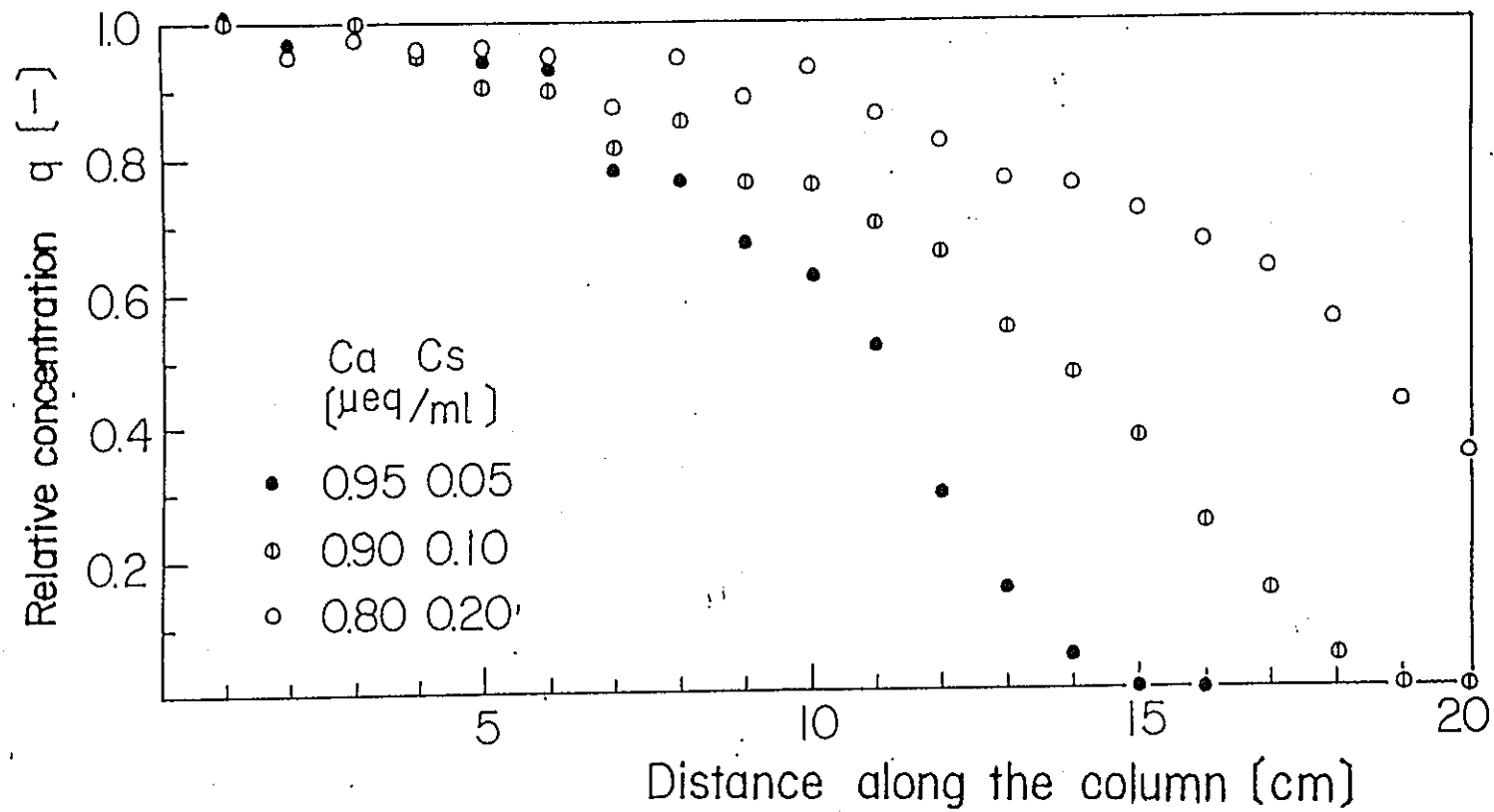


図4.2.3 3種類の濃度の $^{137}\text{CsCl}$ 溶液を各10 τ 流入させた場合の相対吸着濃度分布

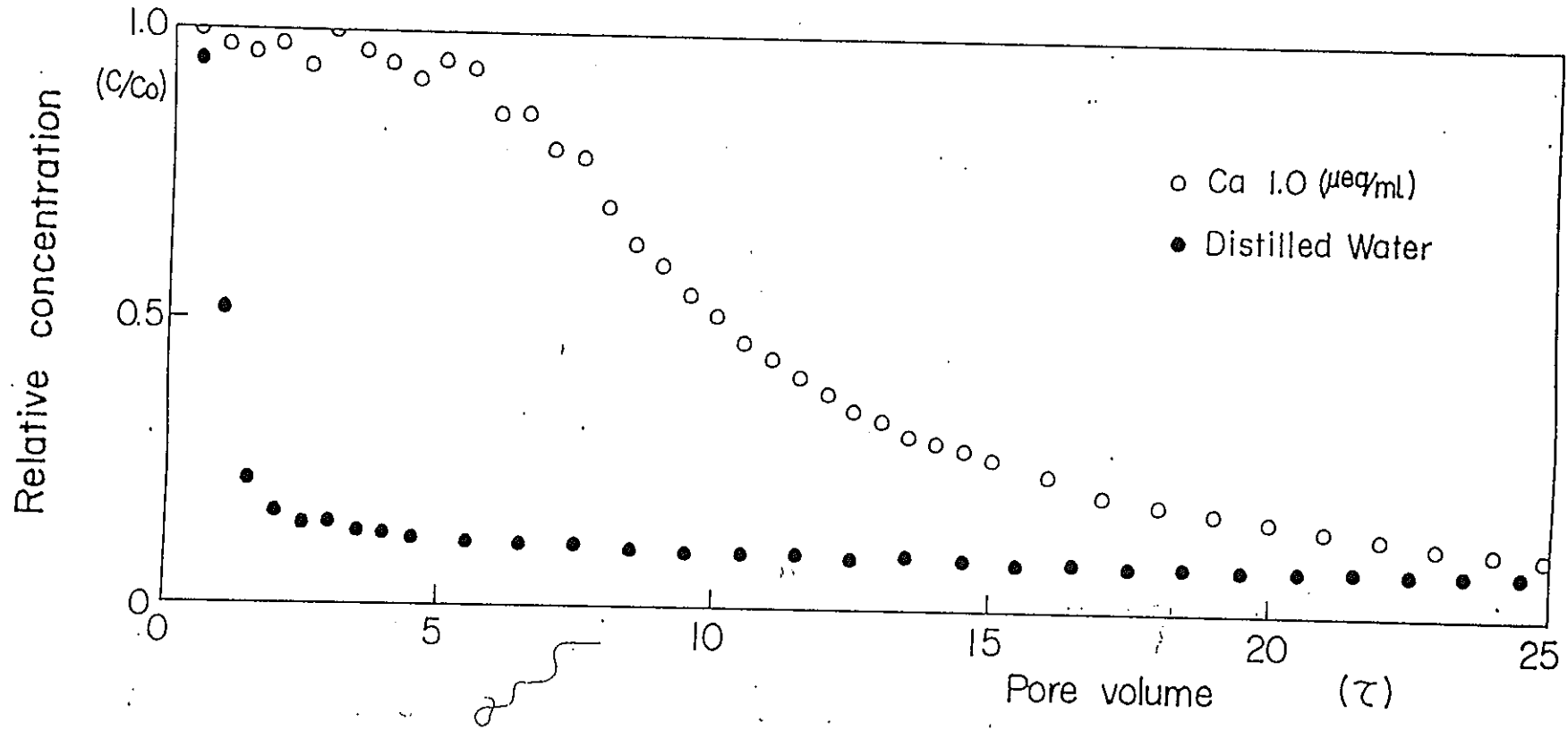


図4.2.4 0.1 μeq/ml 濃度 ¹³⁷CsCl 溶液の溶出曲線：流入量、50 τ 溶離液、
CaCl₂ 溶液(1 μeq/ml) および蒸留水

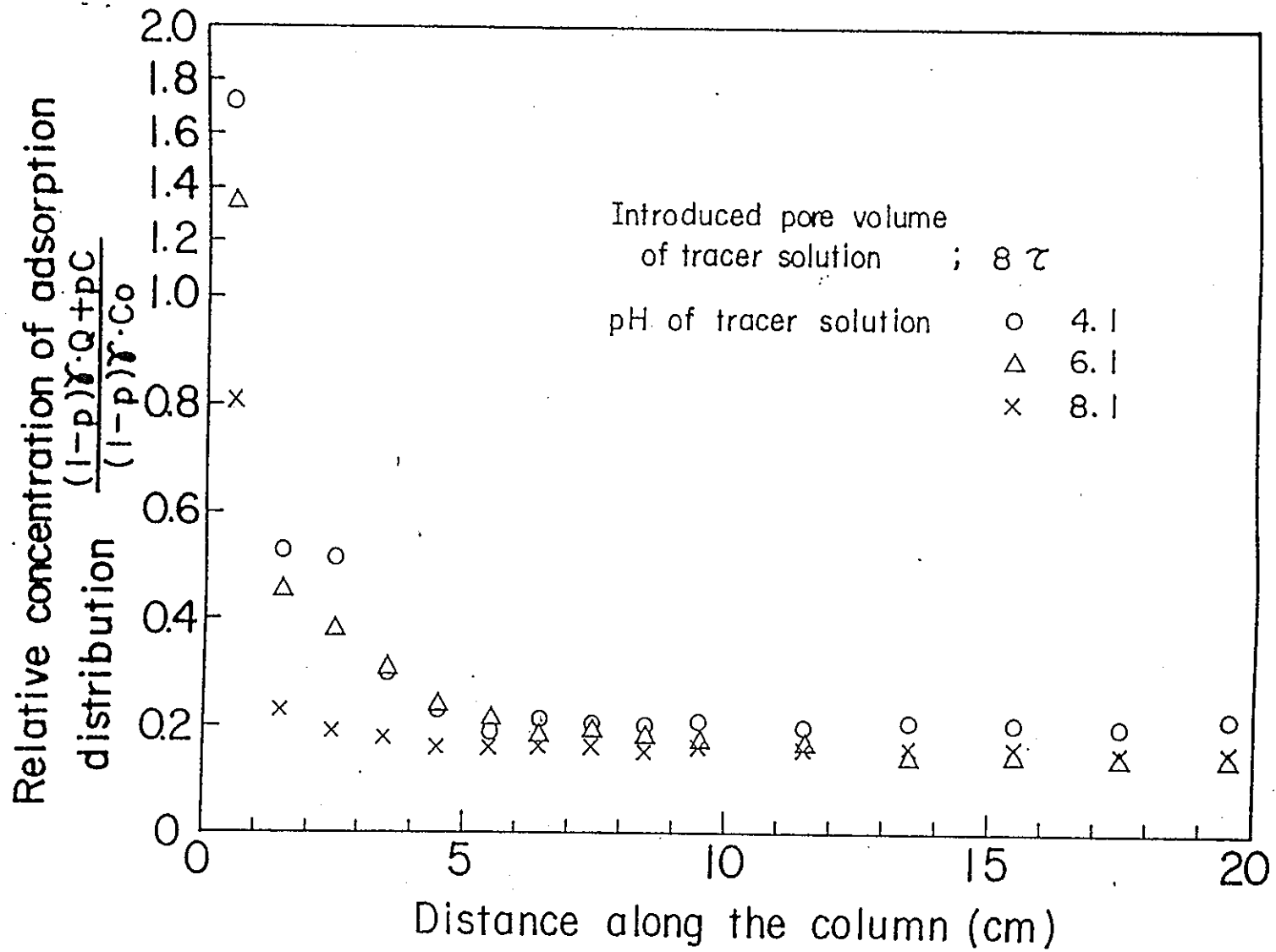


図4.2.5 無担体状の希薄な $^{131}\text{I}^-$ イオンの吸着濃度分布：流入量、各pH液とも8 τ

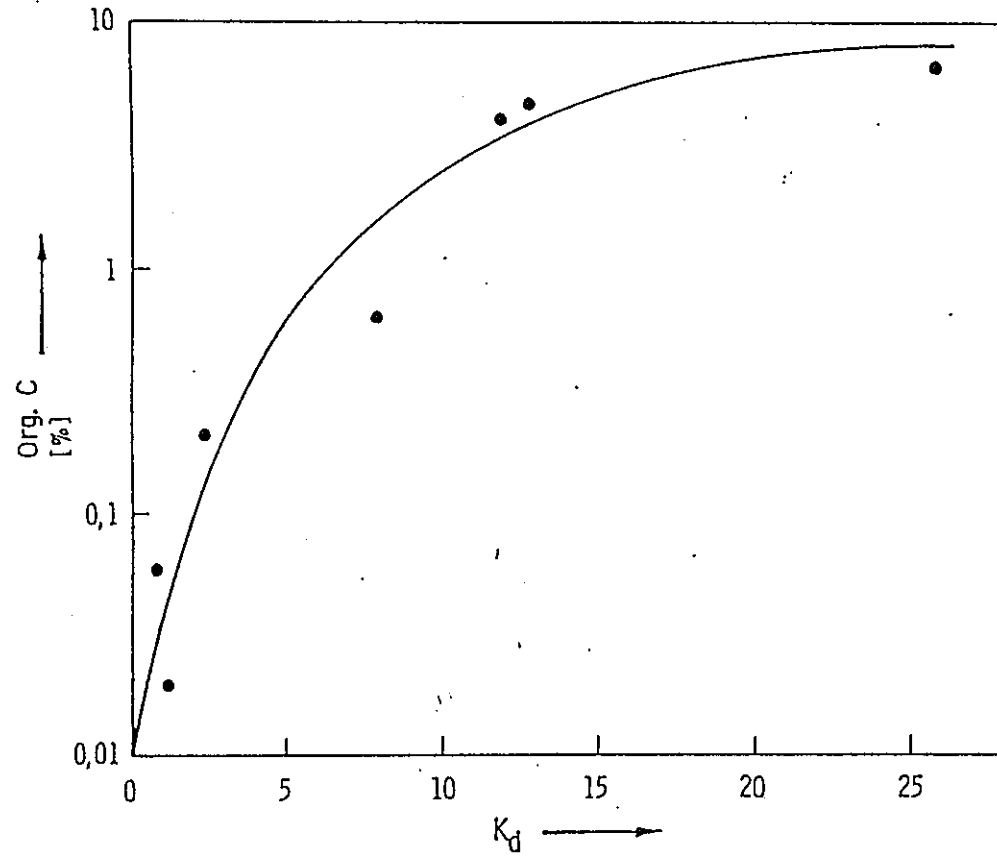


図4.2.6 ポドソルに対する ^{125}I の土壤含有有機炭素量(%)と分配係数の関係

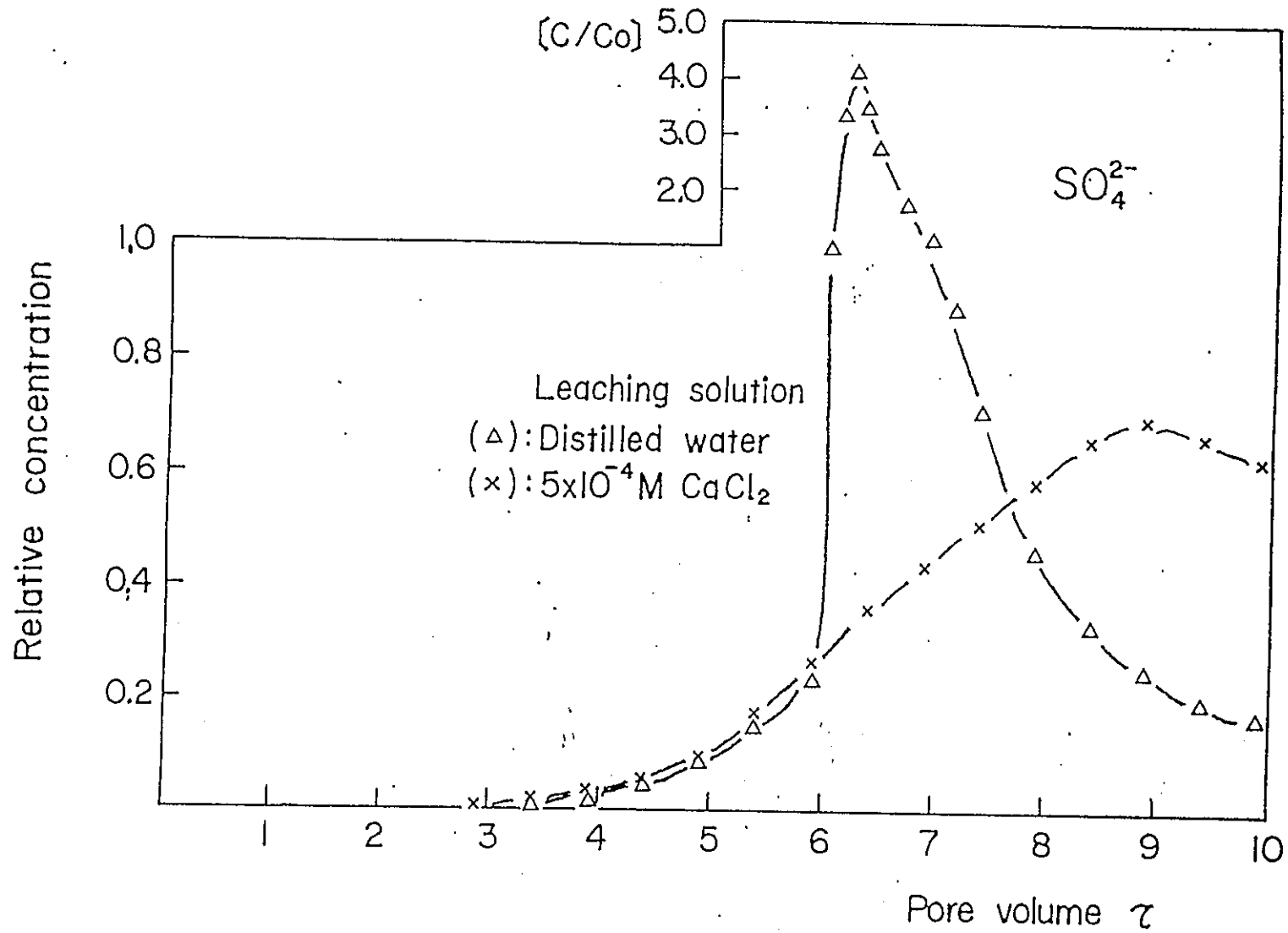


図4.2.7 無担体状の希薄な $^{35}\text{SO}_4^{2-}$ イオンの溶出曲線：流入量、各 5τ 溶離液、 CaCl_2 溶液 ($1\mu\text{eq/ml}$) および蒸留水 (Δ 印)

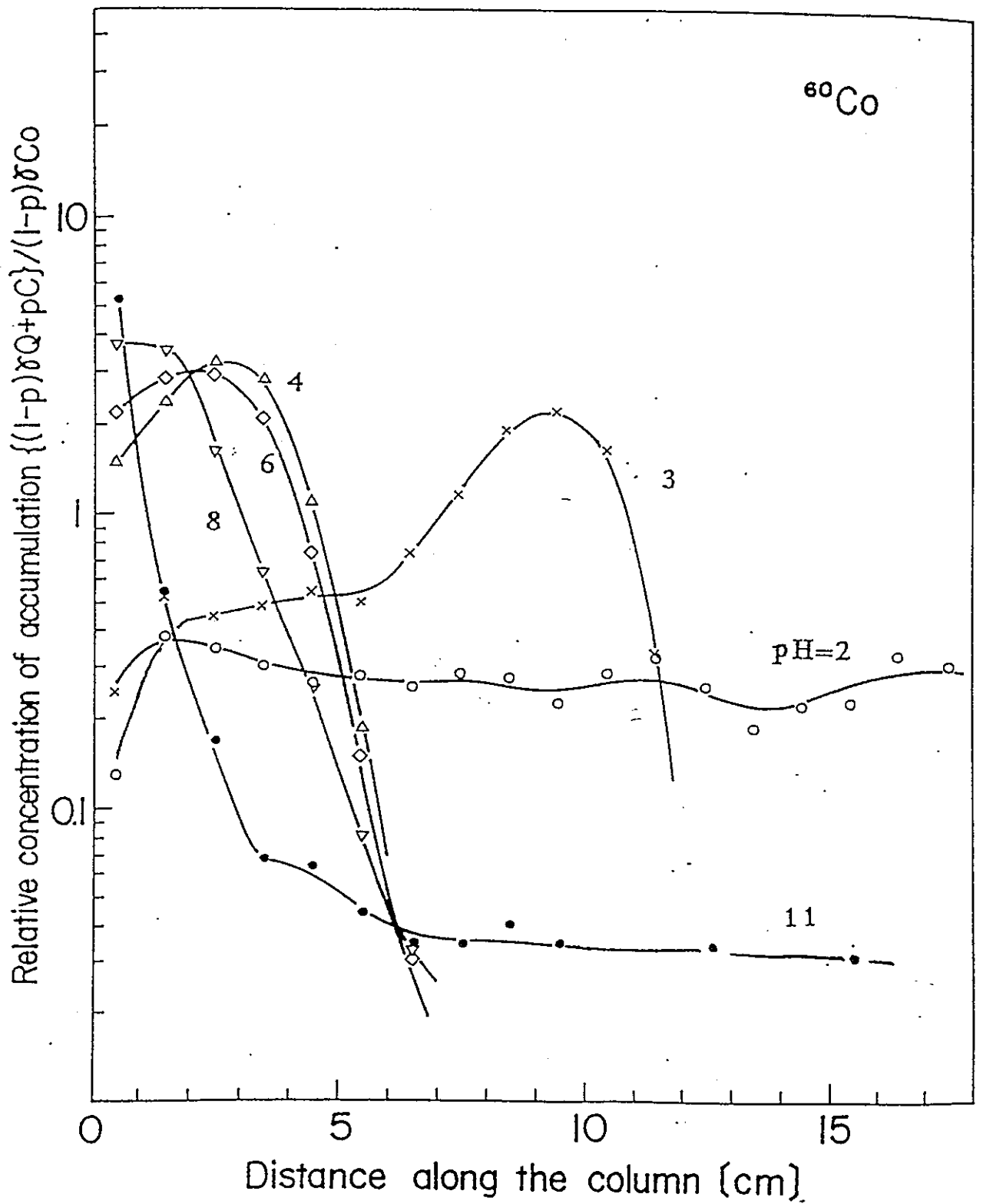


図4.2.8 豊浦砂 20cm 充填カラム内の微量元素濃度分布：流入液、各2τ溶離液、

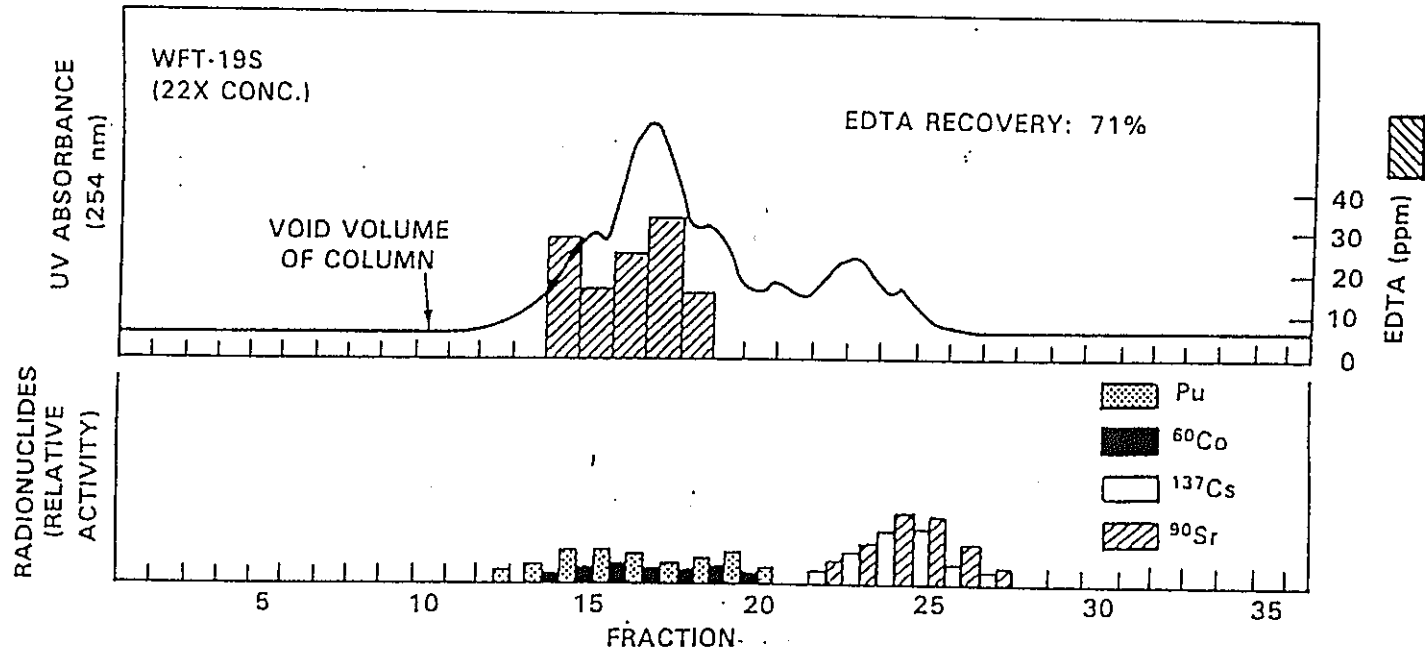


図4.2.9 Sephadex-15 カラムを用いてフラクションに分離した溶液中の放射性核種と
溶存有機物：使用溶液、米国低レベル放射性廃棄物場のトレンチ浸出水

4.2 の引用文献

- 1) Rifai, M. N. E., Kaufman, W. J., Todd, D. K. : Dispersion phenomena in laminar flow through porous media, Univ. of California, Sani. Enging. Res. Lab., Rept. 3, 1956.
- 2) Scheidigger, A. E. : The Physics of Flow Through Porous Media. 3rd edn, University of Toronto Press, Toronto, 1974.
- 3) Fukui, M., Katsurayama, K. : Fundamantal study on longitudinal dispersion of tritiated water through saturated porous media, Health Phys., 28, 717-725, 1975.
- 4) 福井正美, 桂山幸典 : 飽和多孔性媒質内における分子の拡散および分散現象に関する研究, 土木学会論文報告集, 第246号, 73-82, 1976.
- 5) Tucker, W. A., Nelken, L. H. : Diffusion coefficients in air and water. In: Handbook Chemical Property Estimation Methods, Environmental Behaviour of Organic Compounds, W. J. Lyman, W. F. Reehl and D. H. Rosenblatt (Eds), (Chapter 17), McGraw-Hill, 1982.
- 6) Karickhoff, S. W. : Semi-empirical estimation of sorption of hydrophobic pollutants on soils and sediments, Chemosphere, 10, 833-846, 1981.
- 7) Wagenet, R. J., Rao, P. S. C. : Basic concepts of modeling pesticide fate in the crop root zone, Weed Sci., 33, 25-32, 1985.
- 8) Fukui, M. : Rn-222 concentrations and variations in unconfined groundwater, J. Hydrol., 79, 83-94, 1985.
- 9) Wilkening, M. : Radon in the environment, Elsevier, Amsterdam, 1990.
- 10) Czysciwski, K. S., Weiss, A. J. : Evaluation of Isotope Migration-Land Burial, NUREG/CR-1864, 1981.
- 11) Goode, D. J. : Nonradiological groundwater quality at low-level radioactive waste disposal sites, NUREG-1183, 1986.
- 12) Fukui, M. : Modeling the behavior of tritiated water vapor in a research reactor containment building, Health Phys., 62, 144-154, 1992.
- 13) Amano, H., Garten, Jr., C. T., Lomax, R. D. : A field survey of environmental tritium in areas adjacent to ORNL solid-waste storage areas, ORNL/TM-10438, 1987.
- 14) Samiullah, Y. : Prediction of the Environmental Fate of Chemicals, Elsevier Applied Science, London and New York, 1990.
- 15) Yaron, B., Dagan, G., Goldshmid(Eds.) : Pollutants in porous media, Springer-Verlag, 1984.
- 16) Neretnieks, I. : Diffusion in the rock matrix; An important factor in radionuclide retardation, J. Geophys. Res. 85, 4379-4397, 1980.

- 17) Fujikawa, Y., Fukui, M. : Adsorptive solute transport in fractured rock; Analytical solutions for delta-type source conditions, *J. Contam. Hydrol.*, 6, 85-102, 1990.
- 18) Champ, D. R., Merritt, W. F. : Particulate transport of cesium in groundwater, *Canad. Nucl. Soc.*, 2nd. Ann. Conf., 66-67, 1981.
- 19) Pignolet, L., Fonsny, K., et. al. : Microbial action on fixation in a marine sediment, In: *Application of distribution coefficients to radiological assessment models*, Elsevier Applied Sci. Publishers, 361-370, 1986.
- 20) Fuller, W. H. : Movement of selected metals, asbestos and cyanide in soil: Applications to waste disposal problems, EPA-600/2-77-020, 1977.
- 21) 福井正美 : 飽和土壤水中における放射性核種の非線形吸着モデルに関する研究, *保健物理*, 16, 111-121, 1981.
- 22) Rao, P. S. C., Jessup, R. E. : Development and verification of simulation models for describing pesticide dynamics in soils, *Ecol. Modelling*, 16, 67-75, 1982.
- 23) Kim, J. I. : Geochemistry of actinides and fission products in natural aquifer systems, In: *CBC Project MIRAGE, Second Summary Progress Report*, BUR 12229 BN, Brussels, 1989.
- 24) Wahberg, J. S., Barker, J. H. et. al. : Exchange adsorption of strontium on clay minerals, *U. S. Geological Survey Bullitin*, 1140-C, 1965.
- 25) 中西 孝 : 各核種の吸着特性 (岩石・鉱物-合成地下水間における α 放射体の分配) 地層処分研究成果報告会論文集, 58-65, 原子力安全研究協会, 1986.
- 26) 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*, 第 254号, 37-48, 1976.
- 27) 福井正美, 桂山幸典 : 飽和砂層内における放射性核種の挙動に関する研究 (II) - 石英砂層カラム内における放射性無機陰イオンの破過曲線について -, *保健物理*, 11, 193-200, 1976.
- 28) Bors, J., Martens, R., et. al. : Studies on the role of natural and anthropogenic organic substances in the mobility of radionuclide in soils, In: *Proc. of the Intern. Conf. on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere*, 201-206, R. Oldenbourg Verlag, 1987.
- 29) 福井正美, 桂山幸典 : 飽和砂層内における放射性核種の挙動に関する研究 (III) - 石英砂層カラム内における長寿命放射性核種の移動におよぼすpHの影響, *保健物理*, 13, 93-101, 1978.
- 30) Ohnuki, T., Tanaka, T. : Migration of radionuclides controlled by several different migration mechanisms through a sandy soil layer, *Health Phys.* 56, 47-53,

1989.

- 31) 五十嵐敏文：飽和砂層中のコバルトの移動特性，日本原子力学会誌，35，237-244，1993
- 32) Fukui, M. : Evaluation of a combined sorption model for describing cesium transport in a soil, Health Phys., 35, 555-562, 1978.
- 33) 福井正美，内田滋夫，桂山幸典：放射性廃棄物処分による地下帯水層汚染の簡易評価法，保健物理，16，11-22，1981.
- 34) 福井正美：地質媒体中における放射性核種の吸着・移動モデル，日本原子力学会誌，29，498-507，1987.
- 35) 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，同上，32，142-148，1990.
- 36) 馬原保則：(Ⅲ) 土壌に対する核種の分配係数，同上，34，387-392，1992.
- 37) Evans, D. W., Alberts, J. J., Clark III, R. A. : Reversible ion-exchange fixation of cesium-137 leading to mobilization from reservoir sediments, Geochimica Cosmochimica Acta, 47, 1041-1049, 1983.
- 38) Fukui, M. : Desorption kinetics and mobility of some radionuclides in sediments, Health Phys. 59, 879-889, 1990.
- 39) Kirby, L. J., Toste, A. P., et. al. : Radionuclide distributions and migration mechanisms at shallow land burial sites, NUREG/CR-4670, 1991.
- 40) 福井正美：環境動態研究と放射性廃棄物，RADIOISOTOPES, 42, 133-134, 1993.
- 41) Nyham, J. W. : Drennon, B. J. et. al. : Distribution of plutonium and americium beneath a 33-yr-old liquid waste disposal site, J. Environ. Qual., 14, 501-505, 1985.
- 42) Sabatini, D. A., Knox, R. C. (eds.) : Transport and remediation of subsurface contaminants, ACS Symp. Series. 1992.
- 43) 長崎晋也，田中知：コロイド粒径粒子の挟隘経路内の移行，大学・原研共同研究報告書，107-113，平成5年3月.

4.3 まとめ

土壤特性を表現している係数の一つとしての分配係数は、実験室内で対象となる土壤と可溶性の放射性核種の溶液を用いて収着実験により求められている。土壤中における移行挙動のモデルを設定し、解を求めるための各種パラメータを用いる場合には、よく地域特性を調査した上で、実験条件が対象環境に近い状態で求められた相応するパラメータを使用して放射性核種の環境中における移行挙動の様相を評価しなければならない。

土壤環境における H-3 の挙動は、降水中 H-3 と土壤中水分との係わり合いで解析される。降水時期と降水中 H-3 濃度に対して、土壤水中の H-3 濃度の深度分布は非常によく対応しており、この対応関係から降水の浸透速度が求められている。

Sr-90 や Cs-137 については、フォールアウトを利用したトレーサー実験研究としての環境挙動移行に関する実験例は多くあるが、他の対象核種については、データは少ない。表層から 20cm までの Pu-239+240 と Am-241 の深度分布が観測され¹⁾、深部になるほど、exponential に濃度が減少していることが解明されており、また、有機物 30~62% の土壤中、Cs-137, Np-237, Pu-239+240, Am-241 は、表層から 10cm の深度範囲（有機物 62~57%）の土壤に約 90% 以上が収着していることが認められている²⁾。

対象としている放射性核種についての土壤への吸着特性と移行挙動については、基礎的実験例や小規模な実験装置による理論的解析例は多くあるが、原位置での実験例は日本では極めて少なく、室内実験で得られた検討結果を実環境に適応せしめる手法について、開発することが望まれている。

フォールアウト等、既存の放射性核種をトレーサーとして活用して、移行挙動を実証するには限界があり、分析測定法の開発、特に核化学的手法を用いたこれら移行挙動の解明が期待されている。

- 1) A. Yamato, O. Narita, et al. : Vertical Distribution of Fall-Out ^{241}Am and $^{239/240}\text{Pu}$ in Soil of Undisturbed Places in Ibaraki, Japan ; Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-Lived Radionuclides, IAEA/OECD NEA, 27-31, July, 1981.
- 2) 金昌奎、池田長生他：土壤中の長半減期放射性核種の深度分布；日本放射線影響学会第32回大会口演要旨集（1989）

5. モデルの現状

本研究で対象とする核種は9核種（挙動上の性状から3グループに分類）であり、これらを表層土壌における放射性核種の挙動に係わる基礎調査および浅地中における放射性核種の挙動に係わる基礎調査に分けてこれまで示してきた。しかし、挙動のモデルという面から捉えたと、現在の研究レベルにおいては核種の異なることによるモデルの分類という考え方よりも物理モデル（Research Model）および線量評価モデルという分類方法が妥当であると思われる、本章の記述も物理モデルおよび線量評価モデルという分類で記述した。

表層土壌中における放射性核種の移行経路には、土壌から植物への取り込み、空気中への再浮遊による植物表面への再沈着、表層土壌から浅地中への移行という経路のほかに、植物の腐敗等による植物中の放射性核種の土壌への還元、動物による土壌の摂取および動物からの排泄等による土壌への還元等が考えられ、公表されているコードでもこれら経路による移行を考慮したものもあるが、ここでは表層土壌内または浅地中内における放射性核種の挙動という面に着目し、植物の腐敗等による土壌への還元や動物を介する経路については本研究の対象から除外した。

また、表層土壌から浅地中に移行する過程は、土中の液相中や固相から脱離された核種が水分移動に伴って生じるものであり、地下水面上方の不飽和帯を經由して浅地中に至るため、不飽和領域での挙動をモデル化する必要があるが、この領域における物質移行現象の研究は、農学、水文学、水質化学等の諸科学の境界領域にあって未解明課題も多く、定性モデルおよび定量モデルの構築に至るまでには多くの課題が残されていることは既に述べたとおりである。したがって、本章の物理モデルにおいても不飽和領域におけるモデルについては詳細には言及していない。

5.1 線量評価モデル

放射性核種の脱離・再移動の割合や速度を、固相との結合機構と関連させて数理モデル化した研究例は極めて少ない。核種と土壌の結合機構は3.4 で示したように、土壌および土壌溶液の状態に依存して変動するため、数量的な取扱いに際しては様々な困難がある。最も簡便な方法は、核種の固相からの脱離について瞬間平衡を仮定し、核種の脱離に関する固液間分配係数を核種の収着に関する固液間分配係数と別の値に設定することである。土中での挙動を物理的に解明しようとする研究におけるモデルは、基礎的現象に着目しており被曝線量評価まで結び付けたものは少なく、線量評価を目的とする場合は、主にコンパートメントモデルを用いることが多い。

I CRP は、放射性物質の放出を引き起こす操業の開始前に、放出と放射線量との関係を予測することを主眼として、人の被曝評価を目的とした環境中における放射性物質の移行モデル構築の手順、モデルの作成方法と作成上の留意事項、モデルの検証方法をまとめた。¹⁾ その中で示されているモデルは、考察する実際の生態系あるいは生物系を仮想的な均質かつ別個の部分系（コンパートメント）の集合で模擬するという、系の簡素化を図るという考え方に基いており、その各コンパートメント間の移行、コンパートメント内の濃度を算定する手法として濃縮係数法（CF法）およびシステム解析法（SA法）の2種類が示されている。

CF法は、その名のとおり、定常状態におけるコンパートメント間の濃度比を表す「濃縮係数」を用いて、線量を推定する方法であり、SA法は、時間的に変化する速度係数をもった連立微分方程式の系でコンパートメントの線量値を時間変化を追って推定する方法である。CF法は、平衡状態における濃度比を用いることから、例えば移行係数が一年間で一定値になると仮定できるような場合には、CF法による年間の線量の予測結果はSA法による年間の線量の予測結果と理論的には同一となる。すなわち、CF法はSA法の特殊な事例とみることができ、モデルの観点からみればどちらも同一とみなすこともできる。

図5.1.1 に本研究で扱った経路を模式的に示す。

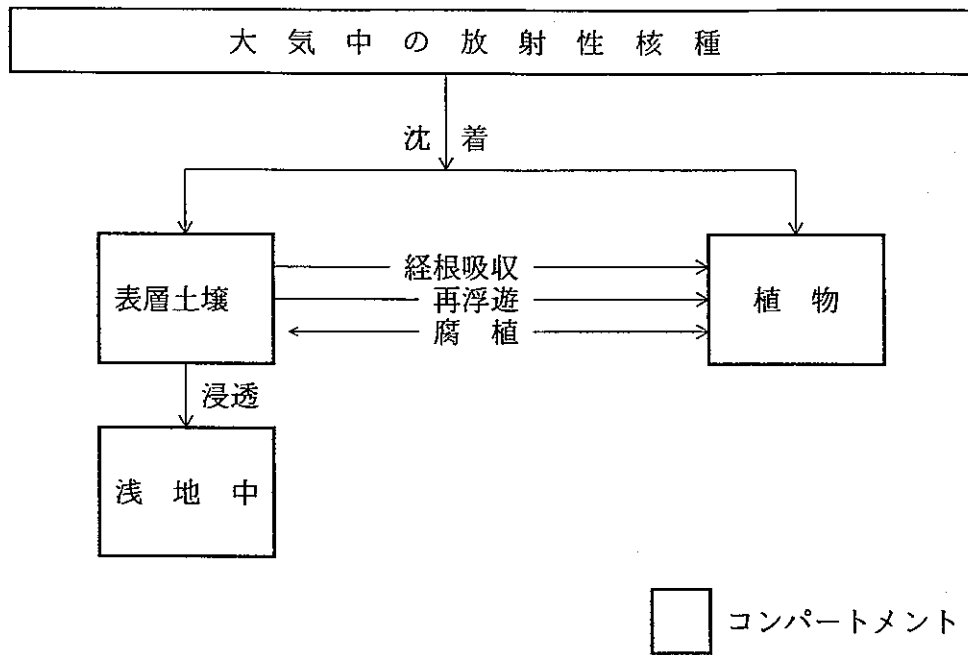


図5.1.1 本研究で扱った核種移行経路

(1) 濃縮係数法 (CF法)

濃縮係数法におけるあるコンパートメントの予測濃度 X_i は、

$$X_i = \sum F_j X_j$$

として表すことができる。ここで、 F_j はコンパートメント X_j の濃度とコンパートメント X_i の濃度との比で規定される移行係数であり、この移行係数は水と生物間の場合などには濃縮係数と呼ばれることもある。この移行係数は、次式のように規定され、

$$F = \text{農作物中の放射性核種の濃度} / \text{土壌中の放射性核種の濃度}$$

例えば、農作物中の放射性核種の濃度は、播種から収穫までの期間に蓄積された総量から求め、土壌中の濃度は栽培期間中の土壌中放射性核種の平均濃度を用いたりする。このように実験値や実測値として予め得られている移行係数をもとに、濃度予測式が構築される。

米国の原子力規制委員会(NRC)の規制指針では、大気中へ放出された放射性核種のおもな食物摂取による線量評価の場合に考慮するコンパートメントは、農産物(葉菜以外の野菜、果実、穀類に相当)、牛乳、葉菜、肉の4つを対象としている。²⁾

そしてこの農産物中の濃度を算出する場合のコンパートメントとして

- ① 農産物
- ② 土壌

の2つを設定しており、また、牛乳中および肉類中の濃度を算出する場合のコンパートメン

トには、

①牧草

②飼料作物

の2つを設定している。

ただし、C-14とH-3については農作物中の濃度算出式を別途設けている。以下に各コンパートメント中の濃度算出式を示す。

i) 農産物中の濃度

灌漑水からの汚染の場合には、H-3以外の核種については次の式を用い、大気中からの汚染の場合にはH-3とC-14以外の物質について次の式で推定する。

次式の括弧内の第1項は農作物への直接の沈着を表しており、第2項は長期にわたる沈着の結果の土壌からの吸収を表している。

$$C_i^v = d_i \left(\frac{r(1-\exp(-\lambda_{Ei} t_e))}{Y_v \lambda_{Ei}} + \frac{f_I B_{iv} (1-\exp(-\lambda_i t_b))}{P \lambda_i} \right) \exp(-\lambda_i t_h) \quad (5.1.1)$$

ただし、土壌中の濃度は、

$$C_i^s = \frac{d_i (1-\exp(-\lambda_i t_b))}{P \lambda_i} \quad \dots\dots\dots (5.1.2)$$

となる。

ii) C-14の農産物中の濃度

大気中に放出されるC-14は、COまたはCO₂として放出され、C-14の大気放出に係る農作物中の比放射能は空気中の比放射能に等しいという仮定をおいている。

$$C_{14}^v = 2.2 \times 10^7 p Q_{14} (X/Q) \quad \dots\dots\dots (5.1.3)$$

iii) H-3の農産物中の濃度

$$C_T^v = 1.2 \times 10^7 Q_T (X/Q) / H \quad \dots\dots\dots (5.1.4)$$

(汚染水による場合には $C_v = C_w$ 、 C_w : 汚染水のH-3濃度)

ここで、

- C_i^v : 農作物vの可食部中の核種iの濃度 (pCi/kg)
- d_i : 地表への核種iの沈着率 (散布水による場合は散布水の沈着率) (-)
- r : 沈着の際に農作物へ捕捉される割合 (-)
- λ_{Ei} : 農作物からの核種iの実効除去率 $\lambda_{Ei} = \lambda_w + \lambda_i$ (hr⁻¹)

- λ_w : weatheringによる物理的ロスの除去率 (hr^{-1})
 λ_i : 核種 i の放射性崩壊定数 (hr^{-1})
 Y_v : 農作物の生産率 ($\text{kg}(\text{wet weight})/\text{m}^2$)
 t_e : 農作物の成長期間における暴露期間 (hr)
 t_b : 土壌への長期蓄積期間 (hr)
 P : 土壌の実効的な表面密度 ($\text{kg}(\text{dry soil})/\text{m}^2$)
 t_h : 収穫後から摂取までの期間 (hr)
 f_1 : 年間の散布率 (大気からの汚染の場合には 1.0) (-)
 $B_{i,v}$: 可食部における核種 i の経根による濃縮係数
 $(pCi/\text{kg}(\text{wet weight})/pCi/\text{kg}(\text{dry soil}))$
 p : fractional equilibrium ratio (-)
 $Q_{i,4}$: C-14の年間放出率 (Ci/yr)
 H : 大気中の絶対湿度 (g/m^3)
 Q_T : H-3 の年間放出率 (Ci/yr)
 χ : 対象物質の大気中地表濃度 (Ci/m^3)
 Q : 対象物質の年間放出量 (Ci/y)

である。

このモデルを用いる際の注意事項としては、経根吸収による農作物中の濃度を過大評価する可能性がある点である。つまり、土壌からの核種の移動過程は放射性崩壊のみを取り扱っており、実際の現象で生じえる土壌の流出や土壌中での浸透等による根圏域土壌からの溶出現象が考慮されていない点である。その他、農作物中における娘核種の生成等も考慮されていない点にも注意すべきである。

IAEAのSAFETY SERIES 57 では、土壌中の濃度算出式を、

$$C_i^s = \frac{d_i (1 - \exp(-\lambda_{E_i}^s t_b))}{P \lambda_{E_i}^s} \quad \text{----- (5.1.5)}$$

$$\lambda_{E_i}^s = \lambda_s + \lambda_i$$

- C_i^s : 乾燥土壌中の核種 i の濃度 (Bq/kg)
 d_i : 核種 i の地表への湿性および乾性沈着率 ($\text{Bq}/\text{m}^2/\text{d}^{-1}$)
 t_b : 土壌中放射能の沈着期間 (d)
 P : 土壌の実効的な表面密度 ($\text{kg}(\text{dry soil})/\text{m}^2$)
 λ_s : 放射性崩壊以外による土壌からの減少定数 (d^{-1})
 λ_i : 核種 i の放射性崩壊定数 (d^{-1})

と表しており³⁾、NRC では考慮されていない放射性崩壊以外のプロセスによる土壌からの減少率 (λ_s) を考慮し、一部若干のパラメータの修正を行っているが、IAEAのものはモデルとしてはNRC のものと同様である。

また、ORNLで開発したAIRDOS-EPAコード⁴⁾でのH-3 とC-14については、農作物中の濃度を算出する形は取っておらず、直接人の被曝線量を計算する式を示してる。例えば、野菜の経口摂取によるH-3 の年間線量 D_v は、

$$D_v = 0.505 C_r (f_{v1} \chi + f_{v2} \chi_v) \quad \dots\dots\dots (5.1.6)$$

- D_v : 野菜の経口摂取によるH-3 の線量 (rem/year)
- C_r : 食物の線量換算係数 (rem・cm³/pCi/year)
- χ : 対象地点での大気中のH-3 地表濃度 (pCi/cm³)
- χ_v : 各地点での野菜の生産量による重み付けされた評価対象エリア全体の大気中のH-3 地表平均濃度 (pCi/cm³)
- f_{v1} : 特定の場所で生産される野菜の摂取率 (-)
- f_{v2} : 評価対象エリア全体の平均生産量の野菜の摂取率 (-)

としている。

一方、日本では軽水炉以外の原子力施設に対してもより現実的な評価が行えるように

- ・比放射能法によるH-3 とC-14の評価
- ・短半減期核種の評価に重要となる様々な時間遅れの因子
- ・長半減期核種の評価に影響を及ぼす様々な現象についてのモデル

の3点についてNRC のモデルを基本として改良・拡張したコードが発表されている^{5) 6)}。

iv) H-3 とC-14以外の核種

①直接沈着による農作物中の核種濃度

$$C_{pa} = \frac{F_t D_r}{Y K_e} (1 - \exp(-K_e T_g)) - \frac{\exp(-MY) - \exp(-K_e T_g)}{1 - (MY) / (K_e T_g)} \quad \dots\dots\dots (5.1.7)$$

- C_{pa} : 収穫時における直接沈着による農作物中の核種濃度 (Ci/kg)
- F_t : 農作物全体の放射能に対する可食部の核種の割合 (Ci/kg)
- D_r : 核種の地表への沈着率 (Ci/m²/d)
- Y : 農作物の生産密度 (kg/m²)
- K_e : 農作物に沈着した核種の実効的な除去率 (= $K_r + K_p$) (d⁻¹)
 - K_r : 核種の崩壊定数(d⁻¹)
 - K_p : 核種の風雨による除去率(d⁻¹)
- T_g : 農作物の成長期間 (d)
- M : 比例定数 (m²/kg)

この式は、NRC モデルに対して沈着した核種が農作物に保持される割合に対する農作物の成長による時間的な変化をChamberlain の経験式($R=1-\exp(-MYt/T_g)$) を用いて考慮したものである。

②根からの吸収による農作物中の核種濃度

$$C_{p,s} = (1 - F_g + F_g (1 - F_r)) \left(\frac{D_r C_r}{S K_s} \right) (1 - \exp(-K_s T_b)) \quad \dots\dots\dots (5.1.8)$$

- $C_{p,s}$: 収穫時における根からの吸収による農作物中の核種濃度 (Ci/kg)
- F_g : 一年のうち農作物が育っている期間の割合 (-)
- F_r : 農作物の成長期間に沈着した核種の収穫時に可食部に残留している割合 (-)
- C_r : 収穫時における土壌から農作物への濃縮係数 (Ci/kg plant per Ci/kg soil)
- S : 土壌の実効的な表面密度 (kg/m²)
- T_b : 土壌への長期の蓄積期間 (d)
- K_s : 核種の土壌からの実効的な除去率 (= $K_r + K_{s,s} + K_{s,u}$) (d⁻¹)
 - $K_{s,s}$: 深層土壌への核種の移動率(d⁻¹)
 - $K_{s,u}$: 根からの吸収による核種の除去率 (= $C_r Y / (T_a S)$) (d⁻¹)
 - T_a : 核種の除去を考慮する期間 (d)

ただし、H-3 とC-14については、地表空気中の濃度から推定する式を示しており、土壌中からの移行という考え方を採用していない。また、このコードでは、土壌中における娘核種の蓄積も考慮できるような式を示している。

一方、長半減期核種を考慮する場合には、再浮遊の経路を考慮する必要があり、地表と再浮遊による大気中の濃度との関係の係数として「再浮遊係数」を導入し、

$K = \text{再浮遊による空气中濃度} / \text{地表面沈着量}$

という考え方で定義している。実際には、この再浮遊係数は経験的に求められた時間依存の考え方の式を取り入れ、

$$K(t) = A \exp(-\lambda_1 t) + B \exp(-\lambda_2 t) \quad \dots\dots\dots (5.1.9)$$

というように考え、 λ_1 は半減期が数週間の短期の実効除去率を表し、 λ_2 は半減期が50～100年程度の範囲である長期的な実効除去率を表している。この再浮遊係数を用いて特定期間 $D t$ (d)における再浮遊による核種の平均空气中濃度 A_R (Ci/m³) を、

$$A_R = \frac{1}{T_R} \sum_{m=0}^{M_X} \int_{T_T - T_g - m D t}^{T_T - m D t} K(t) D t D_r dt + \frac{1}{T_R} \sum_{n=0}^{N_X} \int_0^{T_R - n D t} K(t) D t D_r dt \quad \dots\dots (5.1.10)$$

で算出し、再浮遊による農作物中の濃度 C_{R1} と最初の直接沈着による核種濃度 $C_{p,a}$ の比はそれぞれ対応する沈着率の比に比例すると仮定し、

$$C_{R1} = C_{p,a} \frac{V_g A_R}{D_r} \quad \dots\dots\dots (5.1.11)$$

と示している。

ここで、

D_r : 核種の沈着率 ($\text{Ci}/\text{m}^2/\text{d}$)

T_R : 再浮遊による平均空気中濃度を算出する期間 (d)

TT : 再浮遊を積算する期間 (d)

$MX = (TT - T_R - 1) / D t$

$NX = (T_R - 1) / D t$

V_g : 核種の沈着速度 (m/d)

である。

この再浮遊に関しては、英国のANS (Associated Nuclear Services) のECOSコードでは、

$$C_{air} = (R_{SLA} \rho_{soil} / S_{air}) C_{soil} \quad \dots\dots\dots (5.1.12)$$

C_{air} : 大気中の核種の濃度 (Bq/m^3)

R_{SLA} : 風食作用による侵食率 (m/s)

ρ_{soil} : 土壌密度 (kg/m^3)

S_{air} : 平均風速 (m/s)

C_{soil} : 土壌中の核種の濃度 (Bq/kg)

というモデルを提案している。⁷⁾ また、再浮遊の現象を単に微粒子 (埃) の負荷があるものとして扱っている場合もある。⁷⁾

以上示したように、基本的にはすべてNRC のモデルを用いているが、C-14とH-3 についてまたは再浮遊の扱いについては、いくつかのモデルが提案されている。

土壌から農作物への移行に関するモデルでは、上記のように移行係数による方法の他に比放射能をキーパラメータとする方法と分配係数をキーパラメータとする方法がある。⁸⁾

比放射能法とは、放射性核種を添加した土壌で農作物を栽培したのち、種々の抽出液を用いて抽出した土壌抽出液中の比放射能を求め、農作物 (可食部) 中の比放射能と比較して、一致または最も近い比放射能が得られた抽出液と抽出条件が、その農作物にとっての可給態抽出法であるとする方法で、次式で表される。

$$C_{ve} = S_{ve} \left(\frac{C_{soil}}{S_{soil}} \right) \quad \dots\dots\dots (5.1.13)$$

ここで、

C_{ve} : 農作物 (可食部) 単位重量当たりの放射性核種量 ($\text{Bq}/\text{g wet}$)

C_{soil} : 土壌単位重量当たりの可給態放射性核種量 ($\text{Bq}/\text{g dry}$)

S_{ve} : 農作物 (可食部) 単位重量当たりの安定同位元素量 ($\text{mg}/\text{g wet}$)

S_{soil} : 土壌単位重量当たりの可給態安定同位元素量 ($\text{mg}/\text{g dry}$)

である。

この式は、前述した移行係数による方法より移行量予測の精度は向上するが、対象となる放射性核種の安定同位元素が土壌および農作物中に測定可能な量で存在しなければならないうえ、たとえ存在したとしても同じ土壌で栽培した種々の植物中の重金属の組成は植物種により異なるため、可給態フラクションは農作物の種類や放射性核種の種類により異なると考えられ、現実に適用するには可給態抽出法の調査研究成果が必要とされる。

一方、分配係数をキーパラメータとする方法は次式で表される。⁹⁾ このモデルは、「植物は土壌溶液中に含まれている放射性核種を土壌溶液とともに吸収する」という考えのもとに示されており、上記に示した2つのモデルにおける移行係数が一種のブラックボックス的に扱われているのに対し、各パラメータの物理的意味を明確にした点に特徴がある。

$$C_{ve} = F \cdot S \frac{P_t}{P_{ep}} TC \frac{C_s}{L(\theta + \rho K_d)} \dots\dots\dots (5.1.14)$$

ここで、

- F : 農作物中における放射性核種の可食部への移行率（転位率）(-)
- S : 選択（吸収）係数 (-)
- P_t : 年間単位地表面積当たりの農作物総生産量 (g/cm²/year)
- P_{ep} : 年間単位地表面積当たりの農作物の可食部生産量 (g/cm²/year)
- TC : 蒸散係数（農作物単位重量当たりの蒸散量）(ml/g)
- C_s : 土壌単位地表面積当たりの放射性核種量 (Bq/cm²)
- L : 土壌深さ（根圏域深さ）(cm)
- θ : 土壌水分量 (ml/cm³)
- ρ : 土壌密度 (g/cm³)
- K_d : 分配係数 (ml/g)

である。

ただし、このモデルでは使われているパラメータの数が多く、特にK_dについてはその測定条件に左右されるため、適用に際してはすべてのパラメータ値が設定可能かどうか十分検討する必要がある。

土壌から農作物への移行係数については、すでに3.2 で示したように、核種別、農作物別にその値は異なり、発表されている値を適用する際にはその測定条件（土状、土質、植物種等）を明確に把握し、評価対象地域に適用可能かどうか十分に検討する必要がある。また、Aging（土壌中放射性核種の経年効果による溶出や植物吸収の難易度の変化）等の問題も含めて移行係数を時間の関数として表す検討を行った文献もあり¹⁰⁾、現在も研究の段階である。

(2) システム解析法 (SA法)

システム解析法におけるあるコンパートメントの濃度 X_i は、

$$\frac{d}{dt} X_i = \sum F_{in,j} X_j - \sum F_{out,k} X_i$$

となる。ここで、 $F_{in,j}$ はコンパートメント j から i に移行する割合、 $F_{out,k}$ はコンパートメント i から k へ移行する割合であり、 X_j はコンパートメント j における濃度である。この式からわかるように、 X_i の濃度は時間とともに変化するとともに、他のコンパートメントの濃度と連立している。この一次微分方程式がコンパートメントの数だけ成り立つことから、一般的には電算機を用いて計算される。

システム解析法を用いた計算コードは各国でこれまで開発されており、濃縮係数法と異なって時間変化を追った濃度が算出できることから、用いられる移行係数の値そのものは非常に地域性を表したものとなっている。

1985年からスウェーデンの国立放射線防護研究所の主催で「BIOMOVs」という国際共同研究が行われている。この研究では、生態圏における放射性核種および他の有害微量物質の移行や蓄積を予測するモデルの検証を目的とし、14カ国24機関が参加した。現在は「BIOMOVs II」として継続中の国際プロジェクトである。このプロジェクトでは、10種類のシナリオを設定しており、本調査の主題である表層土壌および浅地中での放射性核種の挙動に関連するシナリオとしては、「Multiple Model Testing Using Chernobyl Fallout Data of I-131 in Forage and Milk, and Cs-137 in Forage, Milk, Beef and Grain」¹¹⁾、「Irrigation with Contaminated Groundwater」¹²⁾、「Transport of Radionuclides to Root-Zone Soil from Contaminated Groundwater」¹²⁾、「Transport of Contaminated Groundwater to a River」¹³⁾がある。ここでは、このBIOMOVs プロジェクトで使用されたコードの幾つかをもとにして、システム解析法の具体的なコード化の現状をみる。

システム解析法では、一般に土壌の扱いに関しては、鉛直方向に複数のコンパートメントに分割するコードが多い傾向がある。すなわち、表層上層は再浮遊に寄与する層、表層下層は経根吸収に寄与する層、浅地中は植物には影響を及ぼさない層というように考える。この表層下層の層数は、1層として扱うコード（例えばPRYMA やECOSYS）やFOOD- MARCのように3層に分割するコードもある。また、耕作地では表層土壌が耕作により均一化されることを考慮して、耕作地と牧草地によって土壌全体の層分割数を変えているコードもある。これらの場合のコンパートメント間の移行率の考え方は、表層土壌から浅地中に向けての移行は浸

透、瀚過を意味しているが、浅地中から表層土壌への移行はコードによって次の3種類の考え方に分類される。

- ① 土壌水分量または根圏域での降水量の欠乏量を得るためのwater budgetを用いるという方法である。そして、浅地中コンパートメントから土壌水の上向きのフラックスによって完全にまたは一部分飽和されるという過程である。
- ② ダルシーの式を用いて降水または蒸発散の結果として生じる表層土壌中における含水量の変化に対応した水分フラックスを予測するというものである。

$$q = k \frac{dH}{dz} \quad \text{----- (5.1.15)}$$

- q : 単位断面積当たりの水分フラックス (cm/s)
- k : 地層の空隙構造と水の粘性で定まる透水係数 (cm/s)
- dH : dz区間の損失水頭 (cm)
- dz : 浸透長 (cm)

- ③ 浅地中コンパートメントからの水分フラックスを直接推定する方法であり、排水ではなく根圏域に移行すると仮定するものである。

また、土壌中のコンパートメントを細かく分類しているコード (例えばFOOD-MARC) では、粘土鉱物における核種の固定現象 (非可逆反応) を表現するため、根圏域の土壌に存在する核種の一部はある移行率によって定着するコンパートメントをさらに設定しているものもある。

植物の取扱いについても、植物を単一のコンパートメントとして扱うコードと、植物表面および植物内部の2つのコンパートメントに分けるコードがある。単一のコンパートメントとして扱う場合には、その植物中の濃度は濃縮係数法の場合と同様に、汚染大気からの直接の沈着による項と経根吸収による項の和として構築されるが、植物を2つのコンパートメントに分ける場合には、次式にその一例 (PATHWAY の場合) を示すように、直接沈着または再浮遊による汚染は植物表面コンパートメントに対し、経根吸収による汚染は植物内部コンパートメントに対して影響を及ぼすとしている。

$$\frac{dC_{vs}(t)}{dt} = (k_r + RF v_g) C_{ss}(t) - (\lambda_w + k_{ab} + k_s + \lambda_r) C_{vs}(t) \quad \text{----- (5.1.16)}$$

$$\frac{dC_{vi}(t)}{dt} = \frac{B_v (dY/dt) C_{is}}{P_s d_r} + (k_{ab} C_{vs}(t)) - (k_s + \lambda_r) C_{vi} \quad \text{----- (5.1.17)}$$

ここで、

$C_{vs}(t)$: 植物表面の放射能量 (Bq/m ²)
k_r	: 雨による濡れ率 (d ⁻¹)
RF	: 再浮遊係数 (m ⁻¹)
v_g	: 葉への沈着速度 (m/d)
$C_{ss}(t)$: 土壌表面の放射能量 (Bq/m ²)
λ_w	: 風化定数 (m ⁻¹)
k_{ab}	: 葉表面から内部への吸収係数 (m ⁻¹)
k_s	: 植物の老化腐敗率 (m ⁻¹)
λ_r	: 放射性崩壊定数 (m ⁻¹)
$C_{vi}(t)$: 植物内部の放射能量 (Bq/m ²)
B_v	: 植物と土壌間の移行率 (-)
(dY/dt)	: 植物の大きさの時間微分 (kg/m ² /d)
C_{is}	: 土壌中(根圏域)での可給態放射能量 (Bq/m ²)
P_s	: 土壌密度 (kg/m ³)
d_r	: 根圏域の土壌深さ (m)

である。

(3) まとめ

ここで示した濃縮係数法やシステム解析法で用いられる移行係数は、3.2 のまとめで示したように土状、土質、植物種等により影響を受けることはもとより、核種毎によって異なるうえその核種の化学形によっても大きく変化するものもある。これらモデルを実地域に適用する際には、当該地域での実測値を採用することが望ましいが、特に日本では現実的には困難な面が多い。また、実験によって算出される平衡定数を実地域に適用する場合でも、現実の土壌溶液中の核種は平衡状態に達していないことも多く、今後のデータの集積が待たれる点でもある。

近年では、濃縮係数法よりシステム解析法によって線量評価を行う事例が多く発表されつつあるが、このような決定論的な解析手法の他に確率論的な手法による線量評価モデルが出始めており、線量評価モデルによる詳細な精度の言及には、今後の研究に頼る面が多く残されている。

5.2 物理モデル

土壤中における放射性核種の挙動に関する研究はこれまで、固相への吸着・固相からの脱離現象を中心に行われてきており、被曝線量評価にまで連結したモデルは余り行われてこなかった。これは、土壤が放射性核種を収着する容量は、土壤量が多いために極めて大きくなることから、地中を経由する放射性核種の移動速度は農畜産物経由のものとは比べると遅くなり、放射性崩壊を持っている特性上、人間に対する線量評価の観点からは、この地中経由の被曝経路は他の被曝経路と比べるとその重要度が相対的に小さくなることがその理由の一つでもある。しかしながら近年、放射性廃棄物処分の安全評価に関連して、半減期が長く、土壤への被収着能が小さい核種の挙動・評価法が問題になってきている。

地層内での核種に移動を表すモデルの主要なものとして、次の2つを挙げている報告がある¹⁴。

- ・数学モデル
- ・実験モデル

湧きだしや吸い込みがないものとした場合の地層内の帯水層における放射性核種の収支式は次のように表すことができる。

(1) 数学モデル

$$\theta \frac{\partial C}{\partial t} = \theta \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \theta \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \theta \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (q_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (q_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (q_z C) - \rho_b \frac{\partial Q}{\partial t} \quad (5.2.1)$$

ここで、

- C : 多孔性媒質内の溶質濃度 (Bq/cm³)
- Q : 媒体内に吸着された溶質濃度 (Bq/g)
- ρ_b : 多孔性媒質の見かけ密度 (g/cm³)
- θ : 含水率 (-)
- D_{x, y, z} : 溶質の分散係数のx, y, z 成分 (cm²/s)
- q_{x, y, z} : ダルシー流速 (cm/s)

である。

一般的に、溶質は地質媒体と反応を起こし、収着が生じる。媒体のQがCの関数 f(C) として表されるとき、この反応項は

$$Q = f(C) \quad (\text{平衡状態の場合}) \quad \dots\dots\dots (5.2.2)$$

$$\partial Q / \partial t = f'(C) \cdot \partial C / \partial t \quad (\text{非平衡状態の場合}) \quad \dots\dots\dots (5.2.3)$$

となる¹⁵⁾。

i) 平衡の吸着モデル

平衡の吸着モデルの代表的なものとしては、

・ヘンリー型 : $Q = K_0 + K_1 C$ ($K_0 = 0$ で $K_1 = K_d$ (分配係数)となる) (5.2.4)

・多項式型 : $Q = K_0 + K_1 C + K_2 C^2$ (5.2.5)

・フロインドリッヒ型 : $Q = K_3 C^n$ (5.2.6)

・ラングミュア型 : $Q = K_4 Q_0 C / (1 + K_4 C)$ (5.2.7)

・競合吸着型 : $Q_a = Q_b (K_5 C_a / C_b)$ (5.2.8)

・Kjelland型 : $Q = Q_0 C / (C + (1 - C) \exp(\ln K_6 + K_7(1 - 2C)))$ (5.2.9)

ここで、 C_a 、 C_b 、 Q_a 、 Q_b は着目するイオンa, b のそれぞれ溶液および吸着濃度であり、 Q_0 は飽和吸着濃度である。

ii) 非平衡の吸着モデル

溶質の移動には、フロインドリッヒ型から誘導される次式が良く知られている。

$$\partial Q / \partial t = k_2 (K_1 C^n - Q) \quad \dots\dots\dots (5.2.10)$$

ここで、 K_1 は分配係数であるが、吸着および脱離の速度定数を k_1 、 k_2 とすると土壤水分を含む空間での溶質の収支から、 $K_1 = k_1 \theta / (k_2 \rho_b)$ と表現できる。

その他に、

$$\partial Q / \partial t = k_4 (C_a C_b - Q_a C_b / K_5) \quad : \text{競合吸着型を速度論的に扱ったもの} \quad \dots\dots\dots (5.2.11)$$

$$\partial Q / \partial t = k_5 C^m Q^n \quad : \text{実験式} \quad \dots\dots\dots (5.2.12)$$

$$\partial Q / \partial t = k_2 (K_1 C \exp(-\beta Q) - Q \exp(\beta Q)) \quad : \text{Elovich型} \quad \dots\dots\dots (5.2.13)$$

等がある。

●合成の吸着モデル

砂層カラムを用いたCsイオンの破過曲線から、表面吸着と内部吸着の2段階の過程を考えたラングミュア型の速度式の和で表すモデルや、ヘンリー型および非可逆現象を対象とした一次反応式を複合した次式等が提案されている¹⁶⁾。

$$\partial Q / \partial t = K_1 \partial C / \partial t + k_{11} C \quad \dots\dots\dots (5.2.14)$$

ここで、

Q 、 C : 固、液相における放射性核種濃度 (Bq/g, Bq/cm³)

K_1 : 分配係数 (cm³/g)

k_{11} : 一次反応速度定数 (cm³/g/s)

である。

(2) 実験モデル

放射性核種の土壌への吸着量をヘンリー型の次式で評価し、

$$Q = K_d C \quad \text{..... (5.2.15)}$$

この分配係数 K_d が、時間的におよび水中濃度等で変化しないと考えた場合に、

$$t = K_r T, \quad K_r \equiv 1 + ((1-f) \rho K_d / \theta) \quad \text{..... (5.2.16)}$$

という時間に関する変数変換を施すと、

$$\frac{\partial C}{\partial t} (1 + (1-f) \rho K_d / \theta) = \frac{\partial}{\partial x_k} (D_k \frac{\partial C}{\partial x_k}) - V_k \frac{\partial C}{\partial x_k} \quad \text{..... (5.2.17)}$$

で表される放射性核種の移流・拡散方程式は、

$$\frac{\partial C}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial x_k} (D_k \frac{\partial C}{\partial x_k}) - V_k \frac{\partial C}{\partial x_k} \quad \text{..... (5.2.18)}$$

という形で表すことができる。したがって、 t は土壌に収着される物質の、 T は収着されない物質の移動を把握する時間パラメータとなり、土壌に収着されない物質、例えばH-3 や色素等の移動を実時間（時間パラメータ T ）によって把握し、 $t = K_r T$ によって時間パラメータのみを t に変換すれば土壌に収着される放射性核種の移動を予測できることを意味している。

以上示したようなモデルを用いて、初期条件、境界条件を設定して解くことにより土壌地下水汚染の予測は原理的に可能であるが、長期的な濃度分布を予測するような場合には数値解法でも容易ではない。もちろん、複雑な条件のもとでの解析解を得ることはできない。そこで、幾つかの条件を設定した場合に解析的な手法が適用できる地下水汚染の予測方法が提案されている。¹⁰⁾

主軸方向のみの移流、分散のみが生じるという安全側の仮定のもとに、ヘンリー型と一次反応式を複合した吸着モデルを用いる。さらに、

$$C = 0 \quad x > 0, \quad t = 0$$

$$C = C_0 \quad x = 0, \quad t > 0$$

$$C = 0 \quad x \rightarrow \infty, \quad t > 0$$

という初期条件、境界条件のもとでは任意の時間 t 、距離 x における地下水中の放射性核種濃度 $C(x, t)$ は、

$$C/C_0 = P(x, t) / 2 \quad \dots\dots\dots (5.2.19)$$

$$P(x, t) = \exp\left(\frac{(U + \delta)x}{2D'}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x+dt}{2\sqrt{D'}t}\right) + \exp\left(\frac{(U - \delta)x}{2D'}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x-dt}{2\sqrt{D'}t}\right) \quad \dots\dots\dots (5.2.20)$$

ここで、

- C_0 : 処分地点での濃度 (Bq/cm³)
- U : 地下水平平均流速 (cm/s)
- D : 分散係数 (cm²/s)
- $\delta = \sqrt{4D'(\lambda + k_{11}') + U^2}$
- $k_{11}' = k_{11} / (\alpha' + K_1)$
- $\alpha' = p / (1 - p) \gamma$
- $D' = D / (1 + K_1 / \alpha')$
- $U = V / (1 + K_1 / \alpha')$

である。

放射性核種以外の物質ではあるが、石炭灰の地中内の移行を予測するモデルとして、電力中央研究所のモデル^{17) 18)}を例として示す。

このモデルは、有限要素法を用いたもので移流、分散、吸着および沈澱等による消滅に関する項を考慮している。吸着モデルとしては、ヘンリー型、フロイドリッヒ型、ラングミュア型のいずれも取り扱えるようになっている。また、鉛直二次元、水平二次元および三次元の解析ができるようになっている。以下に、鉛直二次元と水平二次元の場合の物質移行モデルの支配方程式を示す。

i) 鉛直二次元物質移行モデル

地下水の飽和・不飽和領域における溶出微量物資の移行を解くものであり、鉛直二次元水流動解析で得られる移流速度をそのまま入力として用いる。媒体の圧縮性を無視すれば支配方程式は、

$$\partial(\theta C + \rho_b S) / \partial t + V \nabla C - \nabla(\theta D \nabla C) + K_w \theta C = 0 \quad \dots\dots\dots (5.2.21)$$

ここで、

- θ : 体積含水率表示の水分量 (-)
- C : 溶出物質の液相濃度 (ML⁻³)
- ρ_b : 媒体のみかけ密度 (ML⁻³)
- S : 溶出物質の固相濃度 (MM⁻¹)
- V : ダルシー流速 (LT⁻¹)

D : 分散係数 (L^2T^{-1})

K_w : 消滅にかかわる速度定数 (T^{-1})

である。ここで、固相濃度 S に対してヘンリー型の吸着モデルを用いた場合には、

$$(\theta + \rho_b K_d) \partial C / \partial t + V \nabla C - \nabla (\theta D \nabla C) + K_w \theta C = 0 \quad \text{----- (5.2.22)}$$

となる。

ii) 水平二次元物質移行モデル

飽和領域のみを対象とする場合には、水平二次元の水流動解析結果を用いて溶出微量物質の移行を解析できる。被圧地下水、不圧地下水ともにヘンリー型の吸着モデルを用いた場合の支配方程式は次のとおりである。

$$\partial (B (n + \rho_b K_d) C) / \partial t + \nabla (B V C) - \nabla (B n D \nabla C) + B K_w n C = 0 \quad \text{----- (5.2.23)}$$

ここで、

B : 帯水層厚 (L)

n : 間隙率 (-)

である。

放射性核種であるか否かにかかわらず、地下水によって移流、分散する場合や吸着に関するモデルはいずれも同様である。

(3) まとめ

一方、物理モデルの項で示したように、不飽和領域における土壤中の溶質移動は、飽和領域に比べて降雨浸透や蒸発散による水分移動に関し非定常性が強いいため、溶質濃度と連立させた解析は、溶質-媒体間のinteractionを線形と仮定した場合に限られており、普遍的なモデルは無く、評価期間を考慮した定常-非定常モデルを構築する必要がある。また、土壤中の微生物活動の結果が土壤の化学的環境を規定する場合には、放射性物質の挙動に与える影響が考えられるが、複雑な生物作用を汚染物質の移行に組み込んだ挙動モデルは未だ開発されていない。

固・液相間における濃度比として定義された分配係数も、室内実験で得られたものを実地域に適用する場合の問題点として物理的変動要因および化学的変動要因が次のように挙げられている¹⁹⁾。

i) 物理的変動要因

- ①粒度、接触時間、攪拌、温度、
- ②吸着損失
- ③固・液量比
- ④相分離（濾過、遠心分離））、

ii) 化学的変動要因

- ①陽イオン交換容量
- ②pH
- ③水溶液中濃度と等温曲線
- ④酸化・還元状態と酸化物
- ⑤有機物 等

そのうえ、核種の化学形態や吸着時間等によっても影響を受けることが知られている。そのため、Site Specific な地球化学的、水理・地質的条件をできるだけ再現した実験による測定値を選択することが望ましい。

地質媒体内の核種移行に際して、化学種の溶解度が律速する場合や、コロイド移行に影響される場合のモデル化は現在進行中であり、古典的な吸着モデルだけでなく、これらを組み込んだモデルの確立が望まれる。

5.3 まとめ

線量評価モデルとして示した濃縮係数法（CF法）やシステム解析法（SA法）で用いられる移行係数は、3.2のまとめで示したように土壌、土質、植物種等により影響を受けることはもとより、核種毎によって異なるうえその核種の化学形によっても大きく変化するものもある。これらモデルを実地域に適用する際には、当該地域での実測値を採用することが望ましいが、特に日本では現実的には困難な面が多い。また、実験によって算出される平衡定数を実地域に適用する場合でも、現実の土壌溶液中の核種は平衡状態に達していないことも多く、今後のデータの集積が待たれる点でもある。

近年では、濃縮係数法よりシステム解析法によって線量評価を行う事例が多く発表されつつあるが、このような決定論的な解析手法の他に確率論的な手法による線量評価モデルが出現しており、線量評価モデルによる詳細な精度の言及には、今後の研究に頼る面が多く残されている。

一方、物理モデルの項で示したように、不飽和領域における土壌中の溶質移動は、飽和領域に比べて降雨浸透や蒸発散による水分移動に関し非定常性が強いいため、溶質濃度と連立させた解析は、溶質-媒体間のinteractionを線形と仮定した場合に限られており、普遍的なモデルは無く、評価期間を考慮した定常-非定常モデルを構築する必要がある。また、土壌中の微生物活動の結果が土壌の化学的環境を規程する場合には、放射性物質の挙動に与える影響が考えられるが、複雑な生物作用を汚染物質の移行に組み込んだ挙動モデルは未だ開発されていない。

固・液相間における濃度比として定義された分配係数も、室内実験で得られたものを実地域に適用する場合の問題点として物理的変動要因および化学的変動要因が次のように挙げられている¹⁹⁾。

物理的変動要因

- ①粒度、接触時間、攪拌、温度、
- ②吸着損失
- ③固・液量比
- ④相分離（濾過、遠心分離））、

化学的変動要因

- ①陽イオン交換容量
- ②pH
- ③水溶液中濃度と等温曲線
- ④酸化・還元状態と酸化物
- ⑤有機物 等

そのうえ、核種の化学形態や吸着時間等によっても影響を受けることが知られている。そのため、Site Specific な地球化学的、水理・地質的条件をできるだけ再現した実験による測定値を選択することが望ましい。

地質媒体内の核種移行に際して、化学種の溶解度が律速する場合や、コロイド移行に影響される場合のモデル化は現在進行中であり、古典的な吸着モデルだけでなく、これらを組み込んだモデルの確立が望まれる。

引用文献

- 1) ICRP Publ. 29 : "放射性核種の環境への放出：人に対する線量の算定", 日本アイソトープ協会・邦訳版, (1986)
- 2) U. S. NRC: U. S. NRC Regulatory Guide 1. 109, (1977)
- 3) IAEA : "Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases", IAEA Safety Series No. 57, (1982)
- 4) Moore R. E, et al. : "AIRDOSE-EPA: A Computerized Methodology for Estimating Environmental Concentrations and Dose to Man from Airborne Releases of Radionuclides", ORNL-5532, (1979)
- 5) 外川織彦 : "原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種による公衆の被曝線量を算出するための計算コード TERFOC-N", JAERI-M 89-145, (1989)
- 6) TOGAWA, O. : "Computer code TERFOC-N to calculate doses to public using terrestrial foodchain models improved and extended for long-lived nuclides", J. Nuclear Science and Technology, 27[4], pp. 360-374, (1990)
- 7) BIOMOVs : "Irrigation with Contaminated Groundwater", BIOMOVs Technical Report 6, (1989)
- 8) 内田滋夫、ほか : "土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル", 日本原子力学会誌 Vol. 26 No. 11, pp935-941, (1984)
- 9) Dorp F. V., et al. : "A New Approach for Soil-Plant Transfer Calculations", Proc. IAEA Symp. on Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries, Vienna, Vol. II, IAEA-SM-237/13, pp399-406, (1979)
- 10) Dehut J. P., K. Fonsny, C. Myttenaere, D. Deprins and C. M. Vandecasteele : "Bioavailability of Tc Incorporated in Plant Material ", Health Physics, Vol. 57, No. 2, pp. 263-267, (1989)
- 11) BIOMOVs : "Multiple model testing using Chernobyl fallout data of I-131 in forage and milk and Cs-137 in forage, milk, beef and grain", BIOMOVs Technical Report 13, (1991)
- 12) BIOMOVs : "Transport of Radionuclides to Root-Zone Soil from Contaminated Groundwater", BIOMOVs Technical Report 9, (1990)

- 13) BIOMOV5 : "Transport of Contaminated Groundwater to a River", BIOMOV5 Technical Report 10, (1990)
- 14) 佐伯誠道 (編) : "環境放射能 — 挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価 — ", ソフトサイエンス社, (1984)
- 15) 福井正美 : "地質媒体中における放射性核種の吸着・移動モデル", 日本原子力学会誌 Vol. 29, No. 6, pp498-507, (1987)
- 16) 福井正美, 内田滋夫, 桂山幸典 : "放射性廃棄物処分による地下帯水層汚染の簡易評価法", 保健物理, Vol. 16, No. 1, pp. 11-21, (1981)
- 17) 下垣久、五十嵐敏文 : "石炭灰陸上埋立に伴う環境影響予測手法", 電力土木 NO. 24 1, PP1-6, (1992)
- 18) 下垣久、ほか : "石炭灰陸上埋立に伴う環境影響予測手法 — 微量物質の溶出・移行挙動の予測 — ", 電力中央研究所報告 U92015, (1992)
- 19) 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、日本原子力学会誌, 32, 142-148, 1990.

6. 今後の課題

6.1 表層土壌及び浅地中における放射性核種の挙動に係る基礎調査

表層土壌における放射性核種の環境中の挙動を調べるにあたり、天然の核反応によって生成した放射性核種については、環境中濃度は地域によって大きな差はないと考えて良いが、核実験や原子力施設に起因する放射性核種については、気象条件等の差による地域特性が認められているので、人工放射性核種による被曝線量を評価する場合には、地域差を考慮する必要がある。

水は放射性核種の環境移動の媒体となっているが、土壌水中H-3の実測例が少なく、今後のデータの取得が期待されている。

放射性核種のうち Tc-99や I-129については、データも少なく各移行過程における化学形態とその組成を明らかにすることが望まれる。

Pu-239、Am-241、Np-237については、環境データおよびトレーサー実験例も他の核種に比較して非常に少なく、特に再浮遊に関連する移行挙動は、農作物の表面汚染に注目しなければならず葉菜が重要視される。解析評価に当たっては、汚染地域とその周辺の気象や人間活動等、自然現象と社会活動等の考慮が必要である。

放射性核種の植物への移行係数は、土壌の土性・土質と植物種と栽培条件により異なるが、基本的問題として取り上げなければならないのは、土壌中放射性核種の存在形態であり、全濃度を分母として取り扱ったのか、可給態だけを対象として取り扱ったのかによって、この値は大きく異なってくる。従って、モデルの中のパラメータの値の算入に当たっては、係数算出条件をよく見極めて整合性がとれるよう注意しなければならない。

C-14 は、CO₂として大気中に依存した場合は、植物の炭酸同化作用により固定化されるので、地域特産物としては、米やイモ類中の濃度に着目しなければならない。

Tc-99 が植物に吸収された場合は植物成分の一部となり、濃縮される場合があり、一般的には、葉緑素の一員として固定されるようであり、地域の野菜等の特性調査も大切である。

放射性核種の環境挙動・移行や、線量評価するためのモデルの運用に際しては、地域特性を把握できるような多くの実験例を得て、Kdや移行係数や濃縮係数等の多くの環境パラメータの取得を必要とし、移行挙動の解析精度と被曝線量推定の精度を向上せしめるよう努力を要する。

浅地、すなわち植物の根圏域より深部へ放射性物質が浸透した場合、わが国のような植物成長期は高温多湿で、大陸のような砂漠がないこと、また、不圧地下水深度が浅くて、地下水が豊富なことを考慮すると、放射性核種の地下浸透速度を過少評価しないようにすることが放射性核種移行挙動の Best Estimationと考えられる。

対象としている放射性核種についての土壌への収着特性と移行挙動については、基礎的実験例や小規模な実験装置による理論的解析例は多くあるが、原位置での実験例は日本では極めて少なく、室内実験で得られた検討結果を実環境に適応せしめる手法について、開発することが望まれる。

放射性核種に対する土壌の収着特性を表現している係数の一つとして通常用いられている分配係数は、実験室内で対象となる土壌と可溶性の放射性核種の溶液を用いて収着実験により求められている。この実験条件が対象実環境に近い環境であることが必要である。

フォールアウト等、既存の放射性核種をトレーサーとして活用して、移行挙動を実証するには限界があり、分析測定法の開発、特に核化学的手法を用いたこれら移行挙動の解明が期待されている。

核種の地中での挙動は、土壌という複雑な媒体とinteractするので、その挙動解明は今後多くの時間を必要としよう。安全評価上の便法としてのモデルを、de fault valueを採用するなど、パラメータを仮定して、使用することも大切ではあるがモデルの信頼度を向上させるためにも、放射性核種、特にデータの少ない核種についての吸着や移行過程を素過程として個々の機構を解明する研究モデルの開発と併行して進めることが大切である。

6.2 モデルの現状

土壌中内の放射性核種の挙動を再現するモデルとしては、コンパートメントモデルより物理モデルによる結果がより詳細に評価できることが一般的にいられているが、人の被曝線量を評価する場合には植物や動物を経由する経路が重要となり、この場合には物理モデルではその経路を十分にモデルに組み込むことが難しい。そのため、線量評価を目的として環境中の放射性核種の挙動を再現するモデルとしては、非定常のコンパートメントモデルによる方法（システム解析法）が近年多く用いられている。

Site Specific な被曝線量を評価する場合には、土壌と植物間の移行係数や固・液相間の分配係数等には対象地域固有の値を用いる必要がある。これまで、これら係数値はいくつかの文献に示されてきたが、それらの値を実際に適用する際には、その値が得られた際の実験条件、土状、土質、植物種、核種の化学形態等の状況を十分に把握し、対象地域への適用可能性を事前に検討する必要がある。

一方、飽和領域において地下水による水平方向への核種の移行を詳細に再現する場合は、物理モデルを用いる必要がある。この場合には、非定常コンパートメントモデルと物理モデルをリンクさせることになる。

近年では、日本における線量評価対象地域として予測される地域においては、地下水の再利用（灌漑、飲料水等）は必ずしも常に行われてはいないことが多い。

このような点を考えると、今後モデルを開発する場合には、例えば最初の段階では植物等への移行も含めた非定常のコンパートメントモデルの開発、第2段階として地下水の水平方向の移行も含めた物理モデルとのリンク、というようにいくつかの段階に分割して開発とモデルの検証を平行に進めるべきであると思われる。また、被曝線量評価地域を早急に特定し、移行係数や分配係数の適用性調査も併せて実施する必要がある。

添付資料 1 委員会議事録

放射性核種の環境中挙動に関する基礎調査

第1回検討委員会 議事録

1. 日時

平成5年1月18日(月) 13:40~15:10

2. 場所

(株) ペスコ 本社 会議室

3. 出席者

石原委員長、安、鎌田、福井、松鶴、馬原 各委員

事務局：瀬川、鈴木、大内

オブザーバー：福沢、浅野、倉林(以上動燃)

鹿志村(CRC)

4. 配布資料

- 資料1-1 委員会委員名簿
- 資料1-2 本調査研究内容
- 資料1-3 本調査研究計画(案)
- 資料1-4 実施体制およびスケジュール

参考資料

- 1-1 A Review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Released Radionuclides through Agriculture ORNL-5786
- 1-2 Proceeding on NEA Workshop on the Influence of Seasonal Conditions on the Radiological Consequences for a Nuclear Accident NEA/OECD(1988)
- 1-3 Multiple Model Testing using Chernobyl Fallout Data of I-131 in forage and Milk and Cs-137 in Forage, Milk, Beef and Grain BIOMOVs Technical Report 13, Part 1 Scenario A4 (1991)
- 1-4 岩石-地下水系における放射性コバルトおよびセシウムの移行とモデル化に関する研究(藤川陽子)

5. 議 事

事務局より、配布資料に基き、本調査に係る委員会設置趣旨、調査研究計画概要、スケジュール等について説明の後、検討を行い、下記事項を配慮して調査を進めることとした。

1) 放出源情報について

平常時及び事故時の両方を含め、スタックから空気中に放出された放射性核種の地表沈着地中移行を主に検討する。

如何なる核種が生物圏への影響評価上重要かを明らかにする。

2) 放射性核種の地中での挙動、モデル及びこれに使用するパラメータの調査研究の対象となる範囲について

スタックからの大気放出を想定すると、影響範囲は、せいぜい放出点から10km位までの距離となり、その中での移行を考えればよいと思われる。この範囲内における土壌で生育した植物摂取による線量評価が最終目標であることを考えると、土壌の調査すべき深さは、表層土壌については、植物の根圏域までとなろうし、浅地中については、最浅の地下水帯までとなろう。

3) モデルとパラメータについて

行政上のセーフティアセスメントに使うモデルについては一通り確率されており、これには言及する必要はない。

最終的には、汎用性のある、Best Estimate 出来るモデルを開発するということに役立つような調査を行う必要があるので、今回は、どういう場合は、どんなモデルを適用しているかの現状について、Generic な観点で調査する。内容としては、実測現象論と理論の両方となろう。

パラメータについては、どういう場合は、どのパラメータが重要か、パラメータの選択とバランス、精度等についてレビューすることとする。

内容としては、実測値及び default value とする。

4) その他

(1) 調査内容のウエイトは、第4章（表層土壌）、第5章（浅地中）及び第6章（安定同位元素）について6：3：1程度とする。

- (2) 5章の「コロイド」については、あまり情報がないのではないかの懸念があるが、一応調べることにし、他のパラメータで重要なものがあれば抽出調査する。
- (3) 第6章は、放射性核種の挙動解明に有益な情報を調査することが命題であり、産業廃棄物等一般的な環境影響を評価することまで波及適用を意図するものではない。

(付) 連絡事項等

- 1) 次回は 3月22日(月) 10:00~13:00 に開催する。
開催場所は追ってお知らせします。
- 2) 各委員には、本調査研究に有益な文献名について、なるべく早く事務局に連絡して頂くようお願いします。

以上

放射性核種の環境中挙動に関する基礎調査研究

委員会委員

- 委員長 石原 健彦 日本原子力産業会議
- 委員 松鶴 秀夫 日本原子力研究所 東海研究所
環境安全研究部 環境影響解析研究室長
- 委員 馬原 保典 日本原燃株式会社 環境整備部 建設課長
- 委員 鎌田 博 前放射線医学総合研究所特別研究官
- 委員 福井 正美 京都大学 原子炉実験所 教授
- 委員 安 俊弘 東海大学 工学部 原子力工学科 助教授

オブザーバー

- 福沢 義晴 PNC 安全部
- 浅野 智宏 PNC 安全部
- 成田 脩 PNC 東海事業所 安全管理部

放射性核種の環境中挙動に関する基礎調査

第2回検討委員会 議事録

1. 日時

平成5年3月22日(月) 10:00～12:00

2. 場所

三会堂ビル 9階 第1会議室

3. 出席者

石原委員長、安、鎌田、福井、松鶴、馬原 各委員

事務局：瀬川、鈴木、大内

オブザーバー：成田、福沢、浅野(以上動燃)

鹿志村(CRC)

4. 配布資料

資料2-1 放射性核種の環境挙動に関する基礎研究、文献、分類表

資料2-2 収集文献 GN, CF, SA, SU, NA

資料2-3 要旨

5. 議事

第1回委員会議事録については、今回の委員会開催案内状と共に配布済みであり、これについては特にコメントがなかったので、事務局より、配布資料に基づき調査状況の中間報告を行い検討した結果、下記事項を考慮して更に調査を進めることとした。

1) コロイドの形成・移行(5. 1. 2)についての取り扱い

(1) タイトルを「放射性核種の移行・挙動」といった一般的表現にかえて、その中にコロイド・キレートを含ませることとする。

(2) 高レベル廃棄物の場合は、深地層処分時の挙動としてコロイド等が取り

上げられている文献があるが、浅地中についての文献があれば調査する。

(3) コロイドやキレート等の詳細な挙動が不明であっても、モデルはそのような状況での処理の仕方がある。従来のモデルには、コロイド等が取り込まれていないが、取り入れたモデルを作成することは可能である。

(4) 第5章は「地下環境」なので、第4章よりも解析的な内容になると思われる。

(5) 放射性核種のコロイドやキレート生成は、水の流れと核種の吸着特性の観点で、一般的な挙動の説明をすると共に、スペシクな着眼点ということになる。

2) 選定すべき放射性核種

(1) 全般的な調査という観点で調査を行うので、細かい事故の想定などには触れず、挙動の特性を考慮した核種のグルーピングを行なって、検討を進める。

(2) 参考例としては、放射性廃棄物の浅地中処分における核種選定（線量評価上から11核種に限定）がある。

3) 安定同位元素の挙動に関する基礎調査の進め方

(1) E P R I, E P A等からの産業廃棄物、石炭灰等に関する文献の中で、有害金属等について報告されているので、モデルの現状を含めて、更に検討すると良い。ただし、今回の調査目的にそぐわない大量共存の元素に関する文献は除く。

(2) 第6章は削除し、この内容を第4章（必要に応じて第5章）に入れる等構成を再検討する（文献内容を基に、WGで整理する）。

(3) 「重金属」という表現は止める。

4) モデルの現状について

(1) 表層土壌中核種移行挙動（第4章）に関するものは、原則として人への被ばく線量評価まで行っているものに限る。

(2) 浅地中核種移行挙動（第5章）に関するものは、吸着現象等の特定な現象だけのモデルが大部分となろう。

5) 文献のアブストラクトの作成について

(1) 重要なもの、あるいは全体がつかめるものなどは、なるべく全訳する。

(2) 個別、あるいは専門的なものは、寧ろ和訳しないで、英文アブストラクトのまま添付すると良い。

6) その他

(1) 第3回検討委員会開催日時等：

日 時：5月11日（火）15：00～（終了後懇親会開催予定）

会 場：（株）ペスコ 新屋舎 会議室

港区 東新橋2-5-12 第一粕谷ビル 7階

Tel. 03-3435-9588, Fax. 03-3435-9586（変更なし）

(2) WGは、第3回検討委員会開催までに、3回程度開催する。

WGメンバー：

鎌田主査

藤川、岡林、大内、鹿志村 各委員

事務局 瀬川、鈴木

放射性核種の環境中挙動に関する基礎調査

第3回検討委員会 議事録

1. 日時

平成5年5月17日(月) 15:00～17:30

2. 場所

(株)ペスコ本社 会議室

3. 出席者

石原委員長、鎌田、福井、馬原 各委員

事務局：瀬川、鈴木、大内

オブザーバー：浅野(動燃)、鹿志村(CRC)

4. 配布資料

ワーキンググループ作成の報告書(案)原稿

5. 議事

(1) ワーキンググループ経過報告

鎌田ワーキンググループ委員長より、2回の会合(4/19, 5/11)を持ち、本日配布資料の通り作成した旨報告があった。

作成にあたっての特記事項は次の通りである。

- ① 「モデルの現状」を3章および4章からはずして、5章にとりまとめる。
- ② 3章の「浅地中から表層への移行」のセクションは、改めて設けることを止める。

(2) 報告書原稿の検討

- ① 報告書の1. 目的、2. 研究内容概要について、事務局から、3章及び4章については各執筆者から説明の後審議を行い、必要な修正を行うこととした。
- ② 6. 今後の課題については、各章のまとめをベースとして委員長及び事務局が

動燃と相談してとりまとめる。

- ③ 収集文献リスト及び主要文献抄訳は付録として巻末に収録する。なお、各章本文での引用文献は、各章毎の末尾に乗せる。

(3) その他

本委員会は今回をもって終了する。

本日の審議に基づく修正原稿は5月24日（月）までに仕上げ、5月25日～5月28日に委員長と事務局で最終的に取りまとめる。各委員は、コメントがあれば、5月21日（金）までに事務局に書面を提出する。

[以 上]

添付資料 2 収集文献リスト

収集文献リスト

1. 収集文献範囲

放射性核種の環境中挙動に関する基礎調査研究に当たって、収集した文献の範囲は、1988年以降の文献を中心に、調査研究に参加した委員から推薦された資料、および、CRCが既に所有していた文献とした。即ち、

- ① 日本原子力学会誌：1988年No. 1～1993年No. 2
- ② 保健物理：1988年No. 1～1992年No. 3
- ③ J. Nucl. Sci. Technol.：1988年No. 1～1993年No. 1
- ④ Health Physics：1988年1月～1992年12月
- ⑤ 基礎調査委員会委員から推薦を受けた文献
- ⑥ CRCが既に所有していた文献

2. 収集文献の分類の考え方

収集した文献は、まず、次の如く本基礎調査研究の主たる課題に3大分類した。

- A. 表層土壌における放射性核種の長期蓄積効果等を考慮した物理・化学・生物学的挙動に係る基礎調査
- B. 浅地中における放射性核種の浸透等長期蓄積効果等を考慮した物理・化学・生物学的挙動に係る基礎調査
- C. モデルの現状

さらに、大分類の内容を細分化し次表のように目次と対応するようにA-1, A-2等の記号を付した。

目 次 分 類	分類対応記号
3 表層土壌における放射性核種の長期蓄積効果等を考慮した物理・化学・生物学的挙動に係る基礎調査	A
3.1 表層土壌への沈着	A-1
3.2 植物への取り込み	A-2
3.3 空気中への再浮遊と表層土壌への沈着	A-3
3.4 表層土壌から浅地中への移行	A-4
4. 浅地中における放射性核種の浸透等長期蓄積効果等を考慮した物理・化学・生物学的挙動に係る基礎調査	B
4.1 土壌への収着特性	B-1
4.2 核種の移行挙動	B-2
5. モデルの現状	C
5.1 線量評価モデル	C-1
5.2 物理モデル	C-2

3. 上記表による分類を行うと共に、その内容に関連して、次のように分類した。即ち、全般にわたる記述内容をもつもの、あるいは過去の文献をまとめたものをGNとした。ICRP Publ.29. では、環境中の放射性核種移行モデルについて、濃縮係数法（CF法）とシステム解析法（SA法）を提示しており、この分類に準じ、表層土壌における挙動に関する文献をCFとSAに分けた。さらに、浅地中における挙動に関する文献はSUとした。参考として、安定同位元素の挙動に関する文献はNAとした。即ち、

GN：総論またはReview

CF：濃縮係数法, Concentration Factor法

SA：システム解析法, System Analysis法

SU：浅地中における挙動

NA：安定同位元素

4. 収集文献を、上記2および3に従い表記したもの、および各分類別の文献を、以下に示す。

放射性核種の環境中挙動に関する調査研究 収集文献 分類表

	GN	CF	SA	SU	NA
A-1	2, 3, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 17, 19, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 29, 30, 31, 32	2, 3, 11, 17, 23, 24, 25, 30, 31, 34, 44	5, 6, 9, 10, 11		
A-2	2, 3, 4, 13, 20, 27, 28	2, 3, 4, 5, 6, 7, 10, 11, 12, 14, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 22, 25, 26, 27, 28, 29, 31, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40, 41, 42, 43, 44, 45, 46	2, 5, 6, 7, 8, 9, 11, 12	88, 112	20
A-3	2, 5	1, 9, 11, 13, 25, 31, 32, 33, 44	2, 9, 11		
A-4	2, 13, 16	37	2, 9, 11	9, 13, 14, 15, 16, 17, 19, 23, 31, 37, 41, 45, 49, 52, 59, 74, 81, 84, 99	
B-1	2, 3, 21	2, 16, 29, 37		1, 5, 6, 7, 9, 10, 11, 13, 15, 17, 19, 23, 24, 31, 33, 35, 36, 37, 42, 43, 44, 45, 47, 48, 50, 51, 59, 63, 64, 69, 71, 72, 79, 81, 82, 84, 85, 87, 88, 92, 93, 95, 97, 98, 100, 101, 102, 104, 105, 108, 109, 111, 112, 113, 114, 115, 116, 117, 118, 122, 125, 126, 127, 128, 130	15
B-2	2, 6, 7, 16, 18			1, 4, 8, 12, 14, 18, 20, 21, 25, 27, 28, 29, 30, 32, 34, 38, 39, 42, 43, 49, 58, 61, 62, 63, 64, 65, 66, 67, 68, 69, 73, 76, 78, 86, 87, 89, 90, 91, 94, 96, 101, 102, 103, 107, 109, 110, 112, 113, 119, 120, 121, 123, 124, 129, 130, 131, 132	4, 12, 16, 19
C-1	1, 3, 4, 5	1, 3, 8, 9, 11, 13, 17, 24, 31, 32, 33, 34, 36, 44, 45	1, 2, 3, 8, 9, 11, 12	9, 40, 41, 83, 99, 112	
C-2	2	8		1, 2, 3, 4, 9, 20, 22, 26, 29, 32, 40, 42, 43, 44, 46, 53, 54, 55, 56, 57, 60, 65, 66, 70, 71, 75, 77, 80, 83, 89, 91, 96, 99, 101, 102, 110, 112, 124, 125, 126, 130, 131	1, 2, 3, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 13, 14, 17, 18

収集文献 総論 (GN)

①総論

- 1) ICRP Publ.29 : "放射性核種の環境への放出：人に対する線量の算定", 日本アイソトープ協会・邦訳版, (1986)
- 2) 佐伯誠道 (編) : "環境放射能 — 挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価 — ", ソフトサイエンス社, (1984)
- 3) 佐伯誠道, ほか : "公衆の線量評価に用いる環境パラメータ", 日本原子力学会誌 Vol.34 NO.5, PP382-407, (1992)

② review

- 4) 内田滋夫, ほか : "土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル", 日本原子力学会誌 Vol.26 No.11, pp935-941, (1984)

③ resuspension

- 5) Garland J.A., et. al. : "Modelling of Resuspension, Seasonality and Losses during Food Processing — First Report of the VAMP Terrestrial Working Group", IAEA-TECDOC-647, pp9-33, (1992)

④化学性

- 6) IAEA : "Geochemistry of Long Lived Transuranic Actinides and Fission Products", IAEA-TECDOC-637, (1992)

- 7) KIM, J.I. : "Chemical Behaviour of Transuranic Elements in the Natural Environment", The Third International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research — Global Environment and Nuclear Energy — , pp22-35

⑤その他

- 8) Amano, H. et. al. : "A Field Survey of Environmental Tritium in Areas Adjacent to ORNL Solid-waste Storage Areas", ORNL-TM-10438, (1987)
- 9) Bunzl K., et. al. : "Cumulative Deposition of ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from Global Fallout in Soils from Forest, Grassland and Arable land in Bavaria (FRG)", J. Environ. Radioactivity., Vol.8, pp.1-14, (1988)
- 10) G.T.シーボーク : "人工超ウラン元素", (1965)
- 11) Muramatsu Y., et. al. : "IODINE-129 and IODINE-127 in Environmental samples collected from Tokaimura / Ibaraki Japan.", The Science of the Total Environment., Vol.48, pp.33-43, (1986)
- 12) Nyham, J.W., et. al. : "Distribution of Plutonium and Americium Beneath a 33-yr-old Liquid Waste Disposal Site", J. Environ. Qual., Vol.14, pp.501-505, (1985)
- 13) Polar, E., et. al. : "Differences in the Availabilities of Cesium-134, 137 and Ruthenium-106 from a Chernobyl-contaminated Soil to a Water Plant, Duckweed, and to the Terrestrial Plants, Bean and Lettuce", J. Environ. Radioactivity., Vol.13, pp.251-259, (1991)
- 14) Price, K.R. : "The Depth Distribution of ^{90}Sr , ^{137}Cs , and $^{239,240}\text{Pu}$ in Soil Profile Samples", Radiochim. Acta, Vol.54, pp.145-147, (1991)
- 15) Roberts, E., et. al. : "Iodine-129 in the Environment of a Nuclear Fuel Reprocessing Plant :IV. ^{129}I and ^{127}I in Undisturbed Surface Soils", J. Environ. Radioactivity, Vol.9, pp.17-29
- 16) Samiullah, Y. : "Prediction of the Environmental Fate of Chemicals", Elsevier Applied Science, London and New York, (1990)

- 17) Thiry, Y., et. al. : "Behavior of Radio Cesium in Forest Multilayered Soils",
J. Environ. Radioactivity., Vol.18, pp.247-257, (1993)
- 18) Yaron, B., et. al. : "Pollutants in Porous Media", Springer-Verlag, (1984)
- 19) 井上, ほか : " 環境中のトリチウムの測定調査", 第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (平成3年度), (1992)
- 20) 岩倉, ほか : " 環境中の¹⁴C濃度調査", 放射能調査研究報告書 (昭和63年度), NIRS-R-18, (1989)
- 21) 鎌田, ほか : " 陸圏試料の調査研究—テクネチウムに関する調査研究—", 放射能調査研究報告書 (昭和63年度), NIRS-R-18, (1989)
- 22) 環境放射能調査研究成果論文抄録集 第1回(1959)~第33回(1990)
- 23) 環境放射能調査研究成果論文抄録集 第30回(1987)~第34回(1991)
- 24) 国連科学委員会 (UNSCEAR) 1982 年報告
- 25) 鈴木, ほか : " 核燃料サイクル工学", (1981)
- 26) 動燃・東海 : " 日本保健物理学会 第27回研究発表会要旨集", (1992)
- 27) 徳山, ほか : " 福井県敦賀地区における陸上試料中のトリチウム濃度", 第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (平成3年度), (1992)
- 28) 成富 : " 環境へ放出されてからの化学形", 第7回放送研環境セミナー「最近の環境における放射性ヨウ素の諸問題」, (1979)
- 29) 三宅 : " 大気中の放射性塵とその降下", 檜山編「放射線影響の研究」, (1971)
- 30) 村松, ほか : " 環境中でのヨウ素の分布と挙動について", 放射線科学, Vol.31, pp.199-203, (1988)
- 31) 森澤, ほか : " 環境中Pu及びAmの濃度水準に関する調査", 第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (平成3年度), (1992)
- 32) 渡部, ほか : " テクネチウムのラジオエコロジー", 保健物理, Vol.20, pp.227-240, (1985)

(参考)

- 33) 国際諮問委員会報告 : "健康・環境影響のアセスメントと防護対策の評価 : 国際チェルノブイル計画技術報告書"

収集文献 CF法

- 1) Anspaugh, L.R., et al. : "Resuspension and Redistribution of Plutonium in Soil", Health Physics, Vol.29, pp.571-582, (1975)
- 2) BAES III, C.F., et al. : "A Review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Released Radionuclides through Agriculture", ORNL-5786, (1984)
- 3) Bergstrom U., et al. : "An Analysis of Selected Parameters for the BIOPATH-Program", KBS/TR 83-28, Studsvik Energiteknik AB, (1983)
- 4) Bunzl K., et al. : "Seasonal Variation of Soil-to Plant Transfer of K and Fallout 134 , 137 Cs in Peatland Vegetation", Health Physics, Vol.57, No.4, pp.593-600, (1989)
- 5) CEC : "Methodology for Evaluating the Radiological Consequences of Radioactive Effluents Released in Normal Operations", Commission of the European Communities, (1979)
- 6) Conshin O.V. : "Transfer of 137 Cs from Soil to Grass — Analysis of Possible Sources of Uncertainty", Health Physics, Vol.63, No.3, pp.307-315, (1992)
- 7) Dehut J.P., et al. : "Bioavailability of Tc Incorporated in Plant Material", Health Physics, Vol.57, No.2, pp.263-267, (1989)
- 8) Dorp F.V., et al. : "A New Approach for Soil-Plant Transfer Calculations", Proc. IAEA Symp. on Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries, Vienna, Vol. II, IAEA-SM-237/13, pp.399-406, (1979)
- 9) Garland, J.A. : "Resuspension of Particulate Material from Grass", Experimental Programme 1979-1980, HMSO, London, AERE-R 10106, (1982)
- 10) Handl J. : "Transfer from Soil to Plants of 106 Ru as Nitrosyl and as Chloride", Health Physics, Vol.54, No.1, pp.83-87, (1988)
- 11) IAEA : "Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases", IAEA Safety Series No.57, (1982)

- 12) Linsalata P., et. al. : "An Assessment of Soil-to-Plant Concentration Ratios for Some Natural Analogues of the Transuranic Elements ", Health Physics, Vol. 56, No.1, pp.33-46, (1989)
- 13) Linsley, G.S. : "Resuspension of the Transuranium Elements - A Review of Existing Data ", NRPB-75, HMSO, London, (1978)
- 14) Livens F.R., et. al. : " Distribution of Radiocesium in the Soil-Plant Systems of Upland Areas of Europe ", Health Physics, Vol.60, No.4, pp.539-545, (1991)
- 15) Mascanzoni D. : "Predicting the Radionuclide Fraction Transferred to Consumption through Grain Foods ", Health Physics, Vol.57, No.4, pp.601-605, (1989)
- 16) Masson M. : "Synopsis of French Experimental and in situ Research on the Terrestrial and Marine Behavior of Tc", Health Physics, Vol.57, No.2, pp269-279, (1989)
- 17) Moore R.E., et. al. : "AIRDOSE-EPA: A Computerized Methodology for Estimating Enviromental Concentrations and Dose to Man from Airborne Releases of Radionuclides", ORNL-5532, (1979)
- 18) Muramatsu Y., et. al. : "Influence of Chemical Form on Iodine Uptake by Plant", J. Radiat. Res., Vol.24, pp.326-338, (1983)
- 19) NCRP : "Radiological Assessment ; Predicting tne Transport, Bioaccumulation, and Uptake by Man of Radionuclides Released to the Environment", NCRP Report, NO.76, pp.75, (1984)
- 20) Ng Y.C. : "A Review of Transfer Factors for Assessing the Dose from Radionuclides in Agricultural Products", Nuclear Safety Vol.23 No.1, pp57-71, (1982)
- 21) Ng Y.C., et. al. : "Soil-to-plant Concentration Factors for Radiological Assessments", NCREG/CR-2975, (1982)
- 22) Papastefanou C., et. al. : "Cesium-137 in Soils from Chernobyl Fallout", Health Physics, Vol.55, No.6, pp985-987, (1988)
- 23) Pinder III J.E., et. al. : "The Interrelationships among Plant Biomass, Plant

- Surface Area and the Interception of Particulate Deposition by Grasses ", Health Physics, Vol.55, No.1, pp.51-58, (1988)
- 24) Pinder III J.E., et. al. : "The Accuracy of Some Simple Models for Predicting Particulate Interception and Retention in Agricultural Systems", Health Physics, Vol.56, No.4, pp.441-450, (1989)
- 25) Pinder III J.E., et. al. : "Atmospheric Deposition, Resuspention, and Root Uptake of Pu in Corn and Other Grain-Producing Agroecosystems near a Nuclear Fuel Facility ", Health Physics, Vol.59, No.6, pp.853-867, (1990)
- 26) Pimple M., et. al. : "Soil-to-plant Transfer Studies of Neptunium, Plutonium, Americium and Curium", IVth International Symposium of Radioecology of Cadarache on the Impact of Nuclear Origin Accident on Environment, Cadarache, France, (1988)
- 27) Schuller P., et. al. : "Dependence of the ^{137}Cs Soil-to-Plant Transfer Factor on Soil Parameters ", Health Physics, Vol.55, No.3, pp.575-577, (1988)
- 28) Shawki A., et. al. : "Plant/Soil Concentration Ratios of ^{226}Ra for Contrasting Sites around an Active U Mine-Mill ", Health Physics, Vol.55, No. 6, pp.903-910, (1988)
- 29) Sheppard S.C., et. al. : "Impact of Correlations on Stochastic Estimates of Soil Contamination and Plant Uptake ", Health Physics, Vol.57, No.4, pp.653-657, (1989)
- 30) Simmonds J.R., et. al. : "Parameters for Modelling the Interception and Retention of Deposits from Atmosphere by Grain and Leafy Vegetables", Health Physics Vol.43, No.5, pp679-691, (1982)
- 31) Togawa, O. : "Computer code TERFOC-N to calculate doses to public using terrestrial foodchain models improved and extended for long-lived nuclides", J. Nuclear Science and Technology, 27[4], pp.360-374, (1990)
- 32) United States Atomic Energy Commission : " Proposed Final, Environment Statement, Liquid Metal Fast Breeder Reactor Programme", USAEC, Washington, D.C., Part II G-19, WASH-1535, (1974)

- 33) United States Atomic Energy Commission : " Peactor Safety Study - An Assessment of Accident Risks in US Commercial Nuclear Power Plants - Appendics IV", USAEC, Washington,D.C., E-13, WAHE-1400, (1975)
- 34) U.S.NRC: U.S.NRC Regulatory Guide 1.109, (1977)
- 35) Vandecasteele C.M., et. al. : "Long-Term Availability of Tc Deposited on Soil after Accidental Release", Health Physics, Vol.57, No.2, pp247-254, (1989)
- 36) Zach R., et. al. : "Food-Chain and Dose Model, CALDOS, for Assessing Canada's Nuclear Fuel Waste Management Concept ", Health Physics, Vol.60, No.5, pp.643-656, (1991)
- 37) 内田滋夫 : "放射性ヨウ素 (I -129) の農作物への移行に関する研究",京都大学博士学位論文, (1987)
- 38) 内田滋夫, ほか : "移行係数 (土壌 - 農作物) の変動について",保健物理, Vol.22, pp511-522, (1987)
- 39) 内田滋夫, ほか : "放射性核種の農作物への移行 — 作物間差および核種間差 — ",保健物理, Vol.23, pp35-39, (1988)
- 40) 内田, ほか : "放射性ヨウ素の土壌から水稻への移行に関する基礎的研究", RADIOISOTOPES, Vol.38, pp.57-62, (1989)
- 41) 原子力環境整備センター : "土壌から農作物への放射性物質の移行係数", 環境パラメータ・シリーズ 1, RWMC-88-P-11, (1988)
- 42) 駒村, ほか : "土壌及び米麦子実の放射能調査 (平成2年度)",第33回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (平成2年度), (1991)
- 43) 高城, ほか : "水田土壌から米への安定ヨウ素の移行について",保健物理, Vol.20, pp.251-257, (1985)
- 44) 外川織彦 : "原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種による公衆の被曝線量を算出するための計算コード TERFOC-N ", JAERI-M 89-145, (1989)
- 45) 放射線医学総合研究所 : "放射性物質の農作物への移行",放医研環境セミナーシリーズ No.13, NIRS-M-65, (1987)
- 46) 放射線医学総合研究所 : "特別研究「環境放射線の被曝評価に関する調査研究」(昭和58年~62年度)最終報告書", NIRS-R-17, (1989)

收集文献 SA法

- 1) Aarkrog A. : "Modelling of Resuspension, Seasonality and Losses during Food Processing — First Report of the VAMP Terrestrial Working Group", IAEA-TECDOC-647, pp61-96. (1992)
- 2) BIOMOVs : "Irrigation with Contaminated Groundwater", BIOMOVs Technical Report 6, (1989)
- 3) BIOMOVs : "Transport of Contaminated Groundwater to a River", BIOMOVs Technical Report 10, (1990)
- 4) BIOMOVs : "Multiple model testing using Chernobyl fallout data of I-131 in forage and milk and Cs-137 in forage, milk, beef and grain", BIOMOVs Technical Report 13, (1991)
- 5) Boeri G.C. : "Environmental Processes and Parameters Influencing the Consequences of An Accidental Release of Radioactivity — Weather and Season —", Proceedings of an NEA Workshop on the Influence of Seasonal Conditions on the Radiological Consequences of a Nuclear Accident, PARIS 21-23 September 1988, pp34-108, NEA/OECD, (1989)
- 6) Monte L. : "An Examination of the Variability of Some Environmental Transfer Parameters Evaluated Using the Contamination Produced by the Chernobyl Accident in Various Italian Sites", Proc. BIOMOVs on the Validity of Environmental Transfer Models, Sympo. Oct.8-10, 1990 Stockholm, pp29-40, (1990)
- 7) Muller H., et. al. : "The Role of Seasonal, Climatic and Meteorological Conditions in Modifying Nuclear Accident Consequences", Proceedings of an NEA Workshop on the Influence of Seasonal Conditions on the Radiological Consequences of a Nuclear Accident, PARIS 21-23 September 1988, pp139-147, NEA/OECD, (1989)

- 8) Paretzke H.G., et. al. : "The Usefulness of Time-Dependent Reactor Accident Consequence Modelling for Emergency Response Planning", Proceedings of an NEA Workshop on the Influence of Seasonal Conditions on the Radiological Consequences of a Nuclear Accident, PARIS 21-23 September 1988, pp171-179, NEA/OECD, (1989)
- 9) Prohl G., et. al. : "Intercomparison of the Terrestrial Food Chain Models FOOD-MARC and ECOSYS", GSF-Bericht 18/86, (1986)
- 10) Prohl G., et. al. : "The Dynamic Radioecological Model ECOSYS — A Tool for the Management of Nuclear Accidents' Consequences", IV International Sympo. of Radioecology "The Impact of Nuclear Origin Accidents on Environment", Cadarache, March 14-19, (1988)
- 11) Whicker F.W., et. al. : "PATHWAY: A Dynamic Food-chain Model to Predict Radionuclide Ingestion After Fallout Deposition", HEALTH Phys. 52, pp.717-737, (1987)
- 12) 森澤眞輔, ほか : "フォールトアウト Cs-137 の水田環境内動態と米への蓄積, ファジィ・システムモデルによる評価の試み ", 日本原子力学会誌, Vol.32, No.3, pp.302-315, (1990)

収集文献 浅地中 (SU)

- 1) Ahn J. : "Mass Transfer and Transport of Radionuclides in Fractured Porous Rock", (1988)
- 2) Ahn J., et. al. : "Radioactive Transport Within a Low-Level Radioactive Waste Repository with a Cylindrical Nuclide-Path Model", Waste Management Vol.10, pp29-40, (1990)
- 3) Ahn J., et. al. : "Sensitivity Analysis for a High-Level Radioactive Waste Repository with the Bounding Fracture-Transport Model", Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle Vol.14(4), pp257-273, (1990)
- 4) Ahn J., et. al. : "Analysis of Radionuclide Transport through Fracture Networks by Percolation Theory ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.28, No.5, pp.433-446, (1991)
- 5) Akiba K., et. al. : "Distribution Coefficient of Cesium and Cation Exchange Capacity of Minerals and Rocks ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.26, No.12, pp.1130-1135, (1989)
- 6) Akiba K., et. al. : "Distribution Coefficient of Strontium on Variety of Minerals and Rocks ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.27, No.3, pp.275-279, (1990)
- 7) Anderson K., et. al. : "Sorptions Behaviour of Long-lived Radionuclides in Igneous Rock", Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle", IAEA-SM-257/20, pp.111-131, (1982)
- 8) Arnalds O., et. al. : "Cesium-137 in Montana Soils ", Health Physics, Vol.57, No.6, pp.955-958, (1989)
- 9) BIOMOV5 : "Transport of Radionuclides to Root-Zone Soil from Contaminated Groundwater", BIOMOV5 Technical Report 9, (1990)

- 10) Bors, J., et. al. : "Studies on the Role of Natural and Anthropogenic Organic Substances in the Mobility of Radionuclide in Soils", Proc. of the Intern. Conf. on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere, R. Oldenbourg Verlag, pp.201-206, (1987)
- 11) Bors, J., et. al. : "The Contribution of Microbial Biomass to the Adsorption of Radioiodine in Soils", J. Environ. radioactivity, Vol.15, pp.35-49, (1992)
- 12) Champ, D.R., et. al. : "Particulate Transport of Cesium in Groundwater", Cand. Nucl. Soc., 2nd. Ann. Conf., pp.66-67, (1981)
- 13) Choppin, G.R. : "Humics and Radionuclide Migration", Radiochim. Acta., Vol.44/45, pp.23-28, (1988)
- 14) Choppin, G.R. : "The Role of Natural Organics in Radionuclide Migration in Natural Aquifer Systems", Radiochim. Acta., Vol.58/59, pp.113-120, (1992)
- 15) Cleveland, J.M. : "The Chemistry of Plutonium", Amer. Nucl. Soc., La Grange Park, Illinois, (1970)
- 16) Cline, J.F., et. al. : "Radioactive Strontium and Cesium in Cultivated and Abandoned Field Plots", Health Physics, Vol.33, pp.317-324, (1972)
- 17) Couture, R.A., et. al. : "Sorptions of Anions of Iodine by Iron Oxides and Kaoline", Nuclear and Chemical Waste Management, Vol.4, pp.301-306, (1983)
- 18) Czysciwski, K.S., et. al. : "Evaluation of Isotope Migration-Land Burial", NUREG/CR-1964, (1981)
- 19) Eichholz, G.G., et. al. : "Role of Particulates in Subsurface Migration of Wastes", In Environmental Migration of Long Lived Radionuclides, IAEA, Vienna, pp.541-555(831p), (1982)
- 20) Elert M., et. al. : "Radionuclide Migration the Unsaturated Zone with a Variable Hydrology", Proc. BIOMOVs On the Validity of Environmental Transfer Models, Sympo.Oct.8-10,1990, Stockholm, pp223-233, (1990)
- 21) Evans, D.W., et. al. : "Reversible ion-exchange Fixation of Cesium-137 Leading to Mobilization from Reservoir Sediments", Geochimica Cosmochimica Acta, Vol. 47, pp.1041-1049, (1983)

- 22) Fujikawa, Y., et. al. : "Adsorptive Solute Transport in Fractured Rock ; Analytical Solutions for Delta-type Source Conditions", J. Contam. Hydrol., Vol.6, pp.85-102, (1990)
- 23) Fujikawa, Y., et. al. : "Analysis of Radioactive Cesium and Cobalt Adsorption to Rocks Using the Two-site Kinetic Model Equations", J. Contam. Hydrol., Vol.8, pp.43-69, (1991a)
- 24) Fujikawa, Y., et. al. : "Variations in Adsorption Mechanisms of Radioactive Cobalt and Cesium in Rocks", J. Contam. Hydrol., Vol.8, pp.177-195, (1991b)
- 25) Fukui, M., et. al. : "Fundamental Study on Longitudinal Dispersion of Tritiated Water through Saturated Porous Media", Health Phys., Vol.28, pp.717-725, (1975)
- 26) Fukui, M., et. al. : "Evaluation of a Combined Sorption Model for Describing Cesium Transport in a Soil", Health Phys., Vol.35, pp.555-562, (1978)
- 27) Fukui, M. : " R n -222 Concentrations and Variations in Unconfined Groundwater", J. Hydrol., Vol.79, pp.83-94, (1985)
- 28) Fukui, M. : "Desorption Kinetics and Mobility of Some Radionuclides in Sediments", Health Phys., Vol.59, pp.879-889, (1990)
- 29) Fukui, M. : "Modeling the Behavior of Tritiated Water Vapor in a Research React or Containment Building", Health Phys., Vol.62, pp.144-154, (1992)
- 30) Fuller, W.H. : Movement of Selected Metals, Asbestos and Cyanide in Soil", Applications to Waste Disposal Problems, EPA-600/2-77-020, (1977)
- 31) Grenthe, I. : "Thermodynamics in Migration Chemistry", Radiochim. Acta, Vol.52/53, pp.425-432, (1991)
- 32) Hoh Y.C., et. al. : "Diffusion of Iodide in Compacted Clays ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.29, No.2, pp.131-139, (1992)
- 33) Hursthouse A.S., et. al. : "Transfer of Sellafield-derived ^{237}Np to and within the Terrestrial Environment", J. Environ. Radioactivity, Vol.14, pp.147-174, (1991)

- 34) Idemitsu K., et. al. : "Migration of Cesium, Strontium and Cobalt in Water-Saturated Inada Granite ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.29, No.5, pp.454-460, (1992)
- 35) Jardine, P.M., et. al. : "Mechanisms of Dissolved Organic Carbon Adsorption on Soil", Soil. Sci. Soc. Am. J., Vol.53, pp.1378-1385, (1989)
- 36) Karickhoff, S.W. : "Semi-empirical Estimation of Sorption of Hydrophobic Pollutants on Soils and Sediments", Chemosphere, Vol.10, pp.833-846, (1981)
- 37) Kats, J.J., et. al. : "The Chemistry of the Actinide Elements", 2nd edn., Chapman and Hall, London, (1986)
- 38) Kim, J.I. : "Geochemistry of Actinides and Fission Products in Natural Aquifer Systems", CEC Project MIRAGE, Second Summary Progress Report, EUR 12229 EN, Brussels, (1989)
- 39) Kirby, L.J., et. al. : "Radionuclide Distributions and Migration Mechanisms at Shallow Land Burial Sites", NUREG/CR-4670, (1991)
- 40) Kocher D.C. : "A Dynamic Model of the Global Iodine Cycle and Estimation of dose to the World Population from Release of Iodine-129 to the Environment", Environ. Int., Vol.5, pp.15-31, (1981)
- 41) Kocher D.C. : "A Validation Test of a Model for Long-Term Retention of ^{129}I in Surface Soils ", Health Physics, Vol.60, No.4, pp.523-531, (1991)
- 42) Konoplev A.V., et. al. : "Behaviour of Long-lived Chernobyl Radionuclides in a Soil-Water System, Analyst Vol.117, pp1041-1047, (1992)
- 43) Konshin O.V. : "Applicability of the Convection-Diffusion Mechanism for Modeling Migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the Soil", Health Physics 63, No.3, pp291-300, (1992)
- 44) Konshin O.V. : "Mathematical Model of ^{137}Cs Migration in Soil: Analysis of observation Following the Chernobyl Accident", Health Physics, Vol.63, No.3, pp.301-306, (1992)
- 45) Koons, R.D., et. al. : "Association of Trace Elements with Iron Oxides during Rock Weathering", Soil. Sci. Soc. Am. J., Vol.44, pp.155-159, (1980)

- 46) Lee J.O., et. al. : "A Study on the Migration Characteristics of Cs-137 in a Packed Column ", J. Korean Nuclear Society, Vol.22, No.1, pp.20-28, (1990)
- 47) Leenheer, J.A. : "Study of Sorption of Complex Organic Solute Mixtures on Sediments by Dissolved Organic Carbon Fractionation Analysis", R.A. Baker(ed.) Contaminants and Sediments, Vol.2, Ann Harbor Science, Ann Arbor, MI., (1980)
- 48) Lieser, K.H., et. al. : "Sorption of Trace Elements or Radionuclides in Natural Systems Containing Groundwater and Sediments", Radiochim. Acta., Vol.40, pp.33-37, (1986)
- 49) Lieser, K.H., et. al. : "Colloids in Groundwater and Their Influence on Migration of Trace Elements and Radionuclides", Radiochim. Acta., Vol.49, pp.83-100, (1990)
- 50) Livens, F.R., et. al. : "Chemical Association of Artificial Radionuclides in Cumbrian Soils", J. Environ. Radioactivity, Vol.7, pp.75-86, (1988)
- 51) Livens, F.R., et. al. : "Plutonium and Americium in Soil Organic Matter", J. Environ. Radioactivity, Vol.13, pp.323-339, (1991)
- 52) Louzao, M.J., et. al. : "Study of Buffering Systems in Soils from Galicia", N.W. Spain. Water, Air, and Soil Pollution, Vol.49, pp.17-33, (1990)
- 53) Mahara Y., et. al. : "Residual Plutonium Migration in Soil of Nagasaki" , J.G.R. Vol.89, No.B9, pp7931-7936, (1984)
- 54) Mahara Y., et. al. : "Mobile Pu in Reservoir Sediments of Nagasaki, Japan", Health Physics Vol.54, No.1, pp107-111, (1988)
- 55) Mahara Y., et. al. : "Mobile and Immobile Plutonium in a Groundwater Environment", Water Research Vol.23, No.1, pp43-50, (1989)
- 56) Mahara Y. : "Storage and Migration of Fallout ^{90}Sr and ^{137}Cs for over 40 Years in the Surface Soil of Nagasaki", J. Environ. Quality (in press)
- 57) Matsuzuru H., et. al. : "Development of Safety Assessment Methodology for Shallow-Land Disposal of Low-Level Radioactive Waste", Low and Intermediate Level Radioactive Waste Management Vol.1, pp515-520, (1989)
- 58) Morse, J.W., et. al. : "Laboratory Studies of Plutonium in Marine Systems", Mar. Chem., Vol.20, pp.73-89, (1986)

- 59) Mudge, S., et. al. : "Laboratory Studies of the Chemical Behaviour of Plutonium Associated with Contaminated Estuarine Sediments", J. Environ. Radioactivity, Vol.8, pp.217-237, (1988)
- 60) Neretnieks, I. : "Diffusion in the Rock Matrix ; An Important Factor in Radionuclide Retardation", J. Geophys. Res. Vol.85, pp.4379-4397, (1980)
- 61) Nisbet, A.F., et. al. : "Association of Radionuclides with Different Molecular Size Fractions in Soil Solution : Implications for Plant Uptake", J. Environ. Radioactivity, Vol.18, pp.71-84, (1993)
- 62) Ogawa H. : "Migration of ^{137}Cs Adsorbed on Fine Soil Particles through Soil Layer — Filtration by Unsaturated Sandy Soil Layer ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.25, No.3, pp.283-288, (1988)
- 63) Ogawa H. : "Migration of ^{137}Cs Adsorbed on Fine Soil Particles through Soil Layer, (II) — Re-Suspension of Fine Soil Particles Filtrated by Unsaturated Soil Layer ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.25, No.7, pp.594-599, (1988)
- 64) Ogawa H. : "Kinetic Study on Migration of Non-Cationic Species of ^{60}Co through Sandy Soil Layer ", J. NUCL. SCI. Technol., Vol.26, No.5, pp.530-535, (1989)
- 65) Ogawa H., et. al. : "Evaluation of Migration of Cesium-137 Adsorbed on Fine Soil Particles through Natural Aerated Soil Layer ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.28, No.3, pp.248-254, (1991)
- 66) Ohnuki T., et. al. : "Development of Migration Prediction System (MIGSTEM) for Cationic Species of Radionuclides through Soil Layers ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.26, No.8, pp.795-804, (1989)
- 67) Ohnuki T., et. al. : "Migration of Radionuclides Controlled by Several Different Migration Mechanisms through a Sandy Soil Layer ", Health Physics, Vol.56, No.1, pp.47-53, (1989)
- 68) Ohnuki T. : "Migration Characteristics of Cobalt-60 through Sandy Soil in High pH Solution ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.29, No.10, pp.996-1003, (1992)

- 69) Ohtsuka Y., et. al. : "Migration Behavior of Radionuclides (^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs) in Aerated Sandy Soil Layer — Difference of Migration Behavior and Desorption Process for Radionuclides ", J. NUCL. SCI. TECHNOL., Vol.27, No.8, pp.750-755, (1990)
- 70) Oster C.A. : "Review of Ground-Water Flow and Transport Models in the Unsaturated Zone", NUREG/CR-2917, (1982)
- 71) Park C.K., et. al. : "Computer Simulation Study of Transient Diffusion of Cesium through Granite with Unsteady-State Diffusion Model", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.29, No.8, pp786-793, (1992)
- 72) Park C.K., et. al. : "Sorption and Desorption Behavior of ^{60}Co , ^{85}Sr , and ^{137}Cs in a Porous Tuff — Mechanism and Kinetics", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.29, No.12, pp1184-1193, (1992)
- 73) Pignolet, L., et. al. : "Microbial Action on Fixation in a Marine Sediment", Application of Distribution Coefficients to Radiological Assessment Models, Elsevier Applied Sci. Publishers, pp.361-370, (1986)
- 74) Price, K.R., et. al. : "The Depth Distribution of Sr-90, Cs-137, and Pu-239, -240 in Soil Profile Samples", Radiochim. Acta, Vol.54, pp.145-147, (1991)
- 75) Rao, P.S.C., et. al. : "Development and Verification of Simulation Models for Describing Pesticide Dynamics in Soils", Ecol. Modelling, Vol.16, pp.67-75, (1982)
- 76) Rifai M.N.E., et. al. : "Dispersion Phenomena in Laminar flow through Porous Media", Univ. of California, Sani. Engng. Res. Lab., Rept.3, (1956)
- 77) Robertson D.E., et. al. : "Demonstration of Performance Modeling of a Low-Level Waste Shallow-Land Burial Site—A Comparison of Predictive Radionuclide Transport Modeling Versus Field Observations at the "A" Disposal Area, Chalk River Nuclear Laboratories ", NUREG/CR-4879, PNL-6175, Vol.2, (1989)
- 78) Scheidigger, A.E. : "The Physics of Flow through Porous Media. 3rd edn", University of Toronto Press, Toronto, (1974)

- 79) Sheppard M.I., et. al. : "Default Soil Solid/Liquid Partition Coefficients, K_{ds} , for Four Major Soil Types: A Compendium ". Health Physics, Vol.59, No.4, pp.471-482. (1990)
- 80) Sheppard M.I., et. al. : "A Model to Predict Element Redistribution in Unsaturated Soil: Its Simplification and Validation", Proc. BIOMOV5 On the Validity of Environmental Transfer Models, Sympo.Oct.8-10,1990, Stockholm, pp213-222, (1990)
- 81) Sheppard S.C., et. al. : "A Novel Method Used to Estimate Variation in K_d Sorption among 34 Soils, Aerated and Anoxic", J. Environ. Radioactivity, Vol.11, pp.215-233, (1990)
- 82) Sibanda, H.M., et. al. : "Competitive Adsorption of Humus acids and Phosphate on Goethite, Gibbsite, and two Tropical Soils", J. Soil. Sci., Vol.37, pp.197-204, (1986)
- 83) Smith, G.M., et. al. : "A Revised Global-circulation Model for Iodine-129", National Radiological Protection Board Report NPRB-M 81, Chilton, UK, (1983)
- 84) Stalmans, M. : "The Behavior of Technetium in the Environment. Physicochemical Aspects", Dissertations de Agricultura. No.148, Fuculiteit der Landbouwwefenschappen van de Katholieke Universiteit de Leuven, Belgium, (1986)
- 85) Tamura, T., et. al. : "Structual Implications in Cesium Sorption", Health Physics, Vol.2, pp.391-398, (1960)
- 86) Tanaka T., et. al. : "Influence of Drying Period on Migration Behavior of Radionuclides in Aerated Soil Layer ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.28, No.3, pp.239-247, (1991)
- 87) Tanaka T., et. al. : "Sorpton Mechanism of Radioactive Nuclides in Sedimentary Rocks ", International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (3rd) SENDAI, pp.1011-1016, (1991)
- 88) Till J.E., et. al. : "A Pathway Analysis Approach for Determining Acceptable Levels of Contamination of Radionuclides in Soil ", Health Physics, Vol.55, No.3, pp.541-548, (1988)

- 89) Tolikas P.K., et. al. : "Vertical Infiltration of Water into Unsaturated Soils with Variable Diffusivity and Conductivity ", J. Hydrology, Vol.62, pp.321-332, (1983)
- 90) Tucker, W.A., et. al. : "Diffusion Coefficients in Air and Water", Handbook Chemical Property Estimation Methods, Environmental Behaviour of Organic Compounds, W.J. Lyman, W.F. Reehi and D.H. Rosenblatt (Eds), (Chapter 17), McGraw-Hill, (1982)
- 91) Wagenet, R. J., et. al. : "Basic Concepts of Modeling Pesticide Fate in the Crop Root Zone", Weed Sci., Vol.33, pp.25-32, (1985)
- 92) Wahberg, J.S., et. al. : "Exchange Adsorption of Strontium on Clay Minerals", U.S. Geological Survey Bulletin, 1140-C, (1965)
- 93) Walter M.B., et. al. : "Chemical Characterization, Leach and Adsorption Studies of Solidified Low-Level Wastes ", Nuclear and Chemical Waste Management, Vol.8, pp.55-67, (1988)
- 94) Wilkening, M. : "Radon in the Environment", Elsevier, Amsterdam. (1990)
- 95) Yamamoto K., et. al. : "Sorption Behavior of Neptunium(V) Ion on Clay Sorbent ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.27, No.7, pp.626-630, (1990)
- 96) Yamashita R., et. al. : "Particle-Tracking Technique for Nuclide Decay Chain Transport in Fractured Porous Media ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.27, No.11, pp.1041-1049, (1990)
- 97) Yanagi T., et. al. : "Sorption Behavior of Cesium and Strontium Ions on Mixtures of Clay Sorbents ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.26, No.9, pp.861-864, (1989)
- 98) Yoshida S., et. al. : "Studies on the Sorption of I^- (Iodine) and IO_3^- (Iodate) onto andsols", Water, Air, and Soil Pollution, Vol.63, pp.321-329, (1992)
- 99) Zeevaert Th., et. al. : "Transfer from the Geosphere to the Biosphere through Two Differnet Receptors Types (BIOMOV5 Scenarios B6 and B7)", Proc. BIOMOV5 On the Validity of Environmental Transfer Models, Sympo. Oct.8-10,1990, Stockholm, pp181-201, (1990)

- 100) 五十嵐敏文, ほか : "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", 電力中央研究所報告, 研究報告 U87063, (1988)
- 101) 五十嵐敏文, ほか : "不飽和ローム層中の物質移行に関するフィールド試験 (II) - 自然降雨条件下の吸着トレーサの降下損等特性", 日本原子力学会誌, Vol. 33, No. 2, pp180-193, (1991)
- 102) 五十嵐敏文, ほか : "不飽和ローム層中の物質移行に関するフィールド試験 (I) - 自然降雨条件下の非吸着トレーサの降下損等特性", 日本原子力学会誌, Vol. 32, No. 12, pp1232-1242, (1990)
- 103) 五十嵐敏文 : "飽和砂層中のコバルトの移動特性", 日本原子力学会誌, Vol. 35, pp237-244, (1993)
- 104) 伊藤憲昭, ほか : "4. 吸着メカニズムに関する実験的研究, 4.2 イオンビーム分析法を用いた研究", 地層処分研究成果報告会論文集, 動力炉核燃料開発事業団・原子力安全研究協会, pp. 81-86, (1986)
- 105) 内田滋夫, ほか : "海底砂層内における ^{137}Cs の拡散挙動に関する研究 —非可逆吸着モデルの適応—", 保健物理, Vol. 15, pp. 157-166, (1980)
- 106) 馬原保則 : "(III) 土壌に対する核種の分配係数", 日本原子力学会誌, Vol. 34, pp. 387-392, (1992)
- 107) 大貫敏彦, ほか : "帯水砂層中における放射性核種 (^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs) の移動", 保健物理, Vol. 19, pp. 13-18 (1984)
- 108) 大貫敏彦, ほか : "スメクタイト-イライト変質過程における放射性CsおよびSrの吸着形態の変化 — 動的および静的条件下での違い", 日本原子力学会誌, Vol. 34, No. 12, pp. 1139-1142, (1992)
- 109) 小川弘道 : " ^{137}Cs を吸着した土壌微細粒子の多孔質による移動阻止効果", 日本原子力学会誌, Vol. 32, No. 8, pp. 813-818, (1990)
- 110) 河西 基 : "確率論的手法による放射性核種地中移行解析", 電力中央研究所報告, 研究報告 U87078, (1988)
- 111) 亀頭直樹 : "4. 吸着メカニズムに関する実験的研究, 4.2 XMAを用いた研究", 地層処分研究成果報告会論文集, 動力炉核燃料開発事業団・原子力安全研究協会, pp. 74-80, (1986)

- 112) 原子力環境整備センター：“土壤と土壤溶液間の放射性核種の分配係数”，環境パラメータ・シリーズ 2, PPMC-90-P-13, (1990)
- 113) 菅野卓治：“地層中の移行に関連するテクネチウムの溶液化学”，日本原子力学会誌, Vol. 30, No. 4, pp. 313-318, (1988)
- 114) 熊田, ほか：“深地層条件下における放射性核種の移行実験”，平成3年度地質条件評価技術の高度化に関する調査研究, 日環協, (1992)
- 115) 田中忠夫, ほか：“分配係数の土壤粒度依存性におよぼす土壤物性の影響”，日本原子力学会誌, Vol. 30, No. 10, pp. 933-941, (1988)
- 116) 田中忠夫, ほか：“臨海砂質地層における放射性核種の分配係数に及ぼす地下水中イオン組成の影響”，日本原子力学会誌, Vol. 33, No. 4, pp. 373-380, (1991)
- 117) 中西孝：“各核種の吸着特性（岩石・鉱物—合成地下水間における α 放射体の分配）”，地層処分研究成果報告会論文集, 原子力安全研究協会, pp. 58-65, (1986)
- 118) 中村治人, ほか：“Chalk River 研究所における放射性核種の移行に関するフィールド研究”，日本原子力学会誌, Vol. 31, No. 3, pp. 350-356, (1989)
- 119) 中山真一：“地下水中におけるネプツニウムの化学挙動”，日本原子力学会誌, Vol. 32, No. 10, pp. 970-974, (1990)
- 120) 福井正美, ほか：“飽和砂層内における放射性核種の挙動に関する研究（Ⅱ）—石英砂層カラム内における放射性無機陰イオンの破過曲線について—”，保健物理, Vol. 11, pp. 193-200, (1976)
- 121) 福井正美, ほか：“飽和多孔性媒質内における分子の拡散および分散現象に関する研究”，土木学会論文報告集, 第 246号, pp. 73-82, (1976)
- 122) 福井正美, ほか：“飽和砂層内における Cs 及び 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, 第 254号, pp. 37-48, (1976)
- 123) 福井正美, ほか：“飽和砂層内における放射性核種の挙動に関する研究（Ⅲ）—石英砂層カラム内における長寿命放射性核種の移動におよぼす pH の影響”，保健物理, Vol. 13, pp. 93-101, (1978)
- 124) 福井正美, ほか：“放射性廃棄物処分による地下帯水層汚染の簡易評価法”，保健物理, Vol. 16, No. 1, pp. 11-21, (1981)
- 125) 福井正美：“飽和土壤水中における放射性核種の非線形吸着モデルに関する研究”，保健物理, Vol. 16, pp. 111-121, (1981)

- 126) 福井正美 : "地質媒体中における放射性核種の吸着・移動モデル", 日本原子力学会誌
Vol.29, No.6, pp498-507, (1987)
- 127) 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", 日本原
子力学会誌, Vol.32, No.2, pp.142-148, (1990)
- 128) 福井正美 : "放射性廃棄物処分場とその評価パラメータに関する諸問題", 京都大学原
子炉実験所 Technical Report KURRI-TR, No.331, pp.1-8, (1990)
- 129) 福井正美 : "環境動態研究と放射性廃棄物", Radioisotopes, Vol.42, pp.133-134,
(1993)
- 130) 藤川陽子 : "岩石-地下水系における放射性コバルトおよびセシウムの移行とモデル化
に関する研究: 学位論文要旨および研究業績", 平成4年11月
- 131) 向井雅之, ほか : "放射性核種の地表水中から地表面への移行に関する試験研究 一第
1報 ローム層攪乱試料一", 日本原子力研究所, JAEMI-M 91-100, (1991)
- 132) 山本忠利, ほか : "未攪乱通気層土壌試料を用いた放射性核種移動試験", 日本原子力学
会誌, Vol.30, No.10, pp.942-949, (1988)

収集文献 安定同位元素 (NA)

- 1) Criscenti L.J., et. al. : "The FASTCHEM™ Workstation for Integrating Pre- and Postprocessing Functions", EPRI EA-5871, (1989)
- 2) Fruchter J.S., et. al. : "Leachate Chemistry at the Montour Fly Ash Test Cell", EPRI EA-5922, (1988)
- 3) GEOTRANS, INC. : "FASTCHEM™ Package Volume 2: User's Guide to the EFLOW Groundwater Flow Code", EPRI EA-5870-CCM, (1988)
- 4) Goode, D.J. : "Nonradiological Groundwater Quality at Low-level Radioactive Waste Disposal Sites", NUREG-1183, (1986)
- 5) Hostetler C.J., et. al. : "The Fossil Fuel Combustion Waste Leaching(FOWL™) Code: Version 1 User's Manual", EPRI EA-5742-CCM, (1988)
- 6) Hostetler C.J., et. al. : "FASTCHEM™ Package Volume 1: Overview and Application to a Chemical Transport Problem", EPRI EA-5870, (1989)
- 7) Hostetler C.J., et. al. : "FASTCHEM™ Package Volume 5: User's Guide to the EICM Coupled Geohydrochemical Transport Code", EPRI EA-5870-CCM, (1989)
- 8) Kincaid C.T. : "FASTCHEM™ Package Volume 3: User's Guide to the ETUBE Pathline and Streamtube Database Code", EPRI EA-5870-CCM, (1988)
- 9) Krupka K.M., et. al. : "Thermochemical Data Used by the FASTCHEM™ Package", EPRI EA-5872, (1988)
- 10) Morrey J.R. : "FASTCHEM™ Package Volume 4: User's Guide the ECHEM Equilibrium Geochemistry Code", EPRI EA-5870-CCM, (1988)
- 11) Murarka I.P., et. al. : "Solid-Waste Environmental Studies(SWES): Description, Status, and Available Results", EPRI EA-5322-SR, (1987)
- 12) Sabatini, D.A., et. al. : "Transport and Remediation of Subsurface Contaminants", ACS Symp. Series, (1992)
- 13) Shimogami H., et. al. : "Method for Predicting the Environmental Effects of Coal-Ash Inland Disposal", CRIEPI REPORT EU92001, (1992)

- 14) 五十嵐敏文 : "米国電力研究所(EPRI)における固体廃棄物埋立処分環境影響評価", 環境技術 Vol.18, No.4, pp251-254, (1989)
- 15) 五十嵐敏文, ほか : "石炭灰中微量物質の土壌への吸着特性", 電力中央研究所報告 U91003, (1991)
- 16) 五十嵐敏文, ほか : "大型ライシメータによる石炭灰層を含む多層地盤中の水分・溶質の移動", 水工学論文集 36, pp397-402, (1992)
- 17) 下垣久, ほか : "石炭灰陸上埋立に伴う環境影響予測手法", 電力土木 NO.241, PP1-6, (1992)
- 18) 下垣久, ほか : "石炭灰陸上埋立に伴う環境影響予測手法 — 微量物質の溶出・移行挙動に予測 — ", 電力中央研究所報告 U92015, (1992)
- 19) 長崎晋也, ほか : "コロイド粒径粒子の狭隘経路内の移行", 大学・原研共同研究報告書, pp.107-113, (1993.3)
- 20) 保田浩志, ほか : "土壌-植物系における亜鉛の挙動に関する基礎的研究 (I) — 亜鉛の分配係数に関する実験的考察 — ", 保健物理 27, pp123-134, (1992)

添付資料 3 収集文献抄録

文献抄録

収録文献一覧

- GN-1 日本アイソトープ協会：放射性核種の環境への放出：人に対する線量の算定（邦訳版） .. (2)
- GN-4 内田滋夫、ほか：土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル .. (4)
- CF-2 Baes C. F., et. al. : A Review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Released Radionuclides through Agriculture” .. (9)
- CF-8 Drop. F. V., et. al. : A New Approach for Soil-Plant Transfer Calculations .. (11)
- CF-11 IAEA : Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases : Exposures of Critical Groups .. (12)
- CF-31 Togawa O. : Computer Code TERFOC-N to Calculate Doses to Public Using Terrestrial Foodchain Models Improved and Extended for Long-Lived Nuclides .. (19)
- CF-34 U. S. Nuclear Regulatory Commission : Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR PART 50, Appendix I .. (20)
- CF-39 内田滋夫、ほか：放射性核種の農作物への移行 —作物間差および核種間差— .. (24)
- CF-41 原子力環境整備センター：土壌から農作物への放射性物質の移行係数 .. (25)
- CF-44 外川織彦：原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種による公衆の被曝線量を算出するための計算コード TERFOC-N .. (30)
- SA-11 Whicker F. W. : PATHWAY : A Dynamic Food-chain Model to Predict Radionuclide Ingestion after Fallout Deposition .. (31)
- SU-42 Konoplev A. V., et. al. : Behaviour of Long-lived Chernobyl Radionuclides in a Soil-water System .. (37)
- SU-43 Konshin O. V. : Applicability of the Convection-Diffusion Mechanism for Modeling Migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the Soil .. (38)
- SU-71 Park C. K. : Computer Simulation Study of Transient Diffusion of Cesium through Granite with Unsteady-State Diffusion Model .. (39)
- SU-72 Park C. K. : Sorption and Desorption Behaviour of ^{60}Co , ^{85}Sr , and ^{137}Cs in a Porous Tuff — Mechanisms and Kinetics .. (40)
- NA-20 保田浩志、ほか：土壌—植物系における亜鉛の挙動に関する基礎的研究（I）—亜鉛の分配係数に関する実験的考察— .. (41)

整理番号 GN-1

文献タイトル 放射性核種の環境への放出：人に対する線量の算定（邦訳版）

著者名 国際放射線防護委員会専門委員会4

出典 ICRP Publication 29, (1986)

発刊機関名 日本アイソトープ協会

要 旨

本書は、ICRP専門委員会4の報告書、

Radionuclide Release into the Environment : Assessment of Doses to Man, ICRP Publication 29 (Annals of the ICRP, Vol.2, No.2, 1978に発表) を、ICRPの了解のもとに翻訳したものであり、その内容は環境モデルの構築の手順、モデル作成の方法と作成上の留意事項、モデルの検証の方法をテキストとしてまとめている。

環境中への放射性物質の放出と、放出の結果生ずるであろう適切な放射線の量との関係を予測するのに有用な2つの数学的方法が記述されている。この方法は、濃縮係数(CF)法とシステム解析(SA)法である。また、陸圏環境と水圏環境への放射性物質の短期放出あるいは長期放出の放出率の関数としていろいろな放射線の量を推定するための計算例と評価も示している。

CF法では、定常状態におけるコンパートメント間の濃度比として定義される濃縮係数を用いて年線量が簡単かつ容易に推定できる。SA法は、時間的に変化する速度係数をもった連立微分方程式の系でコンパートメントカイネティクスが規定され、これらの方程式の時間積分によりCF法で得られることのできるすべての情報を与える。

また、計算例では、温帯地域におけるように放射性核種の移動パターンがかなり季節変化をすることを考えに入れると、長期連続放出に適用できる諸係数は短期放出には適用できないことがあることを明らかにしており、注意する必要性を示している。

さらに、CF法でもSA法でも、それらの計算に使用する因子または係数が詳しく知られていないために不正確なことがあるため、不確かさの主原因とそれに由来する線量推定値における不確かさの程度を感度解析と堅固度解析によって定量的に評価し、その結果をこのような推定値に必ず付けるべきである。この両解析についておよびそれから導かれる推論についての詳細な方法論の例も示してある。

内 容

①放出の型

線量評価の観点にたつと、実用上重要な区別は、連続すなわち長期的な放出と単一すなわち短期的な放出となる。

②被曝経路

大気中に放出された放射性物質と人との間の単純化された経路を図1に示す。

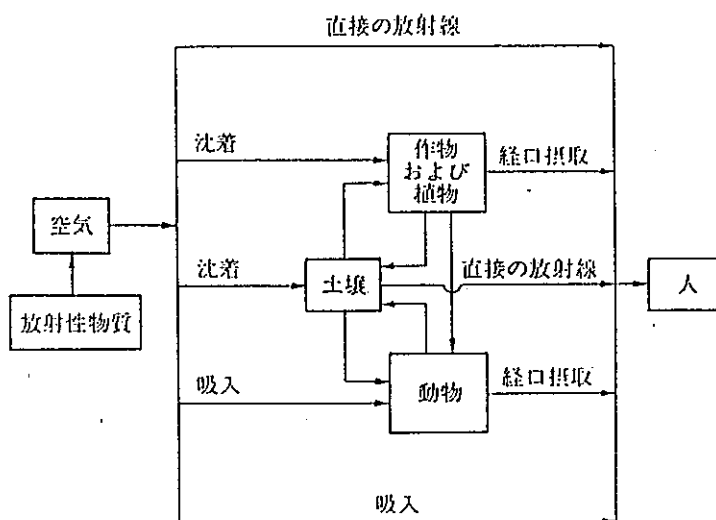


図1 大気中に放出された放射性物質と人との間の単純化された経路

③濃縮係数法

濃縮係数法で用いられる濃縮係数としてのパラメータの値と範囲は、約40の文献を調べた後得られたもので、桁の点では現実的であるが、値は、気候条件、土壌の種類、食用作物、牧草、魚と動物の種類などが大きく異なった地域に関係しており、かつ食習慣は国によって顕著に変わるため、ここに示されたものは決して特定サイトの値ではないと言及している。

この濃縮係数は、時間依存性を無視することにより得られるものであり、連続放出に関しては時間平均濃度だけが、短期放出に関しては時間積分濃度だけが計算可能である。

④システム解析法

時間に依存する挙動を予測するが、数学的にはやや複雑であり、コンパートメント間の移行は当然移行率として与えられ、時間依存性も考慮する必要がある。

整理番号 GN-4

文献タイトル 土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル

著者名 内田滋夫、大桃洋一郎、鎌田博、佐伯誠道

出典 日本原子力学会誌 Vol. 26, No. 11, pp. 935-941 (1984)

発刊機関名 日本原子力学会

要 旨

環境中に放出された放射性核種の人体への移行経路の中で、農作物—人体経路は重要な経路の1つである。経根吸収経路に焦点を絞り、土壌から農作物への放射性核種の移行量を算定するための計算モデルとして、移行係数、比放射能および分配係数をそれぞれキーパラメータとした3つの代表的なモデルがある。ここでは、おのこのモデルに含まれるパラメータについて、これまでの研究を紹介し、3つのモデルの特徴を述べている。

(1) 移行係数をキーパラメータとするモデルの場合、複雑な環境因子や植物の成長的因子を含む現象のモデル化では、ある程度現象を簡略化して捉える必要があり、また被曝線量評価の観点から扱いやすい式であることを考えると、実用上便利な式であるといえる。ところが、種々のパラメータ、特に土壌パラメータを考慮していないため、農作物へのR Iの移行量をあらゆる土壌について精度よく予測するには限界がある。

(2) 比放射能をキーパラメータとするモデルは、土壌の種類によるR Iの移行量の違いを可給態量というパラメータで補正し、そのパラメータ決定に比放射能を用いるというものであり、(1)よりもR Iの移行量予測の精度は向上する。しかし、対象R Iの安定同位元素が土壌および農作物中に測定可能な量で存在しなければならないなど、現実にこのモデルを適用するには検討すべき要素が多い。

(3) 分配係数をキーパラメータとするモデルは、パラメータの数が多いという問題があるものの、各パラメータの物理的意味が明白で、環境条件が異なっても移行量の予測が可能であるという利点をもつ。また、パラメータのうちいくつかは、農学分野でかなり研究されているものであり、利用可能なデータに期待できる。

これら3つのモデルに共通した問題点として、R Iの土壌中不均一分布、R Iの根圏域からの流出、R Iの化学形、Aging 効果(土壌に添加したR Iのうち植物が吸収可能なR I量、すなわち可給態量が時間とともに減少する傾向)があげられる。

3つの計算モデルの特徴

1. 移行係数をキーパラメータとするモデル

$$C_{ve} = TF \cdot C_{soil}$$

C_{ve} : 農作物（可食部）単位重量当たりのR I量 (Bq/g・wet)

C_{soil} : 土壌単位重量当たりのR I量 (Bq/g・dry)

TF : 移行係数 (Transfer factor)

【導き方】

- ・海水中R Iの海産物への移行と同じ概念を用いている。

【利 点】

- ・実用上有益

【問題点】

- ・植物による土壌中のR I吸収量は、植物の各成育段階により異なるため、短期間の濃縮係数とTFとを区別する必要がある。
- ・以下に示す種々の要因によって、TFの値がかなり変動する。

①R Iの種類

②農作物の種類

③気候、風土等環境の違い（特に土壌の種類）

TFに影響を及ぼすと考えられる土壌パラメータ

- (1) 粒度分布（特に粘土、シルト含量）
- (2) 有機物含量
- (3) pH
- (4) 酸化還元電位
- (5) 空隙率、団粒構造、土壌密度、土壌水分
- (6) 陽イオン交換容量（CEC）
- (7) 共存元素

④栽培方法の違い

【研究報告動向】

- ・種々のR Iや農作物のTFについて、欧米で多く報告されている。
- ・1982年にヨーロッパで開催されたワークショップにより、TFの相互比較ができるよう実験条件の設定や明記すべき実験条件等の整理が行われた。
- ・日本における報告例には、フォールトアウトデータから水稻や小麦への ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の移行量を求めた報告、安定元素の濃度測定によりTFを求めるためのデータの報告（特に、重金属に関して豊富）、土壌から米へのTF値(10^{-4} ~ 10^{-3})の報告等がある。

・「①R Iの種類」「②農作物の種類」に関する研究報告がいくつかある。以下に一例を示す。また、農作物の種類に関して、クリティカルグリープ選定のための実態調査が東海村周辺で行われている。

2. 比放射能をキーパラメータとするモデル

$$C_{ve} = S_{ve} \frac{C'_{soil}}{S'_{soil}}$$

S_{ve} : 農作物（可食部）単位重量当たりの安定同位元素量 (mg/g・wet)

C'_{soil} : 土壌単位重量当たりの可給態R I量 (Bq/g・dry)

S'_{soil} : 土壌単位重量当たりの可給態安定同位元素量 (mg/g・dry)

【導き方】

・土壌の種類によるR I移行量の違いを可給態量というパラメータで補正し、そのパラメータ決定に比放射能法を用いている。

【利 点】

・土壌単位重量当たり存在する全R I量のうち、植物が吸収可能なR I量（可給態R I量）を考慮に入れているため、土壌の種類にかかわらず、より正確にR I移行量を求めることができる。

【問題点】

- ・対象とするR Iの安定同位元素が土壌や農作物中に測定可能な量で存在しなければならない。
- ・可給態フラクションは農作物の種類やR Iの種類により異なると考えられる。
- ・R Iの土壌への添加後の存在形態の変化 (Aging 効果)
- ・R Iの土壌中での不均一分布

3. 分配係数をキーパラメータとするモデル

$$C_{vc} = F \cdot S \frac{P_t}{P_{ep}} TC \frac{C_t}{L(\theta + \rho Kd)}$$

F : 農作物中におけるR Iの可食部への移行率(転位率)

S : 選択(吸収)係数

P_t : 年間単位地表面積当たりの農作物総生産量 (g/cm²/yr)

P_{ep} : 年間単位地表面積当たりの農作物の可食部生産量 (g/cm²/yr)

TC : 蒸散係数(農作物単位重量当たりの蒸散量) (ml/g)

C_t : 土壌単位地表面積当たりのR I量 (Bq/cm²)

L : 土壌深さ(根圏域深さ) (cm)

θ : 土壌水分量 (ml/cm³)

ρ : 土壌密度 (g/cm³)

Kd : 分配係数 (ml/g)

【導き方】

・植物が土壌溶液中に含まれるR Iを土壌溶液とともに吸収するという考え方のもとに構成されている。

土壌に吸着しているR Iを土壌溶液への供給源とみなし、反応式を次式で仮定している

$$Q_{soil} = Kd \cdot C_{solution}$$

Q_{soil} : 土壌(固相)中に存在するR I量 (Bq/g)

$C_{solution}$: 土壌溶液(液相)中のR I量 (Bq/ml)

【利点】

・各パラメータの物理的意味が明白であるため、環境条件が異なっても移行量の予測が可能である。

・農学分野において利用できるデータの蓄積がある(P_t 、 P_{ep} 、TC)。

【問題点】

・パラメータの設定あたって、問題の残るものを以下に示す。

(1) F

トレーサー実験によって得られたデータやフィールドでの安定同位元素の測定により、ある程度は求められる。

(2) S

成育時期によってSの値の変わる可能性がある場合に、短期間の実験からSの値を求めることには問題がある。

(3) Kd

土壌とR Iの吸着・脱離反応より求められるKdが、あらゆるR Iで成立するかど

うか検討する必要がある。また、測定条件によっても異なる値になると考えられる。

【研究報告動向】

- ・ K_d を測定した報告はいくつかあるが、畑地および水田土壌について K_d を求めた例はない。
- ・ 福井は、土壌中における $R I$ の移動という観点から、 K_d の測定条件を明確に述べている。
- ・ K_d に関して、他の土壌化学的特性から類推することが可能ならば、多くの土壌について調査が行われているため、有効なモデルと考えられる。

4. その他、3つのモデルに共通の問題点

① $R I$ の土壌中不均一分布

モデル内で考慮すると取扱いが困難になる。また、 $R I$ の植物への移行量は、土壌中の $R I$ 分布だけでなく、植物の根の分布と密接な関係がある。

② $R I$ の根圏外からの流出

$R I$ の供給のされ方（連続またはパルス状）や土壌中での $R I$ の移動等により異なり、一概には結論できない。モデルに組み入れた例がいくつかある。

③ $R I$ の化学形

元素の化学形は、土壌中の pH や酸化還元状態によって異なる。環境中で種々の化学形で存在すると考えられる元素では、移行量の違いをパラメータとして考慮する必要がある。

④ Aging効果

土壌に添加した $R I$ のうち植物が吸収可能な $R I$ 量（可給態量）は時間とともに減少する傾向があるため、すべての計算モデルにおいて注意を払う必要がある。

これについての研究報告がいくつかある。

整理番号 CF-2

文献タイトル A Review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Released Radionuclides through Agriculture

著者名 Baes III C. F., Sharp R. D., Sjoreen A. L. and Shor R. W.

出典 ORNL-5786, (1984)

発刊機関名 Oak Ridge National Laboratory

要 旨

地上の農業システムを経由する放射性核種の移行の予測モデルは、農業生態系のコンパートメント間の移行挙動を表したり、相関関係を定義する入力パラメータに依存している。しばしば、只一つの一連のデフォルトパラメータ、例えばUSNRC Reg. Guide 1.109 で与えられているものが、サイト特有の情報の代わりに、アセスメントで一般的に使われることが推奨される。これらのパラメータは、不完全な移行プロセスの知識や、容易に用いることができる文献の参照、そして、共通の農作物の一般化または理想化された概念化を行うことによってしばしば基づいている。通常、しっかりした実験、観測または理論的に支持なしにパラメータは選択され、安全側の結果となっている。さらに、実験によるパラメータとアセスメントモデルで使っているパラメータで矛盾が生じていることもある。

モデルに入力するパラメータに関しこれまで述べた制限は、通常避けられず、プロセスをモデル化してアセスメントを行う場合に元来備わっているものと思われるが、(多くのアプリケーションで) 通常はアセスメントの手法における全般的な不確実さの状況内で受け入れられている。しかしながら、いくつかのアプリケーションでは、いろいろな地理的場所におけるいろいろな施設や発生源の比較を行い、これららの制限の多くは受け入れることができない。本報告書では、多くのこれらの制限がある地上移行パラメータの評価について記述し、食物連鎖移行アセスメントコードTERRA に組み込まれたデフォルトパラメータの説明を示す。

この報告書で述べているパラメータは5つに分類した。農業的、気候的、人口統計的、要素固有のもの、その他である。気候、人口統計および多くの農業的なパラメータは、 $\frac{1}{2} \times \frac{1}{2}$ 度の緯度経度の解像度で米国を区切り、地域固有性に基本として決定した。これらのパラメータはいろいろな土地利用、地理的情報、田舎や都市の位置する人口分布、農産物、農業生産性、降水量、蒸発散、朝や昼の混合層高さ、絶対湿度、霜の無い日数を考慮している。これらの地域固有のパラメータは、電算機で読み取れる形式でストアされており、地域固有地上環境 (Specific-Information on the Terrestrial Environment:SITE) データベースとして正しく参照されるようになっている。この報告書では、このSITEデータベースの説明もし、それを生成するのに使われるプロトコルも説明している。

要素固有のパラメータは、土壌-植物間の濃縮係数、 B_v 、 B_r 、経口摂取によるミルク移行係数および経口摂取による牛肉移行係数、 F_m 、 F_r および土壌-水間の分配係数 K_d を含んで

いる。この報告書では、役立つ参考文献、プロトコル、使用した仮定およびこれらデフォルトパラメータを決めるのに用いたパラメータ間の関係を記述し、これらの値を使って予測した濃度と実験的に測定された濃度の比較をしている。

整理番号 CF-8

文献タイトル A New Approach for Soil-Plant Transfer Calculations

著者名 Dorp F.V., Eleveld R. and Frissel M.J.

出典 IAEA-SM-237/13 (1979)

発刊機関名 IAEA

要 旨

原子力産業から平常時または事故時に放射性核種が放出されることによって起こる人の照射線量計算のモデルには、これら放射性核種の土壌から植物への移行をしばしば含む。この土壌-植物移行は、ほとんどの場合濃縮係数を用いてブラックボックスのアプローチで表される。このアプローチには、いくつかの不都合な点があり、濃縮係数の物理的な意味の欠如が最も重大である。我々は、放射性核種の土壌-植物移行を物理的な意味を全て持たせた植物と土壌のパラメータの関数として表すことを提案する。分離されたパラメータは、実験的に決定されるようopenになっているが、現実的なパラメータの推定や、両パラメータの組合せによる使用でもまた可能である。計算の目的によって、パラメータを現実的または安全側の値にして使うことができるし、安全側の度合いも指定できる。

整理番号 CF-11

文献タイトル Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases : Exposures of Critical Groups

著者名 IAEA

出典 Safety Series No. 57, (1982)

発刊機関名 IAEA

要 旨

この報告書では、放射性物質が大気中または水圏に放出された後の、最も多く被曝するグループ（クリティカルグループ）の被曝線量を予測するのに使われる数学的モデルを示している。このように放出された放射性物質は、生物圏中に拡散される。環境アセスメントでは一般に重要であると知られている適切な環境中の経路を考慮する必要がある。

ここで示されたモデルは簡単に適用でき、核施設の稼働前の段階において、どの計画サイトでも計画放出からの局所的な線量を予測するために使われることを意図している。また、モデルは、環境モニタリングや個人線量限度を満足するように規定された放射能の環境への放出率によって線量当量限度に従い保証されるために環境中の二次標準値（誘導限度）を設定するのにも適用できる。モデルやパラメータ値は、それらを用いて評価される線量全体が少なくとも適切な線量限度より1オーダー低くなり、その限度を越える可能性が低くなるように選択された。もし、計算結果によって計画放出による線量が限度に近づくなれば、モデルやパラメータ値がサイト特有の条件を代表している範囲にあるか注意深く評価すべきである。この点は国の権威あるものが裁量しなければならない。

最後に、パラメータに関して推奨値は現在のところ最良のものであるが、将来的には別の値となるかもしれない。この報告書で示したモデルを使うことで有益となることのひとつに、全てのアセスメントの信頼に重大な影響を与える不確実さをパラメータに焦点を当てることが可能となることである。この方法は、研究および環境モニタリング努力の両方に優先順位を与えることに利用できる。

内 容

(1)濃縮係数

全ての線量が、線量限度より少なくとも1オーダー小さくなるように他の文献から選択された濃縮係数であり、他の文献と比較するとかなり異なるかもしれない。

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{牧草中の濃度 (乾燥重量当たりの濃度: Bq/g)}}{\text{土壤中濃度 (乾燥重量当たり濃度: Bq/g)}}$$

または、

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{農作物 (可食部) 中の濃度 (生重量当たりの濃度: Bq/g)}}{\text{土壤中濃度 (乾燥重量当たり濃度: Bq/g)}}$$

で定義されている。

TABLE XVI. DEFAULT VALUES OF B_{v1} * CONCENTRATION FACTOR FOR FORAGE PLANTS^a

Element	B_{v1} *	Element	B_{v1} *	Element	B_{v1} *
Na	2×10^{-1} (b)	Tc	2×10^1 (f, g)	Pb	9×10^{-2} (c, j)
P	3×10^0 (b)	Ru	9×10^{-2} (c)	Bi	5×10^{-1} (b, k)
S	2×10^0 (b)	Ag	1×10^0 (b)	Po	4×10^{-3} (c)
Cr	3×10^{-3} (b)	Sb	4×10^{-2} (b)	Ra	2×10^{-1} (c, j)
Mn	3×10^{-1} (c, d)	Te	2×10^0 (c, h)	Ac	4×10^{-3} (l)
Fe	3×10^{-3} (b)	I	9×10^{-1} (c)	Th	1×10^{-3} (m, n)
Co	4×10^{-1} (c)	Cs	1×10^{-1} (c, d)	Pa	1×10^{-1} (p)
Ni	4×10^{-2} (b)	Ba	2×10^{-2} (b)	U	1×10^{-2} (c, n)
Zn	5×10^{-1} (b)	La	4×10^{-2} (i)	Np	1×10^{-1} (n)
Sr	2×10^0 (c, d)	Ce	4×10^{-2} (c)	Pu	1×10^{-3} (m, n)
Y	1×10^{-2} (c, e)	Pm	4×10^{-2} (i)	Am	4×10^{-3} (c, n)
Zr	2×10^{-2} (c)	Sm	4×10^{-2} (i)	Cm	4×10^{-3} (l, n)
Nb	4×10^{-2} (b)	Eu	4×10^{-2} (i)		

- * $Bq \cdot g^{-1}$ dry vegetation per $Bq \cdot g^{-1}$ dry soil.
- ^a Based on Ref. [15]. The B_{v1} values in this table have been selected so that the probability of exceeding a dose limit is very low when a resulting prediction is a small fraction (~5%) of the dose limit. If a resulting prediction is a substantial fraction of a relevant dose limit, site-specific evaluations are recommended.
- ^b Based on the ratio of the average concentrations in unassociated forage plants and soil.
- ^c Based on the unweighted mean of the mean values observed for a crop or crop type in a single study.
- ^d Site-specific investigations are recommended for sites where sandy soils are dominant, particularly if a resulting dose prediction is substantially greater than a small fraction of a relevant dose limit.
- ^e Based in part on data on foliage of plants normally not used as forage.
- ^f Based on recent surveillance measurements of ^{99}Tc and field studies of $^{95}Tc^{m}O_4^-$ performed by Hoffman et al. [16] at Oak Ridge Natl. Lab., USA.
- ^g The removal of activity from the agricultural system by harvesting must be considered when B_v is large and the accumulation time of activity in soil is long.
- ^h In the absence of relevant data, the value selected is based on the assumption that Te is chemically similar to Se.
- ⁱ Based on the B_{v1} for Ce. In the absence of relevant data the lanthanides are assumed to behave similarly.
- ^j Based on the review of environmental transport parameters for ^{210}Pb and ^{226}Ra by McDowell-Boyer et al. [17].
- ^k Value associated with a large uncertainty due to the paucity of data.
- ^l Based on the B_{v1} for Am. In the absence of relevant data the actinides whose dominant oxidation state is +3 are assumed to behave similarly.
- ^m Adapted from maximum observed value.
- ⁿ Takes into account the expected behaviour of the actinides with respect to plant uptake from soil [18-20].
- ^p Based on the B_{v1} for Np. In the absence of relevant data, Pa is assumed to be chemically similar to Np. [21].

TABLE XVII. DEFAULT VALUES OF B_{v2} * CONCENTRATION FACTOR IN FOOD CROPS^a

Element	B_{v2} *	Element	B_{v2} *	Element	B_{v2} *
Na	5×10^{-2} (b)	Tc	5×10^0 (c, g)	Pb	1×10^{-2} (i)
P	1×10^0 (b)	R	8×10^{-3} (d)	Bi	1×10^{-1} (c, j)
S	6×10^{-1} (b)	Ag	2×10^{-1} (b)	Po	2×10^{-4} (d)
Cr	8×10^{-4} (c)	Sb	1×10^{-2} (c)	Ra	4×10^{-2} (e, k)
Mn	5×10^{-1} (d)	Te	6×10^{-1} (d, h)	Ac	1×10^{-3} (l)
Fe	7×10^{-4} (b)	I	2×10^{-2} (d)	Th	5×10^{-4} (d, m)
Co	3×10^{-2} (d)	Cs	3×10^{-2} (e)	Pa	4×10^{-2} (n)
Ni	2×10^{-2} (b)	Ba	5×10^{-3} (c)	U	2×10^{-3} (d, m)
Zn	4×10^{-1} (b)	La	2×10^{-3} (f)	Np	4×10^{-2} (m)
Sr	3×10^{-1} (e)	Ce	2×10^{-3} (d)	Pu	5×10^{-4} (d, m)
Y	2×10^{-3} (f)	Pm	2×10^{-3} (f)	Am	1×10^{-3} (d, m)
Zr	5×10^{-3} (c)	Sm	2×10^{-3} (f)	Cm	1×10^{-3} (l, m)
Nb	1×10^{-2} (c)	Eu	2×10^{-3} (f)		

* $Bq \cdot g^{-1}$ fresh food per $Bq \cdot g^{-1}$ dry soil.

^a Based on Ref. [15]. The B_{v2} values in this table were selected to yield a very low probability of exceeding a dose limit when a resulting prediction is a small fraction (~5%) of the dose limit. If a resulting prediction is a substantial fraction of a relevant dose limit, site-specific evaluations are recommended.

^b Based on the ratio of the average concentrations in food derived from terrestrial plants and soil.

^c Based on the B_{v1} for forage plants from Table VI.

^d Based on the unweighted mean of the mean values observed for a crop or crop type in a single study.

^e Assumed at one-twentieth the maximum value observed.

^f Based on the B_{v2} of Ce. Because of the absence or sparsity of relevant data, Y and the lanthanides are assumed to behave similarly.

^g The removal of activity from the agriculture system by harvesting must be considered when B_v is large and the accumulation time of activity is long.

^h In the absence of relevant data, the value is based on the assumption that Te is chemically similar to Se.

ⁱ Value recommended by McDowell-Boyer et al. [17]. The value is twice the mean of the mean values estimated for ten different food crops.

^j Value associated with a large uncertainty due to the paucity of data.

^k Takes into account observed ratios between Ra and Ca and those between Sr and Ca.

^l Based on the B_{v2} for Am. In the absence of relevant data, the actinides whose dominant oxidation state is +3 are assumed to behave similarly.

^m Takes into account the expected behaviour of the actinides with respect to plant uptake from soil [18-20].

ⁿ Based on the B_{v2} for Np. In the absence of relevant data, Pa is assumed to be chemically similar to Np [21].

(2)植物中濃度の算出式

$$C_{v,i} = \left\{ \frac{d_i R [1 - \exp(-\lambda_{Ei}^v t_e)]}{Y \lambda_{Ei}^v} + C_{s,i} B_v \right\} \exp(-\lambda_i t_h) \quad (5.1)$$

$$C_{s,i} = \frac{d_i [1 - \exp(-\lambda_{Ei}^s t_b)]}{P \lambda_{Ei}^s} \quad (5.2)$$

where

- $C_{v,i}$ is measured in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ dry matter for vegetation consumed by grazing animals and in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ fresh matter for vegetation consumed by humans;
 $C_{s,i}$ is the concentration of radionuclide i in dry soil ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$);
 d_i is the deposition rate (from wet and dry processes) of radionuclide i onto ground at location ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$);

TABLE XIV. EXAMPLE VALUES FOR ABOVE-GROUND AGRICULTURAL PRODUCTIVITY, DEFAULT VALUES FOR INTERCEPTION FRACTIONS FOR FORAGE PLANTS AND EDIBLE PORTIONS OF FOOD CROPS, AND DEFAULT VALUES FOR ENVIRONMENTAL REMOVAL RATES FROM CROP SURFACES

Parameter	Example values	Default values	Refs
R_1/Y_1 Ratio of interception factor to yield Y_1 of forage vegetation in dry weight ^a		$2.0 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$	[8]
Y_2 Yield of leafy vegetables in fresh weight ^b	$2.0 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$		[9]
Y_2 Yield of other food crops consumed by humans in fresh weight ^c	$0.60 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$		[9]
R_2 Caesium in grains ^{d,e}		0.50	[10-12]
R_2 Other nuclides, and caesium in food crops other than grain		0.20	[5, 6]
λ_w Particulates ^f		$4.6 \times 10^{-2} \text{ d}^{-1}$	[7]
λ_w Iodine on pasture vegetation		$6.9 \times 10^{-2} \text{ d}^{-1}$	[7]

^a R_1 is defined as interception fraction for forage grasses and is normalized to the dry weight standing crop biomass of forage grasses because of statistical correlations of R_1 and Y_1 [8].

^b Based on average yield of leafy vegetables in the USA.

^c Based on average yield of non-leafy above-ground vegetables in the USA.

^d R_2 is defined as interception fraction for edible portions of food crops. This parameter includes both the fraction of depositing material that is intercepted by the surfaces of vegetation and the subsequent translocation to edible parts.

^e Selected to lessen the likelihood of underestimating the contamination of grains by caesium.

^f Based on the weathering rate of particulates on pasture vegetation.

TABLE XVIII. EFFECTIVE SURFACE SOIL DENSITY P AS A FUNCTION OF DEPTH OF THE ROOT ZONE AND SOIL CHARACTERISTICS

Rooting zone depth	Effective surface soil density, P ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}$ dry-weight soil)	
	Peat soils	Other soils
0-2 cm	10	30
0-15 cm	75	200
0-30 cm	150	400

From Ref. [22], based on soil densities of $0.5 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ for peat soils and $1.3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ for other soil types.

TABLE XV. EXAMPLE VALUES OF CROP EXPOSURE PERIOD t_e AND DELAY PERIOD FOR THE TIME BETWEEN HARVEST OF CRO. AND CONSUMPTION t_h

Parameter	$t_{e(1)}$	$t_{e(2)}$	$t_{h(1)}$	$t_{h(2)}$	$t_{h(3)}$
Value (days)	30	60	0	90	14

Note:

$t_{e(1)}$ applies to forage grasses; $t_{e(2)}$ applies to food crops.

$t_{h(1)}$ applies to forage; $t_{h(2)}$ applies to stored feed for animals; $t_{h(3)}$ applies to food crops.

整理番号 CF-31

文献タイトル Computer Code TERFOC-N to Calculate Doses to Public Using Terrestrial Foodchain Models Improved and Extended for Long-Lived Nuclides

著者名 Togawa, Orihiko

出典 J. Nucl. Sci. Technol., Vol.27, No.4, pp.360-374 (1990)

キーワード コンピュータコード、環境中被曝経路、大気放出、放射性核種、原子力施設、最大個人線量、集団線量、経口摂取、吸入、cloudshine、groundshine、食物連鎖、米国原子力規制委員会規制指針

要 旨

原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種によってもたらされる公衆の被曝線量を算出するための計算コードTERFOC-Nを開発した。本コードは、植物摂取及び呼吸による内部被曝、空気中の核種及び地表に沈着した核種からの直接線による外部被曝という4つの被曝経路からの個人線量の最大値及び集団線量を計算する。

このうち、食物連鎖モデルは米国原子力規制委員会規制指針1.109のモデルを基礎とし、軽水炉以外の原子力施設に起因する線量もより現実的に評価することができるように改良・拡張した。

本報告書では、使用したモデルと計算コードについて記述し、本コードを使用した計算例を示す。感度解析の結果、経口摂取による被曝線量に感度の高いパラメータが明らかになった。被曝線量に重大に影響与えるモデルが、ここで改良・拡張された複数のモデルの中から明らかになった。

整理番号 CF-34

文献タイトル Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR PART 50, Appendix I

著者名

出典 Regulatory Guide 1.109, (1977)

発刊機関名 U.S. Nuclear Regulatory Commission

内 容

(1)濃縮係数

ここで示されている濃縮係数は、

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{農作物可食部中の元素濃度の平均値 (生重量当たりの濃度:pCi/kg)}}{\text{土壤中元素濃度の平均値 (乾燥重量当たり濃度:pCi/kg)}}$$

で定義され、葉菜または牧草としている。なお、これらの値は、

Y. C. Ng et al., "Prediction of the Maximum Dosage to Man from the Fallout of Nuclear Devices, Handbook for Estimating the Maximum Internal Dose from Radionuclides Released to the Biosphere," USAEC Report UCRL-50163, Part IV, 1968.

からのものである。

STABLE ELEMENT TRANSFER DATA*

Element	B_{iv} Veg/Soil	F_m (Cow) Milk (d/l)	F_f Meat (d/kg)
H**	4.8E 00	1.0E-02	1.2E-02
C**	5.5E 00	1.2E-02	3.1E-02
Na	5.2E-02	4.0E-02***	3.0E-02
P	1.1E 00	2.5E-02	4.6E-02
Cr	2.5E-04	2.2E-03	2.4E-03
Mn	2.9E-02	2.5E-04	8.0E-04
Fe	6.6E-04	1.2E-03	4.0E-02
Co	9.4E-03	1.0E-03	1.3E-02
Ni	1.9E-02	6.7E-03	5.3E-02
Cu	1.2E-01	1.4E-02	8.0E-03
Zn	4.0E-01	3.9E-02	3.0E-02
Rb	1.3E-01	3.0E-02	3.1E-02
Sr	1.7E-02	8.0E-04***	6.0E-04
Y	2.6E-03	1.0E-05	4.6E-03
Zr	1.7E-04	5.0E-06	3.4E-02
Nb	9.4E-03	2.5E-03	2.8E-01
Mo	1.2E-01	7.5E-03	8.0E-03
Tc	2.5E-01	2.5E-02	4.0E-01
Ru	5.0E-02	1.0E-06	4.0E-01
Rh	1.3E 01	1.0E-02	1.5E-03
Ag	1.5E-01	5.0E-02	1.7E-02
Te	1.3E 00	1.0E-03	7.7E-02
I	2.0E-02	6.0E-03†	2.9E-03
Cs	1.0E-02	1.2E-02***	4.0E-03
Ba	5.0E-03	4.0E-04***	3.2E-03
La	2.5E-03	5.0E-06	2.0E-04
Ce	2.5E-03	1.0E-04***	1.2E-03
Pr	2.5E-03	5.0E-06	4.7E-03
Nd	2.4E-03	5.0E-06	3.3E-03
W	1.8E-02	5.0E-04	1.3E-03
Np	2.5E-03	5.0E-06	2.0E-04††

* Data presented in this table is from Reference 1 unless otherwise indicated.

** Meat and milk coefficients are based on specific activity considerations.

*** From Reference 15.

† See text.

†† From Reference 13.

(2)植物中濃度の算出式

3. Concentrations of Airborne Radionuclides in Foods

The concentration of radioactive material in vegetation results from deposition onto the plant foliage and from uptake of activity initially deposited on the ground. The model used for estimating the transfer of radionuclides from the atmosphere to food products is similar to the model developed for estimating the transfer of radionuclides from irrigation water given in Appendix A of this guide.

a. Parameters for Calculating Nuclide Concentrations in Forage, Produce, and Leafy Vegetables

For all radioiodines and particulate radionuclides, except tritium and carbon-14, the concentration of nuclide i in and on vegetation at the location (r, θ) is estimated using

$$C_i^v(r, \theta) = d_i(r, \theta) \left\{ \frac{r[1 - \exp(-\lambda_{Ei} t_e)]}{Y_v \lambda_{Ei}} + \frac{B_{iv}[1 - \exp(-\lambda_i t_b)]}{P \lambda_i} \right\} \exp(-\lambda_i t_h) \quad (C-5)$$

See Regulatory Position C.1 of this guide for definitions of terms. Values for the parameters r , t_e , Y_v , P , and t_h are provided in Appendix E, Table E-15. For the parameters t_e , Y_v , and t_h , different values are given (in Appendix E) to allow the use of Equation (C-5) for different purposes: estimating concentrations in produce consumed by man; in leafy vegetables consumed by man; in forage consumed directly as pasture grass by dairy cows, beef cattle, or goats; and in forage consumed as stored feed by dairy cows, beef cattle, or goats.

The concentration of tritium in vegetation is calculated from its concentration in the air surrounding the vegetation. Using the method described in Reference 10, the NRC staff derived the following equation:

$$\begin{aligned} C_T^v(r, \theta) &= 3.17 \times 10^7 Q_T [X/Q](r, \theta) (0.75) (0.5/H) \\ &= 1.2 \times 10^7 Q_T [X/Q](r, \theta) / H \end{aligned} \quad (C-9)$$

where

- $C_T^v(r, \theta)$ is the concentration of tritium in vegetation grown at location (r, θ) , in pCi/kg;
- H is the absolute humidity of the atmosphere at location (r, θ) , in g/m^3 ;
- Q_T is the annual release rate of tritium, in Ci/yr;
- 0.5 is the ratio of tritium concentration in plant water to tritium concentration in atmospheric water, dimensionless; and
- 0.75 is the fraction of total plant mass that is water, dimensionless.

TABLE E-15

RECOMMENDED VALUES FOR OTHER PARAMETERS

<u>Parameter Symbol</u>	<u>Definition</u>	<u>Equation(s) Where Used</u>	<u>Values</u>	<u>Reference(s)*</u>
f_g	Fraction of produce ingested grown in garden of interest	14 & C-13	0.76	--
f_l	Fraction of leafy vegetables grown in garden of interest	14 & C-13	1.0	--
P	Effective surface density of soil (assumes a 15 cm plow layer, expressed in dry weight)	4, A-8, A-13, & C-5	240 kg/m ²	10
r	Fraction of deposited activity retained on crops, leafy vegetables, or pasture grass	4, A-8, & A-13 C-5	0.25 1.0 (for iodines) 0.2 (for other particulates)	27 2, 4, 13, 28-31
S_F	Attenuation factor accounting for shielding provided by residential structures	8, 9, 10, 11, 12, B-6, B-7, B-8, B-9, & C-2	0.7 (for maximum individual) 0.5 (for general population)	26 26
t_b	Period of long-term buildup for activity in sediment or soil (nominally 15 yr)	3, 4, A-4, A-5, A-6, A-7, A-8, A-13, & C-5	1.31×10^5 hr	--
t_e	Period of crop, leafy vegetable, or pasture grass exposure during growing season	4, A-8, A-13, & C-5	720 hrs (30 days, for grass-cow-milk-man pathway) 1440 hrs (60 days, for crop/vegetation-man pathway)	10 & 32
t_f	Transport time from animal feed-milk-man	C-10	2 days (for maximum individual) 4 days (for general population)	-- --

*Parameter values given without references are based on staff judgments.

整理番号 CF-39

文献タイトル 放射性核種の農作物への移行 —作物間差および核種間差—

著者名 内田滋夫、住谷みさ子、大桃洋一郎、梅林正直

出典 保健物理 23, 35～39(1988)

発刊機関名 日本保健物理学会

キーワード 移行要因、農作物、放射性核種、水耕液、経根吸収、移行率、可食部

要 旨

移行係数は、農作物可食部中の元素濃度とその農作物が成育した土壌中の元素濃度との比として定義されており、土壌から農作物へのR Iの移行量を算定する基本的なパラメータである。しかし、この値の測定にあたっては、播種から収穫まで比較的長期にわたる栽培実験を必要とし、農作物の種類、放射性核種の種類、土壌p H、環境条件、栽培条件等によって変動することが知られている。

この研究では、6種類のR I (^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{131}I 、 ^{65}Zn 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co)を添加した水耕液を用いて、7種類の農作物(水稲、コマツナ、ホウレンソウ、キュウリ、ナス、ハツカダイコン、大豆)の可食部へのR I移行に関する作物間差、及び核種間差を検討し、以下のような結果を得た。

1) 水耕液から農作物可食部への移行の難易は、おおよそ次の順である。



2) 研究に使用した7種類の農作物について、R I移行に関する作物間差は、2～3桁であった。

整理番号 CF-41

文献タイトル 土壌から農作物への放射性物質の移行係数

著者名

出典 環境パラメータ・シリーズ 1, RWMC-88-P-11

発刊機関名 原子力環境整備センター

内 容

(1)濃縮係数の変動要因

- ①放射性核種の違いとそれらの物理的・化学的存在形態の相違、また共存する同位元素や類似元素の濃度と存在形態の差。
- ②土壌の性質の相違（無機成分・水分・有機物や交換性K・Ca量、粒径組成、pH、酸化還元電位（Eh）等）。
- ③農作物の種の相違と栽培条件（気象条件、施肥等）の差。
- ④実験条件の相違（RIトレーサ実験によったか、フォールアウト核種分析または安定元素分析によったものか、さらにRIトレーサ実験では、実験規模やサンプリング条件の差）。

(2)濃縮係数一覧表

U.S. Regulatory Guide、IAEA Safety Seriesのほか既存文献から土壌－農作物の濃縮係数ヲ一覧表にまとめている。

第5-2表 元素の移行係数(土壌-農作物)一覧 (括弧内の数字は参考文献の番号) Transfer Factors of Radionuclides from Soils to Agricultural Products

出 発 元 素	U.S.NRC 1977 (1)	IAEA 1982 (2)	DOE 1984 (3)	IAEA 1987 (4)	NUREG/CR 1982 (5)	NCRP 1984 (6)	C. E. C. 1979 (7)			R W M C 1 9 8 8						
	農作物の 可食部	農作物の 可食部	野菜・ 果実・ 穀類	農作物の 可食部	———	食用作物の 可食部	註4. (i) 穀類	註4. (ii) 根菜類	註4. (iii) 葉菜類	米 (註1,2) rice	米以外の穀類 cereals excluding rice	い も 類 tubers	根 菜 類 root vegetables	葉 菜 類 leafy vegetables	果 菜 類 fruit	種 実 類 seeds
H	4.8			5												
C	5.5			1×10^{-3}												
Na	5.2×10^{-2}	5.0×10^{-2}	5.2×10^{-2}	5×10^{-2}	$8.2 \times 10^{-1} \sim 2.6 \times 10^{-2}$								8-21 (30)	9-12 (30)		$2 \times 10^{-1-1}$ (30)
P	1.1	1.0	1.1	1												
S		6.0×10^{-1}	5.9×10^{-1}	6×10^{-1}												
K									3-23 (11)							
Ca				3×10^{-1}												
Cr	2.5×10^{-4}	8.0×10^{-4}			$5.4 \times 10^{-3} \sim 2.2 \times 10^{-2}$		3×10^{-4}	3×10^{-4}	3×10^{-4}							
Mn	2.9×10^{-2}	5.0×10^{-1}	2.9×10^{-2}	5×10^{-1}	$6.9 \times 10^{-3} \sim 3.1$		3×10^{-2}	3×10^{-2}	3×10^{-2}	3×10^{-2} (33)	$5 \times 10^{-3} \sim 3 \times 10^{-2}$ (16)	3×10^{-3} (16)	$3 \times 10^{-2} \sim 4 \times 10^{-1}$ (30)	$8 \times 10^{-3} \sim 2$ (16, 30, 33)	1×10^{-3} (33)	$1 \times 10^{-2} \sim 9 \times 10^{-1}$ (16, 30, 33)
Fe	6.6×10^{-4}	7.0×10^{-4}	6.6×10^{-4}		$2.4 \times 10^{-4} \sim 6.8 \times 10^{-4}$		4×10^{-4}	3×10^{-4}	2×10^{-4}				$1 \times 10^{-2} \sim 3 \times 10^{-2}$ (30)	$2 \times 10^{-2} \sim 1 \times 10^{-1}$ (30)		$2 \times 10^{-2} \sim 1 \times 10^{-1}$ (30)
Co	9.1×10^{-3}	3.0×10^{-2}	9.1×10^{-3}	3×10^{-2}	$2.2 \times 10^{-3} \sim 2.0 \times 10^{-1}$	$3.7 \times 10^{-3} \sim 3.0 \times 10^{-1}$	1×10^{-2}	2×10^{-3}	1×10^{-3}	4×10^{-3} (33)	2×10^{-4} (16)	1×10^{-3} (16)	$4 \times 10^{-2} \sim 3 \times 10^{-1}$ (30)	$4 \times 10^{-3} \sim 3 \times 10^{-1}$ (16, 30, 33)	2×10^{-3} (33)	$6 \times 10^{-3} \sim 2 \times 10^{-1}$ (16, 30, 33)
Ni	1.9×10^{-2}	2.0×10^{-2}	1.9×10^{-2}		$7.0 \times 10^{-3} \sim 1.5 \times 10^{-1}$											
Cu	1.2×10^{-1}				$3.0 \times 10^{-2} \sim 8.2 \times 10^{-1}$											
Zn	4.0×10^{-1}	4.0×10^{-1}	4.0×10^{-1}		$7.2 \times 10^{-3} \sim 1.6$		4×10^{-1}	4×10^{-1}	4×10^{-1}	7×10^{-2} (33)	$2 \times 10^{-1} \sim 4 \times 10^{-1}$ (16)	4×10^{-2} (16)	$3 \times 10^{-1} \sim 2$ (30)	$3 \times 10^{-2} \sim 2$ (16, 30, 33)	3×10^{-2} (33)	$2 \times 10^{-1} \sim 1$ (16, 30, 33)
Rb	1.3×10^{-1}						1×10^{-1}	1×10^{-1}	1×10^{-1}							
Sr	1.7×10^{-2}	3.0×10^{-1}	2.9×10^{-1}	3×10^{-1}	$1.6 \times 10^{-3} \sim 1.7$	$1.6 \times 10^{-3} \sim 1.7$	2×10^{-2}	6×10^{-2}	7×10^{-1}	$5 \times 10^{-3} \sim 3 \times 10^{-2}$ (26, 33)	$2 \times 10^{-2} \sim 1$ (13, 16)	1×10^{-2} (16)		$4 \times 10^{-2} \sim 3 \times 10^{-1}$ (16, 33)	4×10^{-3} (33)	$2 \times 10^{-2} \sim 2 \times 10^{-1}$ (16, 33)
Y	2.6×10^{-3}	2.0×10^{-3}	1.3×10^{-3}				3×10^{-3}	3×10^{-3}	3×10^{-3}							
Zr	1.7×10^{-4}	5.0×10^{-3}	1.7×10^{-4}		$3.4 \times 10^{-5} \sim 1.8 \times 10^{-2}$		2×10^{-4}	2×10^{-4}	2×10^{-4}							
Nb	9.4×10^{-5}	1.0×10^{-2}	9.4×10^{-5}				1×10^{-2}	1×10^{-2}	1×10^{-2}							
Mo	1.2×10^{-1}															
Tc	2.5×10^{-1}	5.0	5.0				5.0	5×10^{-1}	5.0		$6 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-1}$ (15, 27)		1-4 (27, 30)	$9 \times 10^{-2} \sim 4.0$ (14, 24, 27, 30, 31)		$2 \times 10^{-1} \sim 2.9$ (24, 27, 30, 31)
Ru	5.0×10^{-2}	8.0×10^{-3}	1.6×10^{-2}	8×10^{-3}	$4.8 \times 10^{-3} \sim 1.4 \times 10^{-1}$	$4.8 \times 10^{-3} \sim 1.4 \times 10^{-1}$	6×10^{-2}	1×10^{-2}	1×10^{-3}				$8 \times 10^{-3} \sim 2 \times 10^{-1}$ (30)			

出 部 位 元 素	U.S.NRC 1977 (1)	IARA 1982 (2)	DOE 1984 (3)	IARA 1987 (4)	NURK/CR 1982 (5)	NCHP 1984 (6)	C.E.C. 1979 (7)			R W M C 1 9 8 8						
	農作物の 可食部	農作物の 可食部	野菜・ 果実・ 穀物	農作物の 可食部	———	食用作物の 可食部	註4 (i) 穀類	註4 (ii) 根菜類	註4 (iii) 葉菜類	米 (註1,2) rice	米以外の穀類 cereals excluding rice	いも類 tubers	根菜類 root vegetables	葉菜類 leafy vegetabes	果菜類 fruit	種子類 seeds
Rh	13															
Ag	1.5×10^{-1}	2.0×10^{-1}	1.5×10^{-1}				2×10^{-1}	2×10^{-2}	2×10^{-1}							
Sb		1.0×10^{-2}	1.1×10^{-2}				1×10^{-2}	1×10^{-2}	1×10^{-2}				$1 \times 10^{-2} - 5 \times 10^{-2}$ (30)	$1 \times 10^{-2} - 2 \times 10^{-1}$ (30)		2×10^{-2} (30)
Te	13	6.0×10^{-1}	13				10	10	10							
I	2.0×10^{-2}	2.0×10^{-2}	5.5×10^{-2}	2×10^{-2}	$2.0 \times 10^{-4} - 1.2 \times 10^{-1}$	$2.2 \times 10^{-4} - 1.9 \times 10^{-2}$	2×10^{-2}	2×10^{-2}	2×10^{-2}	$1 \times 10^{-4} - 8 \times 10^{-3}$ (28)						
Cs	1.0×10^{-2}	3.0×10^{-2}	1.1×10^{-2}	3×10^{-2}	$1.5 \times 10^{-5} - 5.9 \times 10^{-2}$	$1.5 \times 10^{-5} - 2.9 \times 10^{-1}$	6×10^{-3}	5×10^{-3}	2×10^{-2}	$1 \times 10^{-2} - 6 \times 10^{-1}$ (11, 26)	$3 \times 10^{-4} - 6 \times 10^{-2}$ (13, 16)	$2 \times 10^{-3} - 8 \times 10^{-3}$ (16, 22)	$8 \times 10^{-3} - 1 \times 10^{-1}$ (22, 30)	$1 \times 10^{-3} - 8 \times 10^{-1}$ (16, 22, 30)		$5 \times 10^{-3} - 1 \times 10^{-1}$ (16, 22, 30)
Ba	5.0×10^{-3}	5.0×10^{-3}			$4.9 \times 10^{-5} - 3.7 \times 10^{-2}$		5×10^{-3}	5×10^{-3}	5×10^{-3}				$5 \times 10^{-2} - 8 \times 10^{-2}$ (30)	$2 \times 10^{-2} - 5 \times 10^{-1}$ (30)		$2 \times 10^{-2} - 1 \times 10^{-1}$ (30)
La	2.5×10^{-3}	2.0×10^{-3}					3×10^{-3}	3×10^{-3}	3×10^{-3}							
Ce	2.5×10^{-3}	2.0×10^{-3}	6.2×10^{-3}	2×10^{-3}	$4.6 \times 10^{-6} - 1.3 \times 10^{-2}$		3×10^{-3}	3×10^{-3}	7×10^{-3}							
Pr	2.5×10^{-3}						3×10^{-3}	3×10^{-3}	3×10^{-3}							
Nd	2.4×10^{-3}															
Pm		2.0×10^{-3}	2.5×10^{-3}													
Sm		2.0×10^{-3}	2.5×10^{-3}													
Eu		2.0×10^{-3}	2.5×10^{-3}				3×10^{-3}	3×10^{-3}	3×10^{-3}							
W	1.8×10^{-2}															
Pb		1.0×10^{-2}	3.9×10^{-3}									$8 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-3}$ (18, 25)	$7 \times 10^{-4} - 2 \times 10^{-3}$ (18, 25)	$8 \times 10^{-4} - 2 \times 10^{-3}$ (18)		$5 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-3}$ (18, 25)
Bi		1.0×10^{-1}	1.5×10^{-1}													
Po (4, 5)		2.0×10^{-4}	2.6×10^{-4}													
Ra		1.0×10^{-2}	1.3×10^{-2}			$1.1 \times 10^{-4} - 2.0 \times 10^{-1}$				$1 \times 10^{-1} - 2$ (11)	1×10^{-3} (19)	1×10^{-3} (18, 25)	$1 \times 10^{-3} - 4 \times 10^{-3}$ (18, 25)	$1 \times 10^{-3} - 3 \times 10^{-2}$ (18, 25)	$3 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-3}$ (18, 25)	$2 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-2}$ (18, 25)
Ac		1.0×10^{-3}	2.5×10^{-3}													
Th		5.0×10^{-4}	3.5×10^{-4}													
Pa		1.0×10^{-2}	2.5×10^{-3}													

出 産 部 位 元 素	U.S.NRC 1977 (1)	IAEA 1982 (2)	DOE 1984 (3)	IAEA 1987 (4)	NURE/CR 1982 (5)	NCRP 1984 (6)	C. E. C. 1979 (7)			R W M C 1 9 8 8						
	農作物の 可食部	農作物の 可食部	野菜・ 果物・ 穀物	農作物の 可食部	—	食用作物の 可食部	註4 (i) 穀類	註4 (ii) 根菜類	註4 (iii) 葉菜類	米 (註1,2) rice	米以外の穀類 cereals excluding rice	いも類 tubers	根菜類 root vegetables	葉菜類 leafy vegetabes	果菜類 fruit	種子類 seeds
U		20×10^{-3}	29×10^{-4}			$17 \times 10^{-4} - 90 \times 10^{-3}$				$4 \times 10^{-5} - 7 \times 10^{-5}$ (17)	5×10^{-4} (19)	$1 \times 10^{-4} - 9 \times 10^{-4}$ (17, 18)	$2 \times 10^{-4} - 9 \times 10^{-3}$ (17, 18)	$5 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-2}$ (17, 18)	$1 \times 10^{-4} - 8 \times 10^{-3}$ (17, 18)	2×10^{-4} (18)
Br	25×10^{-3}	10×10^{-2}	25×10^{-3}	4×10^{-2}	$28 \times 10^{-2} - 13 \times 10^{-1}$		1×10^{-6}	1×10^{-3}	1×10^{-4}		$8 \times 10^{-3} - 7 \times 10^{-2}$ (32)	2×10^{-3} (32)	$1 \times 10^{-3} - 4 \times 10^{-3}$ (32)	$5 \times 10^{-4} - 6 \times 10^{-2}$ (24, 32)	$4 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-3}$ (32)	$9 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-2}$ (32)
Pu		50×10^{-4}	22×10^{-4}	5×10^{-4}		$12 \times 10^{-7} - 20 \times 10^{-2}$	1×10^{-6}	1×10^{-3}	1×10^{-4}	$3 \times 10^{-5} - 1 \times 10^{-2}$ (11)	$2 \times 10^{-4} - 3 \times 10^{-2}$ (12, 13)	$4 \times 10^{-5} - 1 \times 10^{-3}$ (22, 32)	$9 \times 10^{-6} - 4 \times 10^{-4}$ (22, 32)	$2 \times 10^{-4} - 3 \times 10^{-2}$ (22, 32)	$1 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-3}$ (22, 32)	$3 \times 10^{-4} - 2 \times 10^{-1}$ (12, 32)
Am		10×10^{-3}	40×10^{-4}	1×10^{-3}			1×10^{-5}	1×10^{-3}	1×10^{-3}		$2 \times 10^{-5} - 3 \times 10^{-3}$ (13, 32)	4×10^{-5} (32)	$2 \times 10^{-5} - 2 \times 10^{-4}$ (32)	2×10^{-4} (32)	$3 \times 10^{-6} - 4 \times 10^{-5}$ (32)	$2 \times 10^{-5} - 4 \times 10^{-4}$ (32)
Cm		10×10^{-3}	17×10^{-3}				1×10^{-5}	1×10^{-3}	1×10^{-3}	$1 \times 10^{-5} - 4 \times 10^{-3}$ (11)	$2 \times 10^{-5} - 4 \times 10^{-3}$ (20, 32)	4×10^{-5} (32)	$1 \times 10^{-5} - 3 \times 10^{-4}$ (32)	6×10^{-4} (32)	$3 \times 10^{-6} - 6 \times 10^{-5}$ (32)	$3 \times 10^{-5} - 6 \times 10^{-4}$ (32)

註1：文献(28)(33)は精白米のデータで、他は玄米についての値である。

註2：文献(34)(35)は、乾燥した水稲の葉のハロゲン濃度を、乾燥土壤中濃度に対する移行係数として算出したもので、可食部の値でないで表に記載していないが、G1: 48-98, Br: 2.9-6.2, I: 0.45-0.65という値が報告されている。

註3：文献(36)は *Agropyron* (カモジグサ) 全体の風乾物中 ^{210}Po を測定したものである。可食部でないで表に記載していないが生育していた土壤中の濃度と比較すると移行係数は0.03~0.56となる。

註4：

- (i) grain
- (ii) root vegetables
- (iii) green vegetables

整理番号 CF-44

文献タイトル 原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種による公衆の被曝線量を算出するための計算コード TERFOC-N

著者名 外川織彦

出典 JAERI-M 89-145 (1989)

発刊機関名 日本原子力研究所

要 旨

原子力施設の平常運転時に大気へ放出される放射性核種によってもたらされる公衆の被曝線量を算出するための計算コードTERFOC-Nを開発した。本コードは、植物摂取及び呼吸による内部被曝、空気中の核種及び地表に沈着した核種からの直接線による外部被曝という4つの被曝経路からの個人線量の最大値及び集団線量を計算する。

このうち、食物連鎖モデルは米国原子力規制委員会規制指針1.109のモデルを基礎とし、軽水炉以外の原子力施設に起因する線量もより現実的に評価することができるように改良・拡張した。

本報告書では、使用したモデルと計算コードについて記述し、本コードを使用した計算例を示す。

整理番号 SA-11

文献タイトル PATHWAY : A Dynamic Food-chain Model to Predict Radionuclide Ingestion after Fallout Deposition

著者名 Whicker F.W. and Kirchner T.B.

出典 Health Physics Vol.52 No.6, pp.717-737, (1987)

発刊機関名 Health Physics Society

要 旨

本論文は、放射性核種の食物連鎖移行モデルの計算化のパラメータ値に関する構造と基礎について記述したものである。“PATHWAY”と呼ばれるこのモデルは、20種類の放射性核種が大気から地表に単位沈着した後の人の時間積分経口摂取による被曝線量を推定するものである。このモデルは、土壌中、植物中、動物組織及び畜産物中の放射性核種の量と濃度を沈着後の時間依存の関数として表した連立一次微分方程式を解く。モデルに含まれるダイナミックプロセスには、葉のインターセプション、風化、吸収、植物生長、経根吸収、収穫、老化、土壌からの再浮遊、濾過、浸透、耕作、放射性崩壊、家畜の摂取、吸収、排泄がある。人の食事のデータは、時間依存の放射性核種の摂取率から数値積分して計算される。

モデルは、植物の大きさや動物飼料の季節変化を考慮しており、特別な耕作や収穫日も同様に考慮している。その結果、人に摂取される時間積分の放射性核種の量は沈着の季節的な時間に依存する。農業的なデータベースは米国西部の乾燥地帯または準乾燥地帯の代表値である。

葉への沈着パラメータは、ネバダ試験場での核爆発から数百マイル離れた地域でのフォールアウトに対応する。地表への沈着量 (Bq m^{-2}) が推定できるならば、このモデルを修正して平常時または緊急放出時に適用できる。PATHWAY の出力結果 (沈着量 Bq m^{-2} 当たりの摂取量 Bq) に沈着量と線量換算係数 (Gy Bq^{-1}) を乗じて、ある特定組織の線量が推定できる。

このモデルを動かして、決定論的に単一の推定値を求めたり、推計学的 (モンテカルロ法) にパラメータの不確かさに起因する出力結果に含まれる不確かさを反映する分布形の結果を求めることができる。予想される精度に関するテストについて簡単に示した。また、現在まで公表されている実証試験の文献についても示す。

内 容

(1)コンパートメント種類

- ①表層土壌 ②不安定土壌（中層） ③安定土壌（中層） ④深層土壌
- ⑤～⑧植物表面（アルファルファ、牧草、穀類、作物）
- ⑨～⑫植物内部（ " ）
- ⑬～⑮動物（牛、羊、家禽）
 畜産物（牛乳、鶏卵）

(2)不連続の現象

①沈着

$$f_s = e^{-aB} \quad (\text{土壌表面})$$

$$f_v = 1 - e^{-aB} \quad (\text{植物表面})$$

a は葉のインタセプション係数であり、一般的にはガスまたは粒子が数ミクロンより小さいということで $2.8 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1}$ が使われるが、ネバダ試験場から 129～416km 地点での13回の測定より $0.39 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1}$ を用いた。

②耕うん

4月10日に耕うんがあり、フォールアウトの殆どが中層に分布すると仮定。その割合は表層と中層それぞれ $0.0027, 0.9973$ とした。また、バルク密度はそれぞれ $1.0, 1.46 \text{ g cm}^{-3}$ とした。

③収穫

収穫時に穀類、飼料作物や牧草では $0.015 \text{ dry kg m}^{-2}$ 、アルファルファでは 0.08 kg m^{-2} が残るとしている。収穫時期は年1回、牧草は年5回を仮定している。

④乳牛の食料

一日に17 dry kg を摂取するとしてその飼料の内容を図のように月別に変化させている。

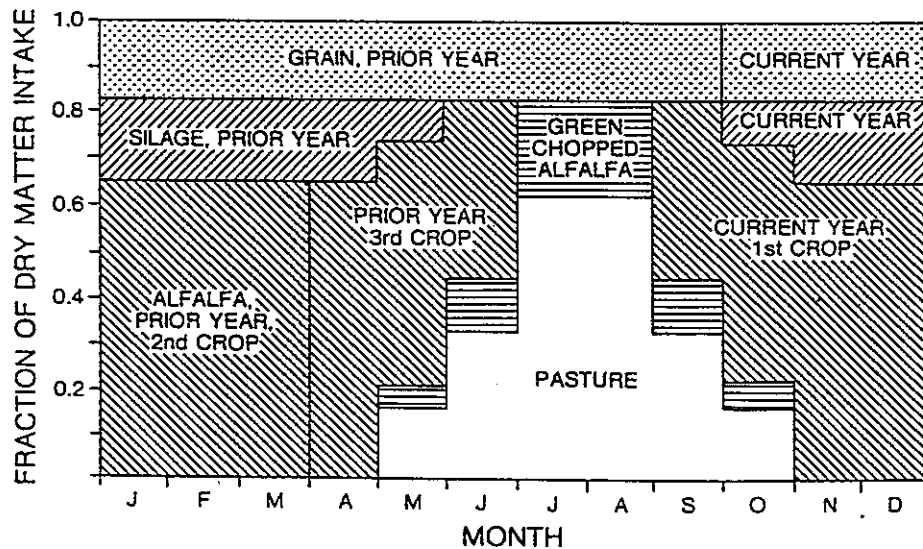


Fig. 2. Generic diet of the dairy cow used in the "benchmark" version of PATHWAY.

(3)連続したプロセス

①再浮遊

多くの再浮遊モデルがあるが、ここでは空気中濃度(Bq/m³)と地表表面密度(Bq/m²)の比で定義されるシンプルな再浮遊係数RFを用いた。RFはおよそ1.0E-10~1.0E-2(m⁻¹)の範囲であるが、砂漠地帯では1.0E-4が妥当である。しかし、もっと植生の多い地域の計算を行うため、1.0E-5をここでは採用した。なお、再浮遊する物質は表層地層(0~0.1cm)からのみである。

再浮遊粒子が植物に沈着する際の沈着速度(V)は大気中の濃度(Bq/m³)と植物上沈着率(Bq/m²/d)の比で測定されるが、例えば2.6~4900m/dとその範囲は広い。ここでは173m/dを用いた。

土壌表面から植物表面への移行率は

$$R_{res} = Q_{ss} \cdot RF \cdot V$$

で求める。

②濾過

再浮遊は時間経過とともに減少することが観測されている。この現象を本モデルでは、表層土壌からその下の土壌への濾過として扱い、結果的に再浮遊の現象を表している。移行率(k_{per})を1.98E-2(d⁻¹) (半減期35日)と仮定した。

③水のはねあがり

地表から植物表面への水のはねあがりによる移行もまた存在する。これは不連続の現象であ

り、推計学的に生じるが、ここでは平均的に生じるとして扱った。移行率 (k_r) は、ロスアラモス国立研究所での実験から $8.6E-4(d^{-1})$ とした。

④風化

植物表面から地表への損失を風化として扱った。移行率 (k_w) は放射性ヨウ素の場合 $7.65E-2$ 、その他の核種では $4.95E-2(d^{-1})$ とした。植物の老化や草食獣の排泄は別個に扱った。

⑤吸着／脱離

放射性核種は、瀘過または耕うんによって根圏ゾーンに入る。この核種はまず、不安定土壌に入り、経根吸収、浸透、安定土壌へ吸着が生じる。安定土壌中の物質は、経根吸収も深層土壌への浸透も生じない。吸着と脱離現象が生じるのは Cs のみとする。これらの移行率は、吸着 (k_{ad}) は $1.9E-3$ 、脱離 (k_{de}) は $2.1E-4(d^{-1})$ とした。このプロセスは他の核種でも生じるが、測定された植物／土壌の濃度比にこの移動度は含まれている。

⑥浸透

不安定土壌 (0.1~25cm) から深層土壌 (>25cm) への放射性核種の浸透は、長半減期核種の場合に重要となる。浸透率 (k_i) は Cs, Sr, Pu の場合それぞれ $6.6E-6$ 、 $6.6E-5$ および $6.7E-7(d^{-1})$ とした。深層は物質の化学的地学的シンクと考えた。

⑦吸収

葉の表面から植物組織内への吸収はフォールアウトの沈着後は支配的であるが、長半減期核種の場合には時間経過とともに経根吸収が重要となってくる。ここでは、吸収率 (k_{ab}) を表面沈着が吸収されるフラクション (f_a) として仮定した。

$$k_{ab} = f_a k_w / (1 - f_a)$$

k_{ab} は、Cs, Te, Mo では $5.5E-3(d^{-1})$ 、Sr, Ba では $1.0E-3$ 、I では $8.5E-3$ とした。他の元素は相対的に不溶解性として 0 とした。

⑧経根吸収および植物の生長

経根吸収は不安定土壌コンパートメント内の量 (Q_{is}) から行われる。経根吸収率の研究があまり無いので、ここでは一般的な濃度比 (CR, Bq/g植物/Bq/g土壌) と植物の生長率 (dB/dt) からなる式で経根吸収率 (R_{up}) を推定した。

$$R_{up} = Q_{is} (dB/dt) CR / (x_r p_s)$$

x_r : 根圏域の深さ (0.25m)

p_s : 土壌バルク密度 ($1.46E3 \text{ kg/m}^3$)

CR は土壌、植物種類やその他の要因によって変化するが、十分な情報がないため、U. S. NRC 1.109 の元素毎の値に若干の修正を加えたものを用いた。感度解析の結果が示すように、経根吸

収はPATHWAY を適用するような状況では人の被曝線量にはあまり寄与しないため、CRの値の不確かさは重要ではない。

植物の生長率(dB/dt)は、日毎に次のモデルで計算される。このモデルは、温度と光の強度によって変わる生長率を用いており、ロジスティック生長と仮定した。人工的な灌漑をすべての作物に仮定するので、水は重要なものとは考えていない。生長期間は1月1日から7月31日とした。

$$\frac{dB}{dt} = k_g \cdot f_l \cdot f_t \cdot B \left(\frac{B_{max} - B}{B_{max}} \right) - AD \cdot FV \cdot f_r$$

k_g : 生長率 (穀類, 飼料用穀類, 牧草では 0.12 d^{-1} 、アルファルファでは 0.27 d^{-1})

f_l, f_t : それぞれ光、温度に関する生長率補正係数(0~1.0) (下図参照)

B : バイオマスの大きさ (dry kg/m²)

B_{max} : バイオマスの潜在的最大大きさ (dry kg/m²) (牧草で0.3, 穀類, 飼料穀類で0.73, range vegetationで0.125, アルファルファ, 人が食べる作物で0.628)

AD : 放牧されている動物の密度 (動物数/m²) (乳牛 $4.9E-4$, 家禽動物 $7.4E-2$, 羊 $8.23E-5$, 肉牛 $2.0E-5$)

FV : 動物の全摂取率 (dry kg/d/ 頭) (乳牛で17, 肉牛で9.2, 羊1.5, 家禽類で0.095)

f_r : 野外の生草を消費する摂取率の係数 (乳牛は④の図参照, 肉牛と羊は1.0, 家禽類では0.053)

Table 1. Values of the plant/soil concentration ratio (CR) assumed in PATHWAY

Element	CR
Cs	1.0×10^{-2}
I	2.0×10^{-2}
Sr	2.0×10^{-1}
Pu	1.0×10^{-1}
Zr	5.0×10^{-3}
Mo	1.0×10^{-1}
Ru	8.0×10^{-3}
Ba	5.0×10^{-3}
Te	6.0×10^{-1}
Rh	8.0×10^{-3}
Nd	2.0×10^{-3}
Ce	2.0×10^{-3}
Np	2.5×10^{-3}

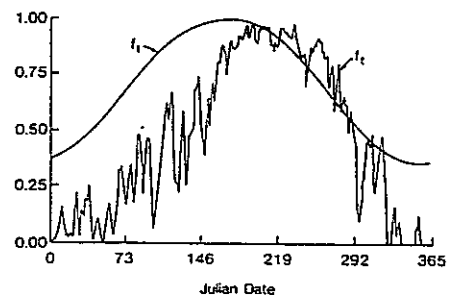
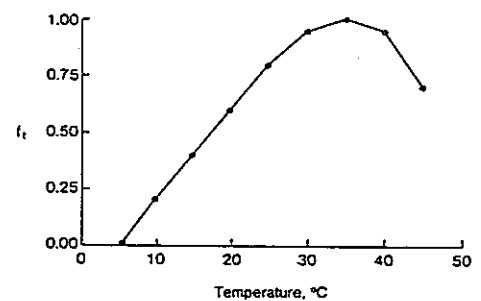


Fig. 3. Upper curve shows the response of f_t (growth rate modifier for temperature) to ambient temperature for alfalfa. Actual daily mean temperatures for St. George, UT, in 1953 were used with the upper curve to generate f_t versus Julian date (lower curve). The lower curve also shows f_l (growth rate modifier for light) versus Julian date for the latitude of St. George. Cloud cover is not considered.

⑨老化

8月1日から12月31日の間は、老化により植物から土壌表面に放射能の輸送が行われると仮定した。このプロセスは他の月では無視できる。故に、8月から12月の間の植物のバイオマスの時間変化は次のようにした。

$$\frac{dB}{dt} = k_g f_i f_t B \left(\frac{B_{max}^* - B}{B_{max}^*} \right) - AD FV f_r - k_s (B - B_{min})$$

k_s : 老化率(野菜作物, 牧草, 飼料用作物では0.05 d⁻¹, アルファルファで0.15 d⁻¹)

B_{min} : 冬期のバイオマスの最小値(穀類, アルファルファ, 牧草, 放牧場でそれぞれ、0.015, 0.08, 0.07, 0.039 dry kg/m²)

B_{max}^* : 補正されたバイオマスの最大値 (dry kg/m²)

$$B_{max}^* = \frac{k_g (B_{max})^2}{B_{max} (k_g - k_s) + k_s B_{min}}$$

植物から土壌表面への老化による放射能の輸送率は次のようにした。

$$R_{sen} = k_s (Q_{vs} + Q_{vi})(B - B_{min}) / B$$

⑩経口摂取および排泄

省略

(4)食料中の放射性核種の濃度

①野菜、フルーツ、穀類

収穫時におけるフルーツや穀類中の濃度 (C_{veg} ; Bq wet/kg) は、

$$C_{veg} = \left(\frac{Q_{vs} + Q_{vi}}{B_h} \right) f_c f_w f_d$$

B_h : 収穫時における植物バイオマス (dry kg/m²)

f_c : 可食部中の濃度残留率 (葉菜で1.0, フルーツや他の野菜で0.05, 穀類で0.25)

f_w : 収穫時に洗浄後の残留率 (葉菜で0.5, 他の野菜、フルーツ、穀類で1.0)

f_d : 湿重量から乾重量への比 (葉菜で0.27, フルーツや他の野菜で0.15)

とした。

②～④肉、牛乳・乳製品、鶏卵

省略

整理番号 SU-42

文献タイトル Behaviour of Long-lived Chernobyl Radionuclides in a Soil-Water System

著者名 Konoplev A.V., Bulgakov A.A., Popov V.E. and Bobovnikova Ts. I.

出典 Analyst 117, pp1041-1047, (1992)

キーワード チェルノブイリ放射性核種の種形成, wash-off, 土壌中および堆積物底での吸着-脱離, 移行, イオン交換

要 旨

野外および室内での実験は、チェルノブイリ事故による影響を受けた地域における長半減期核種の挙動の研究として行われている。土壌中および堆積物底における ^{90}Sr および ^{137}Cs のspeciationが決定された。チェルノブイリのフォールアウトの重要な特徴は、かなりの放射性核種の量が不溶性燃料片の一部であったということから、交換可能な形態は相対的にわずかしが含まれていなかった。土壌中および堆積物底での燃料片の崩壊は非交換形態が交換可能な形態への変転原因となった。放射性核種の種によって、土壌中及び堆積物底での移行経路やその割合は異なっている。各化学形態の移行は、土壌中および堆積物底での放射性核種の移動過程を考慮した移流拡散方程式によって表される。環境中の ^{90}Sr および ^{137}Cs の吸着は陽イオン交換の容量、固相の種類（例えば、土壌、堆積物底、浮遊物質）および液相の陽イオン構造（例えば、土壌の溶解、表面からの流出、河川水、湖の水）に支配される。それらのプロセスに関する対応するパラメータが得られた。

整理番号 SU-43

文献タイトル Applicability of the Convection-Diffusion Mechanism for Modeling
Migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the Soil

著者名 Konshin O.V.

出典 Health Physics Vol.63 No.3, pp.291-300, (1992)

発刊機関名 Health Physics Society

キーワード ^{137}Cs , モデル, ^{90}Sr , 拡散

要 旨

移流拡散方程式は、放射性核種の移行モデルの基礎として解析される。移流拡散方程式の枠組みの中で正確に実験データを表現するためには、放射性核種が土壌層をより深く浸透するにつれ移行係数を増加させたり、観測時間の長さに対し減少するような移行係数を導入する必要がある。 ^{137}Cs や ^{90}Sr の移行における吸着過程が線型であるという仮定は、良くないと思われる。推計学的モデルは、移流拡散というアプローチの主要問題を解決するとは思われるが、そのためには実験物質の幅広い範囲のテストが必要となる。

整理番号 SU-71

文献タイトル Computer Simulation Study of Transient Diffusion of Cesium through Granite with Unsteady-State Diffusion Model

著者名 Park C.K., Park H.H. and Woo S.I.

出典 J. Nucl. Sci. Technol. Vol. 29, No. 8, pp. 786-793, (1992)

キーワード セシウム, 溶解, 花崗岩, 非定常拡散, pore diffusion, 表面拡散

要 旨

放射性核種の岩石中の拡散係数の決定には、定常拡散モデルが広く使われてきた。実験には溶液濃度を一定に保つために、発生源側に緩衝容器を用いるが、非吸着性核種の場合には良いが、吸着性核種の場合は好ましくない。最近、非定常モデルが研究者から提案されている。このモデルでは、実験には緩衝容器のない単純な装置を用いることができる。核種の吸着性による拡散情報をよりたやすく求めるために、through-diffusion 実験を花崗岩で行い、拡散係数の決定方法について検討した。非吸着性の場合では、定常拡散モデルが拡散係数の決定に効果的であった。吸着性の場合では、非定常拡散モデルの解析解が拡散係数の決定により適切であることがわかった。岩石への吸着種の表面拡散が重要な役割をした。

整理番号 SU-72

文献タイトル Sorption and Desorption Behavior of ^{60}Co , ^{85}Sr , and ^{137}Cs in a Porous Tuff — Mechanisms and Kinetics

著者名 Park C. K., Woo S. I., Tanaka T. and KAMIYAMA H.

出典 J. Nucl. Sci. Technol., Vol.29, No.12, pp.1184-1193, (1992)

キーワード 吸着, 脱離, Co-60, Sr-85, Cs-137, 凝灰岩, 粒径, 分配係数, イオン交換, 拡散, 抽出

要 旨

多孔質凝灰岩への吸着特性を研究するため、 ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{137}Cs の吸着実験が行われ、吸着速度と律速段階が調べられた。また、吸着と分配比に及ぼす粒径の影響が調べられた。種々の抽出剤を用いて脱離実験が行われ、地下水条件での可逆吸着、イオン交換、Fe-Mg酸化物やオキシ水酸化物の結合、不可逆固定化などの吸着メカニズムの識別が行われた。Srは凝灰岩表面に反応速度が速く、可逆的反應であるイオン交換反應によって主に吸着される。CoとCsは簡単なステップによっては吸着されない。Coの主な吸着はFe-Mg酸化物への結合であり、不可逆的な固定化も起こる。Coの吸着速度は、鉱物の格子への拡散によって支配される。Csの主な吸着機構は不可逆的固定化であり、イオン交換も生じている。

整理番号 NA-20

文献タイトル 土壌—植物系における亜鉛の挙動に関する基礎的研究 (I)

—亜鉛の分配係数に関する実験的考察—

著者名 保田浩志、井上頼輝、森澤眞輔、堀内将人、西谷英樹

出典 保健物理 Vol. 27, pp. 123~134 (1992)

発刊機関名 日本保健物理学会

キーワード 分配係数、亜鉛、砂、バッチ法、カラム法、土壌pH、温度影響、共存イオン濃度

要 旨

土壌粒子と土壌溶液間の物質濃度比を表す分配係数 (K_d) は、地中での移動の難易を表すパラメータとして、陸圏における汚染物質の影響評価を行う上で重要な指標のひとつである。しかし K_d は、さまざまな物理的・化学的要因によって変動し、報告されている K_d 値をフィールドへ適用するには十分な検討を要する。

ここでは、砂を用いたバッチおよびカラム実験により3つの環境因子 (土壌pH、温度、共存イオン濃度) が亜鉛の K_d に及ぼす影響について検討を行い、以下のような結果を得た。

- 1) バッチ実験を行ったところ、共存イオン濃度が増加するにつれて亜鉛の K_d は急激に低下し、上澄み液中の陽イオン当量濃度と亜鉛の K_d は、両対数紙面上できれいな線形関係を示した。
- 2) 土壌pHが亜鉛の K_d に及ぼす影響は、イオン濃度が希薄であるほど大きくなる。
- 3) 温度が亜鉛の K_d に及ぼす影響は、他の2つの環境因子に比べて比較的小さく、温度による亜鉛の K_d の変動は小さかった。
- 4) カラム法によって再現性よく K_d を定めるには、十分な予備通水を行うことにより共存イオン濃度の変動が対象物質の移動に及ぼす影響を除く必要がある。カラムの流出水中濃度をほぼ定常にするためには、10 pore volumes 程度の通水が必要であった。
- 5) カラム法によって求められた K_d の値は、バッチ法によって得られた値とほぼ同じであった。