

JAERI - M
91-100

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
—第1報 ローム層攪乱試料—

1991年7月

向井 雅之・武部 慎一・古宮 友和・神山 秀雄

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 刷 (株)原子力資料サービス

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

－ 第1報 ローム層攪乱試料 －

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

向井 雅之・武部 慎一・古宮 友和・神山 秀雄

(1991年5月31日受理)

低レベル放射性廃棄物処分施設より漏出した放射性核種の環境中移行シナリオの一つとして、地表水による核種の移行経路があり重要である。このため、放射性核種を含んだ汚染水が緩い斜面を上流より下流に流下する状況を模擬した地表面核種移行試験を進めている。本研究では、浸透抑制条件下の地表面における核種吸着状況を把握するための試験を行い、地表流の流量と流下時間を組み合わせた数種類の試験条件で、流出液中核種濃度の経時変化と土壌吸着濃度の分布を求めた。流出液中核種濃度は、流下時間によらずほぼ一定で、流量が小さいほど減少した。土壌吸着濃度は、流入口付近の急激に濃度が減少する部分と、それ以降の濃度がほぼ一定の部分の2つからなる特徴的な分布を示した。この分布は、地表流の流動を2次元の拡散と鉛直流速分布を有する1次元の移流で与え、吸着を1次吸着反応式で表したモデルで大局的に近似することができた。

Radionuclide Transfer onto Ground Surface in Surface Water Flow
1. Disturbed Loamy Soil

Masayuki MUKAI, Shinichi TAKEBE, Tomokazu KOMIYA
and Hideo KAMIYAMA

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

(Received May 31, 1991)

Radionuclides migration in ground surface water flow is considered to be one of the important path way in the scenario for environmental migration of radionuclides leaked from low level radioactive waste repository. Simulating the slightly sloped surface on which contaminated solution is flowing downward, testing for radionuclide migration on ground surface had been started. As it's first step, an experiment was carried out under the condition of restricted infiltration in order to elucidate the adsorption behavior of radionuclides onto the loamy soil surface in related with hydraulic conditions.

Radionuclides concentration change in effluent solution with time and a concentration distribution of radionuclides adsorbed on the ground surface were obtained from several experimental conditions combining the rate and the duration time of the water flow. The radionuclides concentration in the effluent solution was nearly constant during each experimental period, and was reduced under the condition of lower flow rate. The surface distribution of radionuclides concentration showed two distinctive regions. The one was near the inlet vessel where the concentration was promptly reducing, and the other was following the former where the concentration was nearly constant. The characteristic surface distribution of radionuclides concentration can be explained by a two dimensional diffusion model with a first order adsorption reaction,

based on the advection of flow rate distribution in perpendicular direction.

Keywords: Radionuclide Migration Test, Ground Surface, Surface Water Flow, Calculating Model, Advection and Dispersion Equation, Two Dimensional Model

目 次

1. 緒 言	1
2. 試験方法	1
3. 試験結果	2
4. 考 察	3
5. 結 言	6
謝 辞	7
参考文献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Method	1
3. Experimental Results	2
4. Discussion	3
5. Conculusion	6
Acknowledgment	7
References	7

1. 緒 言

本研究は、低レベル放射性廃棄物の浅地層処分の安全評価に資するため、処分施設より流出した放射性核種が地表面に移行する場合を想定して、地表面核種移行モデルを検討することを目的としている。図1に示したような地質構造では、処分施設より流出した核種は、ローム質土壌、砂質土壌および砂岩・凝灰岩の表面上を移行し、標高の低い地域に流下する可能性がある。

日本原子力研究所では、地下水面より上方の通気層および下方の帯水層について未攪乱試料および攪乱試料を使用した環境シミュレーション試験を実施し、浅地層中における放射性核種の移行挙動について研究を進めている¹⁾²⁾。地表面における核種移行については、データがほとんどない状況から、地表面における核種吸着移行状況等を水理条件に関連させて試験的に把握する必要がある。このため、未攪乱で採取した地表面土壌試料を用い、放射性核種を含む汚染水を緩い斜面を上流より下流に流下しつつ土壌と反応してゆく状況を模擬し連続的に流下する試験が実施できる放射性核種地表面移行試験装置³⁾を製作し、この試験装置を用いた核種移行試験を進めている。

地表面における核種の吸着移行に関係する水理条件には、地表流の流速、水深、浸透速度等の多くの要因が考えられるが、試験の第一段階として、ローム層攪乱土壌に対し、地中への浸透を抑制した条件で試験を行った。本報では、得られた流出水中の核種濃度の経時変化および地表面の核種吸着濃度分布について、基本的な移行モデルを用いた検討について報告する。

2. 試験方法

試験には放射性核種地表面移行試験装置を使用した。試験装置は、流入槽、土壌槽、流出槽、ポンプ等から構成されており、土壌槽に充填した試験土壌に放射性水溶液を上流端の流入槽から連続して流下し、下流端の流出槽に集水する方法で実施した(図2)。土壌槽(240cmL×20cmW×10cmD)に充填した土壌は、青森県内において図1に示したような地層の内、地表層より攪乱採取したローム土壌であり、約5mmのふるいで礫等を除去した後、各試験に対し等量の土壌を使用した。試験に使用したローム質土壌の主な土壌物性および水理特性を表1に示す。試験においては、浸透による放射性核種の地中への移行がない条件を実現するため、流入側、流出側の土壌槽の壁を遮水し、土壌水の外部への流出を抑制した。さらに、試験開始前に十分な時間蒸留水で冠水させて飽和状態にし、土壌内への

地表水の浸透を抑制した。土壌試料の表面をできるだけ均一平滑にし、試験開始直前に土壌表面に500mlの蒸留水を散布し湿潤状態にした後、放射性水溶液を流下する試験を行った。

放射性水溶液は、各々約56 Bq/mlに調整した ^{60}Co 、 ^{90}Sr および ^{137}Cs の3核種混合溶液を使用した。試験条件として、放射性水溶液の流量と流下させる時間との組合せを変えて、流下時間が等しく、流量が異なる条件（試験条件Ⅰ）と流量がほぼ等しく、流下時間が異なる条件（試験条件Ⅱ）の2条件で計6ケースを設定した（表2）。試験時間中は、適宜時間を設定して流出水の採取（5ml）を行った。流出水を採取した100mlのポリ瓶に蒸留水を45ml加えて測定試料とした。試験終了後、あらかじめ決めた採取位置で、土壌表面の面積が一定になるようにして表面土壌の採取を行った（面積：2cmL×20cmW）。採取する深度は、土壌中の放射性核種濃度の鉛直分布を採取作業前に予備的に求めた結果から、核種の回収に十分な2cmとした。土壌試料を乾燥後、直径8cmのプラスチック容器に全量を入れ、0.1Nの塩酸溶液を50ml加えたものを測定試料とした。これらの流出液および土壌測定試料の放射性核種濃度は、Ge半導体 γ 線スペクトロメータによる定量分析により決定した。

3. 試験結果

流下時間と流量との組合せを変えて行った6ケースの試験の内、流下時間が等しく流量が異なる試験条件Ⅰにおける3ケースの結果について、流出液中の核種濃度の経時変化を図3に示す。図中、横軸は流入後の経過時間、縦軸は流出濃度を流入濃度で規格化した値を示しており、A、B、Cでそれぞれ流量が異なっている。これらの図から、3核種ともにそれぞれ試験期間中にわたってほぼ一定の流出濃度で流出していることが分かる。さらに、流量が小さい場合ほど、一定となる流出濃度が低くなっている。また、図中で▲印で示した ^{137}Cs は、他の核種に較べて流出濃度が低く、特に、流量が約30ml/minの場合には、流入濃度の約30～40%に減少し、他の核種と比較して流出濃度が低い。

試験条件Ⅰにおいて、土壌表面の単位面積あたりに吸着した核種量（Bq/cm²、以下吸着濃度）と流入部からの距離との関係を表したものを図4に示す。図3と同様にA、B、Cでそれぞれ流量が異なる。Aの分布中、距離25cm～75cmの領域と距離200cm以降の領域の核種吸着濃度が高くなっているのは、地表流の流下に伴い平滑にした地表面が次第に鱗片状になった観察結果から、地表水中核種の土壌面との接触面積が平滑面に比べ増大したことによるものと考えられる。また、Bの分布中、最も下流の距離235cmの吸着核種濃度が高いのは、試験終了後に土壌槽を傾斜させ土壌表面から地表水を除去する過程において、除去されずに残留した

地表水中の核種によると考えられる。これらの図から、流量が大きい場合ほど土壌の吸着濃度が高くなること、吸着濃度の値が急激に減少する流入部近くの領域と、それに続く下流側のほぼ一定の領域の2つの特徴的な領域に大別できることが分かる。また、核種間の分布の差異に関しては、 ^{137}Cs が他の核種に較べて、吸着濃度が高くなっている。

次に、流量がほぼ等しく流下時間が異なる試験条件Ⅱにおける4ケースについて、流出濃度の経時変化をそれぞれの核種ごとに図5-1~3に示す。この図から、3核種ともに流出が開始した時点のごく近くの立ち上がり部分を除いて、ほぼ一定の濃度で流出しており、200時間経過するまで流出濃度がほぼ一定であることが分かる。 ^{60}Co および ^{89}Sr については、流出濃度は ^{137}Cs に比較して高いものの、経時的な傾向は同じである。

試験条件Ⅱにおいて、各流下時間が経過した後の土壌中の吸着濃度と流入部からの距離との関係を図6に示す。この図より、3核種ともに吸着濃度分布が前述した特徴的な分布を保ちながら、流下時間が長くなるにつれて吸着濃度の値が次第に増加してゆくことが分かる。

4. 考 察

図6-1~3に示した試験条件Ⅱにおける流下時間と土壌表面の吸着濃度との関係の内、流入部に最も近い部分の土壌について、流下時間と吸着濃度との関係を図7に示す。流入部近くの土壌を選んだ理由は、土壌に接触している地表水中の核種濃度が流入槽中の核種濃度に近く、試験中ほぼ一定の濃度に保たれていると考えられるからである。図の中央の直線は、流下時間と吸着濃度の比例性を示す直線（傾き1）の一例であり、3核種ともに流下時間の短い試験結果を除き、この直線とほぼ平行になっている。流下時間の短い試験における値が直線よりも上にずれているのは、地表流の水深が定常に到達するまでに要する時間の全流下時間に占める割合が、流下時間の長い試験と比較して流下時間の短い試験で相対的に大きく、流下時間の短い試験の流速が流下時間の長い試験と比べて速くなったことに起因すると考えられる。時間対吸着濃度の関係が傾き1の直線に平行であることは、土壌表面の吸着濃度が流下時間に比例していることを示しており、流下時間1時間におけるY切片から、試験におけるそれぞれの核種の1時間あたりの吸着濃度の増加量、すなわち吸着速度を求めることができる。流下時間が最も長い200時間の場合について、吸着濃度の値から求めた各核種の吸着速度は、 ^{89}Sr が $6.27\text{Bq}/\text{cm}^2/\text{hr}$ 、 ^{137}Cs が $19.47\text{Bq}/\text{cm}^2/\text{hr}$ 、 ^{60}Co が $8.08\text{Bq}/\text{cm}^2/\text{hr}$ であり、 ^{137}Cs が最も大きな値となった。

土壌表面に吸着した吸着濃度分布の結果から見出された2つの特徴、すなわち、

①流量が少ないほど土壤に吸着する濃度が小さいこと、②吸着濃度の分布が流入部近くの急減領域と、下流側の一定領域の特徴的な2領域に分かれたことについて検討するため、水の移行と核種の吸着をモデル化しシミュレーション計算を行い、試験結果と比較した。なお、浸透がない条件で試験を行っていることおよび試験時間があまり長期間ではないことから、核種が土壤の表面に吸着した後の土壤層内部への移流および拡散は考慮していない。

検討に使用した地表水中核種の移行式は、核種の移行媒体である地表水を、拡散を流れ方向と水深方向の2次元で考慮し、移流を水深により流速が漸減する流れ方向の層流として取り扱う以下の式を使用した。

$$-\frac{\partial C}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - V(z) \frac{\partial C}{\partial x} \quad (1)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial Q}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (2)$$

$$V(z) = \frac{3}{2} V_m \left(1 - \left(1 - \frac{z}{H} \right)^2 \right) \quad (3)$$

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = k_1 \cdot C \quad (4)$$

ここで、Cは地表水中核種濃度、Qは土壤表面に吸着した核種濃度をそれぞれ表しており、X方向が地表水の流れ方向、Z方向が鉛直方向をそれぞれ示している。吸着濃度Qの時間変化を含む(2)式は土壤表面に接する地表水について、(1)式はそれ以外の水深の地表水について適応する。地表流の最下層においては移流速度はゼロであると仮定し、(2)式中の移流項を省略した。地表流の拡散係数は、X、Z方向ともに定数で与えている。一般的に、 D_x にくらべて D_z は非常に小さいので⁴⁾、計算では D_x と D_z の比を100とした。移流に関しては、X方向のみ移流を考慮し流速に鉛直分布を与えた。流速の鉛直分布として、層流状態の鉛直分布を近似した(3)式を用いた⁵⁾。(3)式中、 V_m は地表流の平均流速、Zは土壤表面から上方への距離、Hは水深を表しており、前述のとおり地表流の最下層の流速はゼロとなるようにした。一方、放射性核種の土壤表面への吸着は、前述した試験結果から1次の反応速度式による非可逆反応とし、その速度定数を k_1 とした(4)式)。

これらの移行式を有限差分近似を用いて定式化した計算コードを作成し、流下方向の距離と吸着濃度との関係を求める計算を行った。計算には日本原子力研究所東海研究所計算センターの大型計算機システムを使用した。特徴的な分布を大局的に近似することができた計算例として、 ^{137}Cs の30mℓ/minと200mℓ/minの2

つの流量の場合について、流下方向の吸着濃度分布の測定値と計算値との比較を図8に示す。縦軸は、土壌中の吸着濃度を流下させた水溶液中の核種濃度で割った相対的な値で表している。図中の吸着濃度分布の計算値から、前述した特徴的な2つの領域がよく再現されていることが分かる。この計算のために入力したパラメータの内、水深は、試験終了時に土壌表面上に残留していた水溶液を集水して測定した体積を、土壌面積で除して求めた平均的な水深から全実験共通に4mmとした。また、平均流速は各実験の流量を、水深と槽幅で除してそれぞれ3.75cm/minおよび25cm/minとした。流下方向の拡散係数は一定の範囲で変化させた結果からそれぞれ $0.035\text{cm}^2/\text{hr}$ および $0.05\text{cm}^2/\text{hr}$ を用い、水深方向の値にはこの100分の1の値を用いた。 ^{137}Cs に対し用いた吸着反応速度定数 k_1 は一定としたが、流入部付近の吸着速度から推定した値(0.40cm/hr)の約10倍(3.6cm/hr)に設定する必要があった。この理由として、測定値から推定した反応速度定数は、流れ方向および水深方向でそれぞれ平均化された吸着濃度および地表流中濃度から求められた値であるため、モデル内で使用した土壌表面と接触して存在する地表流中の放射性核種と土壌との反応に対する値よりも大きく設定する必要があったものと考えられる。

上記の分布を近似できた計算モデルの計算結果をもとにして、2つの特徴的な吸着領域における地表流中核種濃度の鉛直方向の違いを検討した。濃度の鉛直分布を計算した位置は流入部に近い上流から1cmの位置、分布の変曲点に相当する25cmの位置、ほぼ一定の濃度分布が実現されている下流の215cmの位置、そしてこれら2点の中間の119cmの位置の4点である(図9)。計算で吸着濃度分布の特徴がよく近似されている ^{137}Cs について、流量が $30\text{ml}/\text{min}$ の場合を図10に示す。縦軸は、地表流中の核種濃度を流入させた濃度で表した相対値、横軸は、地表面から鉛直上方への距離を表しており、0.4cmが水面を示している。この図から、上流側地表水の地表に接する部分に濃度の低い部分が生じ、下流に進むにつれて土壌への吸着により濃度が徐々に減少していることが分かる。その結果形成される鉛直方向の濃度勾配は、流入部付近では急であるものの、下流になるにしたがって緩やかになるとともにその変化の割合も小さくなっている。流下距離1cmで形成される急な濃度勾配は、地表流中の平均濃度に比べて土壌表面に接した部分の濃度が低いことを示しており、計算モデル内で使用した吸着反応速度定数を、測定値から推定した値よりも大きくする必要性を支持するものと考えられる。勾配の変化が緩やかな部分は、一定の吸着濃度分布が形成された下流部分と対応している。この勾配の値は核種の吸着速度と鉛直方向の拡散の大きさの相対的な関係により決定されるものと考えられる。したがって、地表流の流れが長距離に及ぶ場合には、下流部の吸着量が全吸着量に占める割合が相対的に増大するため、この下流部の勾配の値が評価において重要なパラメーターになるものと推定される。

さらに、流下方向に長距離隔てた地点において流出する地表水中の核種濃度を求めることを試みた。上記モデルにより240cmまでのいくつかの流下距離について

核種濃度を計算した結果に基づいて、地表流の流速分布を考慮した長距離での地表水の流下距離 x と核種濃度 $C(x)$ との関係が、以下の式により近似できることが分かった。

$$C(x) = C_0 \times 10^{-a \cdot x^b} \quad (5)$$

この近似式が数100m程度まで外挿可能であると仮定して、各流下距離において流出する地表水の濃度を計算により求めた結果を図11に示す。流下距離10mにおいては、流速3.75cm/minの時は初期濃度の約35%まで減少し、流下距離100mにおいては約0.3%に減少する。流速が25cm/minと速くなると流下距離10mにおいて70%程度、流下距離100mにおいて約20%程度に、流下距離200mにおいては数%に減少することが示された。実際の自然環境における地表流では今回の試験条件よりも流速は速くなると考えられるが、流路の屈曲および凹凸が複雑なため地表流中の鉛直方向の拡散が大きくなるため土壌の核種吸着速度が増加することが推定される。

5. 結 言

地表面を模擬した緩い斜面上を流下する放射性水溶液を想定し、核種移行試験を行った。土壌試料としてローム層攪乱土壌を用い、試料液として ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の3核種混合溶液を使用した。今回は、試験条件として、浸透抑制条件下において、放射性水溶液を流下させる時間と流量との組み合わせを変えて6ケースの試験を行った。その結果、流出液の核種濃度は、流下時間によらずほぼ一定で、流量が少ないほど減少した。また、土壌中の吸着濃度分布は、流入部の急減領域と、下流のほぼ一定の領域の、2つの特徴的分布を示した。地表流中の核種の挙動を2次元の拡散と、鉛直流速分布を有する1次元の移流で近似し、土壌への吸着を1次吸着速度式で表したモデルを使用し検討した結果、特徴的な土壌の吸着濃度分布を大局的に近似できた。土壌中の核種濃度がほぼ一定の領域では、地表水中濃度の鉛直勾配が、流下距離によらずほぼ一定になっていることが推測された。

謝 辞

本試験に用いた土壌試料の採取に協力していただいた方々に感謝いたします。
また、試料の放射能測定に協力していただいた原子力サービス㈱の安忠義氏に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1)山本忠利 他、未攪乱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、30、p. 942-949 (1988)
- 2)大塚芳郎 他、海岸砂層地域およびローム層地域の帯水層試料を用いた放射性核種移動試験、日本原子力学会誌、31、p. 1377-1382 (1989)
- 3)向井雅之 他、放射性核種地表面移行試験装置の性能試験、JAERI-M、89-181
- 4)室田 明 編、水理公式集、社団法人土木学会、p. 46-47 (1986)
- 5)城塚 正 他、化学技術者のための移動速度論、オーム社、p. 43-44 (1966)

表1 土壤試料の主な物性値

比重	2.753
自然含水比(質量%)	60.7
湿潤密度(g/cm ³)	1.413
乾燥密度(g/cm ³)	0.880
固相(体積%)	32.0
液相(体積%)	53.3
気相(体積%)	14.8
不飽和透水係数 (cm/s at 20cmH ₂ O)	3.06×10^{-6}
飽和透水係数(cm/s)	4.95×10^{-4}

表 2 各ケースごとの試験条件

ケース	流量 (ml/min)	流下時間 (hr)	
A	197.7	10	試験条件 I
B	97.6	10	
C	29.7	10	
D	31.7	2.5	試験条件 II
E	34.5	4.5	
F	35.7	20.0	

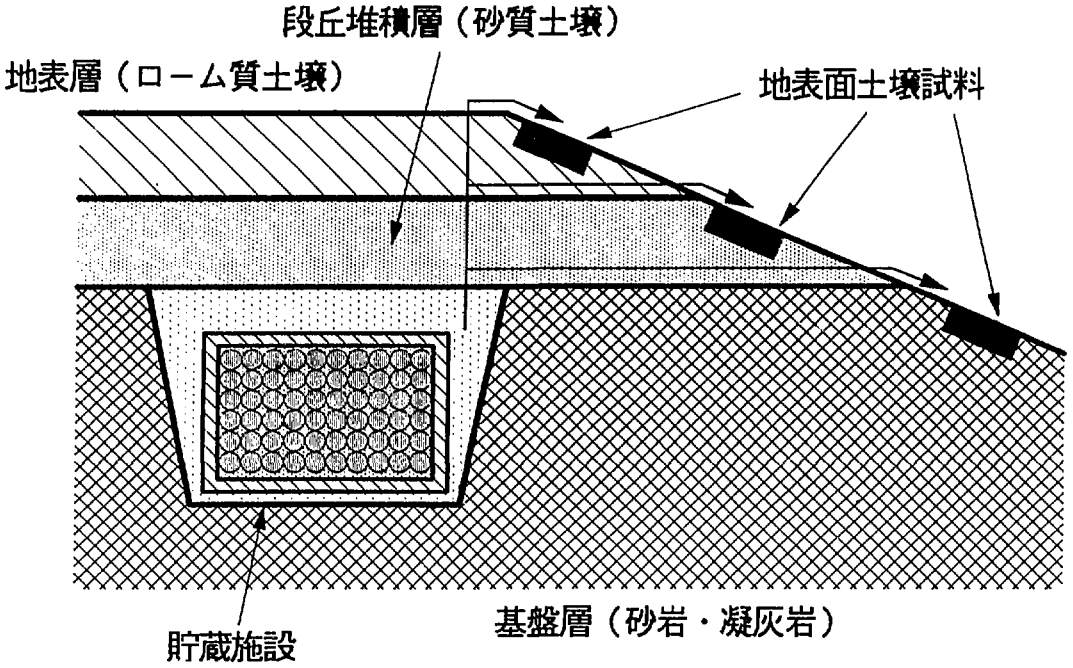


図1 想定される核種の移行経路

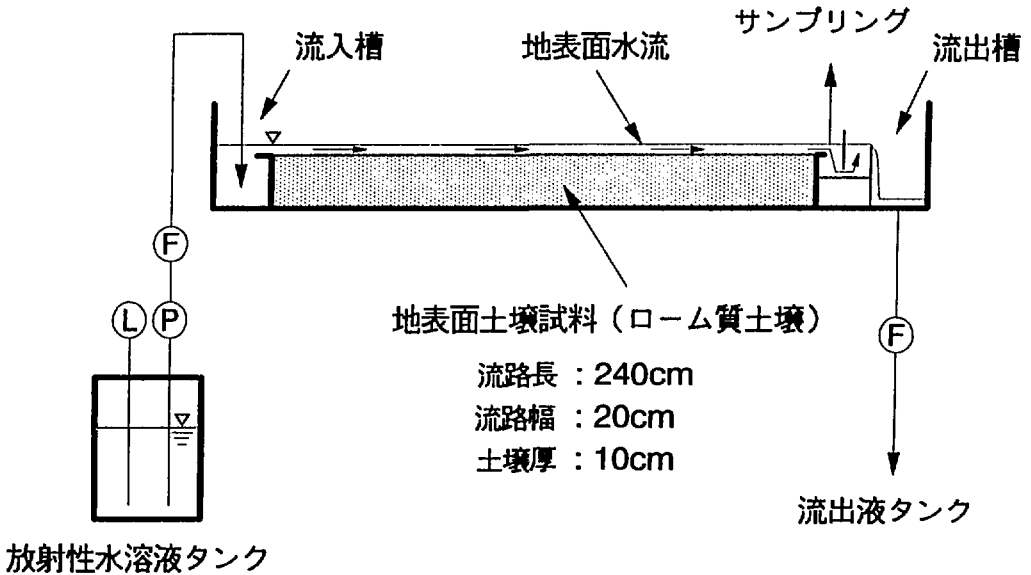


図2 試験装置および試験方法の概略

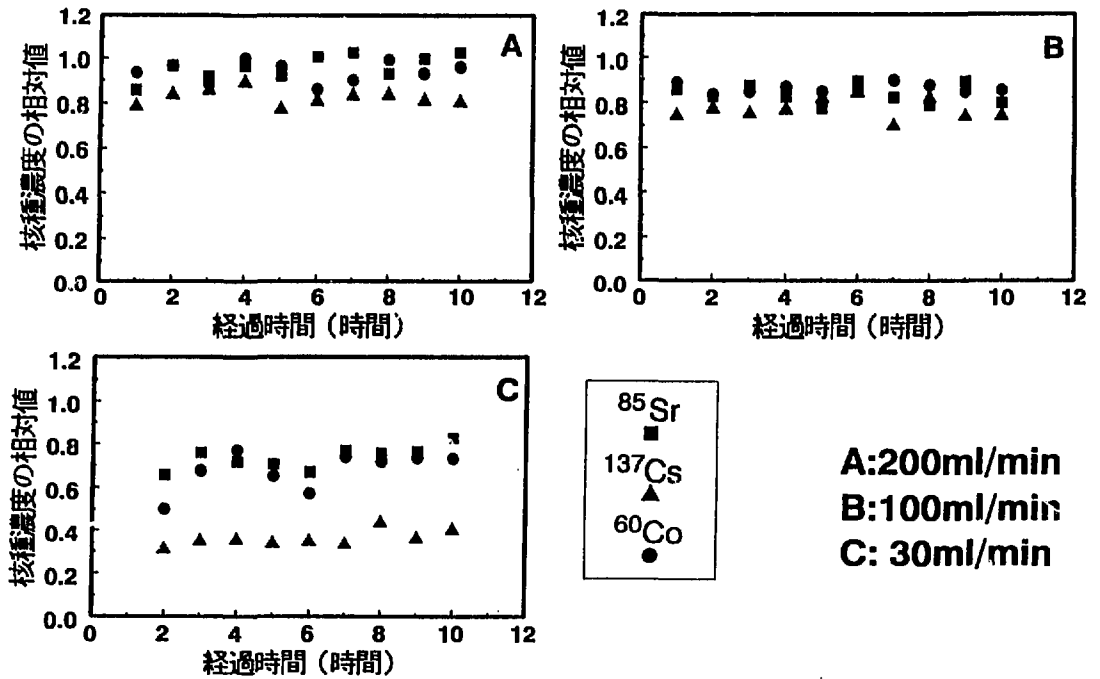


図3 流出液中核種濃度の経時変化

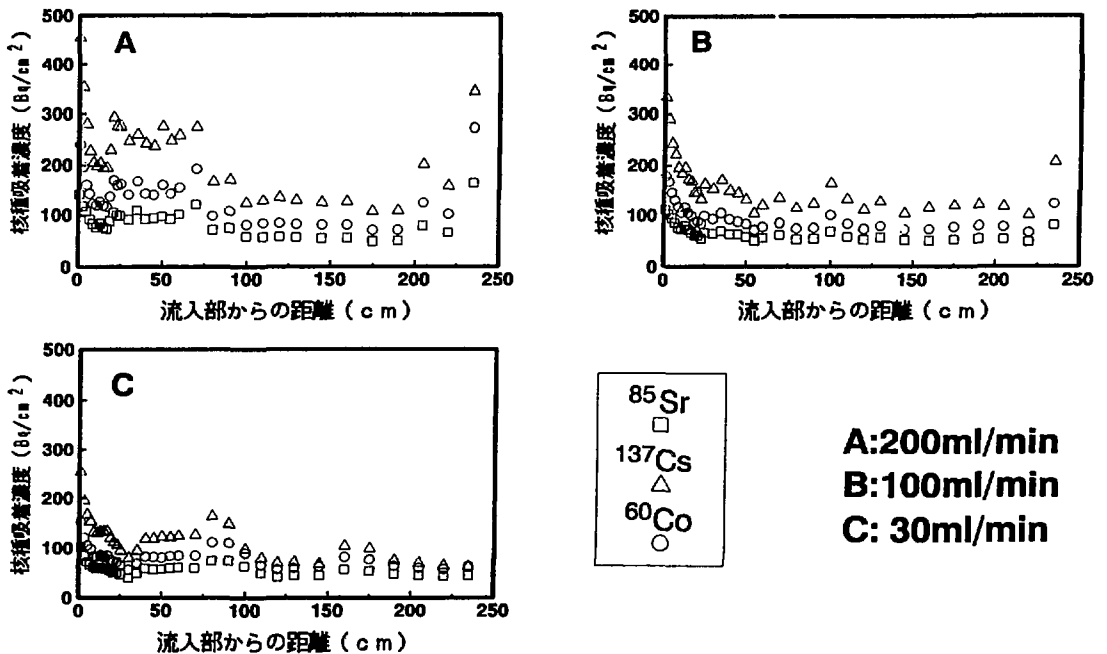


図4 流下方向の土壤中核種濃度分布

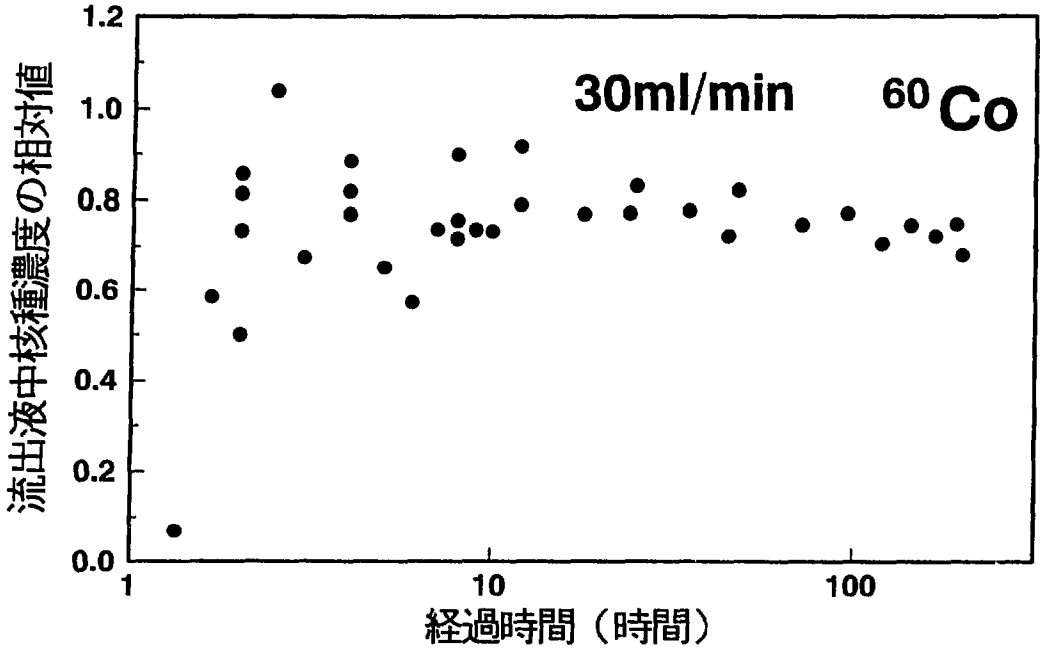


図5-1 流出液中核種濃度の経時変化

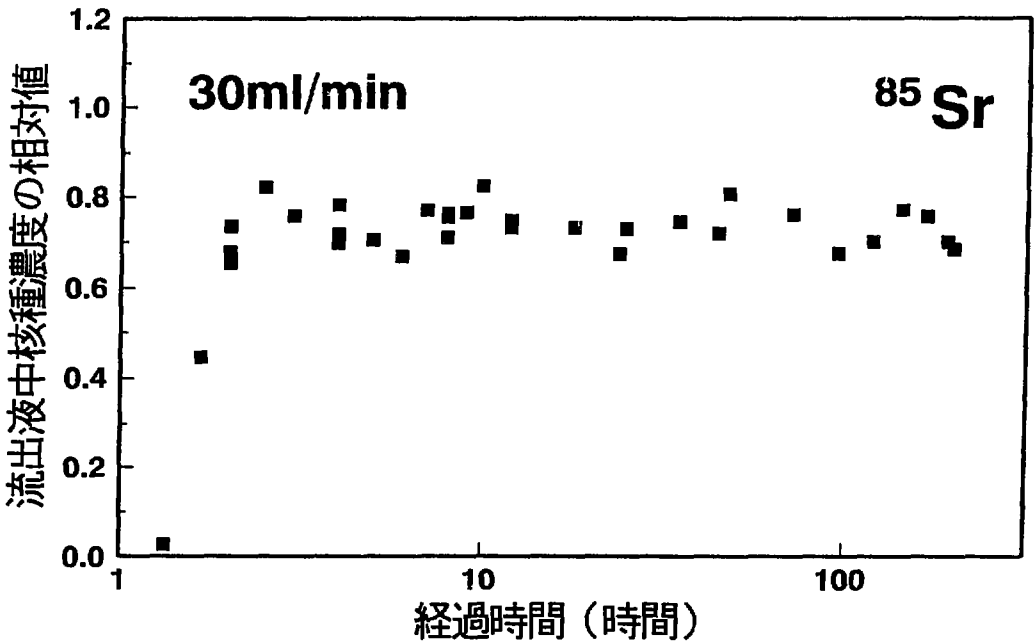


図5-2 流出液中核種濃度の経時変化

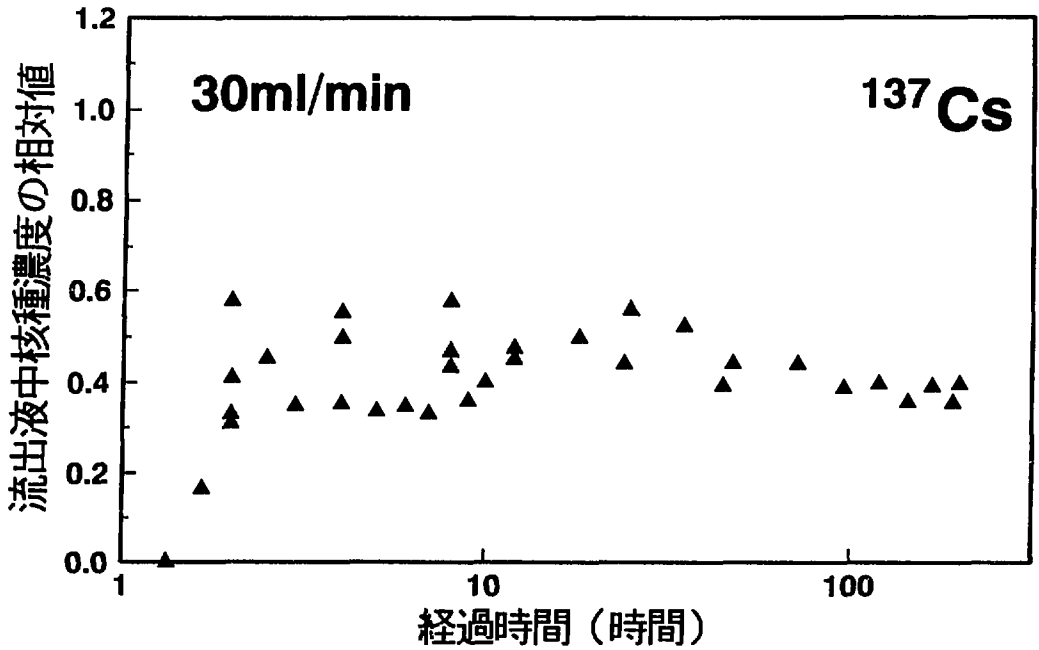


図5-3 流出液中核種濃度の経時変化

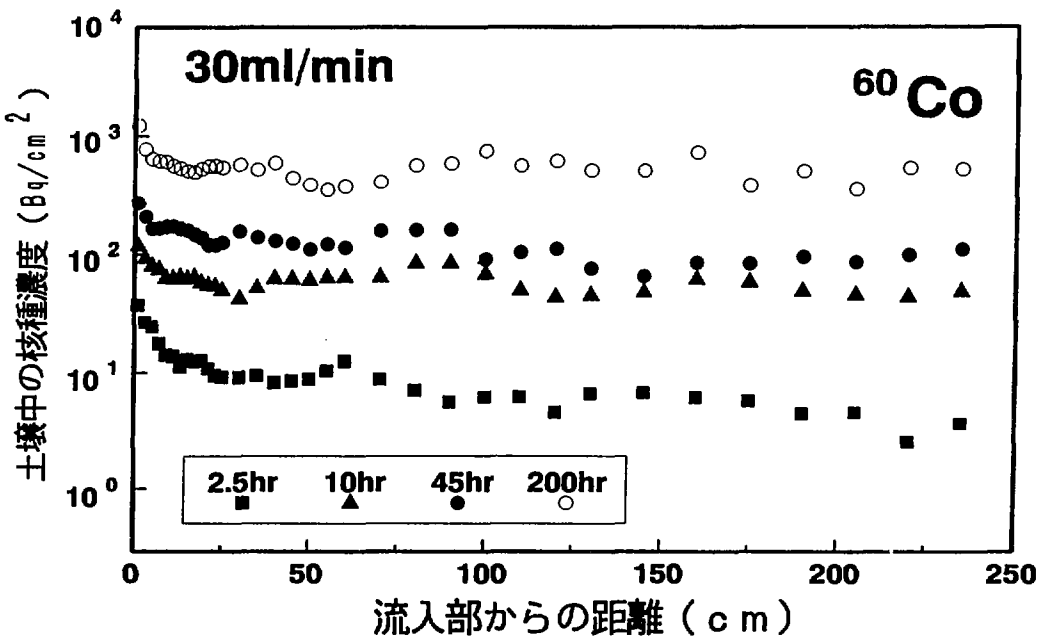


図6-1 流下方向の土壌中核種濃度分布

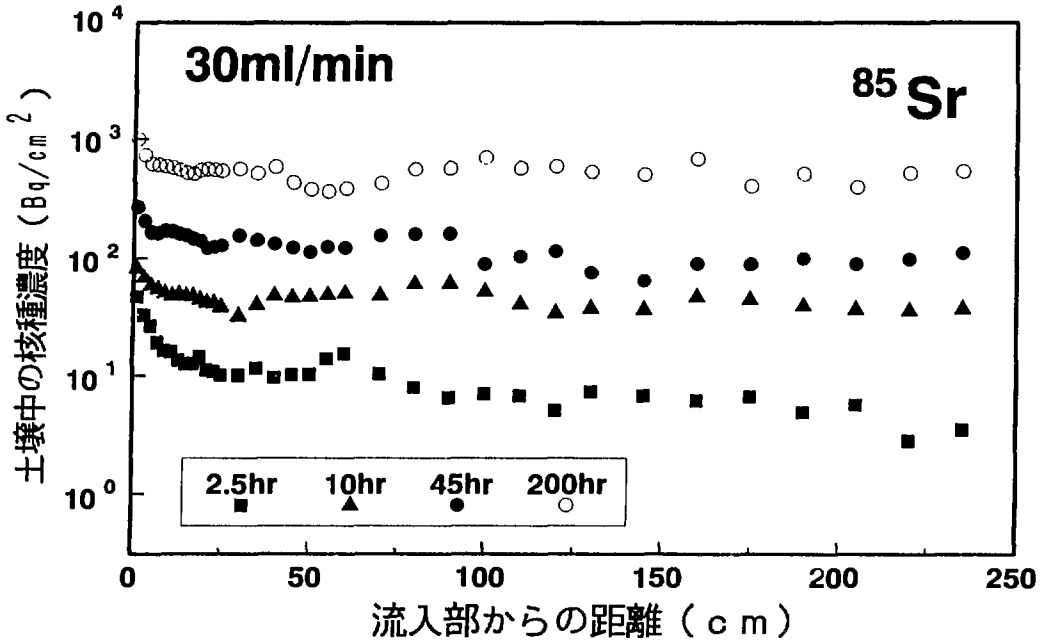


図6-2 流下方向の土壌中核種濃度分布

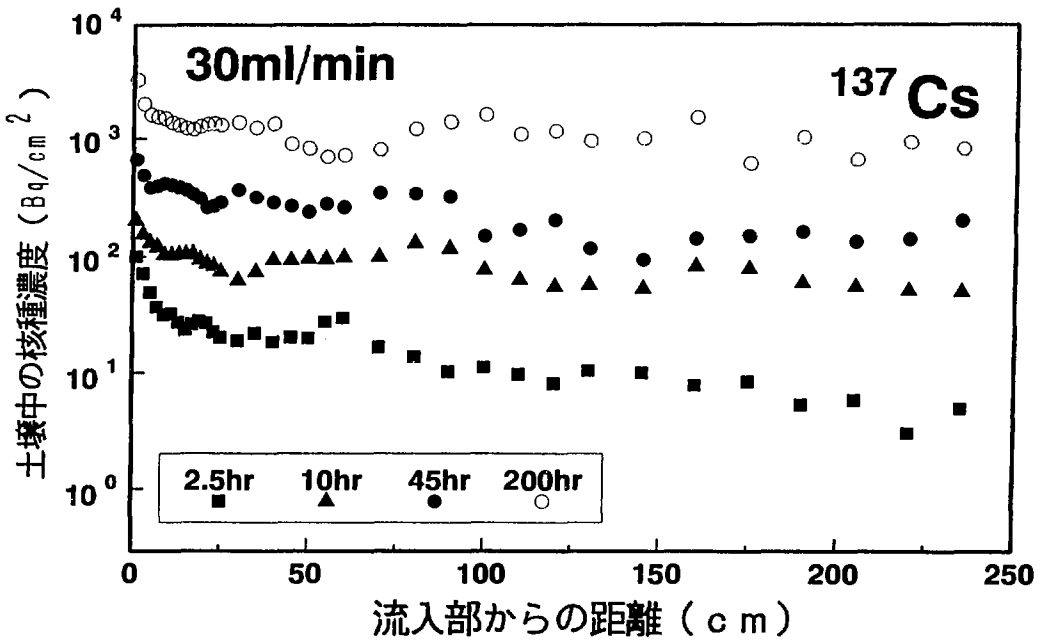


図6-3 流下方向の土壌中核種濃度分布

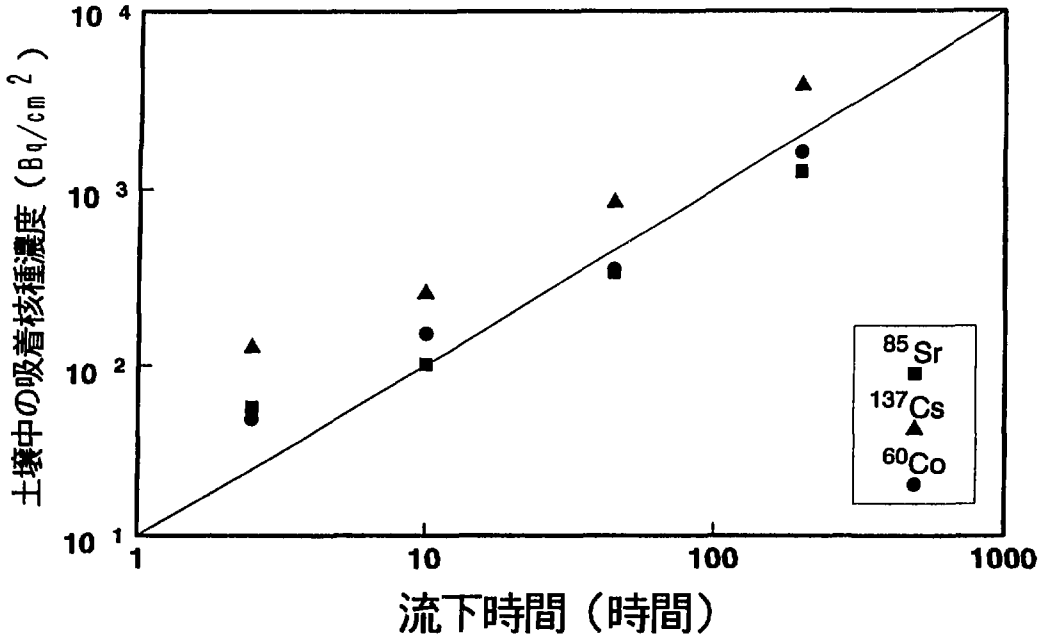


図7 流入部近くにおける土壌中の吸着核種濃度と流下時間との関係

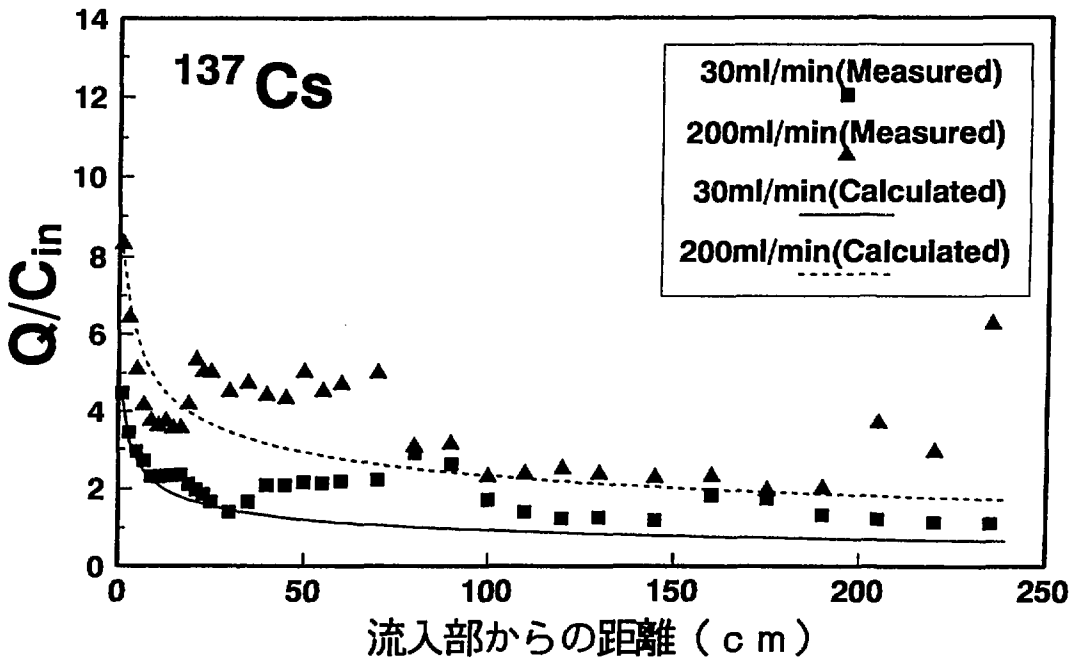


図8 流下方向の土壌中吸着濃度分布の測定値と計算値

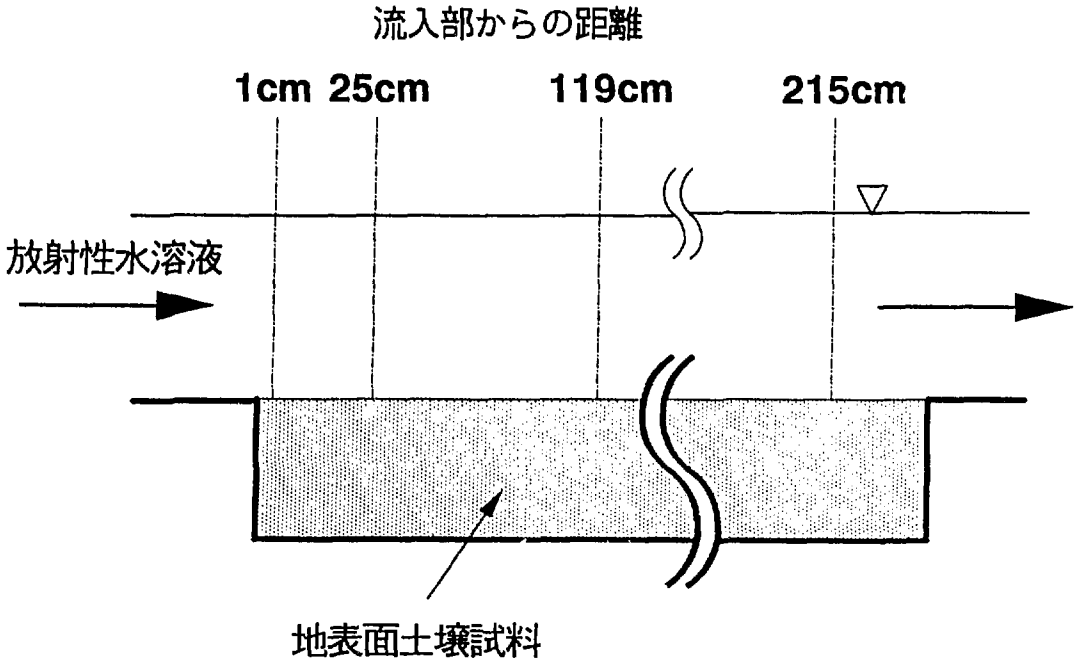


図9 地表水中核種濃度の鉛直分布計算位置

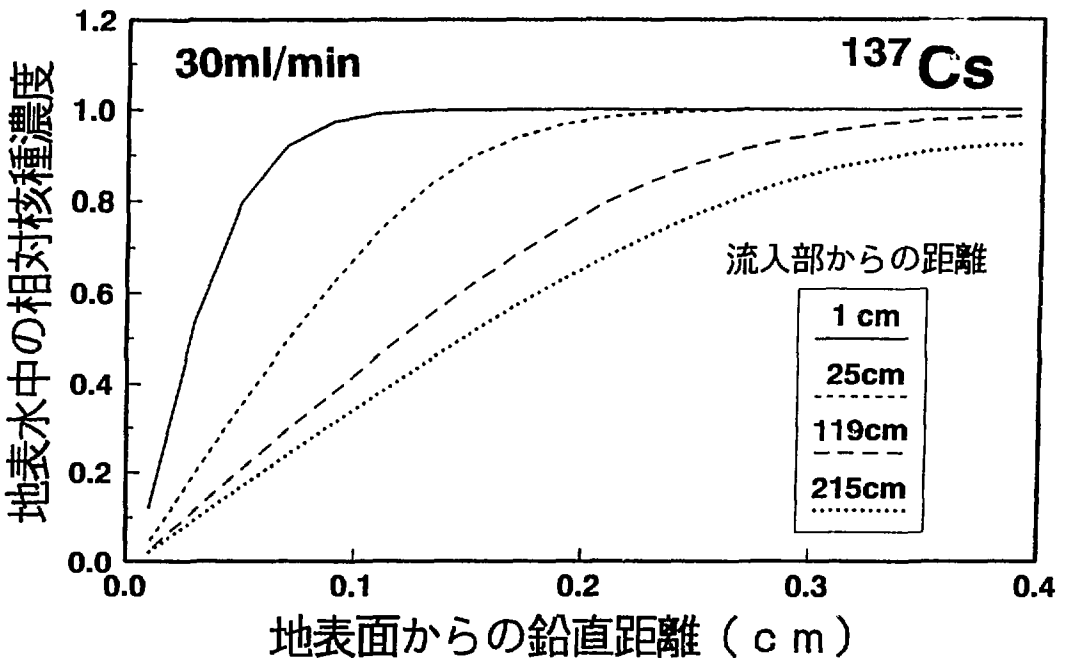


図10 地表水中核種濃度の鉛直分布と流入部からの距離との関係

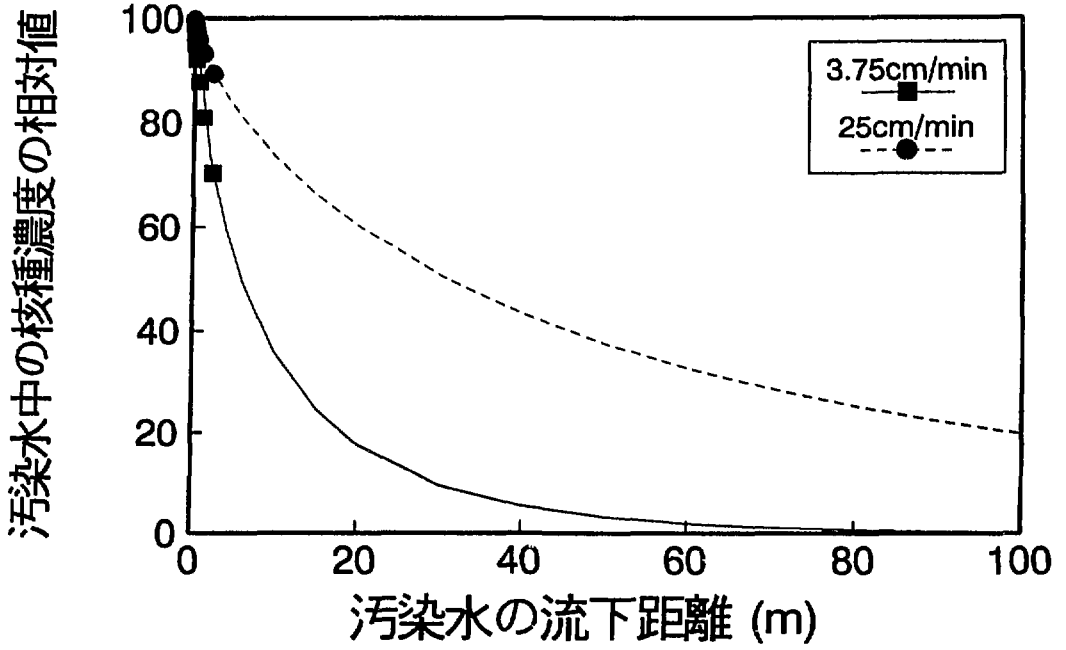


図 1 1 長い距離の流下による汚染水濃度の減少