

JAERI-Research

94-014

JP9412175



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2報 凝灰岩層試料 —

1994年9月

向井雅之・武部慎一・古宮友和

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

Radionuclide Transfer onto Ground Surface in Surface Water Flow
2. Undisturbed Tuff Rock

Masayuki MUKAI, Shinichi TAKEBE and Tomokazu KOMIYA

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

(Received August 10, 1994)

Radionuclide migration with ground surface water flow is considered to be one of path ways in the scenario for environmental migration of the radionuclide leaked from LLRW depository. To study the radionuclide migration demonstratively, a ground surface radionuclide migration test was carried out by simulating radioactive solution flowing on the sloped tuff rock surface. Tuff rock sample of 240cm in length taken from the Shimokita district was used to test the transfer of ^{60}Co , ^{89}Sr and ^{137}Cs onto the sample surface from the flowing radioactive solution under restricted infiltration condition at flow rates of 25, 80, 160ml/min and duration of 56h. The concentration change of the radionuclides in effluent was nearly constant as a function of elapsed time during the experimental period, but decreased with lower flow rates. Among the three radionuclides, ^{137}Cs was greatly decreased its concentration to 30% of the inflow. Adsorbed distribution of the radionuclides concentration on the ground surface decreased gradually with the distance from the inlet, and showed greater gradient at lower flow rate. Analyzing the result by the migration model, where a vertical advection distribution and two-dimensional diffusion in surface water are adopted with a first order adsorption reaction, value of migration parameters was obtained relating to the radionuclide adsorption and the surface water flow, and the measured distribution could be well simulated by adopting the value to the model. By comparing the values with the case of loamy soil layer, all values of the migration parameters showed not so great difference between two samples for ^{60}Co and ^{89}Sr . For ^{137}Cs , reflecting a few larger value of adsorption to the tuff rock, larger ability to reduce the concentration of flowing radioactive solution

could be indicated than that to the loamy soil surface by estimation for long flowed distance.

Keywords: Radionuclide Migration, Ground Surface, Migration Test,
Tuff Rock, Numerical Model, Migration Parameter, Loamy Soil

目 次

1. 緒 言	1
2. 試験方法	2
3. 試験結果	3
4. 考 察	4
4.1 土壤吸着濃度分布	5
4.2 解析モデルによる検討	5
4.3 移行パラメータの土壌種間の比較	6
4.4 長距離流下による濃度減少の推定	8
5. 結 言	8
謝 辞	9
参考文献	9

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Method	2
3. Experimental Results	3
4. Discussion	4
4.1 Distribution of Concentration Adsorbed on Soil Surface	5
4.2 Discussion by Model Calculation	5
4.3 Comparison of Parameters between Two Types of Soil	6
4.4 Estimation of Concentration Decrease by Long-distance Flowing	8
5. Conclusion	8
Acknowledgment	9
References	9

1. 緒 言

日本原子力研究所では、低レベル放射性廃棄物の浅地層処分の安全性の評価に関し、地下水面より上方の通気層及び下方の帯水層から採取した未攪乱試料及び攪乱試料を使用して環境シミュレーション試験¹⁾⁻³⁾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試験研究を行っている。浅地層中の核種の移行について多方面から総合的に評価を行うためには、通気層及び帯水層を対象とした経路に加え、降水の浸透による地下水面上昇等の原因によって処分施設より地表へ移行した核種が、地表水流によって地表面上を流下し、標高の低い湖沼等に流入する経路についても実証的に検討を進める必要がある。地表流は降雨強度が土壌層等の浸透能を越えることにより生じた湛水が傾斜方向に流下して発生するため、浸透能が低い場所から順次発生することが考えられる。また、地形的に地下水面が地表面に近い場所、特に窪地状の場所も湛水が発生しやすいため、地表流の発生地点になりやすい。前者のような発生状況な場合、植生のない裸地の状態の地表面は浸透能が低いことが多く、地表流の最初の発生状況として想定することができる。このため、未攪乱で採取した各種の地表面土壌試料を用い、地表面における核種移行について、核種吸着・移行状況等を水理条件に関連させて試験的・実証的に把握するため、放射性核種を含む汚染水が緩い裸地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た核種移行試験を実施し、試験結果を説明し得る地表面核種移行モデルを開発し、移行解析の検討を進めている。裸地以外の植生のある地表面、土壌化の進行で集積した腐食物質あるいは風化等の影響については、核種移行への影響の大きな要因となることが推測されるため、今後さらに試験を行う必要があると考えられる。

図1に概略的に示した青森県六ヶ所村周辺の地層構造の場合、処分施設より想定される経路により地表へ流出した核種は、ローム質土壌、砂質土壌及び砂岩・凝灰岩の表面上を移行し、標高の低い湖沼等に流入することが想定される。前報⁴⁾では、ローム質土壌層を用いて試験を行い、放射性水溶液の流下流量と流下時間を変化させて実施した試験から得られた表面土壌中の吸着濃度分布が、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によりその特徴的分布を統一的に説明できることを示した。本報では、基底岩盤層の内、凝灰岩層を対象として、放射性水溶液の流下流量を変化させた試験を実施し、得られた流出水中の核種濃度の経時変化及び地表面の核種吸着濃度分布について、前報で提示したモデルへの適応性を検討するとともに、解析により凝灰岩層について求めた移行パラメータ値をローム質土壌の場合と比較した結果について報告する。

2. 試験方法

放射性核種地表移行試験装置⁵⁾及び試験方法の概略図を図2に示す。試験装置は流入槽、試験槽、流出槽等から構成されており、試験槽内の試料上に放射性水溶液を上流側の流入槽から連続して流下し、下流側の流出槽にて集水する方法で試験を実施する。試験に使用した凝灰岩屑試料は、図1に示した地層のうち、最下部の基底岩盤層から試験槽を兼ねた採取容器(245cmL×75cmW×30cmD)内に未攪乱状態で採取した。凝灰岩屑には浮石成分が多数混在しており、地質年代は新第三紀層に相当する。試験に使用した凝灰岩屑試料の近傍から採取した小型の試料を使用して求めた飽和透水係数は約 4.2×10^{-8} cm/secであった。その他の主な物理的・化学的特性を表1に示す。

流量の異なる水溶液中における放射性核種の岩石への吸着挙動を同時に観察するため、試験槽を4つの流路(各16cmW×245cmL)に分割した。各流路は、凝灰岩屑試料上に幅5mm、深さ10mmの溝を電動グラインダで切削した後、アクリル製仕切板(厚さ2mm)を溝に挿入し、低粘性エポキシ系充填材EP-89(セメダイン[®]製)で固定し作成した。充填材に対する⁶⁰Co、⁸⁵Sr及び¹³⁷Csの吸着率は1%以下であり、充填材を使用したことによる核種移行への影響は無視できるものと考えられる。

試験においては、地表水中からの核種の吸着現象のみに着目し、凝灰岩屑試料中への水の浸透に伴う放射性核種の試料内部への進入を抑制するため、試料を十分な時間蒸留水で冠水させて飽和させた。さらに、試験開始前の24時間は蒸留水を放射性水溶液を流下させるのと同じ流量で連続して流下させ、試料内への地表水の浸透を抑制した。

凝灰岩屑試料上を流れる水の流動状態を変えずに、スムーズに蒸留水から放射性水溶液に切り替えるためには、蒸留水と放射性水溶液の流下の切替えをできるだけ短時間に終えることが重要である。放射性水溶液用ポンプの供給流量は低いため、蒸留水停止後流入槽に残った蒸留水を排水してから放射性水溶液の供給をスタートしたのでは流入槽が放射性水溶液で満たされるまでに長い時間がかかってしまう。このため、蒸留水の流下停止後、流入槽に残った蒸留水にあらかじめ準備した量の放射性核種を加えて所定濃度の放射性水溶液を調整し、切替時間を短縮した。

放射性水溶液は、各々約37Bq/mlに調整した⁶⁰Co、⁸⁵Si及び¹³⁷Csの3核種混合溶液を使用した。試験条件として、放射性水溶液の流下時間が等しく、流下流量が異なる3条件を設定した。前報で報告したローム土壌層に対する試験は流路幅20cm、流下流量30、100、200ml/minで行ったが、今回の試験の流路幅は16cmであるため、単位時間に単位地表面積上を通過する水の体積が同じになるように、単位流路幅あたりの流量が同じになる25、80、160ml/minの3とおりの流量を設定し、それぞれ56時間連続して流下させる試験を実施した。

放射性水溶液を流下させる流路は、凝灰岩層試料の表面観察を行った後、作成した4つの流路から表面岩質が同質である3流路を選択し試験を行った。試験時間中は、適宜時間間隔を設定して流入水及び流出水の採取（各5ml）を行った。採取水を入れた100mlのポリエチレン容器に蒸留水を45ml加えて放射能測定用試料とした。

試験終了後は直ちに試験装置を傾斜させ、凝灰岩層試料上に残存している放射性水溶液を流下させ除去した。他の流路を用いて行う試験時及びサンプリング時に発生する可能性のある汚染を未然に防止するため、岩石試料上に仕切り板を固定したものと同一充填材を流し込み表面を覆い固化した。流し込みを行う際には、流路入口側と出口側にプラスチック板を取り付けて塞ぎ、充填材が流入槽及び流出槽に流れ出すことを防止した。

全ての流路について試験が終了した後、あらかじめ設定した採取位置でコアボーリングにより岩石試料の採取を行った。採取した試料の直径は43mmφである。試料中の放射性核種濃度の鉛直分布を求めるため、ボーリングした試料はダイヤモンドカッターを用い、5mm間隔で深度5cmまで切断し円盤状試料を作成した。径6cm深さ2cmの透明プラスチック容器に、一定量の充填材を入れて固めた後、充填材の中央に円盤状試料を載せ、気泡が入らないように充填材で覆い固めたものを放射能の測定試料とした。流出液及び土壌測定試料の放射能は、Ge半導体 γ 線スペクトロメータ（SEIKO EG&G社製）により測定して求めた。

3. 試験結果

流下時間が等しく流量が異なる3条件の試験結果のうち、流出液中の核種濃度の経時変化についてまとめた結果を図3に示す。図中、横軸は放射性水溶液を流入させてからの経過時間、縦軸は流入濃度で規格化した流出濃度の値を示している。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25ml/minの場合には、流入濃度の約20~30%に減少し、他の核種と比較して流出濃度が低い。

5mm間隔で深度5cmまで切断した円盤状試料の放射能の各流量ごとの試験における平均と深度との関係を図4に示す。 ^{137}Cs は深度が深くなるにつれて濃度が急激に減少し、深度2cm程度でほぼ検出限界以下になった。 ^{60}Co は深度0~5mmの試料の放射能が最も高く、深度5~10mmの試料ではその約10分の1に減少し、深くなるにつれて緩やかに減少する分布となった。 ^{85}Sr は、深度0~5mmの試料と深度5~10mmの試料との減少率が ^{60}Co と比較して小さいが、その後の減少勾配は ^{60}Co よりも急であった。流量と深度0~5mmまでに吸着した核種量との関係について

は、流量が大きいほど接触する放射性核種量が多くなることから、 ^{137}Cs の160ml/minの場合を除いて吸着した核種量が高くなる傾向を示した。また、核種の量の絶対値については、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr の核種の順で低くなった。

地表水と接触している岩石試料が単位面積あたり吸着した核種量 (Bq/cm^2 、以下吸着濃度) を、〔岩石表面から深度5cmまで積算した試料中の放射能量〕 / 〔コアサンプルの断面積〕 と定義し、流入部からの距離との関係を各核種ごとに示したものを図5に示す。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、吸着濃度の値は流入部から流出口に向かって緩やかに減少していることが分かる。また、核種間の分布の差異に関しては、 ^{37}Cs が他の核種に比べて、吸着濃度が全体的に高くなっている。

4. 考 察

4.1 土壌吸着濃度分布

岩石に吸着された放射性核種の濃度と流入部からの距離との関係を示した図5より、流入部から流下距離約160cmまで減少していた吸着濃度が再び上昇する分布が3核種ともに観察される。上昇した吸着濃度は下流に向かうに従って再び徐々に減少していることから、流下距離160cmを境界とするこれら上流域及び下流域の2領域には岩質等の違いがあることが考えられる。そこで、これら2つの領域ごとに岩石の吸着濃度の減少を1次対数による分布の近似を行った結果を表2に示す。また、これらの係数により計算した吸着濃度分布を図6に示す。

下流域における測定値が少ないため、上流域と下流域の傾きの差を比較することは難しいが、流下流量が80ml/minの場合を除き、下流域の方が傾きが大きくなっている。上流域を流下した放射性水溶液が、下流域で吸着濃度が再び上昇するということは、放射性核種に対する吸着性が下流域では大きなことを示していると考えられる。また、同じ流下速度であっても、放射性核種に対して吸着性の高い物質上を流れる場合の方が、流下距離に対して吸着濃度が減少する割合はより大きくなる。したがって、下流域の方が上流域よりも吸着性が全般的に高かったことが推察できる。80ml/minの場合には他の流速の場合と異なり、最も下流の濃度が何らかの原因で再び高くなったため、近似した濃度の減少勾配の値が小さくなったものと考えられる。

各核種ごとに流下流量と減少勾配の比例係数(表中のb)との関係を見ると、流下流量の大きな場合よりも小さな場合の方が減少勾配が大きくなっていることが読み取れる。また、同じ流下流量で比較すると、減少勾配の係数についてはあまり差は見られないが、Y切片の値(流下距離0cmにおける吸着濃度、表中のa)については ^{137}Cs が他の核種と比較して大きな値を示している。

4.2 解析モデルによる検討

前報では、ローム質土壌層に対する地表流中放射性核種の移行・吸着挙動に対し、流速の鉛直分布を考慮した1次元の移流と2次元の拡散で地表流を表現した式に、1次反応速度定数による吸着を組み込んだ移行式で試験結果を大筋説明できることを示した。本報では、ローム質土壌層と凝灰岩層との比較を定量的に行うため、測定により得た吸着濃度分布と計算分布との間の誤差を最も少なくできる移行パラメータをそれぞれの土壌に対して求め、求めた移行パラメータの比較を行った。

解析に使用した核種移行式は、前報で報告したように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⁴⁾。

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

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

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

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

ここで、Cは地表水中核種濃度、Qは土壌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方向が水深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)式は土壌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おり流速の関数としての取扱は行っていない。前報では、滑らかな表面上を緩やかに流れる流体では、 D_x にくらべて D_z は非常に小さい⁶⁾ことから、 D_x と D_z の比を100としたが、今回の解析ではそれぞれ独立の係数として取り扱った。移流に関しては、X方向のみ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⁷⁾。(3)式中、 V_m は地表流の平均流速、Zは土壌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、放射性核種の土壌表面への吸着は、前方で報告したローム土壌層に対して得られた結果と同様に1次の反応速度式による非可逆反応で表せられるものとし⁸⁾、その速度定数を k_1 とした。

これらの移行式を差分化した計算コードを作成し、設定した試験条件から求まるパラメータ(凝灰岩層の長さ、水深、流速、流入地表水中の核種濃度)以外の移行パラメータ(1次反応速度定数、X及びZ方向の拡散係数)の値を少しずつ変化させ

ながら、試験結果の土壤吸着分布との誤差を最も少なくできる移行パラメータの値を求めた。誤差は、測定値と計算値との差の2乗の総和として評価し比較を行った。

凝灰岩層に対して行った移行試験について、フィッティングにより求めた移行パラメータをまとめて表3に示す。その際、各核種の吸着濃度はコアボーリングの中心位置における値とし、吸着が流下方向へ2段階に生じていることが前述したように推察されたため、前半部分の吸着濃度分布のみを使用して計算を行った。これらの結果のうち、流量が80ml/minの時の各核種について計算した吸着濃度分布を測定値とともに図7に示す。3つの核種のうち、 ^{137}Cs は他の核種と比較して流量が異なる試験間の移行パラメータのバラつきが大きく、25ml/minの試験は他の試験と比較して、 k_1 は小さな、 D_x 及び D_z は大きな値がそれぞれ得られた。 k_1 として0.012を与え、誤差を最も小さくする他のパラメータを求めた場合を表中の()内に示す。この場合の誤差は、フィッティングにより求めた誤差よりも約9%大きくなった。

ローム質土壤層に対して行った移行試験について、フィッティング作業により移行パラメータを求めた結果を表4に示す。吸着分布のうち、もっとも流出口に近い部分及び200ml/minの試験における流入口からの距離が30~70cmの部分のデータは、前報で報告したとおり、流れの状態が層流から外れていることが推察されたため、計算には使用していない。これらの結果のうち、流量が100ml/minの時の各核種について計算した吸着濃度分布を測定値とともに図8に示す。移行パラメータのうち、 k_1 については核種が同じ試験どうし、 D_x 、 D_z については流下流速が同じ試験どうしを平均した値(表4の下部)を比較すると、 k_1 は ^{137}Cs の場合が最も大きくなっている。このことはローム質土壤の ^{137}Cs に対する吸着能が大きい試験結果と一致する。また、流速と拡散係数との関係については、X方向では流量が大きくなるにつれて得られた拡散係数の値が大きくなったのに対して、Z方向では流速が大きくなって得られた拡散係数にはほとんど変化が見られなかった。

4.3 移行パラメータの土壤種間の比較

凝灰岩層に対して行った移行試験について得られた移行パラメータのうち、 k_1 についてはローム質土壤層に対する試験と比較して ^{137}Cs で若干大きな値を示したが、他の核種についてはほぼ同じ値であった。拡散係数については、X方向の値はローム質土壤層に対する試験と比較してかなり小さな値となったのに対し、Z方向の値は ^{137}Cs のみローム層と比較して大きな値であり、他の核種についてはほぼ同じ値($2.6 \times 10^{-4} \sim 5.0 \times 10^{-4}$)であった。

凝灰岩層を対象とした試験では、吸着核種濃度の測定点数が少なく、バラツキが大きいことから、フィッティングで求まる各パラメータの値には裕度を含むものと考えられる。このため、各パラメータの値の誤差に及ぼす影響を求め、各パラメー

タの裕度を明らかにすることを試みた。土壌吸着分布から ^{60}Co と ^{85}Sr とのパターンには近似が見られることから、 ^{60}Co 及び ^{137}Cs を対象に誤差解析を行った。

各核種の k_1 の値を固定して、 ^{60}Co については D_x を 1×10^{-2} から 1×10^0 、 D_z を 5×10^{-5} から 5×10^{-3} 、 ^{137}Cs については D_x を 2×10^{-2} から 2×10^0 、 D_z を 1×10^{-3} から 1×10^{-1} までそれぞれ14分割し、各核種について196組の入力値で移行シミュレーション計算を行い、計算値と測定値との差の2乗和を誤差として求めた。流量25ml/minの試験において、 ^{60}Co の k_1 に0.006、 ^{137}Cs の k_1 に0.012を与え、求めた D_x - D_z 平面の誤差分布で各軸に平行な断面における誤差変化を ^{60}Co 及び ^{137}Cs に対して求めた結果を図9及び図10にそれぞれ示す。これらの図から、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 共に単位オーダ当たりの誤差の変化は D_x よりも D_z の方に敏感であることが読みとれる。なお、流量が80及び160ml/minの時の誤差変化も同傾向であった。

誤差に影響する D_x の感度が低いことから、 D_x の値を ^{60}Co は0.01、 ^{137}Cs は0.02に固定し、 D_z を変化させる同様の計算を、 ^{60}Co については k_1 を0.002から0.012の範囲内、 ^{137}Cs については k_1 を0.008から0.026の範囲内の値に対し行った。地表水が層流であることを反映し、誤差が最小となる D_z は各 k_1 に対し3種類の流量でほぼ同じ値であったため、誤差を3種類の流量に対する誤差の合計値で評価し、 D_z の変化に対する誤差の変化を ^{60}Co 及び ^{137}Cs に対して求めた結果を図11(a)及び(b)にそれぞれ示す。これらの図から、 k_1 の変化に伴い誤差が最小となる D_z は変わるものの、誤差の値への影響は小さいことが読みとれる。 ^{60}Co 及び ^{137}Cs に共通して誤差が小さくなる D_z の値は0.0012から0.0020の範囲であり、このときの k_1 は、 ^{60}Co は0.003、 ^{137}Cs は0.016～0.020であった。

凝灰岩層に対する試験について求めたX方向の拡散係数が、ローム質土壌層に対する試験と比較してかなり小さくなったのは、ローム層の試験で観測された流入口付近における急激な吸着濃度の減少部分が観測できなかったことに起因する。凝灰岩層に対する試験では、サンプリング法による制限から流入口より10cmまでの採取が不可能であり、ローム質土壌層の試験のように詳細な流入口付近のデータを得ることはできなかった。したがって、流入口付近の凝灰岩層の吸着濃度分布がローム質土壌層と同様に急激に減少する分布であるならば、X方向の大きな拡散係数が求められたものと考えられる。逆に、ローム質土壌層の流入口付近の急激な吸着濃度の減少が、流入水の集中による攪乱に起因しているならば、ローム質土壌層における試験に対するX方向の拡散係数は過大な値であり、実際の値は大きくないと考えることもできる。

まとめると、移行パラメータは以下ようになる。

$$k_1 \quad ^{60}\text{Co} \quad 5.0 \times 10^{-3} \quad (\text{Bq/cm}^2)/(\text{Bq/ml})/\text{min}$$

k_1	^{85}Sr	5.0×10^{-3}	$(\text{Bq}/\text{cm}^2)/(\text{Bq}/\text{ml})/\text{min}$
k_1	^{137}Cs	1.5 (凝灰岩) ~ 2.0 (ローム) $\times 10^{-2}$	$(\text{Bq}/\text{cm}^2)/(\text{Bq}/\text{ml})/\text{min}$
D_x		2.0×10^{-3} (凝灰岩) ~ 2.0 (ローム)	cm^2/min
D_z		3.0×10^{-4} (凝灰岩の ^{137}Cs は 2.0×10^{-3})	cm^2/min

これらのうち、凝灰岩層に対する ^{137}Cs の k_1 及び D_z の値は、ローム質土壤層よりも k_1 については小さく、 D_z については大きく求められた。これはデータ数が少ないことに起因するバラツキにより生じたものと考えられる。他の核種における2種類の土壤層に対する D_z の値から類推すると、凝灰岩層に対する ^{137}Cs の D_z の値もローム質土壤層の場合と同程度であると考えられる。また、このことにより、 D_z と相補的な関係にある k_1 は、求められた値よりも大きな値となるものと考えられる。したがって、比較的なめらかな表面を有する2つの地層に対する核種の移行パラメータの値は、地表水の流動に関する D_x 及び D_z は核種に依らずほぼ同じ値であり、核種の吸着に関する k_1 は核種に特有の値であることが推察された。

4.4 長距離流下による濃度減少の推定

以上のことを基にして、放射性核種を含む地表流が長距離流下するにつれて核種濃度がどの程度減少するのか推定するため、前報⁴⁾で提示した近似式を用いて ^{137}Cs がローム質土壤層及び凝灰岩層上を流下する場合について比較を行った。

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

ここで、 x は地表水の流下距離、 $C(x)$ は核種濃度を表している。近似式中のパラメータ a 及び b は、地表面核種移行モデルによって256cmまでの5つの流下距離について流出する核種濃度を計算した結果からフィッティングして誤差が最小になるように求めた。この近似式が流下距離100m程度まで濃度が外挿可能であると仮定し、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12に示す。

地質の違いに関しては、凝灰岩層の方がローム質土壤層と比較して濃度の低減効果が大きいことが示された。流速3.75cm/minの時は、凝灰岩層では流下距離10mで濃度がほぼゼロまで減少するのに対し、ローム質土壤層では流下距離50mを要する。流速が25cm/minと速くなると、流下距離100mにおいて凝灰岩層、ローム質土壤層それぞれ数%及び約17%程度に濃度が減少することが示された。

5. 結 言

放射性廃棄物処分場から漏洩した核種の移行経路として、地表面を流下する放射性核種を含む地表水を想定し、核種移行試験を行った。地表面試料として凝灰岩層

を用い、地表水として ^{60}Co 、 ^{85}Sr 、 ^{137}Cs の3核種混合溶液を使用した。浸透抑制条件下において、流下させる地表水の流量を変えた3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、土壌中の吸着濃度は、流入口から流出口に向かって緩やかに減少する分布を示した。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により試験結果を解析し、ローム質土壌層に対して行った解析結果と比較した。ローム質土壌層と比較して流入口付近の核種濃度の急減域が明白でない凝灰岩層の試験では、流れ方向の拡散係数が小さく求められたが、 ^{60}Co 及び ^{85}Sr については、吸着速度定数及び水深方向の拡散係数の値は地質によらずほぼ同じであった。長距離の流下による濃度減少効果を移行モデルによる計算結果から求めた近似式により推定したところ、 ^{137}Cs については凝灰岩層の方がローム質土壌層と比べ濃度減少効果が大きかった。

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) 武部慎一、他：“通気層土壌試験の低吸着領域における放射性核種の移行挙動”、JAERI-M 92-205（1992）。
- 3) 大塚芳郎、他：“海岸砂層地域及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）。
- 4) 向井雅之、武部慎一、古宮友和：“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”、JAERI-M 91-100（1991）。
- 5) 向井雅之、山本忠利：“放射性核種地表面移行試験装置の性能試験”、JAERI-M 89-181（1989）。
- 6) 室田 明 編：“水理公式集”、p.46-47（1986）、社団法人土木学会。
- 7) 城塚 正、他：“化学技術者のための移動速度論”、p.43-44（1966）、オーム社。

表1 岩石試料の物理的・化学的性質

	Sample1	Sample2		Sample1	Sample2
比重	2.432	2.466	SiO ₂ (質量%)	68.62	67.28
自然含水比(質量%)	35.8	27.1	Al ₂ O ₃ (質量%)	13.68	13.80
風乾土含水比 (質量%)	1.6	2.4	TiO ₂ (質量%)	0.23	0.30
			Fe ₂ O ₃ (質量%)	1.06	1.28
湿润密度(g/cm ³)	1.656	1.498	CaO(質量%)	2.25	2.40
乾燥密度(g/cm ³)	1.267	1.232	MgO(質量%)	0.67	0.97
			FeO(質量%)	1.11	1.22
固相(体積%)	52.1	50.0	Na ₂ O(質量%)	2.78	2.63
液相(体積%)	38.9	26.6	K ₂ O(質量%)	2.69	2.49
気相(体積%)	9.0	23.4	P ₂ O ₅ (質量%)	0.05	0.06
			MnO(質量%)	0.06	0.05
飽和透水係数 (×10 ⁻⁸ cm/sec)	4.10	4.03	H ₂ O(+)(質量%)	4.51	5.20
			H ₂ O(-)(質量%)	1.07	1.48
			合計(質量%)	98.78	99.16
pH(H ₂ O)	6.9	6.6	有機体炭素	43	120
pH(HCl)	5.0	4.7	(mgC/100g乾土)		
△pH	1.9	1.9	有機体窒素	2	3
			(mgC/100g乾土)		
酸化還元電位(mV)	396	389	炭素率(C/N)	22	40
陽イオン交換容量 (meq/100g乾土)	7.9	13.1	侵出腐植量	2	8
交換性陽イオン合計 (meq/100g乾土)	8.2	13.0	(mgC/100g乾土)		
交換性Mg (meq/100g乾土)	3.6	6.0	フミン酸量	<1	5
交換性Ca (meq/100g乾土)	2.4	4.5	(mgC/100g乾土)		
交換性Na (meq/100g乾土)	1.0	1.3	腐植侵出割合	4.7	6.7
交換性K (meq/100g乾土)	0.9	1.2	(質量%)		
陽イオン飽和度	104	99	沈殿部割合(質量%)	計算不可	62.5
Chlorite(質量%)	不検出	0.7	相対色度	41	109
Sericite(質量%)	不検出	不検出	色調係数	0.84	0.86
Halloysite(質量%)	不検出	不検出			

表2 1次対数で近似した吸着濃度減少曲線の各試験における係数

核種	流量 ml/min	a	b	a'	b'
⁶⁰ Co	25	2.581	-0.004248	3.655	-0.007740
⁶⁰ Co	80	2.550	-0.003045	2.539	-0.000473
⁶⁰ Co	160	2.627	-0.002389	3.148	-0.003416
⁸⁵ Sr	25	2.590	-0.003851	4.147	-0.009833
⁸⁵ Sr	80	2.556	-0.003068	2.813	-0.001757
⁸⁵ Sr	160	2.634	-0.002786	3.144	-0.003426
¹³⁷ Cs	25	3.006	-0.003870	3.932	-0.007246
¹³⁷ Cs	80	3.074	-0.003063	3.346	-0.001720
¹³⁷ Cs	160	3.050	-0.002100	3.935	-0.004942

$$\log(\text{Conc}) = a + b \cdot x \quad (x = 0 \sim 160\text{cm})$$

$$\log(\text{Conc}) = a' + b' \cdot x \quad (x = 160 \sim 245\text{cm})$$

表3 測定値との誤差が最小となる計算分布を与える移行パラメータ値
(凝灰岩層に対する試験)

核種	流量 ml/min	Reaction Constant k1	Dispersion Coefficient Dcx	Dispersion Coefficient Dcz	Water Flow Vel. Vm
⁶⁰ Co	25	.6335E-02	.3319E-02	.5007E-03	3.75
⁶⁰ Co	80	.6771E-02	.1713E-02	.2807E-03	12.5
⁶⁰ Co	160	.4969E-02	.6888E-02	.3427E-03	25.0
⁸⁵ Sr	25	.6153E-02	.2974E-02	.4931E-03	3.75
⁸⁵ Sr	80	.8152E-02	.2240E-02	.2845E-03	12.5
⁸⁵ Sr	160	.7076E-02	.1798E-02	.2612E-03	25.0
¹³⁷ Cs	25	.7722E-02	.1513E+00	.1339E+00	3.75
(¹³⁷ Cs)	25	.1200E-01	.4942E-01	.3876E-02	3.75)
¹³⁷ Cs	80	.1777E-01	.1583E-01	.1344E-02	12.5
¹³⁷ Cs	160	.1202E-01	.6168E-02	.2417E-02	25.0
⁶⁰ Co		.6025E-02			
⁸⁵ Sr		.7127E-02			
¹³⁷ Cs		.1414E-01			
	25		.5508E-02	.1424E-02	3.75
	80		.6593E-02	.6363E-03	12.5
	160		.4951E-02	.1007E-02	25.0

表4 測定値との誤差が最小となる計算分布を与える移行パラメータ値
(ローム質土壌層に対する試験)

核種	流量 ml/min	Reaction Constant k1	Dispersion Coefficient Dcx	Dispersion Coefficient Dcz	Water Flow Vel. Vm
⁶⁰ Co	30	.3888E-02	.1219E+01	.3376E-03	3.75
⁶⁰ Co	100	.4787E-02	.4369E+01	.2914E-03	12.5
⁶⁰ Co	200	.8314E-02	.3233E+01	.2238E-03	25.0
⁸⁵ Sr	30	.3663E-02	.1526E+01	.4600E-03	3.75
⁸⁵ Sr	100	.3713E-02	.3638E+01	.3138E-03	12.5
⁸⁵ Sr	200	.5881E-02	.3274E+01	.2175E-03	25.0
¹³⁷ Cs	30	.1810E-01	.3064E+00	.5460E-03	3.75
¹³⁷ Cs	100	.2209E-01	.7082E+00	.6324E-03	12.5
¹³⁷ Cs	200	.2152E-01	.5315E+01	.4839E-03	25.0
⁶⁰ Co		.5663E-02			
⁸⁵ Sr		.4419E-02			
¹³⁷ Cs		.2057E-01			
	30		.10173E+01	.4479E-03	3.75
	100		.29049E+01	.4125E-03	12.5
	200		.39407E+01	.3084E-03	25.0

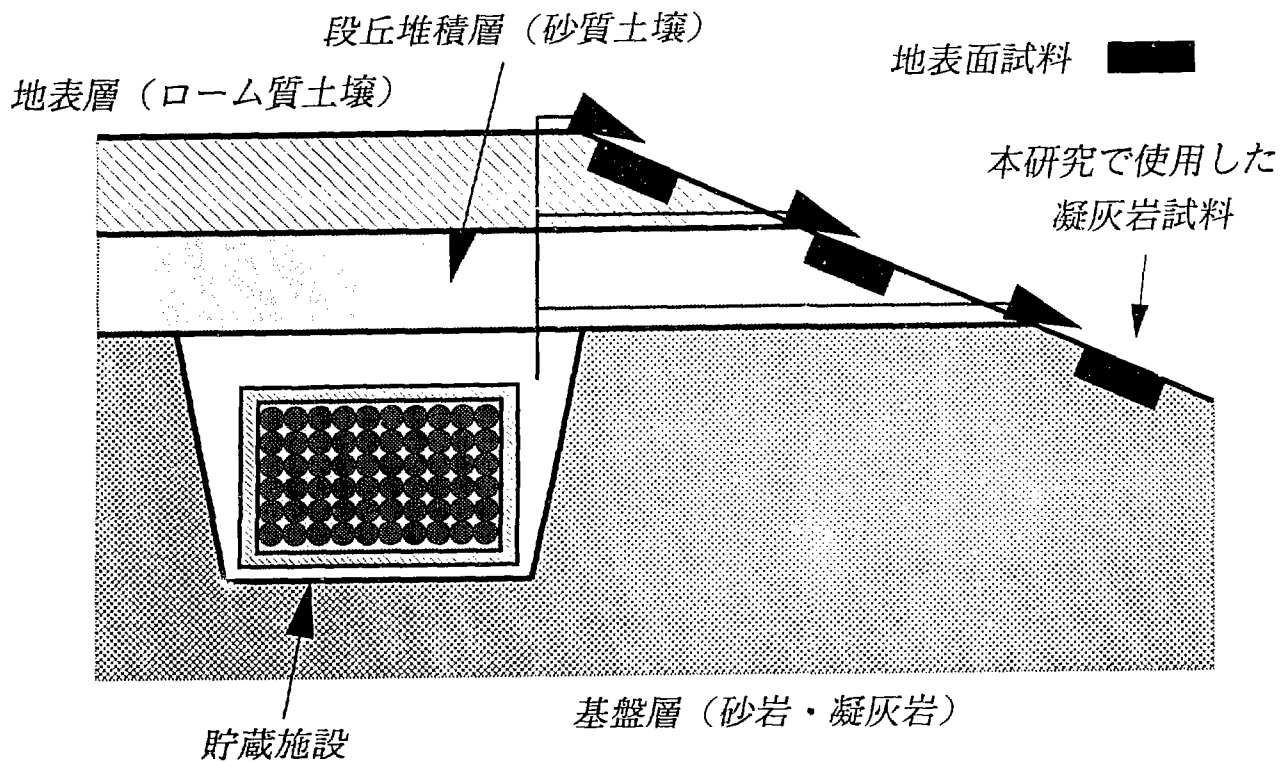


図1 想定される核種の移行経路

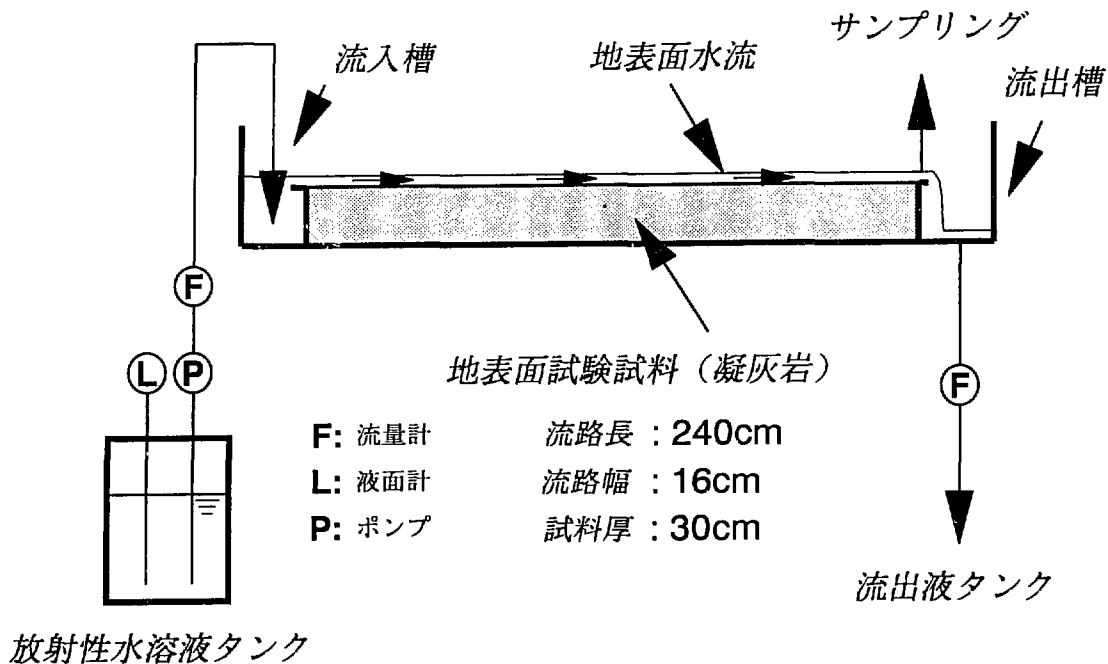


図2 試験装置および試験方法の概略

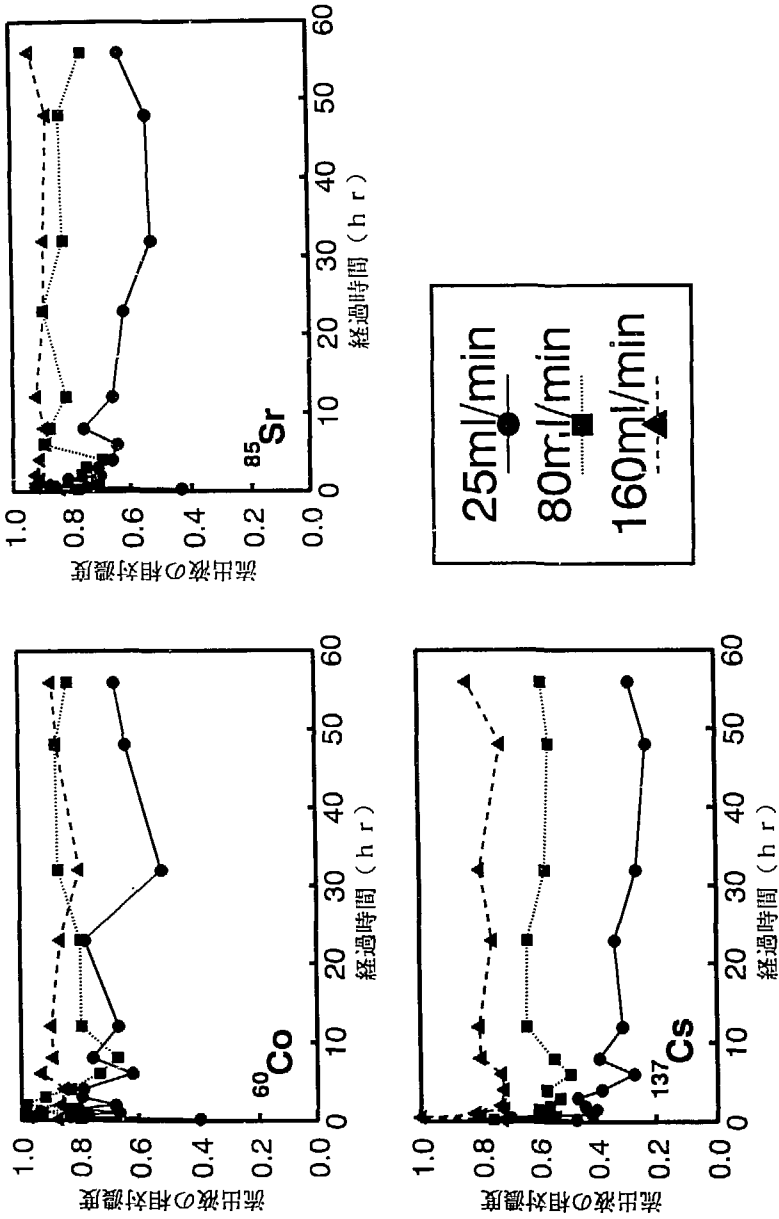


図3 流出液中核種濃度の経時変化

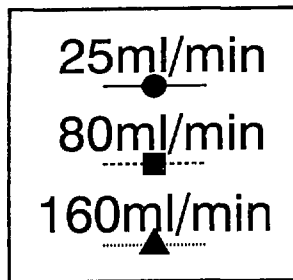
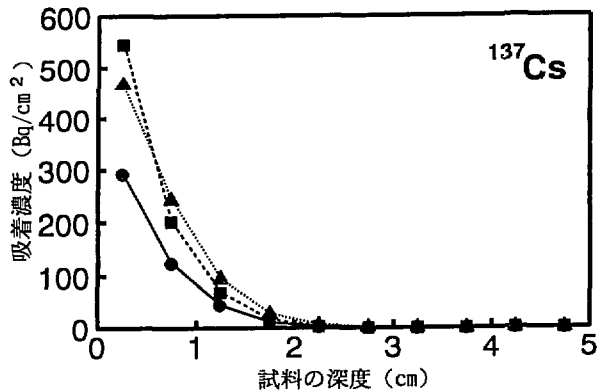
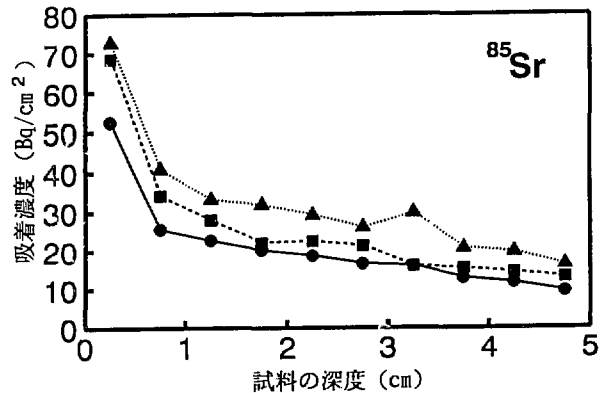
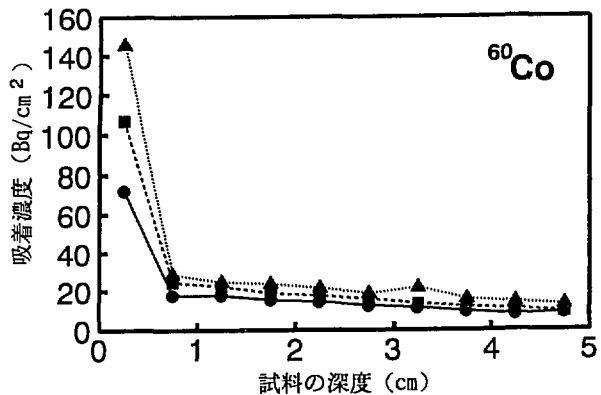


図4 凝灰岩試料の吸着核種濃度深度分布

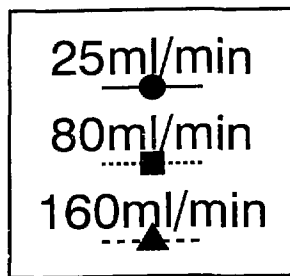
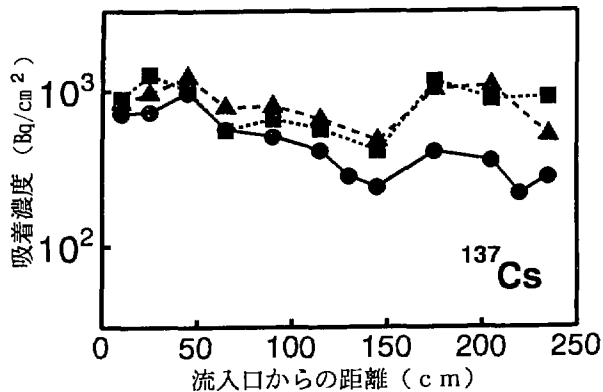
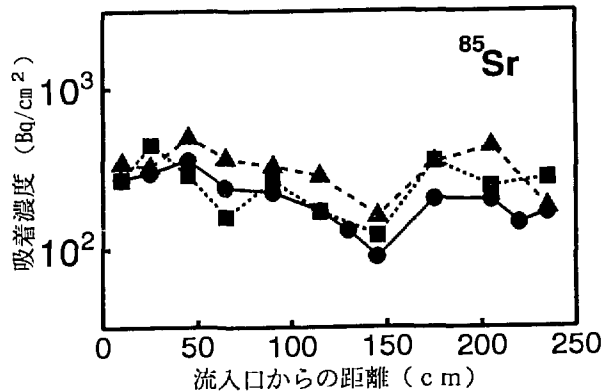
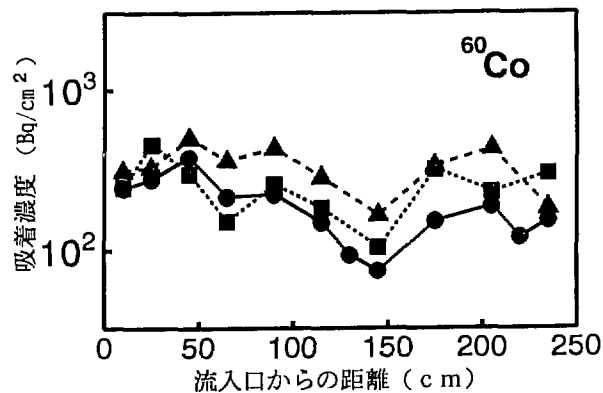


図5 凝灰岩試料の吸着核種濃度分布

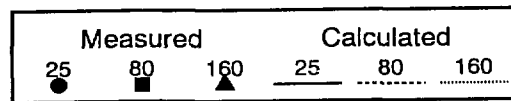
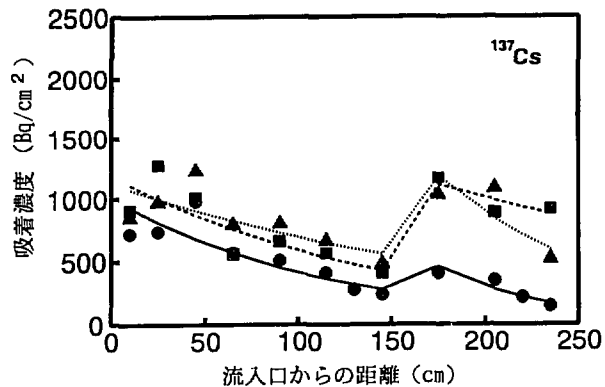
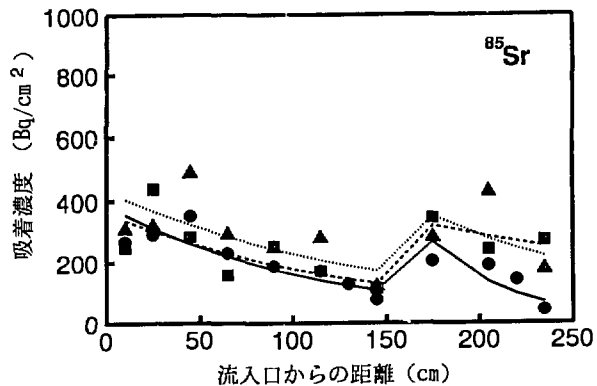
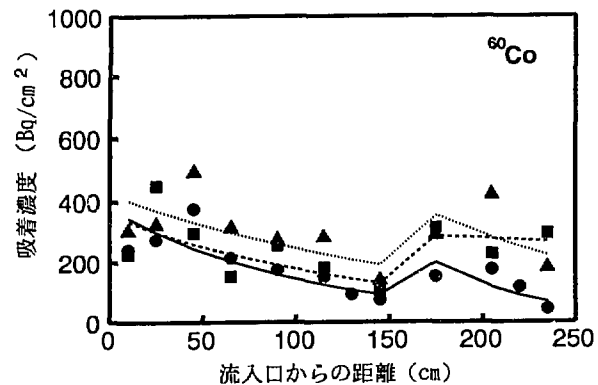


図6 1次対数による吸着核種濃度分布の近似

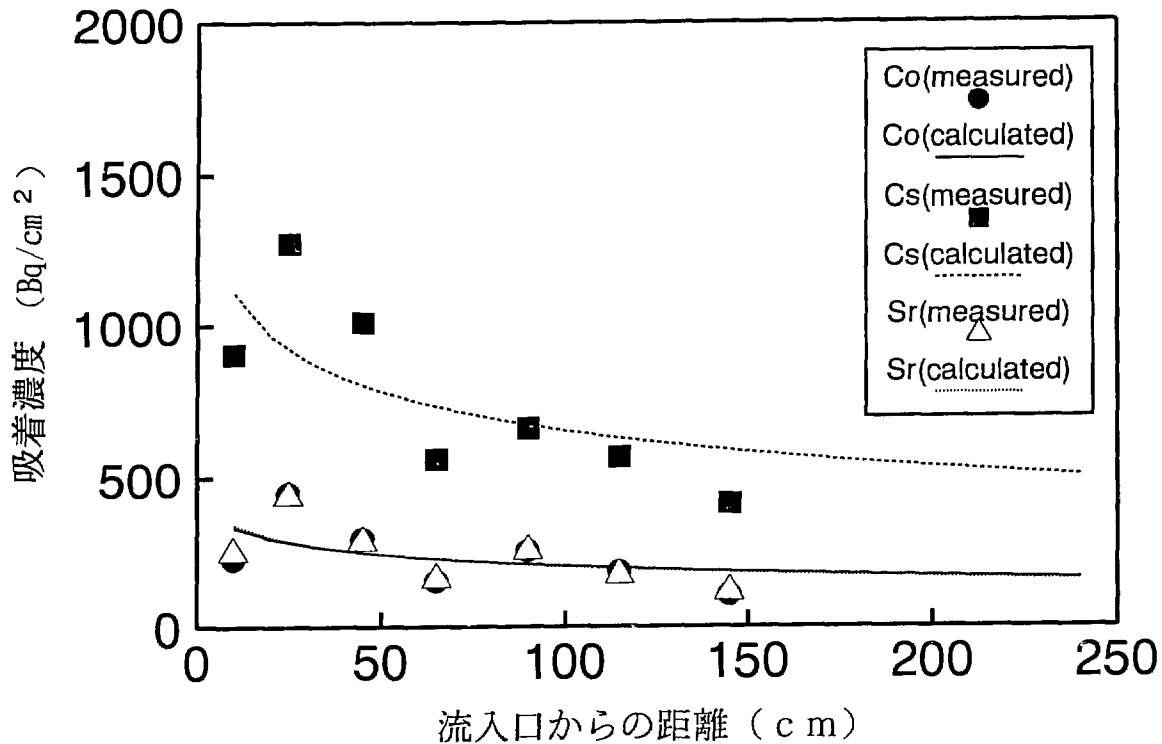


図7 凝灰岩試料の吸着分布に対する解析結果

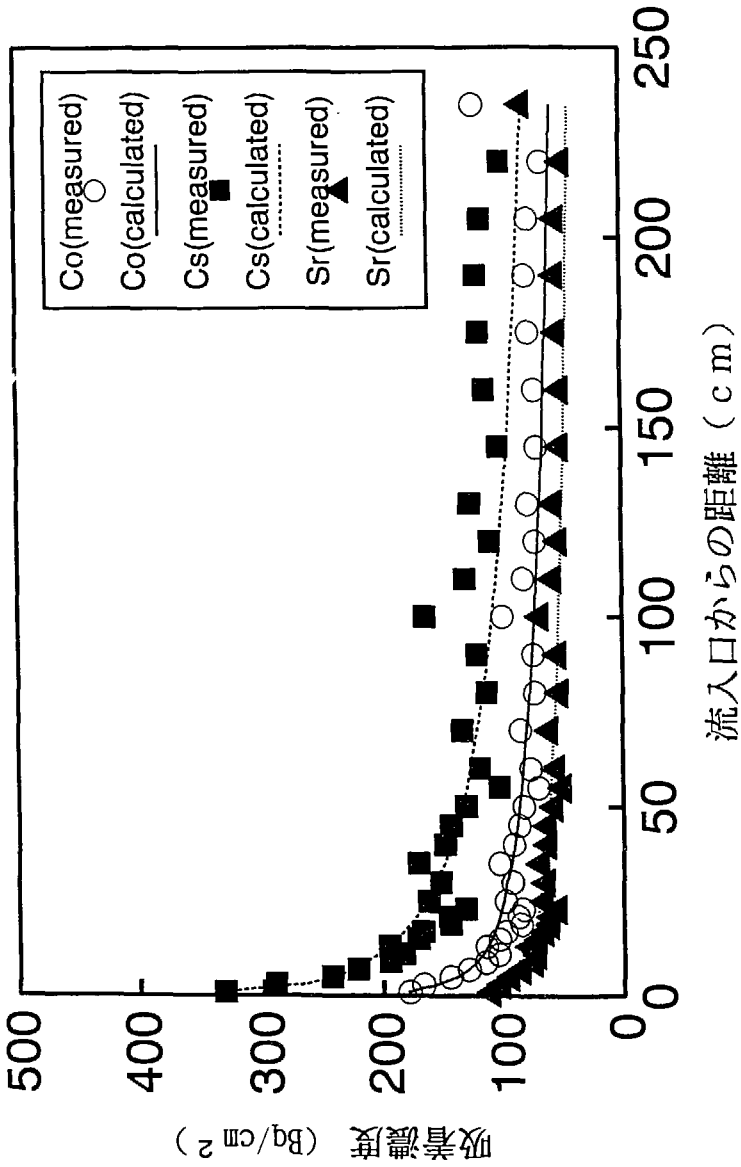


図8 ローム土壌試料の吸着分布に対する解析結果

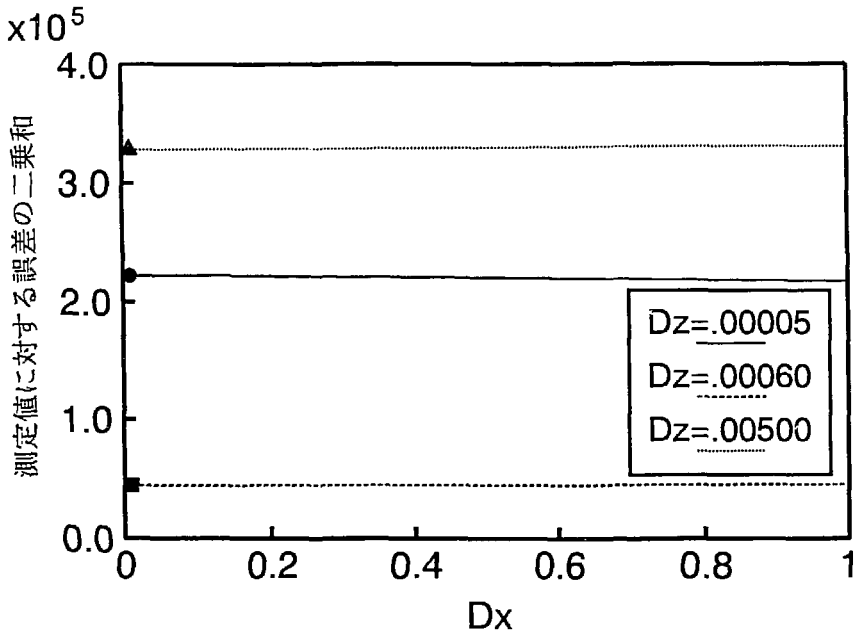
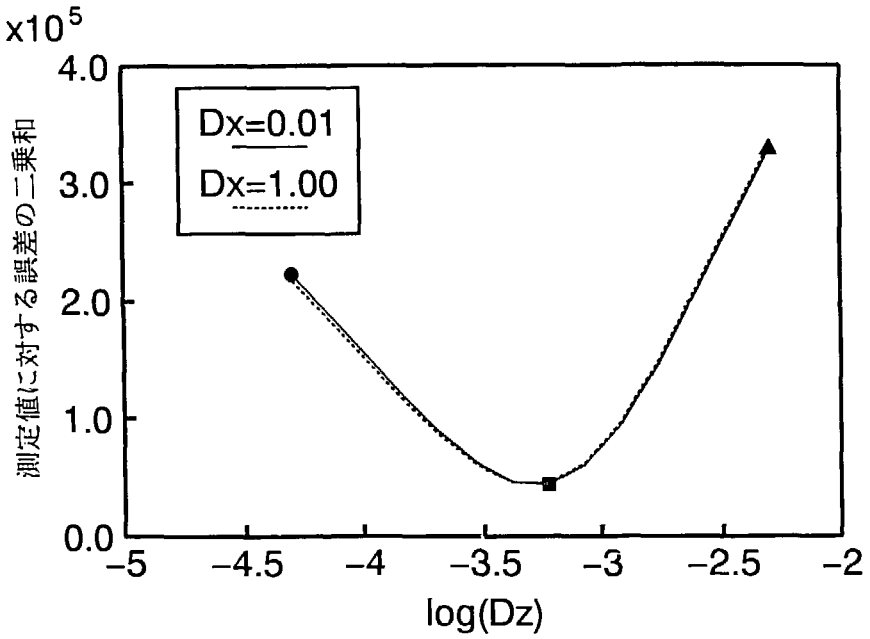


図9 Dz及びDxの変化に伴う測定値に対する誤差変化

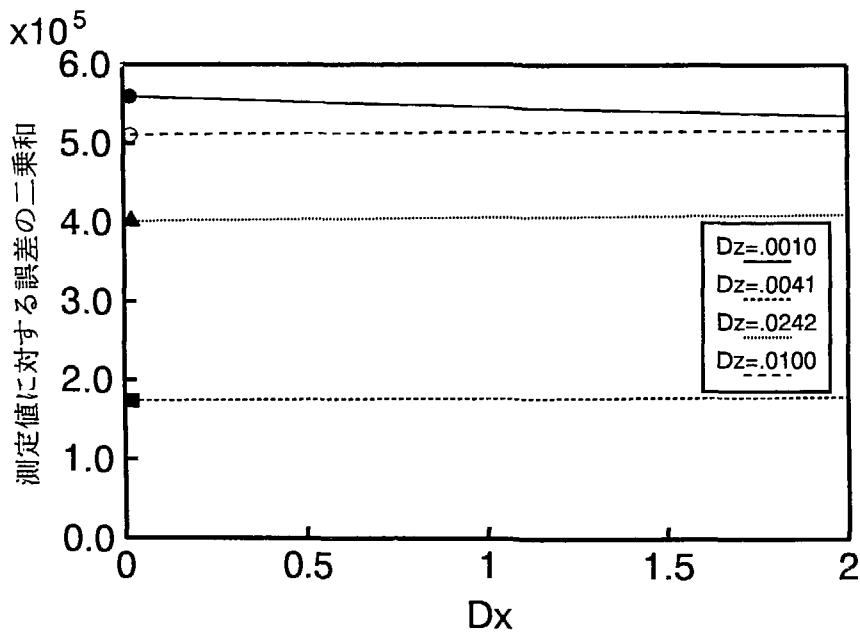
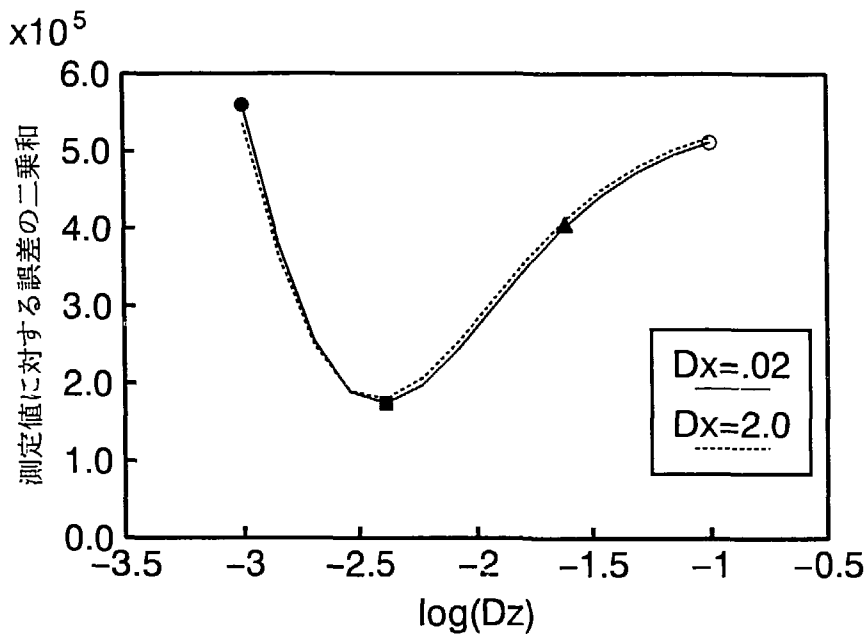


図10 Dz 及び Dx の変化に伴う測定値に対する誤差変化

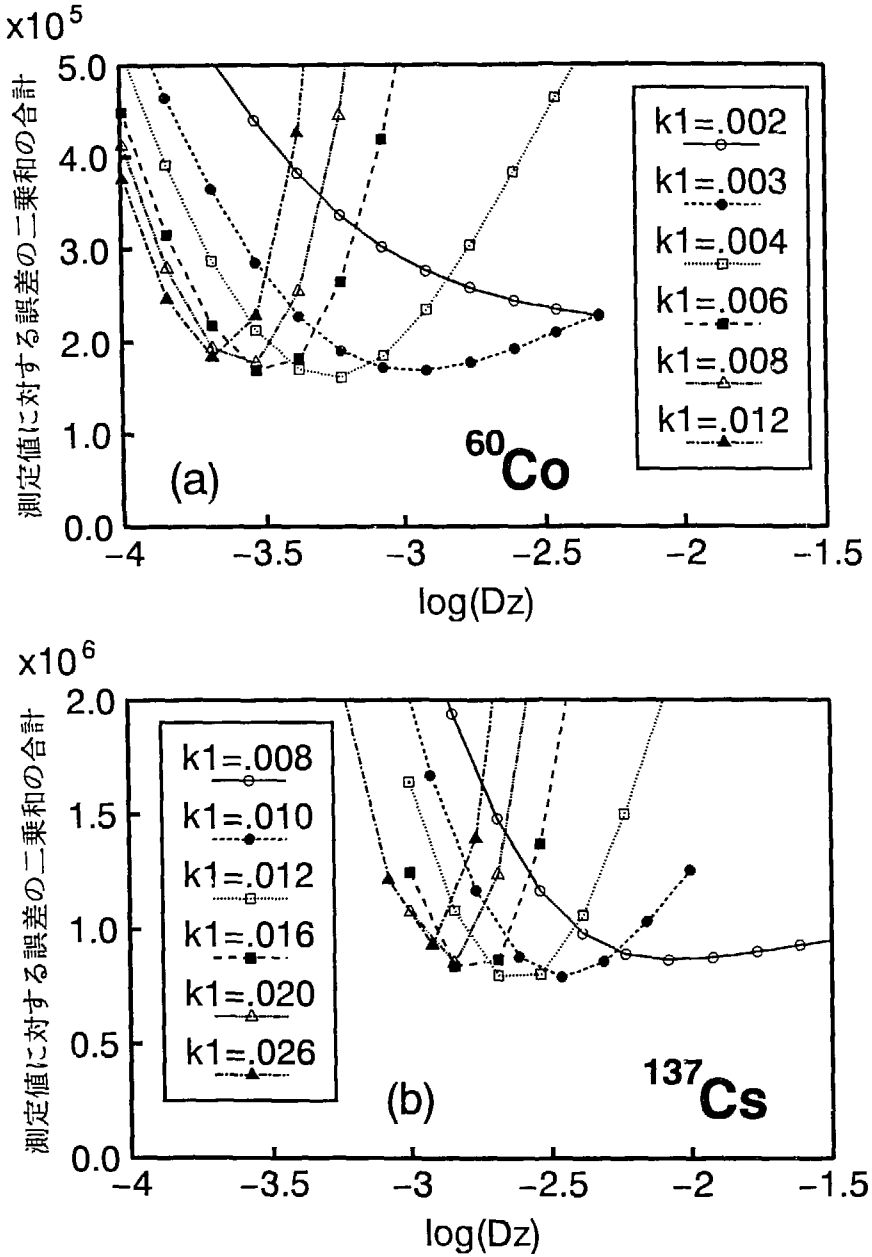


図11 吸着速度係数及び Dz の変化に伴う誤差変化

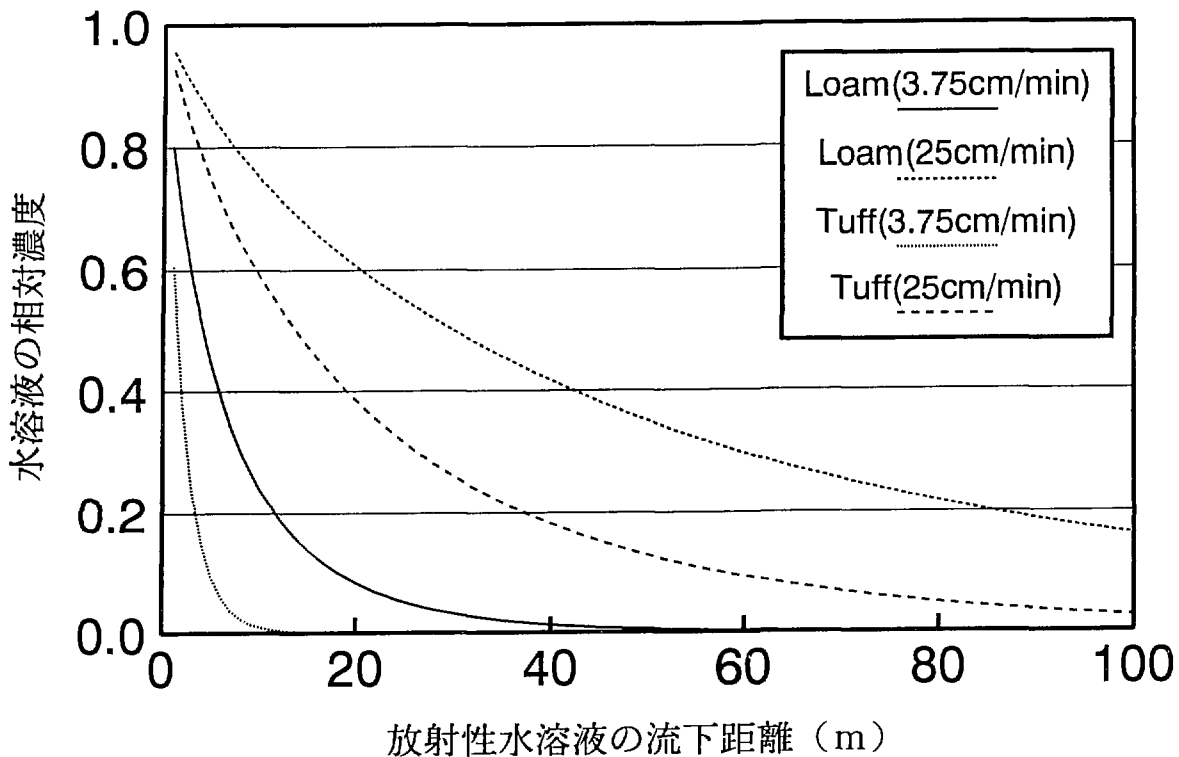


図12 長い距離の流下による核種濃度の減少効果

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光の量	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつ SI 組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg·s ⁻²
圧力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱	ジュール	J	N·m
電力、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
インダクタンス	ヘンリー	H	W/A ²
磁束	ウェッバー	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光の量	ルーメン	lm	cd·sr
面積	スクエアメートル	m ²	
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
放射線量	グレイ	Gy	J/kg
放射線当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	° ' "
リットル	L, l
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u
1eV	1.60218 × 10 ⁻¹⁹ J
1u	1.66054 × 10 ⁻²⁷ kg

表4 SIと併用数値的に維持される単位

名称	記号
アンペア	A
トン	t
トン	bar
トン	Gal
トン	Cu
トン	R
トン	rem
トン	rod

- 1A 0.1nm 10⁻⁹ m
- 1b 100fm 10⁻¹⁴ m
- 1bar 0.1MPa 10⁵ Pa
- 1Gal 1cm/s² 10⁻² m/s²
- 1Cu 3.7 × 10¹⁰ Bq
- 1R 2.58 × 10¹⁹ C/kg
- 1rad 1eGy 10⁻² Gy
- 1rem 1eSv 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁰	ヘン	d
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

- 1 表1-5は 国際単位系 第5版、国際度量衡局 1985年刊による。ただし、1eV および 1uの値は CODATAの1986年推奨値による。
- 2 表4には海軍、ナット、ケル、ペクセルも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- 3 barは、JISでは液体の圧力を表わす場合に限り表2のカタカナで分類されている。
- 4 EC関係理事會指令では bar, barn および 一部の単位 mmHg を表2のカタカナで入れていく。

換 算 表

N	10 ⁵ dyn	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

粘 度	1 Pa·s	N·s/m ²	10 ³ ポアズ	g/cm·s
動粘度	1 m ² /s	10 ⁶ St	10 ³ cSt	cm ² /s

圧	MPa	10 ⁵ bar	kgf/cm ²	atm	mmHg Torr	lbf/in ² psi
1	1	10 ^{1.972}	9.80665	7.50062 × 10 ⁻¹	145.038	
1	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233	
1	0.101325	1.03323	1	760	14.6959	
1	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻⁴	1.31579 × 10 ⁻⁴	1	1.93368 × 10 ⁻²	
1	0.89476 × 10 ⁻⁴	7.03070 × 10 ⁻⁵	6.80460 × 10 ⁻⁵	1	51.7149	

エネルギー	J	10 ⁷ erg	kgf·m	kW·h	cal (計量)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605 J (計量法)
1	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻²	0.238849	9.47813 × 10 ⁻²	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	4.184 J (熱化学)	
9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻²	2.34270	9.29487 × 10 ⁻²	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁷	4.1855 J (15°C)		
3.6 × 10 ⁷	3.67098 × 10 ⁷	1	8.59899 × 10	3412.13	2.65522 × 10 ⁴	2.24694 × 10 ³	2.24694 × 10 ¹⁸	仕事率 1 PS (仏馬力)	
4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻²	1	3.96759 × 10 ⁻²	3.0817	2.61272 × 10 ¹⁷	75 kgf·m/s		
1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻²	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ¹⁷	735.499 W		
1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻²	0.323890	1.28506 × 10 ⁻²	1	8.46233 × 10 ¹⁷			
1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻¹⁹	4.45050 × 10 ⁻²⁰	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²⁰	1.18171 × 10 ⁻²⁰	1			

放射能	Bq	Ci	吸 収 線 量	Gy	rad	吸 収 線 量	C/kg	R	吸 収 線 量	Sv	rem
1	1	2.70270 × 10 ⁻²	1	100	1	1	3876	1	100	1	100
3.7 × 10 ¹⁰	1	1	0.01	1	1	2.58 × 10 ⁻⁴	1	1	0.01	1	1

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2報 凝灰岩層試料 —