研究論文

928. ^{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

小 川 弘 道*

(1989年 9月8日 受理), (1989年 11月9日 再受理)

*Barrier Effect of Porous Medium for Migration of
Fine Soil Particles Labelled by Cesium-137*

By Hiromichi OGAWA

In order to study the barrier effect of porous medium for the migration of fine soil particles which affect the migration of ^{137}Cs through a soil layer, the suspension of fine soil particles which adsorbed ^{137}Cs was poured into the water-saturated column filled with coastal sand, Toyoura standard sand or glass beads, and the concentration of ^{137}Cs in the effluent through the columns was measured. The experimental results showed that the concentration of ^{137}Cs in the effluent was independent of the water flow velocity and the shape of packed particles, and dependent of the size of packed particles. Also, the reaction constant of fine soil particles with porous medium was derived from the ratio between the concentration of ^{137}Cs in the effluent and that in the inflowed suspension. It was revealed that the reaction constant was proportional to the water flow velocity and inversely proportional to the square root of the particle size. Therefore, the amounts of ^{137}Cs which migrate through the layer of fine sand, silt or clay to a long distance will be small, because of the large reaction constant.

KEYWORDS: barrier effect, radionuclide migration, cesium 137, porous medium, fine soil particle, filtration, irreversible model, reaction constant, tracer techniques

1. 緒 言

原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物(LLRW)の陸地処分は、現在、浅地中埋設による最終貯蔵を実施する段階にきている。施設周辺の地層は天然バリアと呼ばれ、LLRWに含まれる放射性核種が人工バリアである施設外に漏出した場合、放射性核種の最終貯蔵場外への移動を阻止するものと期待されている。このため、天然バリアの有する放射性核種に対する移動阻止効果に関して、従来より種々の研究が行われている^{(9)~(10)}。しかし、地層中における放射性核種の挙動は、土壌の有する複雑な物理的・化学的性質のために明らかでない部分が多く、陸地処分の安全性を確認するために検討すべき課題は多い。

LLRWに含まれる主要な β, γ 核種は ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs

であり、これらの放射性核種の地層中における移動は、水の移動に対する遅れという観点から、遅延係数(放射性核種の移動速度に対する水の移動速度の比)で評価することが多い。しかし、放射性核種を用いた室内実験では、 ^{60}Co , ^{137}Cs のうちのごく少量は、遅延係数で予想されるよりも遥かに速く土壌中を移動することが報告されており^{(6)~(8)}、実際の放射性廃棄物処分場の周辺でも、 ^{60}Co に同様な移動傾向が認められている^{(9)~(10)}。したがって、陸地処分の安全性を確認するためには、遅延係数による放射性核種の移動性評価とともに、特異的な移動を示すこれらの微量成分の移動を評価することが重要である。

室内実験で観察される特異的な ^{137}Cs の移動は、土壌微細粒子に吸着した ^{137}Cs に起因することが大貫ら⁽⁶⁾に

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

よって報告されており、著者も土壌微細粒子に吸着した ^{137}Cs が水の移動速度とほぼ同じ速度で砂層中を移動し、その移動が土壌微細粒子の河過という観点から評価できること等を報告した⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。しかしながら、分配係数によって ^{137}Cs の移動が予測できる場合も報告されており⁽¹⁰⁾、土壌の有する物理化学的特性によっては、特異的な ^{137}Cs の移動が抑制されることもあると考えられる。したがって、陸地処分の安全性を確保するためには、特異的な ^{137}Cs の移動を抑制するパラメータを検討し、特異的な移動が起り難い処分場を選定することも重要である。

本研究では、水流速、多孔質構成粒子の粒径および粒子形状を変化させたカラム実験を行い、土壌微細粒子に吸着した ^{137}Cs の多孔質中移動に影響するパラメータを検討したため、その結果について報告する。

II. 実験方法

実験装置をFig. 1に示す。装置は多孔質充填カラム、マイクロチューブポンプ、フラクションコレクタ等よりなる。カラムは、内径2.7cm、長さ9.5cmの塩化ビニール製カラムであり、内部に砂(密度約2.6 g/cm³)またはガラスビーズ(密度約2.5 g/cm³)を空隙率約36%で充填した。使用した砂は、日本原子力研究所東海研究所の敷地内(海岸より400 m、深さ1 m)で採取した海岸砂から1,680 μm 以上の砂礫等をJIS標準篩によ

り取り除いた平均粒径350 μm の調整砂、調整砂をさらに篩分けて分離した篩分け砂(210~250 μm , 420~500 μm , 710~840 μm)および豊浦標準砂を篩分けて分離した篩分け豊浦砂(210~250 μm)であった。また、ガラスビーズは東芝パロティニー(株)から購入したプラスチックビーズをさらに篩分けて使用した(88~105 μm , 210~250 μm , 420~500 μm , 1,000~1,190 μm)。

JIS標準篩を用いて調整砂から採取した37 μm 以下の微細粒子を高さ10cmのガラス容器内で蒸留水に懸濁させ、1h沈殿させた後の上澄み液中に懸濁している粒子を本実験で使用する土壌微細粒子とした(重力沈降のため最大粒径は約5.6 μm に相当する⁽¹³⁾)。

約1.2 MBqの ^{137}Cs を含む塩酸性CsCl溶液0.3 mlを上記の上澄み液と混合し、蒸留水で約2,000 mlに希釈した。希釈後の懸濁液からイオン形の ^{137}Cs を取り除くため、3,000 rpmで10 min間の遠心分離操作を行い、沈殿物を2,000 mlの蒸留水に懸濁させて、多孔質カラムへの流入部において約370 Bq/mlの土壌微細粒子懸濁液を得た。なお、土壌微細粒子に吸着した ^{137}Cs は容易には脱離しないことが報告されているため⁽¹⁴⁾、本実験でも ^{137}Cs は土壌微細粒子から脱離しないものとした。

調整砂、篩分け砂、篩分け豊浦砂、ガラスビーズをおのの充填したカラム内を蒸留水で飽和させた後、上記の土壌微細粒子懸濁液をカラム上部からマイクロチューブポンプを用いて一定流量で流入し、カラム下部からの流出液をフラクションコレクタにより一定時間間隔で採取した。なお、土壌微細粒子の沈殿を防ぐためにスターラによって土壌微細粒子懸濁液を攪拌しながら実験を行なった。

流出液は20 mlの試料に調整してポリエチレン製容器に封入し、純Ge半導体検出器および波高分析装置(EG & G ORTEC 7010)を用いた γ 線スペクトロメトリにより ^{137}Cs 濃度を決定した。

平均粒径、空隙率、流量等の実験条件を各流入実験ごとにTable 1に示す。

III. 実験結果

調整砂を充填したカラム内に、流量を変化させて土壌微細粒子懸濁液を流入した場合の ^{137}Cs の流出濃度変化をFig. 2に示す。ただし、Fig. 2において、縦軸は流入濃度(C_{in})に対する流出濃度(C_{out})の比(C_{out}/C_{in} , 以下では流出比と呼ぶ)であり、横軸は流入量である。Fig. 2から明らかなように、流出比の増加の仕方が流量の変化により多少変動するものの、流出比の

Fig. 1 Experimental apparatus

Table 1 Experimental conditions

No.	Porous medium	Diameter (μm)	Porosity	Flow rate (ml/min)
1	Sandy soil	350 ($<1,680$)	0.365	1.72
2			0.366	5.26
3			0.360	17.3
4			0.372	24.7
5	Glass beads	97	0.337	4.58
6		230	0.361	4.62
7		460	0.367	4.90
8		1,095	0.364	4.75
9	Sieved sand	230	0.374	4.44
10		460	0.367	4.45
11		775	0.365	4.58
12	Toyoura sand	230	0.375	5.82

飽和値は流量，すなわち流速が変化してもほぼ一定である。したがって，土壌微粒子に吸着した ^{137}Cs に対して多孔質層の有する濃度減少効果は，流速の影響を受けないと判断できる。

流速，すなわち流量を一定(約5 ml/min)とし，カラム充填粒子の粒径を変化させた場合の ^{137}Cs の流出比をFig. 3 (a), (b)に示す。ただし，Fig. 3 (a)は篩分け砂(3種類)に対する流出比を示し，Fig. 3 (b)はガラスビーズ(4種類)に対する流出比を示す。Fig. 3 (a)では使

(a) Sieved sand layer

Fig. 2 Dependence of ^{137}Cs effluent ratio ($C_{\text{out}}/C_{\text{in}}$) on water flow rate (sandy soil layer)

用した篩分け砂の粒径範囲が狭いため，粒径による流出比の変化はそれほど大きくなく，粒径の減少とともに流出比が減少する傾向がわずかに認められるだけであるが，Fig. 3 (b)では粒径の減少とともに流出比が減少する傾向が明白に認められる。したがって，土壌微粒子に吸着した ^{137}Cs に対して多孔質層の有する濃度減少効果は，充填粒子の粒径の減少とともに増加することがわかる。

(b) Glass beads layer

Fig. 3 Dependence of ^{137}Cs effluent ratio on particle diameter

次に，流速を一定とし(流量 約5 ml/min)，粒子形状をほぼ完全な球形(ガラスビーズ)，複雑な凹凸を持つ非球形粒子(篩分け砂と篩分け豊浦砂，比表面積にしてガラスビーズの数100倍)に変化させた場合の ^{137}Cs の流出比をFig. 4 (a), (b)に示す。ただし，Fig. 4 (a)は充填粒子の粒径が210~250 μm の場合の流出比であり，

Fig. 4 (b)は充填粒子の粒径が420~500 μm の場合の流出比である。図から明らかなように，粒子形状が変化しても粒径が一定であれば，流出比はほとんど一定である。したがって，土壌微粒子に吸着した ^{137}Cs に対して多孔質層の有する濃度減少効果は，充填粒子の形状にはほとんど影響されないと判断できる。

Fig. 4 Dependence of ^{137}Cs effluent ratio on particle shape

IV. 考 察

多孔質中における土壌微細粒子の1次元移動は、(1)式の輸送拡散方程式に、(2)式の非可逆反応式を代入して解くことにより得られる⁽¹¹⁾。

$$fs \frac{\partial C}{\partial t} + (1-f)\rho \frac{\partial Q}{\partial t} = fsD \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - fsV \frac{\partial C}{\partial x} \quad (1)$$

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = KC \quad (2)$$

ここで、 f : 空隙率、 s : 飽和度
 C : 液層中濃度、 t : 時間
 ρ : 多孔質の密度、 Q : 固相中濃度
 D : 分散係数、 V : 水流速
 x : 位置、 K : 反応速度定数

上記の式による移動モデルは、放射性核種による地下水の汚染を評価する際に、福井らが用いた複合吸着移動モデル⁽¹⁵⁾において、ヘンリー型吸着反応式を省略し、崩壊を無視したモデルと同等である。また、本実験では、 $[t=0, x>0 \text{ で } C=0]$ が初期条件、 $[t>0, x=0 \text{ で } C=C_{in} \text{ および } t>0, x=\infty \text{ で } C=0]$ が境界条件であり、福井らの条件と同じである。したがって、カラムの長さを L 、流出が飽和している状態での ^{137}Cs の流出濃度を C_{∞} とすれば、福井らの解を簡略化して、 ^{137}Cs の流出濃度は(3)式により、反応速度定数は(4)式により計算できる。

$$C_{\infty} = C_{in} \exp \left[\frac{V - \sqrt{V^2 + 4 \frac{1-f}{fs} \rho DK}}{2D} L \right] \quad (3)$$

$$K = fs \frac{\left[V - \frac{2D}{L} \ln \frac{C_{\infty}}{C_{in}} \right]^2 - V^2}{4(1-f)\rho D} \quad (4)$$

本実験では、 $s=1$ 、 $L=9.5(\text{cm})$ 、 $f=0.37$ (Table 1) であり、砂の場合は $\rho=2.6(\text{g/cm}^3)$ 、ガラスビーズの場合は $\rho=2.5(\text{g/cm}^3)$ であった。また、本実験条件での水流速および分散係数は、別に行なったトリチウムの流出実験から逆解析によって決定した⁽¹⁶⁾。飽和流出度から逆算した反応速度定数の値を水流速、分散係数とともにTable 2に示す(表中の実験番号はTable 1の実験番号と同じ)。

Table 2 Flow velocity, dispersion coefficient and reaction constant

No.	Flow velocity (cm/min)	Dispersion coefficient (cm ² /min)	Reaction constant (ml/g·min)	$\rho K/V$ (1/cm)
1	0.823	0.24	0.025	0.0899
2	2.51	0.803	0.0895	0.0938
3	8.39	3.14	0.285	0.0893
4	11.6	4.82	0.392	0.0889
5	2.37	0.0221	0.171	0.179
6	2.24	0.0594	0.0868	0.0961
7	2.33	0.139	0.0606	0.0645
8	2.28	0.265	0.0472	0.0513
9	2.07	0.0858	0.0711	0.0903
10	2.12	0.220	0.0568	0.0705
11	2.19	0.170	0.0505	0.0606
12	2.71	0.146	0.104	0.0959

カラム内充填粒子を篩分け砂とし、水流速だけを変化させた場合の反応速度定数は、Fig. 5に示すように、ほぼ水流速に比例する。したがって、Table 2には水流速で規格化して、 $\rho K/V$ 値も同時に表示する。

表中の $\rho K/V$ の値は、水流速、粒子の形状(海岸砂、豊浦砂、ガラスビーズ)にはあまり影響されないものの、粒径の増加とともに減少する。平均粒径 d と $\rho K/V$ は、Fig. 6に示したように両対数のグラフ上で直線関係にあり、反応速度定数は次式で近似できる。

$$K = 0.0166 \frac{V}{\rho d^{0.48}} \quad (5)$$

Fig. 5 Relation between water flow velocity and reaction constant (K)

Fig. 6 Relation between mean diameter of porous medium and normalized reaction constant ($\rho K/V$)

(5)式を用いれば、土壤微細粒子に吸着した ^{137}Cs の土壤における移動性が、異なった粒径の土壤について比較できる。例えば、 $\rho = 2.6(\text{g}/\text{cm}^3)$ 、 $s = 1.0$ と仮定し、 $f = 0.4$ 程度の土壤を考える。飽和状態の多孔質中における分散係数は、 $D = \alpha V^{1.2}$ (α : 定数)で近似でき、 α は充填粒子の粒径程度であることが報告されて

いる⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾。簡単のために、分散係数は水流速に比例すると仮定すると、近似式として $\hat{D} \approx dV$ が得られる。(5)式とともにこれらを(3)式に代入し、長さ1 mの土壤層に関する流出 ^{137}Cs 濃度の減少率を計算すると、各種粒径(国際法式の区分⁽¹⁸⁾)の土壤に対してTable 3に示すような濃度の減少率が得られる。したがって、土壤微細粒子に吸着した ^{137}Cs は、水と同じ速度で土壤中を移動する⁽¹¹⁾が、細砂層、シルト層、粘土層等の粒径の小さい土壤層の場合には、土壤微細粒子の汜過による ^{137}Cs 濃度の減少効果が大きく、遠方まで移動する ^{137}Cs の量はごく僅かに過ぎないと考えられる(^{137}Cs の特異的な移動が観察された室内試験⁽⁶⁾⁻⁽⁸⁾では、土壤層として砂層が使われていた)。

Table 3 Filtration effect of various soil layer (1 m in length) on migration of ^{137}Cs adsorbed on fine soil particles

Soil layer	Range (μm)	$\rho K/V$ (1/cm)	Filtration effect
Clay	~ 2	0.99 $\sim$	$\sim 3.4 \times 10^{-65}$
Silt	2 $\sim$ 20	0.33 $\sim$ 0.99	$3.4 \times 10^{-65} \sim 3.3 \times 10^{-22}$
Fine sand	20 $\sim$ 200	0.11 $\sim$ 0.33	$3.3 \times 10^{-22} \sim 7.2 \times 10^{-8}$
Coarse sand	200 $\sim$ 2,000	0.036 $\sim$ 0.11	$7.2 \times 10^{-8} \sim 4.8 \times 10^{-3}$
Gravel	2,000 $\sim$	~ 0.036	$4.8 \times 10^{-3} \sim$

なお、濁り、細菌等の汚染物質を含む懸濁液を多孔性物質(砂等)によって浄化することは、ごく一般的に行われていることで、その最も身近な例の1つが上水道である。このような水処理の分野では、汚染物質はケーキ汜過と粒状層汜過により除去されるとされている。ケーキ汜過は多孔性物質表面に形成される泥状の層による汚染物質の除去であり、本実験のような土壤微細粒子の除去は、汚染物質が汜材(砂)間隙に捕獲される粒状層汜過と考えられる。粒状層汜過では、懸濁物質抑留パターンを示す次の基礎式(汜過方程式)が阻止率 λ (1/cm)をパラメータとして報告されている⁽¹⁹⁾。

$$V \frac{\partial C}{\partial x} + \frac{\partial Q}{\partial t} = 0 \quad (6)$$

$$\frac{\partial C}{\partial x} = -\lambda C \quad (7)$$

(7)式を(6)式に代入して整理すると、 $\partial Q/\partial t = \lambda VC$ となり、(2)式と同じ形となる。また、(6)式は流出濃度が飽和した時点($\partial C/\partial t = 0$)での(1)式から分散項を除いたものと同じ形である。したがって、(6)、(7)式は、(1)、(2)式とほぼ同じ概念を示すものと考えられる。この場合、懸濁粒子の汜材表面への主要

な輸送機構として、さえぎり(流線の変化による接触)、重力沈降、対流的輸送が考えられており、その結果、汙材粒径および流速に対する阻止率の依存性は、次式のように表現されている⁽²⁰⁾。

$$\lambda = \frac{\text{const}}{d^{(l+n)} V^{(m+n)}} \quad (8)$$

ただし、 $l, m, n(\geq 0)$ はそれぞれ、さえぎり、重力沈降、対流的輸送の影響の程度を表わす。

反応速度定数は λV に匹敵するため、本実験の結果、 $\lambda = \text{const}/d^{0.46}$ となり、 $l \approx 0.5, m \approx 0, n \approx 0$ が得られる。したがって、土壤微細粒子自身の粒径の影響を無視すると、土壤微細粒子に吸着した ^{137}Cs が多孔質中を移動する場合、さえぎり、すなわち流線の変化による土壤微細粒子の土壤表面への輸送が主要な輸送機構であると考えられる。

V. 結 言

^{137}Cs の土壤中移動に影響を及ぼす土壤微細粒子の多孔質による阻止効果を検討するため、海岸砂、豊浦砂、ガラスビーズを充填したカラム内に、 ^{137}Cs を吸着した土壤微細粒子を流入して ^{137}Cs の流出濃度を測定した。その結果、流出濃度は水流速および多孔質構成粒子の形状には依存しないが、粒子粒径の減少とともに、流出濃度も減少することがわかった。さらに、土壤微細粒子の多孔性物質との反応速度定数は水流速に

比例し、粒子粒径の平方根に反比例することがわかり、近似式として $K=0.0166 V/pa^{0.46}$ が得られた。したがって、細砂層、シルト層、粘土層等の粒径の小さい土壌層においては、土壤微細粒子に吸着した ^{137}Cs は、水と同じ速度で土壌中を移動するものの、大きな濃度減少効果のためにごく僅かしか遠方まで移動しないと考えられる。

本報を作成するにあたり、貴重なご助言を頂いた日本原子力研究所環境安全研究部浅地処分研究室山本忠利副主任研究員に感謝します。

— 参 考 文 献 —

- (1) 福井正美, 桂山幸典: 土木学会論報, 254, 37 (1976).
- (2) LU, A.H.: *Health Phys.*, 34, 39 (1978).
- (3) 森澤真輔, 井上頼輝, 馬原保典: 原子力誌, 20[2], 133 (1978).
- (4) 福井正美: 保健物理, 16, 111 (1981).
- (5) 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹: 同上, 17, 437 (1982).
- (6) 大貫敏彦, 和達嘉樹: 原子力誌, 25[6], 486 (1983).
- (7) EICHHOLZ, G. G., et al.: *Nucl. Technol.*, 58, 511 (1982).
- (8) 大貫敏彦, 和達嘉樹: 原子力誌, 26[10], 880 (1984).
- (9) FRUCHTER, J.S., et al.: *NUREG/CR-3712*, (1983).
- (10) FRUCHTER, J.S., et al.: *NUREG/CR-4030*, (1985).
- (11) OGAWA, H.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 25[3], 283 (1988).
- (12) *idem: ibid.*, 25[7], 594 (1988).

◇第10回設計における信頼性工学◇ シンポジウム

主 催 日本材料学会, 協 賛 本会ほか17学協会
会 期 12月7日(金), 8日(土)
会 場 四国総合研究所ホール (高松市屋島西町2109)

○専 業 分 野○

- A. 信頼性理論(信頼性解析手法, シミュレーション, 信頼性設計理論等)
- B. 確率的破壊力学
(亀裂進展, 欠陥評価, 保守・点検への応用等)
- C. 構造要素の信頼性
(要素・材料強度信頼性, 寿命分布, 信頼度低下等)
- D. 構造システム解析
(信頼性解析, 最適設計, 確率有限要素法等)
- E. 荷重の組合せ(異種荷重の組合せ, 応答信頼性等)
- F. 品質管理・保守点検
(品質管理, 工程管理, 保守・点検政策等)
- G. 統計的資料解析(データの統計的処理, パラメータ推定等)
- H. 工学的不確定性解析(知識工学, FTA, ヒューマンエラー, ファジ理論等の応用)

講演申込締切 9月25日(火)
講演原稿締切 11月12日(月)必着

申込方法 B5判随意用紙に「第10回信頼性工学シンポジウム講演申込」と表記し、演題、講演者氏名(連名の場合は発表者に○印)、勤務先、連絡先、上記募集分野(記号)および講演概要(100字程度)を明記して、下記宛て送付下さい。

前刷原稿 前刷原稿は1講演につき、オフセット用所定原稿用紙(講演申込受理後、本会より送付、1枚約2,200字)6枚以内で執筆。講演は討論を含め20分程度を予定。

申込先 (〒606)京都市左京区吉田泉殿町1-101

日本材料学会「信頼性シンポジウム」係 (075-761-5321)

☆JICSTの翻訳サービス☆

日本科学技術情報センター(JICST)では、科学技術全分野を対象とする学術論文等の専門家による翻訳サービスを行なっています。本会「英文誌」投稿者はお問合せ下さい。

JICST東京支所(03-230-1341)

☆英文校正サービス☆

ネイティブによる英文論文のリライトサービスをご希望の向は、下記へ。

財ユニバーサル・アカデミー・プレス
(東大赤門前)03-813-7232