一般論文

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用—

内田滋夫*¹, 福井正美*², 桂山幸典*²

(1980年5月23日受理)

A Study on the Diffusivity of ^{137}Cs in Sandy Soils of a Sea Bottom

—Application of an Irreversible Sorption Model—

Shigeo UCHIDA,*¹ Masami FUKUI*² and Kousuke KATSURAYAMA*²

It is important to forecast the behavior of radionuclides in a soil layer of the river bed or of the sea bottom for monitoring and evaluating the degree of environmental pollution resulting from the release of radionuclides from nuclear power plants or nuclear facilities.

The purpose of this paper is to investigate the behavior of ^{137}Cs , one of the long-lived radionuclides, in a sandy layer of the sea bottom by conducting the diffusion experiments. The results obtained are as follows.

- 1) The effective diffusion coefficients of HTO for sandy layers were $3\sim 5\times 10^{-6}\text{ cm}^2/\text{sec}$.
- 2) The mobility of ^{137}Cs in the sandy layer depends more on the kind of soil mineral than on its texture.
- 3) The model which combines the linear isotherm and the first order kinetics well describes the behavior of ^{137}Cs in a sandy layer of sea bottom.

KEY WORDS: diffusivity, cesium, irreversible sorption, soil layer, sediment, environmental pollution, monitoring, mobility, effective diffusion coefficient.

I はじめに

原子力発電所や放射性物質使用施設から放出された長寿命放射性核種が周辺の湖沼や沿岸の停滞水域に流入した場合、時間が経過するにつれて拡散・希釈が行なわれ、水中の放射性核種の濃度は非常に低くなると考えられる。しかし、水中の懸濁物質への吸着、底質土壤への

蓄積および生物による濃縮などの現象があるため、水中の放射性核種の濃度が低くても必ずしも安全であるとはいえない。とくに、底質土壤は食物連鎖に深い係りをもっているため、その地域の魚貝類などを摂取している人々やその周辺地域で生活している人々の被曝評価を行なう場合、底質土壤への放射性核種の蓄積を十分検討する必要がある。このように、底質土層中における放射性核種の挙動を把握することは、モニタリングや事故時の環境汚染予測を行なううえでも重要なことである。

底質土層内では、鉛直方向における間隙水の流速は0とみなしうるため、水中から土層内への放射性核種の移行はおもに拡散現象によると想定できる。筆者らはこのような想定の下に、底質土層内における放射性核種の挙動のパラメータとなるみかけの拡散係数を求める理論と実験方法を提案し、砂層中における放射性核種の挙動を

*¹ 放射線医学総合研究所環境放射生態学研究部; 茨城県那珂市磯崎町 3609 (〒311-12)

Div. of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences; 3609, Isozaki, Nakaminato-shi, Ibaraki, Japan.

*² 京都大学原子炉実験所放射線管理部門; 大阪府泉南郡熊取町 (〒590-04)

Div. of Radiation Control, Res. Reactor Inst., Kyoto Univ.; Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka, Japan.

検討¹⁾した。この場合、豊浦標準砂を用いて実験を行ない、水溶液中で2価イオン状として存在する核種、たとえば Sr や Mn などはヘンリー型の吸着モデルが適用できるが、吸着性が高い Cs や多価イオン、さらに多核錯体を形成して高分子状として水溶液中に存在する核種については、別の吸着モデルを考える必要があるという結果を得た。

本研究は、土壌への吸着反応が土粒子表面におけるイオン交換反応による吸着だけではなく、細孔内や粘土鉱物の格子間への拡散による内部吸着をも含むと考えられる²⁾ Cs イオンの底質砂層内における挙動を検討したものである。Cs イオンの土壌への吸着反応は上述のように複雑であることから、ヘンリー型の吸着と非可逆的な吸着との和で表わした吸着反応モデルを用い、非定常境界条件の下で解析解を求めた。そして、若狭高浜で採取した海水と海底砂を用いて行なった実験結果を解析解と比較して、その吸着反応モデルの適用性を検討したものである。

II 吸着モデルとその解析解について

底質土層内において、間隙水はほとんど停滞しているものと仮定すると、放射性核種は連続した間隙内を拡散移動するものと考えられる。そこで、放射性核種の底質土層内での挙動を把握するためには、間隙内における有効拡散係数³⁾および底質土壌と放射性核種との吸着反応式を知る必要がある。とくに、Cs イオンの場合は、土壌への被吸着能が大きく、そのため吸着反応式が重要となる。

一般に、土壌などの固相への気・液体の吸着現象を表わすのに、次式の吸着反応式がよく用いられる。

$$Q = K \cdot C \quad (1)$$

ここで、 Q : 固相中の放射性核種の濃度 [unit/g]

C : 液相中の放射性核種の濃度 [unit/cm³]

K : 分配係数 [cm³/g]

(1)式は液体に対するガスの溶解量と圧力に関するヘンリー則と同じところから、ヘンリー型吸着式と呼ばれている⁴⁾。この式は吸着現象に関して反応時間が考慮されておらず、吸着物質が固相表面に瞬間的に吸・脱着すると仮定しているため、イオンなどが土粒子表面にイオン交換反応により吸着する場合は適応できるが、Cs イオンのような粘土鉱物の格子内まで拡散²⁾して、吸着される反応の場合は適応できない。

そこで、Cs イオンの土壌への吸着現象を土粒子表面における吸着と粘土鉱物の格子内拡散の2段階から成る⁵⁾と仮定する。モデル化に際しては、主としてイオン交換

反応によると考えられる土粒子表面における吸着を上記のヘンリー型の吸着式で表わし、希薄溶液の場合、粘土鉱物の格子内拡散を非可逆的な吸着と仮定した。この場合、吸着反応式は次のようになる⁶⁾。

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = K \cdot \frac{\partial C}{\partial t} + k \cdot C \quad (2)$$

上式の Q , C および K は(1)式のそれと同じであり、 k は反応速度定数 [cm³/g·sec], t は時間 [sec] である。(2)式の右辺第1項はヘンリー型の吸着を表わし、第2項は非可逆的な吸着を表わしている。

(2)式のような吸着反応式を用いた解析解または数値解とカラム実験を比較した研究は定濃度境界条件を用いたものはあるが^{6,7)}、非定常境界条件で底質土壌に関連した研究はない。

多孔性媒体内の物質移動を表わすのに通常用いられている拡散型の2階偏微分方程式に(2)式を代入すると(3)式が得られ、(3)式を適当な初期・境界条件の下で解くことにより、多孔性媒体内での放射性核種の濃度が求められる。

$$\frac{\partial C(z,t)}{\partial t} = \frac{D_0}{p} \cdot \frac{\partial^2 C(z,t)}{\partial z^2} - \frac{(1-p) \cdot \gamma}{p} \cdot \left\{ K \cdot \frac{\partial C(z,t)}{\partial t} + k \cdot C(z,t) \right\} \quad (3)$$

p : 間隙率 [-]

γ : 土壌密度 [g/cm³]

D_0 : 有効拡散係数 [cm²/sec]

Z : 拡散方向距離 [cm]

ここで、 D_0 は吸着物質と多孔性媒体の間隙径分布、間隙率および屈曲度により定まる定数³⁾である。また、本研究では長寿命核種を対象としているため、崩壊による減衰を0と仮定した。

底質土層内においては、前述したように間隙水の移動がなく、さらに土壌との吸着反応を伴うため、Cs イオンの土壌間隙内での移動は非常に遅くなる。しかしながら、土層厚さを半無限と考え、土層表面上 ($Z=0$) において、常に C_0 なる一定濃度の溶液に接するという定常境界条件では、底質土層上層液を一定に保つためには多量の溶液が必要であり、また実験終了後の間隙水中の濃度分布を理論曲線と比較しなければならなくなり、精度的にも問題がある。そこで、底質土層上層液(以下上層液と記す)を閉鎖系にし、非定常境界条件とすることにより、上層液の濃度変化と実験終了時における間隙水中の濃度分布の二つのデータから、(2)式の吸着反応式の適用性を検討した。

非定常境界条件の場合、上層液を完全混合の状態とす

れば境界面での条件は、ある時刻 t における上層液中の濃度減少量が底質土層表層から土層内へ拡散していった全量に等しいとする次式が成立する¹⁾。

$$S \cdot H \cdot \{C_0 - C_{(0,t)}\} = - \int_0^t D_0 \cdot \frac{\partial C}{\partial Z} \Big|_{z=0} \cdot S \, dt \quad (4)$$

C_0 : 初期上層液濃度 [unit/cm³]

$C_{(0,t)}$: 上層液濃度 [unit/cm³]

S : カラム断面積 [cm²]

H : 上層液深 [cm]

さて、(4) 式 of 非定常境界条件の下での (3) 式の解は (5) 式のようになる。

$$\begin{aligned} \frac{C_{(Z,t)}}{C_0} = & \frac{1}{2} \cdot \frac{l_1}{\beta} \cdot e^{l_1 t} \cdot e^{Z\sqrt{r_1/n}} \\ & \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{Z}{2\sqrt{nt}} + \sqrt{r_1 t} \right) \\ & - \frac{1}{2} \cdot \frac{l_2}{\beta} \cdot e^{l_2 t} \cdot e^{Z\sqrt{r_2/n}} \\ & \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{Z}{2\sqrt{nt}} + \sqrt{r_2 t} \right) \end{aligned} \quad (5)$$

ここで、

$$\left. \begin{aligned} m &= \frac{(1-p) \cdot \gamma \cdot k}{p + (1-p) \cdot \gamma \cdot K} \\ n &= \frac{D_0}{p + (1-p) \cdot \gamma \cdot K} \\ \alpha &= \frac{1}{2} \cdot \frac{D_0^2}{H^2} \cdot \frac{1}{n} \\ \beta &= \sqrt{2m\alpha + \alpha^2} \\ l_1 &= \alpha + \beta \\ l_2 &= \alpha - \beta \\ r_1 &= l_1 + m \\ r_2 &= l_2 + m \\ \operatorname{erfc}(x) &= 1 - \operatorname{erf}(x) \\ &= 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \int_0^x \exp(-\eta^2) d\eta \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

(5) 式では直接、間隙水中の放射性物質の濃度分布を実験的に得ることが必要であるが、実験手法上非常に困難であるため、単位体積当たりの間隙水中および土層中に存在する全物質量¹⁾ (Q_T : [unit/g]) を求めた。この場合、濃度分布の理論解は (2) 式を考慮すると、

$$\begin{aligned} \frac{Q_{T(Z,t)}}{C_0} = & \left\{ \frac{p}{(1-p) \cdot \gamma} \right\} \cdot C_{(Z,t)} \\ & + \left[K \cdot C_{(Z,t)} + k \cdot \int_0^t C_{(Z,t)} dt \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} = & \frac{1}{2} \cdot \frac{x_1}{\beta} \cdot e^{l_1 t} \cdot e^{Z\sqrt{r_1/n}} \\ & \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{Z}{2\sqrt{nt}} + \sqrt{r_1 t} \right) \\ & - \frac{1}{2} \cdot \frac{x_2}{\beta} \cdot e^{l_2 t} \cdot e^{Z\sqrt{r_2/n}} \\ & \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{Z}{2\sqrt{nt}} + \sqrt{r_2 t} \right) \\ & - \frac{1}{2} \cdot \frac{H}{D_0} \cdot \frac{k \cdot \sqrt{n}}{\sqrt{m}} \\ & \cdot \left\{ e^{Z\sqrt{m/n}} \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{Z}{2\sqrt{nt}} + \sqrt{mt} \right) \right. \\ & \left. - e^{-Z\sqrt{m/n}} \cdot \operatorname{erfc} \left(\frac{Z}{2\sqrt{nt}} - \sqrt{mt} \right) \right\} \quad (7) \end{aligned}$$

ここで、

$$x_i = \left\{ \frac{p + (1-p) \cdot \gamma \cdot K}{(1-p) \cdot \gamma} \right\} l_i + k \quad (i=1, 2)$$

(7) 式の左辺は、求めた Q_T を初期上層液濃度 C_0 で割ることにより、相対的な吸着量を表わしている。

III 実験方法

1. 実験材料および実験装置

実験に用いた土壌は 1975 年 12 月に若狭高浜の 3 地点 (小黑飯、難波江および常宮) の海岸から採取した細砂および豊浦標準砂の 4 種類である。Fig. 1 に 4 種類の土壌の粒径分布を示す。若狭高浜で採取した 3 種類の細砂のうち、難波江の試料がいちばん細かい粒径分布を有し、その 60% 粒径 (以下 D_{60} と記す) は約 0.22 mm である。他の二つの試料はよく似た粒径分布をしており、その D_{60} は小黑飯試料が 0.48 mm、常宮試料が 0.51 mm である。豊浦標準砂は D_{60} が 0.19 mm、均等係数 (D_{60}/D_{10}) が 1.58 で粒径が非常にそろっている石英細砂である。

それぞれの試料は貝がら等を取り除くために 980 μm のフルイでふるい、水道水で十分水洗いした後、蒸留水中に 24 時間静置したものを乾燥器に入れて 60~80°C の

Table 1 Composition of the synthetic sea water used for diffusion experiments.

Chemical form	Amount (g/liter)
NaCl	23.48
Na ₂ SO ₄	3.92
MgCl ₂	4.98
CaCl ₂	1.10

温度で乾燥させた。試料を充填する前に乾燥した理由は充填時に、間隙率および充填密度を実測するためである。海水は Table 1 に示すような成分を有する人工海水を作成して実験に用いた。また、土壌試料を採取した地点で採水した海水を用いても実験を行なったが、その場合、ゴミや浮遊物を取り除くために、平均孔 5~10 μm の濾紙 (Toyo No. 5C) で吸引濾過した。豊浦標準砂についても上記の2種類の海水を用いた。トレーサー

物質は ^{137}Cs 以外に、前述した有効拡散係数 D_e を求めるために HTO を用いた。HTO は初期上層液濃度 (C_0) が $2.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ となるように調整し、Packard 社製の液体シンチレーション・カウンターを用いて測定した。また、 ^{137}Cs は化学形が塩化物のものを無担体状で使用し、トレーサー濃度は約 $5.0 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ となるように調整した。

土壌試料を充填した実験装置を Fig. 2 に示す。上層

Fig. 1 Particle size distributions for four sandy sediments.

Fig. 2 Schematic diagram of the diffusion experiment.

液は装置上部の内径 5.0 cm のアクリル樹脂製カラムに 200 ml を貯留しておき、図に示すようにカラムの上部と下部、すなわち水面下約 1 cm と底質土層表層上約 1 cm の位置に穴をあけ、内径 2.0 mm、長さ 50 cm のタイゴン・チューブでつなぎ、その間にローラーポンプを置き、上層液を循環させた。これは上層液中の HTO および ^{137}Cs の濃度を均一にするためである。カラムの上部は海水の蒸発や空気との接触による pH の変化などを防ぐために、ゴム栓で密閉した。

2. 実験方法

土壌試料の充填は次のようにして行なった。最初に実験装置に 100 ml の海水を入れておき、土壌試料を少しずつガラス棒で攪拌しながら装置下部の 200 メッシュ・ステンレス製金網から 10 枚目のゴムパッキングの上部まで充填した。そして、土層表面上の海水を最下部支持台の排水口から排水し、その量を測定することにより各土壌試料の間隙率を求めた。さらに、充填土壌試料の重量から充填密度を求めた。充填前に土壌試料を蒸留水で洗ったため、土粒子に吸着および付着しているイオン等は海水中のそれらと平衡に達していないと考えられるので、実験を開始する前に次のようなコンディショニングを行なった。貯留槽に 200 ml の海水を入れ 24 時間静置してから、最下部の排水口から 200 ml の海水を排水し、さらに同量の海水を貯留槽に加えるという作業を 1 週間くり返した。人工海水を用いた実験の場合も、上記の方法で土壌試料を充填し、コンディショニングを行なった。

HTO の拡散期間は 11 日間、 ^{137}Cs は 14 日間とした。拡散経過期間ごとに上層液を採取して、その濃度変化を測定した。 ^{137}Cs の拡散実験終了後、装置を解体して土壌試料を採取し、底質土層内の ^{137}Cs の吸着分布を求めた。

IV 実験結果および考察

1. 底質砂層内における HTO の有効拡散係数 (D_e)

上層液中の濃度変化から求めた有効拡散係数 (D_e) を Table 2 に示す。この実験はすべて若狭高浜で採取した

海水を用いて行なった。これは HTO が土粒子に吸着しないと考えられるため、(2) 式の K および k を 0 とし、解いた非定常境界条件下での解析解と上層液濃度変化から求めた。筆者らは豊浦標準砂層内での HTO の D_e が $4.9 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であるという結果⁸⁾を得ている。

Table 2 に示したように、海水を用いて行なった実験では豊浦標準砂層内での HTO の D_e は $4.4 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であった。他の 3 試料についても $3 \sim 5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ の値で土壌試料による大きな違いは認められない。これは 4 試料ともシルト・粘土分をほとんど含まない、粒度のよくそろった細砂であるため、間隙構造がよく似ているためと考えられる。有効拡散係数 (D_e) は対象とする拡散物質が砂層内間隙を土粒子に吸着されずに移動してゆく場合の拡散係数である。実際には、 Cs イオンのように対象とする拡散物質が溶液中で陽イオンとして存在している場合は、土粒子との吸着反応を伴うため測定不可能である。HTO は砂層内間隙だけでなく、土粒子表面に吸着している結合水や半結合水にまで拡散してゆくため、 D_e の値は過大評価されることが考えられる。しかし、前述したように本実験に用いた土壌試料はシルト・粘土分が非常に少なく、したがって比表面積も少ないため、全間隙水に対して結合水および半結合水の占める割合はきわめて小さいと考えられる。したがって、後述する(2)式の吸着モデルの適応性の検討において、 D_e はこの 4 試料の各 D_e の平均値 ($4.0 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$) を用いた。

2. ^{137}Cs の上層液濃度変化および底質砂層内分布

Table 3 には実験装置に充填した各土壌試料の密度および充填層の間隙率を示す。No. 1~No. 4 は人工海水を用い、No. 5~No. 8 は前述したように濾過した若狭高浜の海水を用いた。No. 1~No. 4 の実験結果を Fig. 3 および Fig. 4 に示す。Fig. 3 は上層液中の ^{137}Cs の濃度変化である。Fig. 4 は 2 週間の拡散期間終了後、実験装置を解体して、前述したように砂層内の単位体積当たりに含まれる間隙水および土壌試料中の ^{137}Cs 量を深さごとに求めたものである。Fig. 3 から、貯留槽中に ^{137}Cs を添加してから約 10^4 sec 、すなわち数時間後では

Table 2 Effective diffusion coefficients of HTO for four kinds of sandy layer.

(cm^2/sec)

Soil	Toyoura sand	Wakasa Nabae	Wakasa Ogurui	Wakasa Johgu
Effective diffusion coefficient D_e	4.4×10^{-6}	3.0×10^{-6}	4.9×10^{-6}	3.6×10^{-6}

Average value; 4.0×10^{-6}

Table 3 Some properties of soils and water in diffusion systems.

No.	Soil	Porosity of sediment	Density of soil (g/cm ³)	pH of solution above the sediment
1	Toyoura sand	0.41	2.63	6.6
2	Wakasa Nabae	0.44	2.74	6.8
3	Wakasa Ogurui	0.40	2.64	6.6
4	Wakasa Johgu	0.42	2.67	6.5
5	Toyoura sand	0.43	2.70	6.8
6	Wakasa Nabae	0.41	2.65	6.8
7	Wakasa Ogurui	0.39	2.64	6.7
8	Wakasa Johgu	0.39	2.59	6.8

No. 1-4; synthetic sea water, No. 5-8; sea water

Fig. 3 Concentration history of ¹³⁷Cs in solution above a sediment (using synthetic sea water).

¹³⁷Cs の濃度は土壌試料による差はあまりなく、その値は $C/C_0 \approx 0.9$ でそれほど減少していない。しかし、 10^5 sec 以後土壌試料の違いにより濃度変化に差が認められる。2週間後における上層液の濃度変化は減少量の大きいほうから、

小黑飯>難波江>豊浦標準砂≈常宮

の順になっている。この結果を Fig. 1 の粒径分布と比較すると、粒径分布が同じような土壌試料でも、必ずしも ¹³⁷Cs の挙動が同じような結果を示すとは限らないことがわかる。一方、Fig. 4 に示した2週間後の砂層内分布から ¹³⁷Cs の砂層間隙内における易動性は豊浦標準砂および常宮試料が最も大きく、次に難波江、小黑飯の

順となっている。この易動性の順序は前述した上層液の濃度変化の順序と逆になっていることがわかる。すなわち、上層液濃度変化が大きい小黑飯土壌は ¹³⁷Cs の被吸着能が大きく、表層に強く吸着されあまり深層まで ¹³⁷Cs は移動していない。逆に、上層液濃度変化が小さい豊浦標準砂および常宮土壌の場合は、¹³⁷Cs はあまり表層土壌に吸着されず深層まで拡散している。以上のように、¹³⁷Cs の底質土層内における挙動を推定するためには、土壌への吸着現象が重要な要因の一つであることがわかる。

若狭高浜で採水した海水を用いた実験結果を Fig. 5 および Fig. 6 に示す。人工海水を用いた実験結果と比

Fig. 4 Concentration distributions of ^{137}Cs for four kinds of sandy layer after two weeks of diffusion experiment (using synthetic sea water).

Fig. 5 Concentration history of ^{137}Cs in solution above a sediment (using sea water).

較すると、上層液の濃度変化はかなり小さく、砂層内での易動性は大きい。この原因は、使用した人工海水の組成は Table 1 に示したものであるが、実際の海水にはそれ以外に各種の微量元素を含んでおり、それらが ^{137}Cs の吸着現象に影響を与えているためと考えられる。Fig. 5 から2週間後における上層液濃度変化は減少量の大き

いほうから、

小黑飯>難波江>豊浦標準砂>常宮

の順となっている。この順序は前述の人工海水の結果と比べると、豊浦標準砂と常宮試料の実験結果は、人工海水の場合にはあまり差がなかったが、海水の場合には明らかに差が認められる。Table 4 は、人工海水と海水を用い

Fig. 6 Concentration distribution of ^{137}Cs for four kinds of sandy layer after two weeks of diffusion experiment (using sea water).

Table 4 The variation of ^{137}Cs concentrations in solution above sediments for two weeks of contact time.

Soil	Soil	Toyouura sand	Wakasa Nabae	Wakasa Ogurui	Wakasa Johgu
C/C_0	a)	0.216	0.126	0.0621	0.206
	b)	0.477	0.356	0.176	0.668
b/a		2.21	2.83	2.83	3.24

a, synthetic sea water; b, sea water

た拡散実験に関して、2週間後の上層液濃度 ($=C/C_0$) および同一土壌試料における人工海水と海水による実験の上層液濃度の比を示したものである。この結果から、海水中に含まれる微量元素の影響の大きさは土壌試料により異なることがわかる。

海水を用いた実験結果から、底質砂層内での ^{137}Cs の易動性は Fig. 6 から、

常宮>豊浦標準砂>難波江>小黒飯

の順となっており、上層液濃度変化の大小関係と逆になっている。これは人工海水による実験結果と同じである。

3. 吸着モデルの検討

(2)式の吸着反応式を考慮して得られた二つの解析解、

Table 5 Parameters used for the model which describes the movement of ^{137}Cs in sediments.

No.	Soil	K (cm^3/g)	k ($\text{cm}^3/\text{g}\cdot\text{sec}$)
4	Wakasa Johgu	30	7.0×10^{-5}
5	Toyouura sand	10	1.0×10^{-5}
8	Wakasa Johgu	2.0	2.0×10^{-6}

(5)式および(7)式を実験結果と比較して、その吸着モデルの適応性を検討した。(5)式および(7)式の計算は京都大学大型計算機センターの FACOM M-190 で行なった。その結果を Fig. 7 および Fig. 8 に示す。計算に必要なパラメータのうち、間隙率 p と土壌密度 γ は各土壌試料について求めた実測値を用い、上層液深 H および有効拡散係数 D_e は前述したように、 10.2 cm および $4.0 \times 10^{-6}\text{ cm}^2/\text{sec}$ の値を用いた。吸着速度定数 k と分配係数 K の値については、上層液濃度変化と砂層内吸着分布に関する核種の挙動に対応した理論曲線から決定した。計算に用いた k および K の値を Table 5 に示す。Fig. 7 および Fig. 8 には、人工海水を用いた常宮試料の実験データと海水を用いた豊浦標準砂および常宮試料の実験データを挙げた。

(2) 式の吸着モデルを用いた解析解を実線で表わした

Fig. 7 Experimental and theoretical concentration histories of ^{137}Cs in solution above a sediment.

Fig. 8 Experimental and theoretical concentration distributions of ^{137}Cs in a few sandy layers.

が、実験データとの適合性は良好であることがわかる。とくに、人工海水を用いた常宮試料のデータのように、被吸着能が大きく、約 10^5 sec から急激に上層液濃度が減少するような場合にも、(2) 式の吸着モデルが適応できることがわかる。図中に示した破線は(1)式で表わされるヘンリー型吸着モデルによる解析解曲線である。こ

れは、Fig. 8 の砂層内吸着分布に合うように K の値を決定し、その値を使って上層液濃度変化を計算したものである。これによれば、砂層内吸着分布では(1)式による理論曲線は常宮試料のデータとよく一致しているが、上層液濃度変化に対する適合性が(2)式を用いた理論曲線よりも悪い。

V あ と が き

底質土壌中における長寿命放射性核種の挙動, すなわち, 土壌への蓄積や間隙内拡散を把握することは, 環境モニタリング等において重要なことである。本研究は, 底質砂層内における ^{137}Cs の挙動を検討するため, 豊浦標準砂および若狭高浜で採取した3種類の土壌試料を用いて, 非定常境界条件による拡散実験を行なった。その結果

- 1) 底質土層内での ^{137}Cs の易動性は, 粒径分布がよく似た細砂であっても, 土壌試料によりかなり異なる。
- 2) 拡散実験において, 同一土壌試料を用いても, 海水を用いた場合と人工海水を用いた場合とでは, ^{137}Cs の挙動に差があり, その違いの程度は土壌試料により異なる。一般に海水を用いたほうが土壌への吸着は少なく, 間隙内での易動性は大きい。
- 3) 合成した ^{137}Cs の吸着モデルは, 拡散実験における上層液濃度変化および底質土層内での ^{137}Cs の挙動をよく表わす

ことがわかった。今後, ^{144}Ce のような多価イオン状の放射性核種に関して, この吸着モデルが適応できるかどうか, また非可逆吸着項への飽和吸着量の導入などを検討する必要があると思われる。

参 考 文 献

- 1) 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 (I), 保健物理, **11**, 105 (1976).
- 2) 福井正美, 桂山幸典; 飽和砂層内における Cs および Sr イオンの吸着モデルに関する研究, 土木学会論文報告集, **254**, 37 (1976).
- 3) 寺島 泰; 放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分に関する研究, 京都大学学位論文, p. 187(1969).
- 4) 慶伊富長; “吸着”, p. 26 (1974), 共立出版, 東京.
- 5) M. FUKUI; Evaluation of a combined sorption model for describing cesium transport in a soil, *Health Phys.*, **35**, 555 (1978).
- 6) 高橋幹二ほか; 土砂試料中におけるヨウ素ガスの挙動, 保健物理, **9**, 211 (1974).
- 7) H.M. SELIM and R.S. MANSELL; Analytical solution of the equation for transport of reactive solutes through soils, *Water Resour. Res.*, **12**, 528 (1976).
- 8) 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, **246**, 73 (1976).