解 説

放射能核種の地中での挙動

—とくに遅延係数について—

西牧 研壮*1, 森澤 眞輔*2

(1986年6月5日受理)

The Retardation Factor Relating to the Migration of Radioactive Nuclides under the Ground

Kenzo NISHIMAKI*1 and Shinsuke MORISAWA*2

KEY WORDS : retardation factor, migration, saturated zone, aerated zone, distribution coefficient, radioactive nuclide

はじめに

近年, わが国においても放射性廃棄物の処分法として, 陸地処分がクローズアップされている。

この方法の最大の利点は土砂のもつ交換吸着能を利用することである。すなわち, 放射性廃棄物に含まれる放射性核種が地下水中に溶け出しても土砂のもつ交換吸着能により吸着され, 土中を移動する速度は地下水の移動速度よりも遅くなる^{1,2)}。したがって, 万一事故等で核種が地中に漏洩してもその拡がりは小さなものであり, 移動中の核種の崩壊による減少が十分に期待できる。

この核種の遅れの度合を示すものとして, 最近遅延係数と呼ばれる係数がひんばんに用いられ, これに関する研究が多くなされている。この係数は, もともと井上の提案した K_f 値¹⁾ と呼ばれるものであり, 本報ではあらためてこの係数の持つ意味, 問題点等について解説する。

また放射性核種の挙動に関してはすでに多くの研究成果が発表されているが, 本報の目的は遅延係数を筆者らの知見をもとに解説することにあるので, これらの研究成果の数多くを参考文献としてあげることは割愛した。

なお, 地層の空隙が地下水で飽和されているいわゆる帯水層と, 不飽和のいわゆる通気層の2つに分類して解説する。

I 帯水層での遅延係数

1. 遅延係数の誘導と用いる場合の適応条件

土壌中に辺長 dx, dy, dz の小直方体を考える。 x, y, z 方向のこの直方体における平均流速をそれぞれ v_x, v_y, v_z とする。直方体の中心における放射性核種Aの水中濃度を C_A , 土壌中濃度を q_A , その水中の拡散係数を D_x, D_y, D_z とする。さらに, この直方体の空隙率を f , 土壌の密度を ρ , 核種Aの崩壊定数を λ とすれば, 全体として単位時間にこの直方体に蓄積される量に関する保存式は

$$\left\{ f \frac{\partial C_A}{\partial t} + (1-f) \rho \frac{\partial q_A}{\partial t} \right\} dx dy dz dt = \left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C_A}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C_A}{\partial y} \right) \right\} dx dy dz dt - \lambda C_A dx dy dz dt$$

*1 京都大学原子炉実験所; 大阪府泉南郡熊取町野田 (〒590-04)

Research Reactor Institute, Kyoto University;
Noda, Kumatori-cho Sennan-gun, Osaka-fu.

*2 京都大学工学部; 京都市左京区吉田本町 (〒606)

Faculty of Engineering, Kyoto University;
Yoshida-honmachi, Sakyo-ku, Kyoto.

$$\begin{aligned}
& + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C_A}{\partial z} \right) - v_x \frac{\partial C_A}{\partial x} - v_y \frac{\partial C_A}{\partial y} \\
& - v_z \frac{\partial C_A}{\partial z} \Big\} f dx dy dz dt \\
& - \lambda \{ f C_A + (1-f) \rho q_A \} dx dy dz dt \quad (1)
\end{aligned}$$

となる。

(1)式において右辺最終項は自己減衰項で、保健物理上問題となる⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Csなどの場合は λ が小さいため無視できる。

(1)式は一般に解くことができないので、いくつかの近似解が提案されているが実際の地中においてはうまくあてはまらない。そこで井上ら³⁾は地下水の流速は通常きわめて遅いため、地下水中に含まれる放射性核種Aは土壌に対して交換吸着が平衡状態に達しているので

$$q_A = k_d \cdot C_A \quad (2)$$

k_d : 分配係数

と表してよいと考えた。ここで、井上ら³⁾はさらに

$$\begin{aligned}
t &= \left\{ 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \right\} T = K_f T \\
K_f &= 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \quad (3)
\end{aligned}$$

なる時間の変換を行い、(1)式が

$$\begin{aligned}
\frac{\partial C_A}{\partial T} &= \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C_A}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C_A}{\partial y} \right) \\
&+ \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C_A}{\partial z} \right) - v_x \frac{\partial C_A}{\partial x} - v_y \frac{\partial C_A}{\partial y} \\
&- v_z \frac{\partial C_A}{\partial z} \quad (4)
\end{aligned}$$

となり、土壌に吸着のない地下水の動きを表す式にほかならないことを示した。すなわち、遅延係数 K_f の値をあらかじめ物理化学的な実測により求め、一方では地下水中にトレーサを投入してその水理学的な輸送、拡散状態を知り、このうち時間のみ遅延係数 K_f を乗じたものが放射性核種Aの挙動を示すことになる。この具体的な意味については後述する。以上で地下水層を放射性核種が移動する際の遅延係数 K_f が誘導されるが、誘導の過程から考えられる遅延係数の適応条件のおもなものは次に列挙するとおりである。

1) 地下水層の構造は(1)式が成立するよう、できるだけ一様で、時間的に変化しないこと。

2) 地下水流速が遅く、核種の土壌への交換吸着がほぼ平衡に達していること。

3) 核種の土壌への交換吸着にあたっては、(2)式が

成立すること。また、分配係数 k_d が核種Aの水中濃度 C_A などの関数でないこと。

なお、上記の適応条件を厳密に満たす地下水層は現実には考えられないが、工学的な見地からみて、大まかにこれらの条件を満たす地下水層であれば十分適応できると考える。さらに、目的サイトをメッシュ状に分割する⁴⁾などして用いれば、活用できる範囲はさらに広がるものとする。ただし、岩の割れ目を放射性核種を含んだ水が透過する場合などは、流れの様子が(1)式と明らかに違うので用いることはできない。

2. 遅延係数による推定法

2.1 分配係数の測定

(3)式で示される遅延係数 K_f の構成因子は、空隙率 f 、密度 ρ 、および分配係数 k_d である。このうち f と ρ の測定は必ずしも容易ではないが、目的とする地下水層に固有のもので、核種とか、水質とかの他の要因に左右されない。これらにくらべて分配係数 k_d は他の要因でその値が変動し、遅延係数 K_f に与える影響が大きいので⁵⁾、この測定について解説する。なお f 、 ρ 、 k_d の感度解析的な考えかたについては通気層の項で後述する。

放射性核種の土壌への吸着現象を示す吸着型式としてはフロインドリッヒ型吸着、ラングミュア型吸着など多くのものが提案されているが、放射性核種のようにその化学的濃度が希薄な場合には(2)式のようなヘンリー型吸着式がよく一致する⁶⁾。

(2)式で明らかのように、地下水中の核種濃度と土壌中の核種濃度の比は分配係数として示され、核種濃度にかかわらずその値は一定である。

しかし、この分配係数は地下水中に含まれる他の安定イオンの存在によって大きく影響される。また、土砂の持つイオン交換能は主として陽イオン交換能で、対象となる核種は陽イオンとなるものであるが、陰イオンについても若干イオン交換能がある場合が知られている⁶⁾。

なお、土壌は各々固有の分配係数を示すので、分配係数の測定にあたっては目的サイトの帯水層より採取したものをを用いる必要がある。一方、地下水については、目的サイトの帯水層で採取したものを使用できるのが望ましいが、使用できない場合は、模擬地下水を用いてもよい。実際の測定については大別してパッチ法とカラム法がある。

2.1.1 パッチ法による測定

パッチ法とは、ビーカのような容器内で所定量の土壌と放射性核種を混入した地下水を接触させ、交換吸着が平衡になった後に分配係数を測定するもので、後述する

カラム法に比して、操作が単純なためよく用いられる方法である。測定実験でのおもな留意点は次のとおりである。

1) 測定に用いる土壌の量に対して十分な量の地下水を接触させ、平衡後に地下水中の放射性核種濃度が極端に低くならないようにする。

2) 十分な接触時間を確保し、平衡状態を確認する。

3) 模擬地下水を用いる場合、目的サイトの地下水質と Ca^{2+} 、 Mg^{2+} の濃度を等しくすればよい。ただし、対象核種が ^{137}Cs の場合には Na^+ 濃度も重要である⁵⁾。

また、得られた実験データの解析にあたってのおもな留意点は次のとおりである。

1) 実験に用いた地下水中に放射性核種のキャリアが存在する場合は土壌にあらかじめ吸着していた Ca^{2+} などが脱離し、地下水中の Ca^{2+} 濃度が上昇した状態になるので、目的とした条件下での分配係数が得られない。

2) 核種によっては、たとえばイオン状態とそうでない状態で存在することがあるが、バッチ実験ではそれらの区別がつかず、全体としての分配係数が求まる。

3) 目的サイトでの地下水水質の時間的な変化を調査しておく必要がある。主要な項目は Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ と pH 等である。

4) 3) と関連して、水質を変化させた場合の分配係数値の変化を確認する必要がある。特に ^{60}Co は pH 依存性が強いので注意を要する⁷⁾。

2.1.2 カラム法による測定

カラム法は、カラムに目的サイトの土壌を充填し、そこへ、放射性核種を混入した地下水を通水接触させる方法で、前述のバッチ法に比し、ある程度、核種の挙動も把握できる点が有利である。ただし、実験にあたっては操作が複雑で、熟練を要する。

実験にあたっての留意点のうちバッチ法と共通のものは当然として、特にカラム法特有のものは次のとおりである。

1) カラムに充填する土壌は未攪乱のものが望ましいが採取が困難なので一般には攪乱試料を用いる。この際、充填には細心の注意が必要で、特に土壌層内に気泡を作らない。

2) 通水実験前に放射性核種を混入していない地下水を十分に通水し、帯水層を模擬した状態を造り、土壌中と地下水との非放射性イオンの分配を平衡状態にする、いわゆるコンディショニングが重要である。

3) 通水速度が大きすぎると十分な平衡状態が得られないし、地下帯水層での地下水移動が模擬できなくなる

第1図 理想的な破過曲線による K_f 値の計算方法

ので、予備実験等で通水速度を決定する。なお、カラム全体が飽和平衡に達するには相当な時間を要するので、一般にはカラム上部の土壌を採取して分配係数を測定する。

得られた実験データの解析にあつての留意点のうち、カラム法での特徴的なものは次のとおりである。

1) 通水実験の際にトリチウム水のようなトレーサを用いれば、理想的な場合第1図に示すように得られた破過曲線から直接遅延係数 K_f を求めることができる。ただし、得られた遅延係数はあくまでカラム内でのもので、目的とする地下帯水層とは空隙率等が異なる場合がある。

2) 破過曲線から放射性核種が、たとえばイオン状態の場合、イオン状態でない場合、両方の状態で混在する場合などの推定が可能である⁶⁾。

3) 実験によって得られた破過曲線は、カラム内の条件下（攪乱試料、空隙率、カラム長さ、コンディショニングの程度）のものである。たとえば、核種がコロイド的な状態でカラムを破過しても、地下帯水層では目づまり的な状態で移動しなくなるといったことも予想できる。

2.2 野外実験の方法と評価

バッチ法またはカラム法により分配係数が決定されると、(3)式より遅延係数 K_f が計算できる。そこで実際に遅延係数 K_f を用いて放射性核種の挙動を推定する方法について述べる。

まず、(3)、(4)式の意味を図示すると第2図のようになる。第2図はある地点より、土壌に吸着しないトレーサを投入して、これをある観測点で測定した場合のトレーサの破過曲線を示したもので、横軸が時間、縦軸が破過濃度比である。したがって、この観測点における放射性核種Aの破過曲線は、第2図に示すようにトレーサ

第2図 K_f 値の説明

濃度比 Y_1 , Y_2 に対応する破過時間 X_1 , X_2 をそれぞれ $K_f \cdot X_1$, $K_f \cdot X_2$ と引き伸ばしたものとなる。ここで第2図の斜線部分の面積について注目してみる。この観測点における地下水流速 v_x , v_y , v_z は時間によって変化しないとすると、破過時間 t は観測点における地下水の流量に正比例する。すなわち、斜線部分の面積はこの観測点における地下水の通過量に正比例する量を示す。したがって、トレーサの通過量を V とすると、放射性核種Aの通過量は当然 $K_f \cdot V$ となる。いま(4)式の右辺より明らかにトレーサを含んだ水と放射性核種を含んだ水とは同じ速度で投入しなければならないので、放射性核種Aの通過量を K_f 倍とするためには、放射性核種を含んだ水は、トレーサを含んだ水の K_f 倍の時間をかけて同じ速度で投入しなければならない。

以上のように目的とする地下帯水層での野外実験を行うためには、あらかじめ室内実験で得られた遅延係数 K_f を用いて、想定する放射性核種を含んだ水の量の $1/K_f$ の量のトレーサを含んだ水を投入し、目的とする観測点でトレーサの破過曲線を得る。

つぎにこれを第2図に示すように時間のみを K_f 倍引き伸ばしたものが、はじめに想定した量を持つ放射性核種を含んだ水が地下帯水層に混入した場合の放射性核種の挙動を示す推定破過曲線となる。なお、逆にある投入点よりトレーサを含んだ水を一定速度で X 投入して、時間が T 経過した時、第3図の様なある濃度比の等濃度曲線が得られたとすると、放射性核種Aを含んだ水を $K_f \cdot X$ 投入しても時間 $K_f \cdot X$ 後に同じ等濃度曲線になると推定できる。

II 通気層での遅延係数

1. 遅延係数の誘導

帯水層の場合と同じ記号を用いて通気層の遅延係数を誘導する。特に記さない場合には、帯水層において設定

第3図 等濃度曲線の例

した条件・仮定は、通気層においてもそのまま設定されているものとする。通気層における物質移動は、通常は鉛直方向に1次元化して記述できるので、(1)式に対応する物質収支式として次式を得ることができる。

$$\frac{\partial}{\partial t} \{fsCA + (1-f)\rho q_A\} = \frac{\partial}{\partial z} \left(fsD \frac{\partial CA}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} (v_z CA) \quad (5)$$

ここに、 v_z は単位断面積当りの土壌水流束(フラックス), s は地層間隙の土壌水による飽和度である。 s と間隙率 f との積 fs は、体積含水率 θ に等しい。

土壌中の放射性核種濃度 q_A と土壌水中の放射性核種濃度 CA との間に

$$q_A = kd_u CA \quad (6)$$

なる関係が成立する、すなわち、土壌と土壌水との間での放射性核種の吸着反応が常に交換平衡状態にあると仮定すると、(5)式は次のように変形される。ここに、 kd_u は通気層における放射性核種の分配係数である。

$$\frac{\partial}{\partial t} \{fsCA + (1-f)\rho kd_u CA\} = \frac{\partial}{\partial z} \left(fsD \frac{\partial CA}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} (v_z CA) \quad (7)$$

さらに、対象とする通気層において、 $fs(=\theta)$ が空間的、時間的に一定であれば上式は

$$\left\{ 1 + \frac{(1-f)\rho kd_u}{fs} \right\} \frac{\partial CA}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial CA}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{v_z}{fs} CA \right) \quad (8)$$

となる。分配係数 kd_u は、先述の仮定により時間によって変化せず、また土壌の真密度 ρ は、通常は時間によって変化しない。(8)式において、(3)式と同様の変数変換を施せば、通気層における遅延係数 K_{fu} として

$$Kf_u = 1 + \frac{(1-f)}{fs} \rho k d_u \quad (9)$$

を得ることができる⁸⁾。

帯水層の場合と同様に、土壌に吸着されない放射性核種 ($k d_u = 0$) の挙動を把握すれば、その時間を(9)式により Kf_u 倍すれば、土壌に吸着する放射性核種の挙動を推定することができる。この考え方は、土壌カラムを用いた通気層実験の解析にしばしば適用されており、その有用性が確認されている^{9~12)}。

2. 遅延係数の留意点

帯水層の遅延係数について述べた留意点のほとんどすべてがそのまま通気層においても問題になる。ここでは、通気層に特有の留意点について整理する。

2.1 遅延係数による推定法

2.1.1 分配係数の測定

通気層における分配係数をパッチ法で測定することはきわめて困難であり、通常はカラム法で測定される。測定手順は、土壌カラム間隙を水で飽和させない点を除いて、帯水層の場合とまったく同じである。しかしながら、通気状態にある土壌カラムを用いて分配係数を測定する例はそれ程多くなく、帯水層についての分配係数が通気層のそれと等しいことを暗黙の内に仮定する例が大部分である。通気層の分配係数の測定方法が確立されていないのと、実験が帯水層に比べて複雑であるのがその原因である。実際、通気層の分配係数が飽和度 s あるいは含水率 θ の関数になるとの報告はあるが、その関数形については定説がない^{13~16)}。

土壌カラムに、 $\theta(=fs)$ が時間的・空間的に一定になるように長時間水道水を通水した後、土壌に吸着されない物質として塩素イオンを、また土壌に吸着される物質としてクロムを含む水道水を通水して得た、それぞれの破過曲線を第4図に示す。また第5図に、実験終了後のカラム内の含水率分布を示す。含水率 $\theta(=fs)$ の分布は深さ (z) 方向に厳密には一定ではないが、塩素イオンの破過曲線を時間(水の通過)軸方向に $Kf_u = 1.20$ 倍に拡大して得たクロムの推定破過曲線は、実測破過曲線とほぼ一致している。したがって、(9)式よりクロムの分配係数 $k d_u$ は 0.03 ml/g となる。

クロムのように分配係数が小さい物質では比較的簡単に破過曲線を実測することができるが、分配係数がある程度大きくなると破過曲線を実測するには時間がかかりすぎることもある。そのような場合には、破過曲線ではなく、土壌カラム内分布を測定する方が实际的である¹³⁾。

2.1.2 遅延係数の直接測定

すでに明らかなように、土壌に吸着されない物質の破

第4図 クロム (Cr_2O_7)、塩素イオンの実測破過曲線および遅延係数によるクロムの予測破過曲線

第5図 破過曲線測定のカラム内の含水率分布

過曲線を時間(水の通過)軸方向に拡大して、吸着する物質の破過曲線に重ねることによって、遅延係数 Kf_u を直接測定することができる。第4図の例では $Kf_u = 1.20$ である。

このようにして推定した推定破過曲線と実測破過曲線との適合が良好でない場合には、対象とする土壌カラム内での吸着性物質の挙動を推定するために、遅延係数の考え方を適用することができない。適合が“良好”であるか否かは、吸着性物質の平均移動速度のみを推定する場合、その分散現象をも含めて推定する場合等、目的に応じて判断することになる。もちろん、そのような場合には、決定した Kf_u を用いるのに一定の制約が課せられることはいうまでもない。推定破過曲線と実測破過曲線とが一致しない原因としては、帯水層において述べた原因の他に、たとえば放射性核種の輸送媒体である土壌水の流動が一様でない場合、第5図に示す土壌水分分布が一定であるとはみなせない場合等を挙げることができる。実測破過曲線の形から、推定破過曲線と実測破過曲線が一致しない原因を推定することはある程度可能である。

2.2 遅延係数の適用

2.2.1 環境パラメータの変動

土壌カラムを用いて決定した遅延係数を用いて、放射性核種の挙動を推定する場合には、どのような条件の下に遅延係数を決定したのかをよく吟味し、その適用範囲、目的に十分に留意する必要がある。

多くの場合、地層に固有の値である f , s , ρ 等のパラメータと、放射性核種の土壌と土壌水との間の分配係数 k_{du} とから遅延係数 Kf_u が算定される。これらのパラメータの遅延係数に対する感度はそれぞれ

$$\begin{cases} \frac{\partial \ln Kf_u}{\partial \ln f} = -\frac{\rho k_{du}}{fsKf_u} \\ \frac{\partial \ln Kf_u}{\partial \ln s} = -\frac{(1-f)\rho k_{du}}{fsKf_u} \\ \frac{\partial \ln Kf_u}{\partial \ln \rho} = \frac{\partial \ln Kf_u}{\partial \ln k_{du}} = \frac{(1-f)\rho k_{du}}{fsKf_u} \end{cases} \quad (10)$$

となる。一方、各パラメータ x の変動幅が平均値 $\bar{x}$ の前後に $\pm(1/2)\Delta x$ であれば、パラメータ x の変動に伴う Kf_u の変動幅はそれぞれ、

$$\begin{cases} \text{空隙率 } f \text{ により} \\ \Delta Kf_u = \left(\frac{\partial Kf_u}{\partial f} \right) \Delta f = -\frac{\rho k_{du}}{f^2 s} \Delta f \\ \text{飽和度 } s \text{ により} \\ \Delta Kf_u = \left(\frac{\partial Kf_u}{\partial s} \right) \Delta s = \frac{(1-f)\rho k_{du}}{fs^2} \Delta s \\ \text{土壌密度 } \rho \text{ により} \\ \Delta Kf_u = \left(\frac{\partial Kf_u}{\partial \rho} \right) \Delta \rho = \frac{(1-f)k_{du}}{fs} \Delta \rho \\ \text{分配係数 } k_{du} \text{ により} \\ \Delta Kf_u = \left(\frac{\partial Kf_u}{\partial k_{du}} \right) \Delta k_{du} = \frac{(1-f)\rho}{fs} \Delta k_{du} \end{cases} \quad (11)$$

となる。

通気層土壌カラムを調整する場合に考えられる、各パラメータの変動範囲を用いて、上記の値を算定し、第1表に示す。飽和度 $s(=\theta/f)$ の変動範囲は第5図から、また分配係数 k_{du} の変動範囲は、第4図と同じ土壌を用いて実測したクロムの分配係数の変動から設定した。 Kf_u の感度は空隙率 f によるものが最大であるが、パラメータの変動範囲も考慮した実際の Kf_u の変動に対する寄与は、分配係数 k_{du} によるものが最大である。各パラメータが第1表の欄外に記載する平均値を取るときの遅延係数は1.17であるから、分配係数 k_{du} の変動による Kf_u の相対変動 $(1/2)\Delta Kf_u/Kf_u$ はほぼ4%である。条件を整えて実施する室内土壌カラム実験にお

第1表 各パラメータの遅延係数に対する感度およびパラメータ変動による遅延係数の変動幅

パラメータ x	遅延係数 Kf_u の感度	遅延係数 Kf_u の変動幅
空隙率 f	-0.238	0.020
飽和度 s	-0.153	0.035
土壌密度 ρ	0.153	0.001
分配係数 k_{du}	0.153	0.090

(注) パラメータの変動幅は、
 $f=0.356\pm0.013$, $\rho=2.67\pm0.01\text{ g/cm}^3$
 $s=0.753\pm0.077$, $k_{du}=0.027\pm0.007\text{ ml/g}$

いてもこの程度の変動は避けることができない。

2.2.2 実通気層への適用

土壌カラムを用いて室内で決定した遅延係数を野外の実通気層に適用する場合には、スケールアップに伴う種種の問題が出現する。とりわけ、地表面から地下水面までまったく同じ土壌で地層が構成されていることは稀であるから、地層を構成する土壌類型ごとに分配係数等のパラメータを測定しなければならない。当然、遅延係数も地層ごとに異なる値を用いる必要がある。また、通気層においては、後述するように放射性核種の輸送媒体となる土壌水分の挙動が一律ではないとの報告¹⁷⁾も少ないことから、遅延係数を誘導するときに設定した仮定が満たされていることを確認する必要がある。地表面に近い地層を除けば、 f , s , ρ 等のパラメータはほぼ一定であるから、遅延係数の変動を支配するパラメータは分配係数であるといえる。

遅延係数の考え方には、放射性核種の輸送媒体である水の移動を実測することが前提になっている。また、すでに述べたように遅延係数を誘導する場合に、土壌水分 θ が一定であるとの仮定を用いた。実地層では特に地表面付近において、降水時と蒸発時とでは、水分量が異なる。したがって、通気層において遅延係数を適用する場合には、時間スケールを長く取り、平均的な水分量に対する遅延係数を採用する等の措置が必要になる。平均量を用いることによる誤差を評価するためには、たとえば、フェールアウト放射性核種を指標にしたフィールド調査等が有効であると考えられる。

遅延係数を実通気層に適用する場合には、土壌水分の挙動をも含め、なお検討すべき事項が数多く残されている。

3. 遅延係数が適用できない場合の対応

3.1 水分と土壌との接触形態についての考察

通気層における遅延係数は、土壌水分と土壌粒子との

第6図 水分と土壌との接触状態（模式図）

接触状態によっても異なる。(9)式で定義した遅延係数は、土壌粒子の全表面が水分と接触している（第6図(A)参照）ことを暗黙の内に仮定している。第6図(B)に示すように、封入空気等のため土壌粒子の一部分のみが水分と接触している場合には、遅延係数は

$$Kf_u = 1 + \frac{\eta(1-f)}{fs} \rho k d_u \quad (12)$$

となる。ここに、 η は土壌水分と接触している土壌粒子体積の、全土壌体積に対する分率（土壌水分中の放射性核種との吸着反応に関与する土壌体積の全土壌体積に対する分率）である。 f 、 s 等のパラメータと同じ理由により、時間によらず一定であることが要求される。

したがって、地層の乾燥化が進み、第6図(B)のような状態、あるいは片寄り不飽和状態¹⁸⁾が認められる場合には、(9)式に代えて(12)式の遅延係数を用いる必要がある。

3.2 水分移動特性についての考察

通気層における水分移動が一様ではないとの報告は少なくない。通気層内には、通常は流動しない水分と流動しやすい水分とが共存することが実験的に確認され¹⁷⁾、そうした水分移動に対応した2成分水分移動モデル¹⁹⁾や3成分水分移動モデル²⁰⁾が提示されている。実際、木村²¹⁾は、水分ポテンシャル(pF)ごとに分取した土壌水中の³H濃度に有意な差が認められた事例を報告している。

このように、通気層内の水分移動が一様でない場合には、遅延係数を定義することができない。各水分の成分間での放射性核種交換を考慮して、放射性核種移動の基礎式を設定する必要があるからである。

3.3 吸着反応特性についての考察

土壌中放射性核種濃度と土壌水分中放射性核種濃度との間に、(6)式の関係が成立しない場合、あるいは成立するとみなせない場合には、遅延係数を定義することができない。(6)式で定義する分配係数は、たとえばイオン交換樹脂に対する分配係数と定義は同じであるが、現

実に測定される数値にはイオン交換によるもの他、物理吸着、化合物形成、等種々の反応によるものが総括的に含まれている。それ故、対象とする放射性核種が不可逆的に土壌に吸着されたり、共存するマクロイオンと錯体を形成して土壌粒子表面に付着したりすると、分配係数はそれだけ大きくなる。パッチ条件下で分配係数を測定する場合には、これら種々の反応が共存していても識別が困難であるが、カラム条件下ではたとえ破過曲線の形状から異種反応の共存をある程度推定することができる。

ま と め

放射性核種の地中での挙動を説明するための理論式、モデル等は数多く提案されているが、これらのモデル等に関する考察、解説等は別の機会にゆずる。

しかし、いずれのモデルの場合にも、カラム実験ではよく一致するが、実帯水層への適応となると問題点が多い。例えば数値解のようなものを求めても、実際の地下帯水層に適用させようとすると、正確を期するほど、沢山のサンプリング等の実データが必要となり、それならば、モデル式を用いる必要がなくなるといった矛盾が生じる。それに比べて、遅延係数を用いる方法は、適応範囲を誤らずに用いれば、工学的見地から地下水層での放射性核種の挙動を推定するのに有力な方法である。

参 考 文 献

- 1) 井上頼輝；「放射性廃棄物の地中処分に関する研究」，京大大学学位論文（1970）。
- 2) 筒井天尊，西牧研壮；保健物理，**9**，87（1974）。
- 3) Y. INOUE and W.J. KAUFMAN；*Health Phys.*，**9**，705（1963）。
- 4) 森澤真輔；「放射性廃棄物の地中処分場の立地選定に関する工学的研究」，京大大学学位論文（1977）。
- 5) 西牧研壮；「放射性廃棄物陸地保管を目的とした放射性核種の地中での挙動に関する工学的研究」，京大大学学位論文（1977）。
- 6) 筒井天尊，桂山幸典，西牧研壮；「放射性廃棄物の処分に関する研究」，KURRI-TR-121（1973）。
- 7) 加藤正平他；日本原子力学会誌，**20**，42（1978）。
- 8) 井上頼輝，赤木文行；「地下通気層における放射性核種の挙動について」，土木学会第26回年次学術講演会講演集，II-228，633-634（1971）。
- 9) 筒井天尊，西牧研壮；土木学会論文報告集，No. 200，25-29（1972）。

- 10) 大貫敏彦, 武部慎一, 山本忠利, 和達嘉樹; 保健物理, **18**, 11 (1983).
- 11) 井上頼輝, 森澤眞輔, 馬原保典; 日本原子力学会誌, **17**, 376 (1975).
- 12) 馬原保典, 渡辺直人; フォールアウトを利用したプルトニウムの地中移動速度の検討, 電力中央研究所報告, No. 382024 (1982).
- 13) 堀内将人, 井上頼輝, 森澤眞輔; 「不飽和分配係数の測定法について」, 京都大学 環境衛生 工学研究会シンポジウム講演論文集, No. 5, p. 253 (1983).
- 14) 井上頼輝, 森澤眞輔; 日本原子力学会誌, **18**, 524 (1976).
- 15) J.O. DUGUID and M. REEVES; "Material Transport through Porous Media; A Finite Element Galerkin Model," ORNL-4928 (1976).
- 16) R.C. ROUTSON; "A Review of Studies on Soil-Waste Relationships on the Hanford Reservation from 1944 to 1967," BNWL-1464 (1973).
- 17) 佐久間敏雄, 老松博行, 飯塚文男, 岡島秀夫; 乱さない地層中における物質移動の不均一性, 日本土壤肥科学会誌, **50**, 10 (1979).
- 18) 八幡敏雄; "土壤の物理学", p. 86 (1983), 東京大学出版会, 東京.
- 19) M.T.V. GENUCHTEN and P.J. WIERENGA; "Mass Transfer Studies in Sorbing Porous Media I, Analytical Solutions," *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, **40**, 473 (1976).
- 20) 森澤眞輔, 堀内将人, 山岡泰治, 井上頼輝; 多成分流れモデルによる通気層内物質移動の解析, 衛生工学研究論文集, **22**, 9 (1986).
- 21) 木村重彦; 放射性物質の陸圏での挙動に関する調査研究, 放射線医学総合研究所昭和55年度外来研究員研究経過報告書, p. 39 (1981).