

放射性核種汚染土壌の修復－原理と方法－

土の物質移動学¹の立場から

東京大学名誉教授 中 野 政 詩

本資料は、平成 23 年 7 月 15 日に開催された平成 23 年度第 1 回原環センター講演会の配付資料に講師が加筆等を行ったものです。

目 次

1. はじめに	1
1.1 降下放射性核種による土壌汚染と修復	1
1.2 汚染土壌の修復手段と核種の拡散	1
2. 土壌の組成・構造と核種	2
3. 土壌水の多様な移行形態	4
3.1 下降移行	5
3.1.1 表層土における水の浸潤と再分布	5
3.1.2 成層土における下降移行	5
3.1.3 特異な下降移行	6
3.1.4 深層に向かう下降移行	7
3.2 上昇移行	7
3.2.1 地表面における水の蒸発による上昇移行	7
3.2.2 植物の水の蒸散による上昇移行	7
3.2.3 浅い地下水の上昇移行	7
3.3 水の移行解析手法	8
3.3.1 土壌マトリクスにおける移行解析	9
3.3.2 特異な下降移行や深層移行の解析	11
4. 溶質の吸着	11
4.1 イオン交換による多様な吸着形態	11
4.1.1 陽イオンの交換吸着	13
4.1.2 陰イオンの交換吸着	13
4.1.3 イオンの吸着サイト	14
4.2 沈殿の形成	15
4.3 粘土-腐植-沈殿化合物複合体	16
4.4 地表における篩分け集積	16
5. 溶質移行の多様な形態	16
5.1 イオン交換吸着を伴う溶質移行	16
5.1.1 典型的なイオン交換吸着を伴う溶質移行	16
5.1.2 地表からの水の浸入による溶質の下降移行	17
5.1.3 水の上昇移行による溶質の地表集積	18
5.2 コロイド移行による核種移行	18
5.3 溶質の移行解析手法	19
5.4 シミュレーションの信頼性	20
5.4.1 初期条件と境界条件について	20
5.4.2 交換吸着平衡曲線について	20

5.4.3 ガス移行との関係について	21
5.4.4 水移行の解析結果の信頼性	21
6. 土壌改良材	21
7. 放射性核種汚染土壌の修復の手段と方法	22
8. おわりに	25
8.1. 電気泳動法について－Challenge－	25
8.2 放射性核種汚染土壌の修復のゴールについて	26
参考図書－さらに詳しく知るために－	27
引用文献	27

1. はじめに

1.1 降下放射性核種による土壤汚染と修復

放射性核種汚染土壤は、降雨に含まれた核種や塵芥に付着した核種が土壤表面に降下し、雨水の土壤浸透によって地下に侵入することにより発生する。地下のどの深さにまで核種が浸入するのか、それは降下核種の量とその後の降雨量、降雨強度、降雨頻度、そして土壤の性質と土壤中の水移行の形態によって異なる。地表からの雨水の浸入にともない、極めて高濃度の汚染土壤が地表部に発生し、同時に地下のかなりの深さにまで希薄な濃度とはいえ汚染土壤が発生すると予想できる。放射性核種に汚染された土壤の修復には (a) 前者の地表近傍の高濃度に汚染された土壤に対する修復と (b) 後者の地下深くに発生した希薄な濃度の汚染土壤の修復、この両者に対処することが必要である。加えて(c)土壤中の特異な水移行の形態から見て、地表にごく近い深さに存在する地下水の核種汚染も汚染土壤の修復に付随するものとして修復の対象に加えることが必要である。

1.2 汚染土壤の修復手段と核種の拡散

表層に発生した高濃度の汚染土壤の修復には汚染土壤の撤去がある。これには (a) 汚染土壤の化学工学的な核種分離回収処理と (b) 汚染土壤の管理形地下処分が付随する。軽度の汚染土壤では、土地利用状況に応じて、現場における地中埋込み（ライナー敷設を含む）、覆土や客土、湛水や散水（リーチング）、土壤改良材投与、植物利用（ファイトレメディエーション）、等の手段がある（後述の Fig. 14 参照）。これにより、(a) 土壤による核種の保持および希釈や分散作用、(b) 土壤の放射線吸収・遮蔽能力、および (c) 植物の元素吸収能力、等を利用して、地表の核種濃度が自然放射能程度に軽減されることを期待する。

地下深くに形成された希薄な濃度の汚染土壤の修復には、地下に核種プルーム処理バリアを設置することや汚染地下水を汲上げて核種分離処理を行うような手段がある。

いずれの手段を採用したにしても、土壤中の放射性核種は土壤水中における拡散作用、土壤固相におけるイオン交換や固定・遊離の特性、ならびに土壤中の水移行の特性による溶質移行プロセス (Fig. 1(a)) に従って土壤中を移行する。そのため、土壤中には核種の濃度プロファイル（濃度分布）が形成される。特別な措置を講じない限り各手段に常に付きまとう自然現象である。その形状

は土壌の組成および性質や構造に左右され、土壌ごとに異なる様相を示す。従って、修復の効果は、土壌構成物質による放射線の吸収・遮蔽効果を含めた地表被曝線量による確認の他に、表層土壌の核種濃度のみならず地下に広がる土壌における濃度プロファイルによって確認することが必要になる。長期にわたる核種移行の観点からは、濃度プロファイルはすこぶる広域にわたる可能性があり、直接の汚染土壌圏に加え隣接土壌ならびに深層土壌、地下水脈・盆を含む広域の検証必要圏が形成されると予想できる。効果の検証はこの検証必要圏における放射性核種の濃度観測や予測による安全性の確認によってなされる必要が生じる。本講演では、各手段につきまとう自然現象による汚染域の拡大を回避するような設計・施工に資するため、核種濃度のシミュレーションやモニタリングに役立つように土壌における水移行 (Fig. 1(b))、イオンの交換・固定および溶質移行の多様な形態を解説し、放射性核種汚染土壌の各種修復手段の有効な適用を考える。

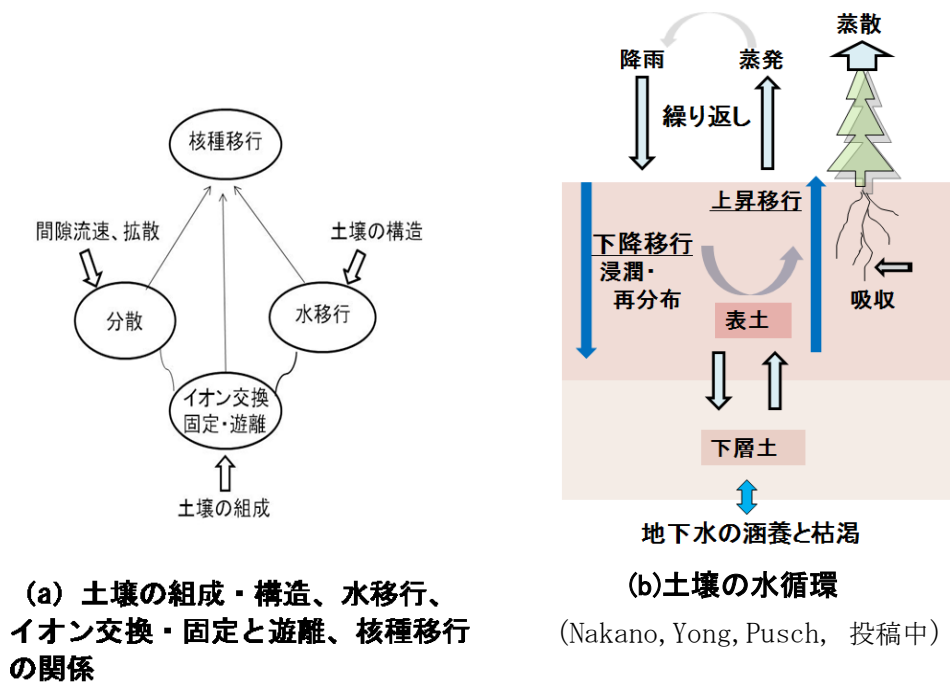


Fig. 1 土壌の組成・構造と水移行と核種移行の関係

2. 土壌の組成・構造と核種

Fig. 2 の示すように、土壌は固相、液相、気相の三相からなる。固相は無機結晶物質（一次鉱物、二次鉱物、酸化物、炭酸塩他）、無機非結晶物質（含水酸化物）、有機物質（腐植、多糖類）から成り、イオン交換や固定による吸着および沈殿の形成を行って核種を保持する。液相は、土壌水ときには土壌水分

といわれ、溶液であり様々な溶質およびコロイド物質を含む。このために土壤溶液とも言われ、核種を溶解し移行させる。気相は空気成分、水蒸気、多様なガス成分を含む。

固相は、一次鉱物（母岩細粒子）・二次鉱物（粘土鉱物）を主体にして土壤の骨格を作り、酸化物、炭酸塩等の無機結晶物質や非結晶物質、有機物質がこれに付着し、土壤間隙と構造を構成する。日本の自然土壤は、長期にわたる土壤生成のプロセスの相違から、組成や構造が異なる土壤が、順序は別にして、交互に層をなして積み重なり、成層していることが特徴である。個々の土層には、マクロな構造として、例えば、団粒やマクロポーア、フィッシャーやチャンネルの発達があり、とくに表層土壤に顕著である。腐植物質はとくに表層土壤に多く含まれるが、火山灰土壤地帯では深い位置にある土層にも多量に含まれることがある。この事情が、自然界の土壤における水移行を特徴あるものにし、イオンの交換や固定の実験室的な均一性ないしは一様性を拒否し、核種移行の複雑さをもたらしている。

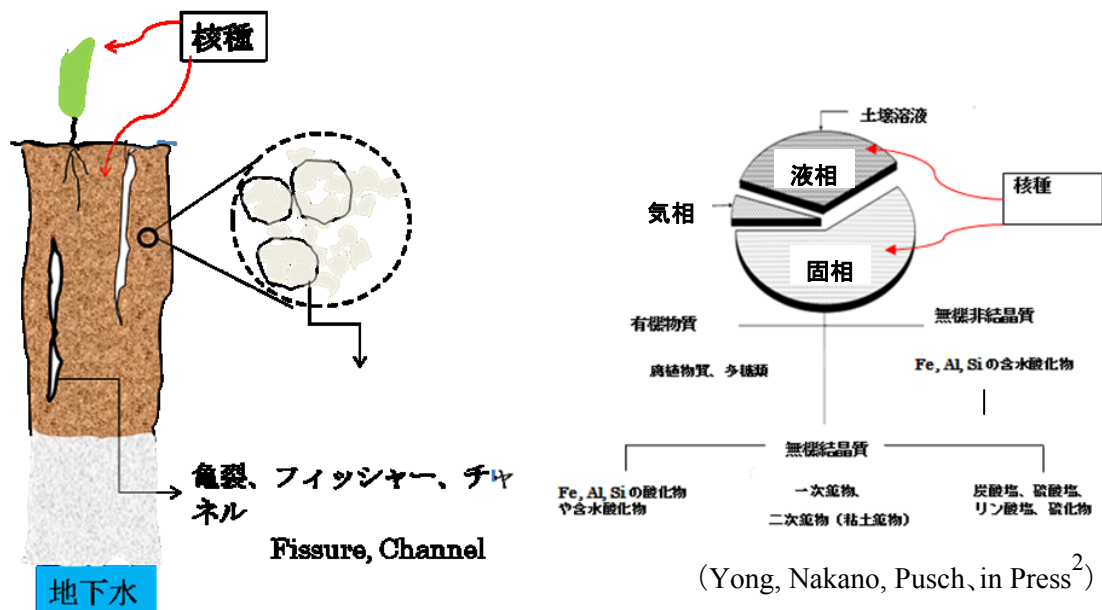


Fig. 2 土壤の組成と構造

日本の土壤は、酸性化されているものが多く、大方が褐色森林土、黄褐色森林土、次いで赤黄色土、黒ボク土である。さらに、褐色低地土（畑地、宅地）、灰色低地土（水田）、グライ土等があり、それぞれ特徴的な粘土鉱物および酸化物、水酸化物等を含む。特に Fe や Mn および Al、加えて腐植物質の形態（フェイト）に特徴（溶脱、集積）がある。固相を構成する元素は、鉱物を構成する多量の O や Si を別にして、土壤により量的な比率は異なるが、多いほうから Al、Fe、C、Ca、K、Na、Mg、Ti、N、S、F、Mn、P、その他の微量元素等である。黄色の土壤ではゲータイト（ $\alpha\text{-FeOOH}$ ）、レンガ色の土壤ではヘマタイト

(α - Fe_2O_3)、黒紫色の土壌ではパイロルーサイト (MnO_2) 等の酸化物結晶物質が見られる。灰色の土壌では $\text{Fe}(\text{II})$ や $\text{Mn}(\text{II})$ がある³。

3. 土壌水の多様な移行形態

検証必要圏の広がり理解するには、水移行の多様な形態を承知することが必要である。土壌表面に雨水等、水が供給されると、水は土壌マトリクスを浸透するとともに、フィッシャーやチャンネルを辿って下降移行し深層にまで浸潤する。晴天時には、土壌に貯留された水が地表の蒸発散により地表に向かって上昇移行する。晴雨の短期的周期と季節的長期周期の下で水の下降移動と上昇移行が繰り返され (Fig. 1(b))、時々水移行によって核種は土壌中を下降・上昇移行する。土壌中の水の流速は、不飽和透水係数に大きく依存し、砂質土壌で大きく粘土質土壌で小さいが、概略 10^2 から 10^{-8} cm/day の範囲にある。水移行の様相は、土壌の体積含水率のプロファイルと流速 (流束) プロファイルによって観察できるが、実測の容易さと核種の移行 (汚染) との関係を見る目的からは、体積含水率のプロファイル変化をみて把握することがよい。

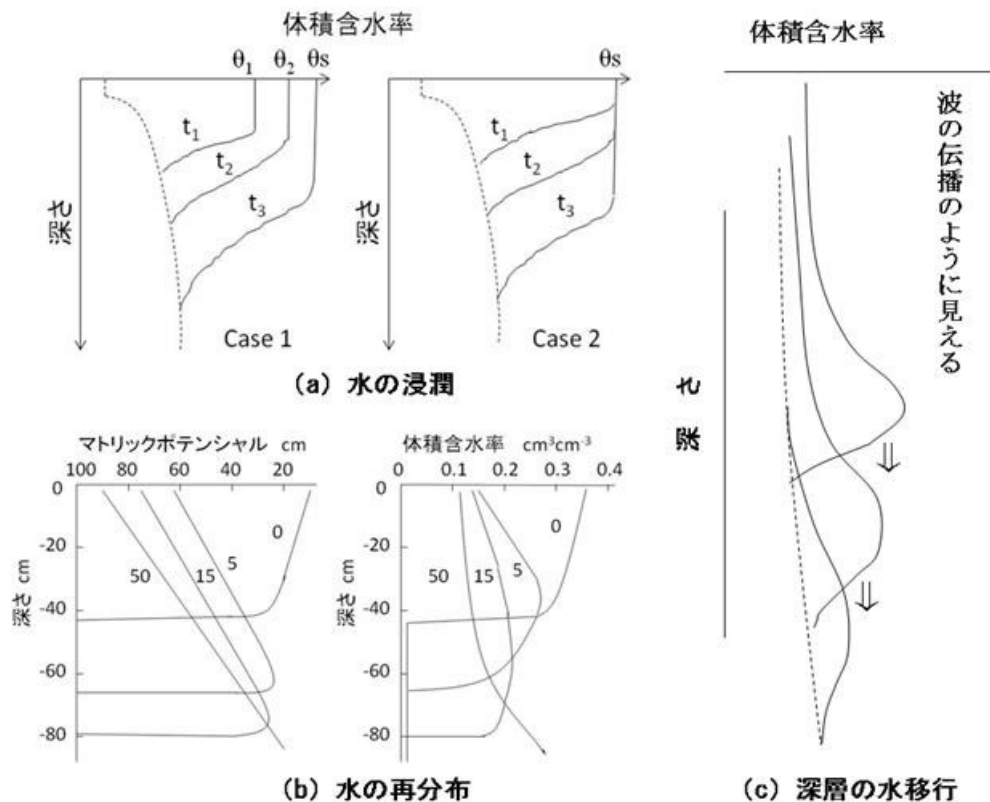


Fig. 3 (a) 地表における水の浸潤、 θ_s は飽和体積含水率。(b) 土壌に浸潤した水の降雨後の再分布 (下降移行)⁸、(c) 深層に向かう水移行。図中の数字は経過時間 (h)

3.1 下降移行

3.1.1 表層土における水の浸潤と再分布

降雨強度が土壌表面における水の浸潤強度より小さいとき、雨水はそのまま土壌表面を通過し、Fig. 3(a)のケース1のように順次地表面の土壌水分を増やしながら浸潤する。やがて、地表面の土壌水分は飽和水分量になって浸潤する。反対に、降雨強度が土壌表面の水の浸潤強度より大きいときには、Fig. 3(a)のケース2のように、初期から地表面に湛水が発生し、地表面が飽和状態になり、その条件下で水が浸潤する。降雨の終了後、土壌に浸入した水は、平衡水分プロファイルの形成に向かって、なお、下降移動する (Fig. 3(b))。水の再分布過程と言われる。

3.1.2 成層土における下降移行

成層土における水の浸潤下に見られる体積含水率のプロファイル変化は Fig. 4 に示すようなものになる。土層の境界では、上下の土壌の水分保持特性の違いから、体積含水率は不連続になることが特徴である。この図から、(a)細粒土から粗粒土に変わる成層では、上部の細粒土層にゆっくりと水が貯留され、その貯留量がかかなり多くなったときに下部の粗粒土層に水が浸入する。(b)逆の粗粒土から細粒土という成層では、上部の粗粒土に素早く水が貯留され、早い時期から下層の細粒土に水が浸入する。いずれの場合も、核種は上層の下端境界部に集積する可能性がある。

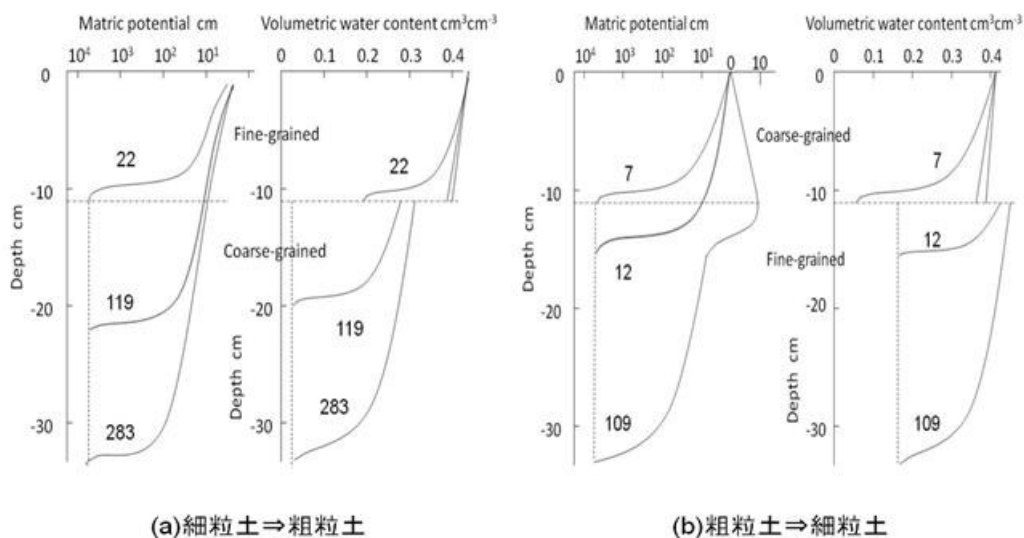


Fig. 4 成層土における水の浸潤の様相 数字は経過時間 (min)。細粒土はシルトローム、粗粒土はローム。(Hanks & Bowers⁹)

3.1.3 特異な下降移行

3.1.3.1 フィッシャーを通る下降移行

植物根残滓、土壤生物の生活跡等により形成されたマクロポーア、フィッシャーやチャンネルが鉛直方向に発達しているとき、水はこの中を先行して流れ、Fig. 5(a)に示すようにこの水が周辺の土壤に浸潤することが起きる。核種はフィッシャーの壁面周辺に集積すると共に先端部に局所的に早く移行する。

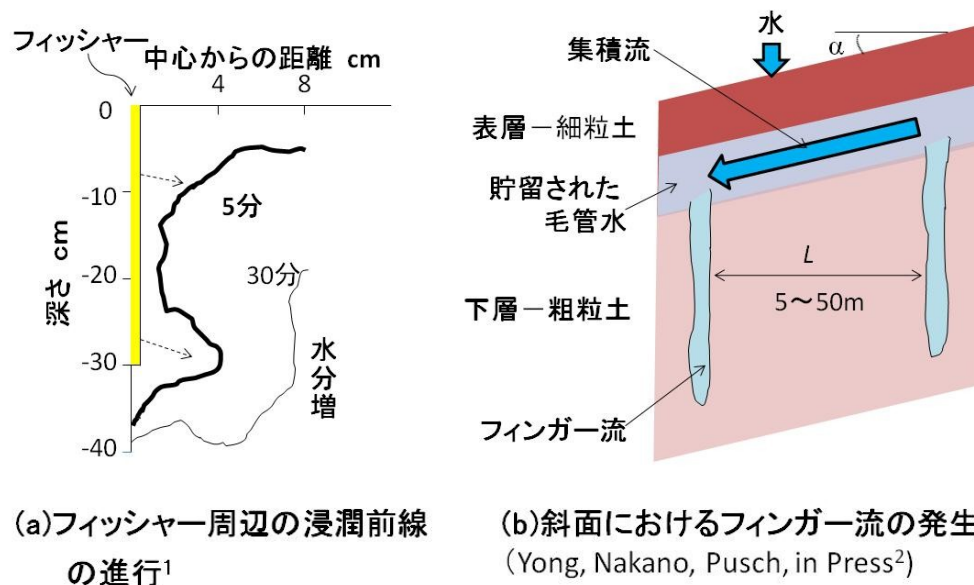


Fig. 5 (a) 関東ロームのフィッシャー（2mm）周囲の浸潤前線（マトリックポテンシャル 107cm の位置）の進行¹。数字は経過時間（分）。(b) 斜面における細粒土⇒粗粒土の成層土における上層の集積流と下層のフィンガー流の発生²。

3.1.3.2 斜面における下降移行

上部に細粒土、下層に粗粒土という成層土の斜面では、とくに下層の粗粒土がかなり乾燥している場合に顕著であるが、水は上部の細粒土下端に集積・貯留され、傾斜方向に流下しながら下層の粗粒土にはフィンガー形状の流れ域を形成して浸入する（Fig. 5(b)）。フィンガー流は平坦地表でも発生するが、成層の境界における浸潤の不安定さによるところが大きく、それは不安定な発生になる。核種は、この集積流によって低地に向かって移行し、フィンガー流によって下層土に局所的に移行する。上部の細粒土における水の集積・貯留は、層境界にキャピラリー・バリアが形成されたためであると解釈されている。核種は、上層下部では低地に向かい、下層ではフィンガー流の発生部に局所的に集積する。

3.1.4 深層に向かう下降移行

表層土では水の下降移行と上昇移行が降雨と晴天の繰り返しに応じて繰り返されているが、その一方で過剰な水が深層土に降下移行し地下水を涵養している。この深層に向かう水の下降移行の様相を Fig. 3(c)に示した。深層における成層性を平均的に見るなら、あたかも水の塊が量的に減少しながら下に落ちてゆく、ないしは波が減衰しながら伝播するように見える。核種も、この波に乗って下降移行するように見える。

3.2 上昇移行

3.2.1 地表面における水の蒸発による上昇移行

裸地土壌の表面から土壌水分が蒸発するとき、表面の土壌水分が減少し、水分ポテンシャルが小さくなる。これによって、土壌水分の上昇移動が発生し土層の水分が減少する。このプロセスにおける土壌の水分プロファイル変化には、Fig. 6に示すような3通りのパターンがある。いずれの場合も、核種は水の上昇移行により地表に移行し集積する。

- (a)大気の蒸発ポテンシャルが小さく、土壌の水分量が大きいとき：土壌水分は、始めは土層全体にほぼ一様に減少するが、後期には表面近傍の減少が激しくなり、乾燥クラストが形成され (Fig. 6(a))。
- (b)蒸発ポテンシャルが大きく、土壌水分量が比較的小さいとき：土壌水分は、始めから表面近傍の減少が激しく、乾燥クラストが形成される (Fig. 6(b))。
- (c)蒸発ポテンシャルが極めて大きく、土壌の水分量が極めて小さいとき：土壌表面近傍でのみ水分減少が見られる。日本では、このパターンは乾燥した砂丘地以外では見られない (Fig. 6(c))。

上記の(a)の後期および(b)と(c)における水移行は、温度勾配を駆動力とする移行ならびに水蒸気態の水移行が加わって進行するものである。

3.2.2 植物の水の蒸散による上昇移行

植物が根群域で水を吸収すれば、吸収根周囲の土壌水分が減少し根群域全体の水分減少が発生するが、それに伴い根群域の下部にある下層土で水の上昇移行が発生する。この下層土の厚さは、植物に有効な土層と言われ、根群域の厚さとほぼ同等になるようである。核種は、この下層土からも上昇移行し吸収根周囲の土壌および根群域の土壌に集積する (Fig. 6(d))。

3.2.3 浅い地下水の上昇移行

表層土における夏の長期にわたる土壌水分の減少により、たとえ僅かな降雨があったにしても、浅い地下水の上昇移行が発生する。この際、深部にある土壌では平衡水分状態を維持する傾向にあるため、深部土壌の水分変化は無視

しうるほど小さい。地下水に含まれている核種は、これにより上昇移行し表層土壌に集積する。

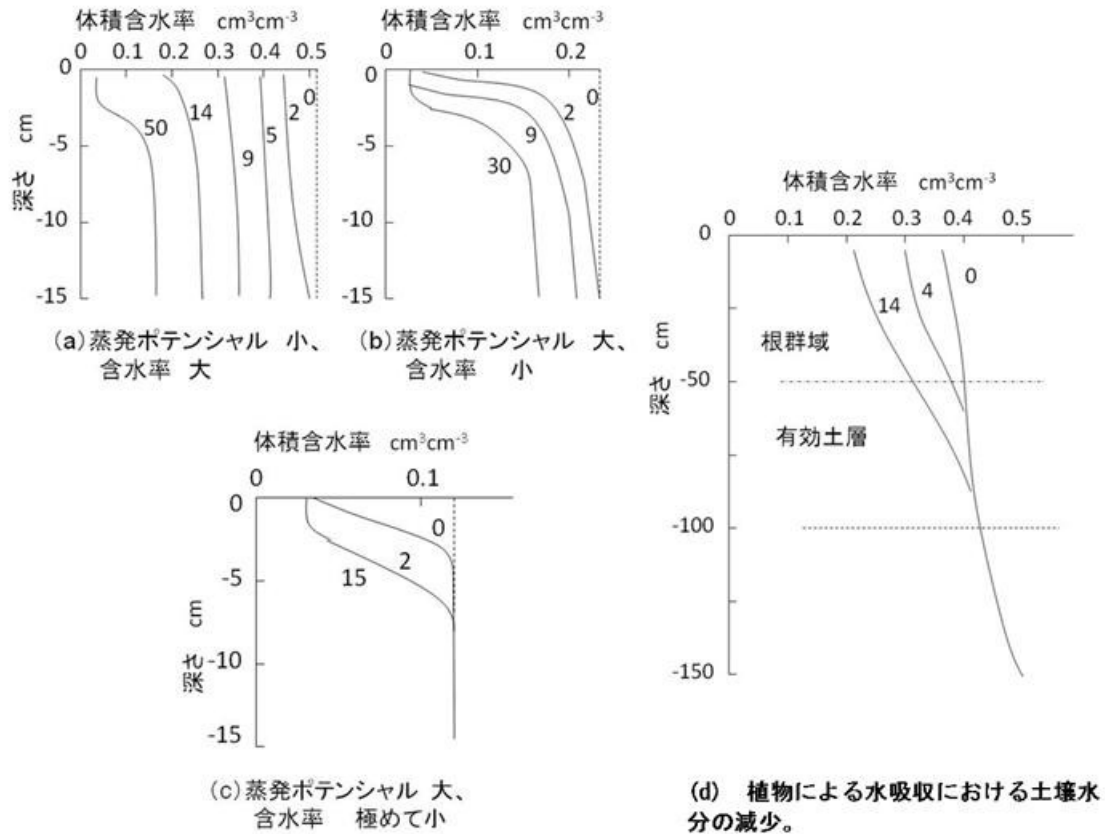


Fig. 6 (a), (b), (c) は裸地表面からの土壌水の蒸発による土壌水分の減少。(d)植物の水吸収・蒸散による土壌水分減少¹⁰。図中の数字は経過日数 (day)。

3.3 水の移行解析手法

土壌中の液状水は大部分が不飽和移行である。その流速はダルシー則により表す。

$$\mathbf{q} = -\mathbf{k} \cdot \mathbf{g} \cdot r \cdot \frac{d\psi}{dz} \quad (1)$$

ここで、 \mathbf{q} は土壌単位面積当たりのフラックスを表し、間隙内の水の平均流速 \mathbf{u} は $\mathbf{u} = \mathbf{q}/\theta$ で与えられる。 θ は体積含水率。 \mathbf{k} は不飽和透水係数、 ψ は土壌水のポテンシャルであり、通常、土壌では $\psi = \psi_m + \psi_g$ で与えられる。 ψ_m は間隙径に由来するマトリック・ポテンシャル、 ψ_g は重力ポテンシャルである。粘土では $\psi = \psi_m + \psi_\pi + \psi_g$ となりオスモティック・ポテンシャル ψ_π が加算される。

土壌における水の保存則と結合して、

$$\frac{\partial(\rho n S)}{\partial t} + \text{div } \rho \mathbf{q} = \rho q_0 \quad (2)$$

ここで、 ρ は水の密度、 n は間隙率、 S は飽和度である。 q_0 は土壌間隙中に発生する液状水と水蒸気の相変化による液状水の増分である。通常は、これは0として扱う。

3.3.1 土壌マトリクスにおける移行解析

よく使われる Eq. 2 の表現は、

$$\frac{\partial(\rho n S)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\rho k_x \frac{\partial \psi}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\rho k_y \frac{\partial \psi}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho k_z \frac{\partial \psi}{\partial z} \right) \quad (3)$$

水の密度が一定、水移行中の土壌体積変化が無い、すなわち間隙率が一定、かつ $\psi = \psi_m + \psi_g$ で与えられるとき、 z 軸を鉛直方向にとる一次元移行では

$$C_w(\psi_m) \frac{\partial \psi_m}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(k_z(\psi_m) \frac{\partial \psi_m}{\partial z} \right) + \frac{\partial k_z(\psi_m)}{\partial z} \quad (4)$$

または、

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z(\theta) \frac{\partial \theta}{\partial z} \right) + \frac{\partial k_z(\theta)}{\partial z} \quad (5)$$

ここで、 $C_w(\psi_m)$ は水分容量であり $C_w(\psi_m) = d\theta/d\psi_m$ 、 $D_z(\theta)$ は水分拡散係数であり $D_z(\theta) = d\psi_m/d\theta$ である。

3.3.1.1 シミュレーションの信頼性

液状水移行解析手法の適用は、前述のような水移行の様相をよく弁えた上で、注意深く行わなければ、後述の溶質移行の支配方程式 (Eq. 9) の形から見てわかるように、誤った核種移行の予測を出す恐れがある。注意すべき点は、水移行が下降移行と上昇移行の繰り返しの中にあることの認識から見えてくる。

(ア) 初期条件について

(a) 地表からの水の浸入の場合、水の上昇移行による水分減少過程の1時点の水分プロファイル (Fig. 6) から始まるので、初期条件は深さの関数となる。

(b) 地表の蒸発散による水の上昇移動の場合、地表からの水の浸潤中ないしは終了時点の水分プロファイル (Fig. 3(a,b)) から始まるので、上部は一様な気泡を含む疑似飽和水分としても浸潤先端部は深さの関数として与える必要がある。

(イ) 地表における境界条件について

地表フラックスか地表体積含水率のいずれかで与えるが、体積含水率で与える場合では、(a) 浸潤の場合、降雨強度が大きいときは疑似飽和水分として与

えてよいが、小さいときには時間の関数として与える必要がある (Fig. 3(a,b))。 (b)蒸発散による水の上昇移行の場合、時間の関数として与える必要がある (Fig 6(a,b))。さらに、地表に乾燥層 (乾燥クラスト) が形成されるときは、核種移行との関連では液状水の上昇移行先端の位置、おそらくこの乾燥層の後背位置で与える必要がある。

(ウ) 不飽和透水係数について

水移行の解析結果の信頼性は、ひとえに不飽和透水係数の数値が信頼できるものであるかどうかにかかっている。不飽和透水係数は土壌ごとに異なり、とくに土壌構造に左右される。土壌マトリクスにおけるものか、マクロポーアやクラックを含む土壌に対するものか、同一の土壌でも異なる数値を示す。すなわち、現地の土壌構造を反映したものか適用される必要がある。

3.3.1.2 水分ヒステリシスについて

土壌の水分保持曲線 (水分特性曲線) にはヒステリシスがある。これは砂質土で大きく、粘質土では小さく無視できる。水の下降移行や上昇移行に伴う土壌水分の増加や減少がどの水分状態から始まるか、その違いは Eq. (4)の C_w (ψ_m)および Eq. (5)の $D_z(\theta)$ に影響を与える (Fig. 7)。なお、不飽和透水係数にもヒステリシスはあるが、それは小さいので無視できる。

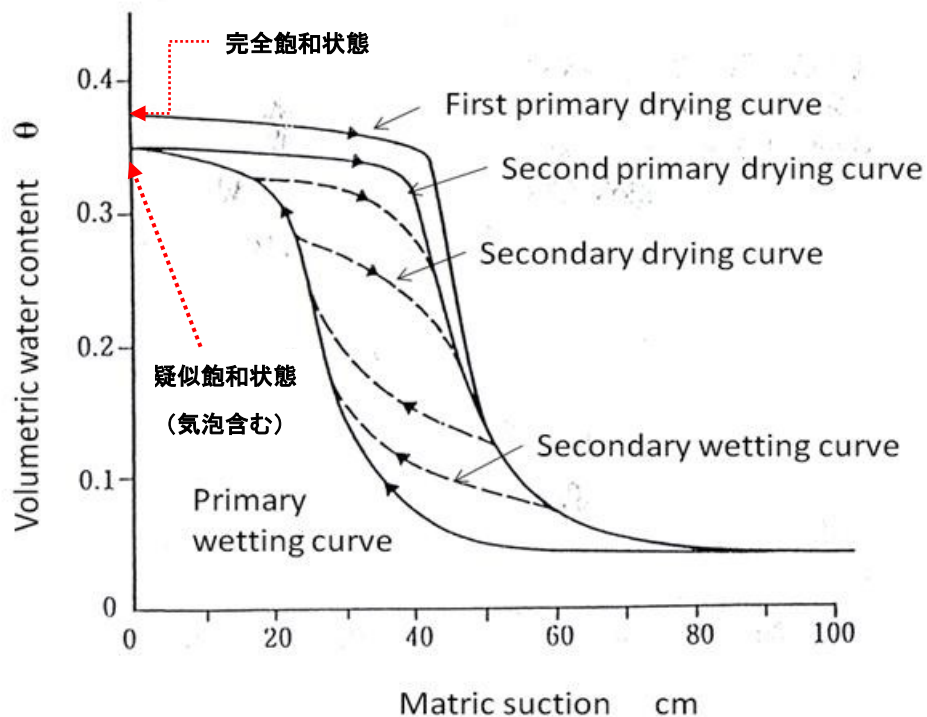


Fig. 7 土壌の水分保持曲線 (水分特性曲線) に見られるヒステリシス² (砂の例) 矢印は水分量が増加する方向を示す。下向きは排水、上向きは吸水。

3.3.2 特異な下降移行や深層移行の解析

フィッシャー内の水移行やフィンガー流による水移行および深層水移行のような土壌の含水量の変化を考慮する必要が少ない特異な水移行では、フラックスに着目した解析が試みられている¹¹。この水移行は重力ポテンシャルによる移行であると見なされ、 $q_{ch} = -k(\theta)$ の関係が仮定され、不飽和透水係数 k が体積含水率 θ のべき乗関数として表現される。鉛直次元では、Eq. 2 から、

$$\frac{\partial q_{ch}}{\partial t} = -C_{ch} \frac{\partial q_{ch}}{\partial z} - C_{ch} S \quad (6)$$

ここで、 q_{ch} は水移行部分のフラックス、 S は水移行部分の周辺土壌による水の吸収、 C_{ch} は $C_{ch} = \partial q_{ch} / \partial \theta_{ch}$ 、であり、キネマティック・ウェーブと言われる。 θ_{ch} は水移行部分の体積含水率である。

4. 溶質の吸着

土壌はリアクターである。土壌水は様々なイオンを溶解する溶液であり、コロイド粒子も含む。土壌におけるイオンやコロイドの吸着には⁷、(a)土壌固相すなわち粘土鉱物や腐植物質を主体としたイオン交換プロセスによるもの（物理吸着）および(b)これらの構成元素等との共有結合による固定的な結合（化学吸着）や(c)沈殿生成を伴う無機結晶・非結晶質化合物との反応による固定、等が含まれている。前者は容易に他の元素と交換されるが、後者ではその可能性は少ない。しかし、pH や酸化還元状態の変化によっては後者でも溶解や分解を通じてその可能性はある。

4.1 イオン交換による多様な吸着形態

土壌におけるイオン交換体としては、粘土鉱物、腐植物質、酸化物・含水酸化物、酸性塩、塩基性塩等があるが、主要には粘土鉱物と腐植物質が考えられる。微生物もわずかにその任に当たる可能性があるが、微々たるものであろう。

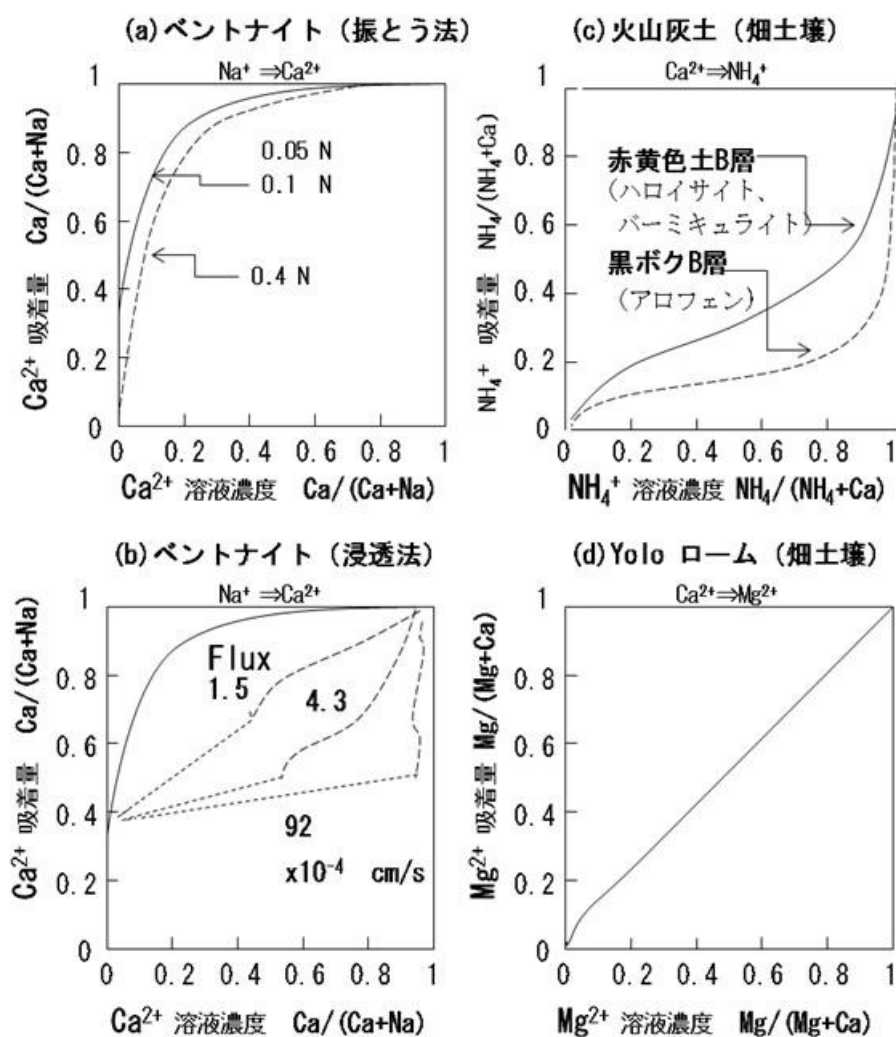


Fig. 8 いくつかの交換吸着平衡曲線の例。(a)ベントナイト（振とう法¹²⁾、(b)ベントナイト（浸透法¹²⁾、(c)火山灰土⁴⁾、(d)Yolo ローム¹³⁾。

粘土鉱物では、例えばスメクタイトでは、結晶内の Si が Al に、Al が Mn や Mg に置換（同形置換）されたことから平坦表面に発生する負の永久荷電により正のイオンを吸着する。切断面では Al-OH や Si-O と H あるいは OH との反応により発生する正（酸性）または負（アルカリ性）の pH 依存荷電（変異荷電）がそれぞれ負または正のイオンの吸着を支配する。アロフェンやイモゴライトでは、永久荷電はなく、Al-OH および Si-O と H あるいは OH との反応による pH 依存荷電によってイオンを吸着する。酸化物や水酸化物（例えば Al や Fe）も pH 依存荷電をもつ⁷⁾。腐植物質における吸着では、例えばカルボキシル基(COOH)やフェノール基(OH)が作る負の荷電が正のイオンを吸着するが、pH 依存性がある。

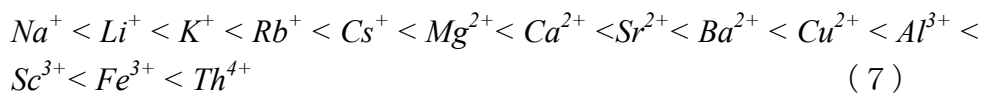
負の電気量は CEC（陽イオン交換容量、 K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 吸着量）、正の電気量は AEC（陰イオン交換容量、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- 、 $H_2PO_4^-$ 吸

着量) で表される。こうした交換体の電気量は粘土鉱物や腐植物質の種類および pH により異なるので、土壌によって CEC や AEC が異なる。イオン交換体の荷電によって、土壌水の中ではイオンがクーロン力やファンデル・ワールス力の作用の下で交換体表面に引き寄せられ、拡散電気二重層が形成される。イオン交換による吸着量は、交換体表面に直接接触するイオンに加えて、この拡散電気二重層内に存在するイオンの量であり、CEC や AEC を超えない。

4.1.1 陽イオンの交換吸着

粘土鉱物による陽イオン交換反応の例を Fig. 8 に示す。交換吸着平衡曲線は土壌ごとに様々な形を見せる。振とう法による(a)Na-ベントナイトにおけるCaの交換の例では上に凸型の曲線であるが、(c)の火山灰土におけるCaからNH₄の交換の例では下に凸型になる。(d)の米国ヨーロー・ロームのCaからMgの交換では直線になり、べき数が1のフロインドリッヒ型吸着になる。土壌に水が浸透する際の「平衡曲線」すなわち(b)浸透法による平衡曲線では、ベントナイトの例であるが、浸透フラックスの増加とともに吸着量は著しく減少する。

土壌水に溶解している多種類のイオンのうちで関心を寄せているイオンが吸着されるかどうかは、粘土鉱物の種類とイオンの種類により異なる。イオンの交換吸着の能力については、目安として例えば次の序列に従い、価数が大きいほど、また有効イオン半径が大きいほど、吸着されやすいと言われている。



これから見ると、例えばCsとSrが共存すれば、Srの方がCsを差し置いて交換されやすいことになる。交換に後れを取る核種は深部に移行していく。すなわち、イオンは吸着に際し他のイオンと競合し、選択的に吸着される。従って放射性降下物にはどのような種類の核種が混在しているか詳細に調べる必要がある。また、土壌では、従前に保持(吸着)されていた交換態イオンが全て交換されることはない。つまり、イオンの交換吸着といっても、交換体は関心を寄せているイオンと以前から吸着していた元素の両方を保持している。

4.1.2 陰イオンの交換吸着

陰イオンの吸着は、土壌の構成物質の中では、アロフェンおよびイモゴライトの pH 依存荷電によるものが顕著である¹⁴。スメクタイト切断面でも、pH 依存荷電により低 pH で陰イオンを吸着するが、量的には少ない。土壌水の中の陰イオンは酸素酸イオンが多く、pH により吸着量がかなり変化する。選択的吸着の序列は、NO₃⁻ < Cl⁻ < SO₄²⁻ << PO₄³⁻ < SiO₄⁴⁻のような例があるが、PO₄³⁻ や SiO₄⁴⁻は配位子交換反応によるものであり不可逆的な吸着(固定)である。火山

灰土（立川ローム、アロフェン）におけるヨウ素酸（ IO_3^- ）の吸着の例（Fig. 9）は、pH 依存吸着の様子をよく表している。

なお、酸化物、水酸化物の無機結晶物質のイオン保持（吸着）も pH 依存吸着であり、アロフェンの様相と類似するとみられている。

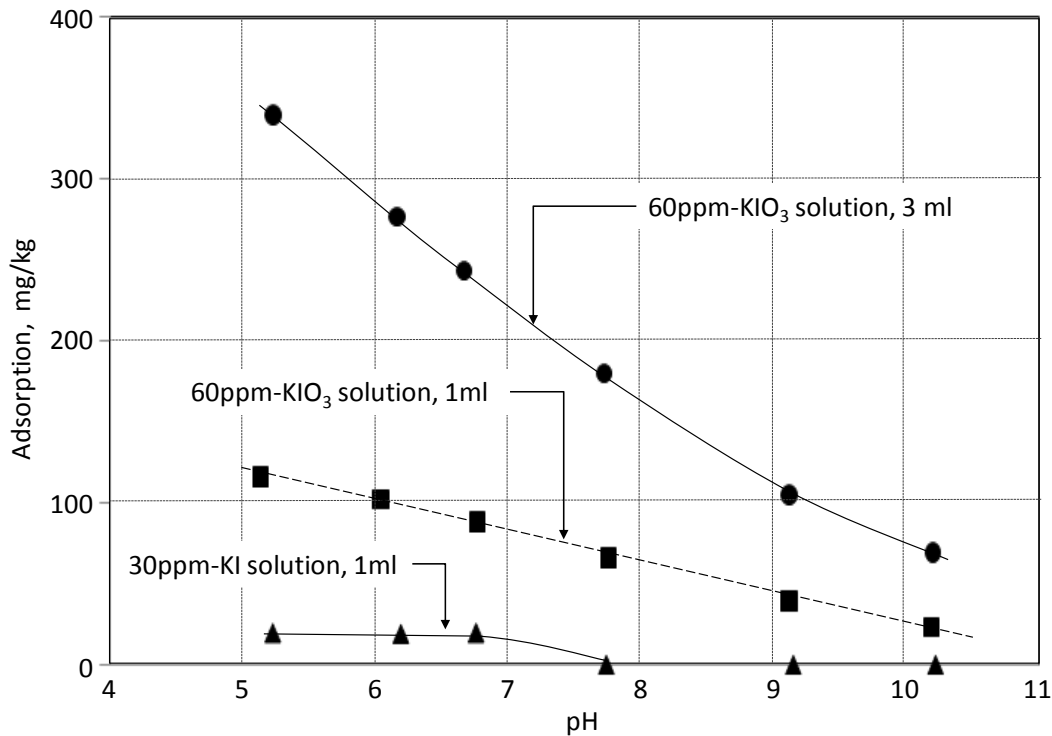


Fig. 9 火山灰土（アロフェン）におけるヨウ素酸（ IO_3^- ）の吸着²。
（データは濱本、山口、中野）

4.1.3 イオンの吸着サイト

ミクロに見ると、粘土鉱物では、例えばスメクタイトでは層間水の中に Mg、Na、Ca イオンが保持（吸着）されている。そのイオンは電気拡散二重層の中にある。水分子の直径は概略 3\AA 弱であるが、Cs イオンの有効直径は 3.34、Sr は 2.36、I (+5 価) は 0.88 であるが、I (-1 価) は 4.4、それにたいして Mg は 1.14、Na は 1.98、Ca は 2.0、と小さい。とはいえ土壌水中のイオンは大方が直径 7.0\AA 前後の水和イオン状態にあり、従って層間水の厚さがかなり厚くなければ（土壌水分量が多く層間距離が大きい）層間に侵入し交換にあずかりにくい。スメクタイトのスタック（積層）の外表面でみると、腐植物質や酸化物あるいは水酸化物で部分的に覆われているかもしれないが、負の永久荷電によって吸着される場合、Cs は、最近の EXAFS 振動解析で得られる大きなデバイ・ワラー因

子や分子動力学シミュレーションの可視化された動きから見る限り、平坦表面では6員環の辺付近を揺動して吸着されている (Fig. 10(i))。類推して、切断面 (エッジ部) (Fig. 10(ii)) でも、Si-4面体シートのOの影響を受けて切断面上を揺動していると見られている¹⁴。

孔空き (直径3~5Å) の中空球状のアロフェンやパイプ状 (内径10 Å) のイモゴライトでは、このサイズから見て、表面を構成するAl-OH および孔側面や切断面にあるSi-O (Fig. 10(iii,iv)) が吸着サイトになると考えられる^{5,15}。腐植物質では、その官能基が吸着サイトである (Fig. 10(v))。

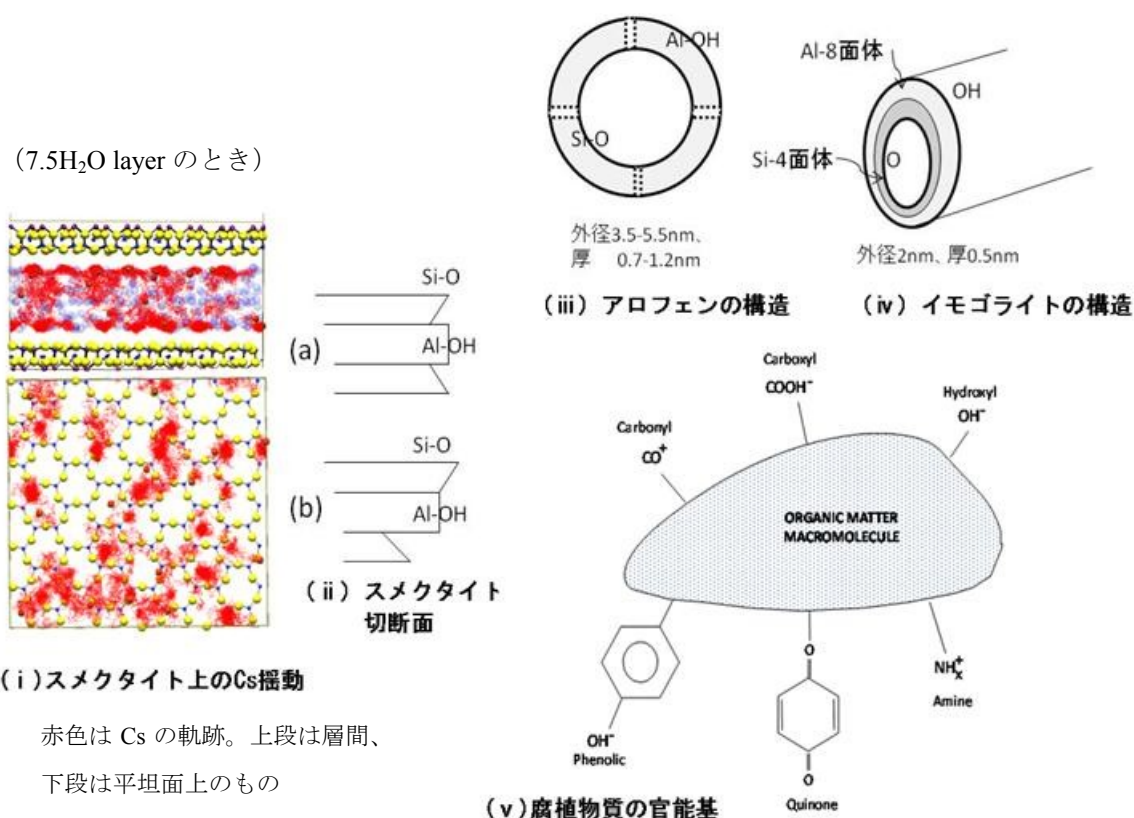


Fig. 10 Ca-スメクタイトおよび切断面のSi-O、Al-OH、アロフェンおよびイモゴライトの構造^{5,15}。(i)¹⁴および(ii)は河村から提供、(iii)、(iv)は和田⁵、岡崎ら³から、(v)はYong, Nakano, Pusch²からそれぞれ引用。

4.2 沈殿の形成

溶液である土壌水は化学反応の宝庫である。様々なイオンの侵入によって様々な沈殿物を生成する。沈殿物は土壌粒子の接合部やフィッシャー・チャンネルの壁面に沈積し肥大するとともにコロイドとして水移動によって移行し土層の境界部に集積する。

Csの侵入により生成される可能性のある水に不溶な無機化合物は見当たらず

ないが、水に難溶性のものとして過塩素酸セシウム (CsClO_4) やチタンセシウムミョウバン ($\text{CsTi}(\text{SO}_4)_2$)、三ヨウ化セシウム (CsI_3) 等が沈殿として存在する可能性がある。

Sr については、リン酸水素ストロンチウム (SrHPO_4) やリン酸ストロンチウム ($\text{Sr}_3(\text{PO}_4)_2$)、硫化ストロンチウム (SrS) 等が水に不溶であり沈殿を形成する可能性があるが、リン酸塩は酸には可溶である。炭酸ストロンチウム (SrCO_3) は水に難溶であり、硫酸ストロンチウム (SrSO_4) は水にも酸にも難溶である。なお、フッ化ストロンチウム (SrF_2) は水に難溶であり、6 ホウ化ストロンチウム (SrB_6) は水にも酸にも不溶であるが、土壤中に沈殿として生成されることは特殊な場合であろう。

4.3 粘土-腐植-沈殿化合物複合体

土壤中では、粘土鉱物、腐植物質、沈殿化合物は、個別に存在するものではなく、かなり強固に結合して複合体を形成し、一次鉱物粒子の接触部に沈積して一次鉱物粒子を接着している。従って粘土鉱物、腐植物質、沈殿化合物等それぞれに保持（吸着や化学結合）された核種は、土壤中に停留しやすい。一方で、この複合体は、水移行の状況によっては、コロイドとして大きなマクロポアー、フィッシャー、チャンネル中を移行する可能性も持っている。

4.4 地表における篩分け集積

地表に降下した核種は、地表の土壤固相に吸着する他に、地表にある無機・有機物質に付着する。降雨は、土壤表面を攪乱しながら土壤中に浸入しつつも、一部は地表流となって低地に向かい土壤の固相粒子や有機物質を低地や窪地に輸送する。核種を付着した土壤固相粒子や有機物質は地表面に停留して篩分けられ沈積する一方で、地表の小亀裂や小孔を通過し乾燥層の裏側に沈積する。この地表面における篩分け作用は、地表における核種の局所的な高濃度部の発生や地表のごく薄い表層土壤における多量な核種の停留の原因となる。

5. 溶質移行の多様な形態

5.1 イオン交換吸着を伴う溶質移行

5.1.1 典型的なイオン交換吸着を伴う溶質移行

関心のあるイオンを含む溶質が土壤に侵入するとき、そのイオンは吸着選択性の序列に従って地表部からイオン交換吸着されつつ、深部土壤に移行する。もともと吸着されていた交換態イオンは遊離し地表部から深部に移行する。ス

メクタイトを主体とする Na 型ベントナイトにおける Ca イオンの交換吸着の例 (Fig. 11(a)) では、Ca イオンが、侵入表面付近で大きく吸着されつつ時間の経過とともに深い位置に移行して深部における吸着が進行する。同時に、もともと吸着していた交換態 Na は遊離され、これも深い位置に移行する。

この例は、一定量の Ca イオンがパルス的に浸入するときには、Fig. 11(a)の 2 日後に見られるような地表付近に集中的に Ca イオンが吸着保持される吸着プロファイルが観測されることを示唆している。

なお、新たなイオンの吸着と元から保持していた交換態イオンの遊離によって土壌粒子周りの電気拡散二重層の変化や沈殿物生成が土壌構造の変化を生み、土壌水中の共存イオンを含めた全イオンの組成変化を生む。そのため、土壌では水移行によってイオン吸着選択性序列に逆らってイオン交換吸着が行われることがある。この例として、Ca 型ベントナイトに Na を含む地下水が地表に向かって上昇し、Na が地表に集積するときの例 (Fig. 11(b))がある。

5.1.2 地表からの水の浸入による溶質の下降移行

関心をよせる交換態イオンを多様な形態で吸着保持する土壌に定量の水がパルス的に浸入するとき、例えば雨水やリーチング水の浸入であるが、水はその交換態イオンを遊離して降下移行させる。その際、遊離した交換態イオンは水の中で上方に拡散しつつ降下する。Fig. 11(c) の例は、交換態 Ca は 55mm 以上の大量の水が浸潤したときに地表付近の吸着量の顕著な減少と下降移行が見られたことを示している。少量の浸潤水量では交換態イオンは下降移行しにくいようである。

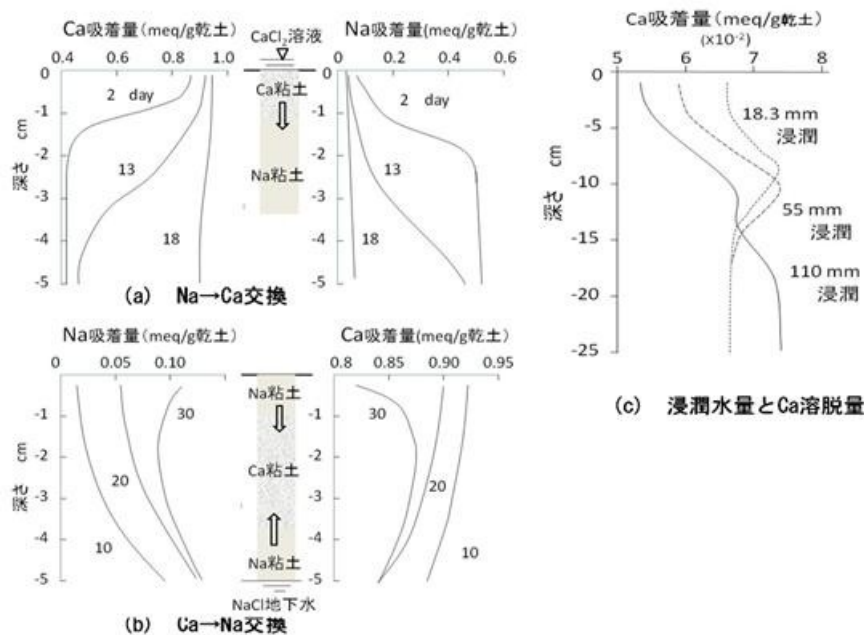


Fig. 11 (a) および (b) はベントナイトにおける Na 型と Ca 型のイオン交換反応の例¹²、(c) は沖積土 (畑地) における Ca イオンの溶脱の例 (データは飯塚他¹⁶から引用)

5.1.3 水の上昇移行による溶質の地表集積

土壌水が地表における水の蒸発により上昇移行するとき、下層にある溶質は同時に上昇移行し、地表に集積する。Fig. 12の(a)の例に見るように、地下水位が浅く、液状水の上昇移行が地表面まで続く場合は地表面そのものに溶質の集積が見られる。一方、地下水位が深く、液状水の上昇移行が乾燥クラストの下面で途切れるような場合 (Fig. 6(b)) は、乾燥クラストの下面に溶質が集積する。

核種も同様のプロセスをたどると考えられるので、この例は、地表における水の蒸発に伴う汚染地下水の上昇移行により、汚染土壌を排除した表層土壌が再汚染される可能性を示唆する。

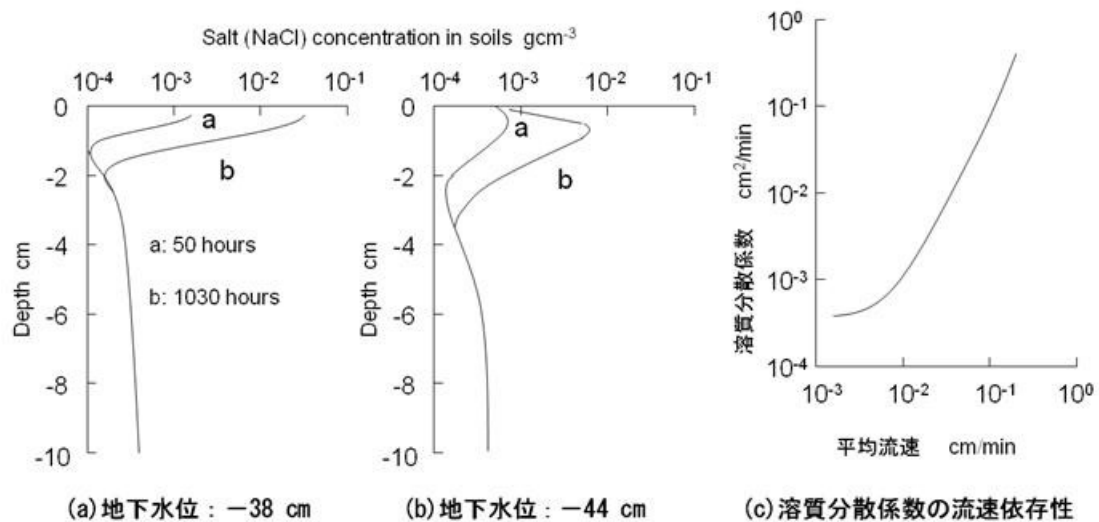


Fig. 12 (a) は地下水位が浅く、液状水移行が地表面まで続く時の溶質プロファイル変化。(b)は地下水位が深く、溶質の集積が地表下で生じるときのプロファイル。図中の数字は経過時間。(c)は溶質分散係数 D_d の水の平均間隙流速 u 依存性¹。砂から粘土までほぼ同じ曲線で表せる。

5.2 コロイド移行による核種移行

帯電コロイドは、イオン交換や沈殿化合物生成と類似の核種の吸着・固定作用を行い、土壌中を分散・移流する。土壌中のコロイド移行が溶質移行と根本的に異なる点は、コロイドのサイズと土壌のマトリクス間隙やフィッシャー、チャンネル径のサイズとの相対的關係に左右されることである。言うまでもなく、マトリクス間隙やフィッシャー、チャンネル径のサイズより大きいサイズのコロイドは、移行が不可能である。たとえ小さくとも、コロイドが固相の粒子接合部に接触した場合やフィッシャー・チャンネル壁に接触した場合には移行を停止し、その部分に沈積する。つまり、コロイドは土壌中で篩作用を受けて土壌に

捕獲され、あたかも土壌固相に吸着されたように見える。従って、コロイド移行による核種移行でも、核種は水移行によって土壌固相に吸着されながら移行するように見える。

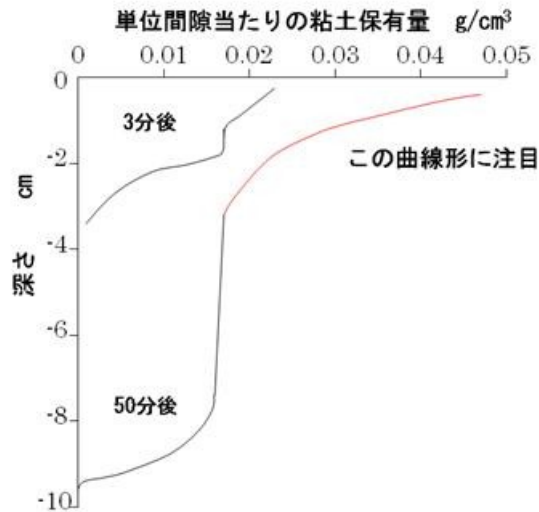


Fig.13 砂の間隙中の粘土保有量。0.05 mm の石英砂に 2% のベントナイトけん濁液が浸入するとき¹。

5.3 溶質の移行解析手法

地表から浸入した水の溶質は、土壌の固相粒子に元から吸着していた既存の無機・有機の各種交換態イオンと交換しつつ移行する。その移行は土壌水中の溶質の濃度勾配と土壌水の移流の 2 要因に起因する。

土壌の単位面積当たりの溶質フラックスは

$$\mathbf{q}_c = -AD_d \text{ grad } C + Au \mathbf{C}_w \quad (8)$$

ここで、 \mathbf{q}_c は土壌単位面積当たりの溶質フラックス、 C は土壌水の溶質の濃度、 D_d は溶質分散係数、 \mathbf{u}_w は水の平均流速、 A は溶質移行に有効な面積であり、土壌マトリクスにおける移行であれば体積含水率 θ に等しく、フィッシャー流、フィンガー流であればその総断面積である。

溶質の保存則と組み合わせたよく知られた鉛直方向の 1 次元溶質移行式は、土壌に体積変化すなわち間隙率の変化が無い場合、

$$\frac{\partial AC}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(AD_d \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial (AuC)}{\partial z} - R - \lambda AC \quad (9)$$

土壌マトリクスであれば、 $A = \theta$ であり、 $Au = q_w$ と表される。地表近くの土壌の

ように湿潤・乾燥による体積変化がある位置では $\theta = nS$ とする。 q_w は水のフラックスである。 R は単位土壌体積あたりの固相によるイオン交換吸着速度 R_a (コロイドとの交換も含む) と沈殿生成速度 R_p の和である。すなわち、 $R = R_a + R_p$ 。イオン交換吸着速度は土壌吸着量の時間変化によって与えられ、 $R_a = dQ/dt$ 。ここで Q は交換吸着量であり、交換吸着平衡曲線 (Fig. 8) $Q = f(C)$ から与えられる。 t は時間を表す。沈殿生成速度は単純に $R_p = \gamma AC$ のように与えれば、 γ は沈殿化合物の生成定数である。 λ は核種の減衰定数である。 γ および λ は時間の逆数の次元を持つ。溶質分散係数 D_d は、濃度勾配による拡散移行の係数すなわち分子拡散係数 D_c と土壌間隙径に分布があるために生じる間隙ごとの水の移流速度の違いによるミクロな移流の分散を表す水力学的分散係数 D_h の和であり ($D_d = D_c + D_h$)、 D_h の寄与が大きいため平均流速 u の関数となる。溶質分散係数 D_d は砂から粘土まで、ほぼ一つの曲線で表せるようである (Fig. 12(c))。

コロイド移行による核種移行も Eq. 9 と形式的に類似の支配方程式に従うと考えられるが、その支配方程式は前述したようなコロイドの移行中の壁面接触による沈積作用や土壌間隙による篩分け捕獲作用を加味したものになる。

5.4 シミュレーションの信頼性

溶質の移行解析手法の適用は、現場における土壌の個性・特性を把握し、それを反映する条件の下で行わなければ、結果の信頼性は弱いものになる。注意を払うべき事項は次のようなものである。

5.4.1 初期条件と境界条件について

溶質は水の移行とともに周期的に降下と上昇の移行を繰り返すので、初期条件はそのプロセスの一時点における濃度プロファイルで与えられることが必要である。境界条件は、特に地表に与えられる境界条件は、表面土壌の性質が降雨や土壌生物による攪乱、植物生育にともなう変質、乾燥と湿潤の繰り返し等を受けて下部にある土壌本体のものとは異なる場合が多いので、地表面の位置で与えることは不自然であり、やや深い位置で与える必要がある。

5.4.2 交換吸着平衡曲線について

日本の土壌の特質である成層性を十二分に把握し、それぞれの層の土壌について交換吸着平衡曲線をあらかじめ用意し、きめ細かく適用する必要がある。その際、イオンを吸着保持する交換体が粘土鉱物のみなのか、腐植物質や沈殿化合物も含まれるのか等を見極め、土壌に含まれる各交換体の比率について承知する必要がある。また、振とう法によるものを適用するか、土壌水の移行中の反応を表現する浸透法によるものを適用するか、適正な判断が必要である。

5.4.3 ガス移行との関係について

関心をよせるイオンが土壌気相中を気体となって移行することが発生し、その移行量が無視しえない場合は、土壌気相中の気体移行の解析が合わせて必要になる。その際には、溶質移行の支配方程式に注目するイオンの気相-液相間の平衡(溶解平衡)に基づく気相-液相間のイオンの交換を加味する必要がある。

5.4.4 水移行の解析結果の信頼性

溶質移行は、土壌中の水移行の間隙平均流速および移行フラックスに支配されている。溶質移行解析結果の信頼性は、ひとえに水移行解析結果の信頼性の高さにかかっているとと言っても過言ではない。従って、溶質移行の信頼性を高めるために、水移行の解析結果の信頼性を可能な限り最大限に高めておく必要がある。

6. 土壌改良材

土壌改良材は、土壌修復の基本方針の立て方によって、(a)投与するかしないか、(b)投与するなら何を投与するか、が決められる。修復の基本方針は、核種を(a)不動態化して土壌中に閉じ込める、(b)可溶態化して土壌深部に拡散希釈する、(c)植物に吸収させて取り除く、等のいずれかである。

基本方針の決定および投与する改良材の選択は、(a)汚染核種の種類と濃度、(b)対象となる汚染された土壌の性質、成層性、深層の土壌の性質、(c)周辺から流入する地表水と地下水の水質、等の条件から決定される。雨水の水質（とくに酸性雨）も勘案要因である。加えて、(d)修復手段の性格等によって左右される。また(e)従前の土地利用状況と修復後の土地利用方針、さらに(f)農地では肥料成分や灌漑水の水質が判定・検討条件に加わる。

土壌改良材は、(a)無毒、無害であり、(b)長期的に機能が維持（耐用性）され、(c)多量に入手可能で、(d)安価である、(e)農地で使用する場合には、作物生育や農作業に支障をきたさない、(f)地域環境とくに生態系を損なわない、等の条件が満たされるものでなければならない。修復手段との対応では、土壌改良材が、(a)埋込では、粘土鉱物等によるイオン交換吸着・保持ならびに不溶性・難溶性化合物の沈殿形成に有効な元素を含むもの、(b)リーチングでは、吸着核種を遊離し溶解性にする元素を含むもの、が選ばれる。(c)植物利用では、植物に吸収されやすい核種の状態を作り、かつ生育を妨げないものを選択する。なお、参考のため、土壌改良材に含まれてはならない有害金属元素を Table 1 に示す。また、土壌改良材の選択と基本方針および適用する手段ならびに土壌や地表水や地下水との関連性を Table 2 に示す。

Table 1 有害金属元素のリスト (Yong, Nakano, Pusch, in Press²)

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18							
IA																	0							
1		IIA																						
2		Be 4																B 5					F 9	
3			III A	IV A	V A	VI A	VII A	VIII	VIII	VIII	IB	II B												
4			Ti 22	V 23	Cr 24	Mn 25	Fe 26	Co 27	Ni 28	Cu 29	Zn 30	Ga 31		As 33	Se 34	Br 35								
5		Sr 38	Zr 40		Mo 42					Ag 47	Cd 48	In 49	Sn 50	Sb 51	Te 52									
6	Cs 55										Hg 80	Tl 81	Pb 82	Bi 83										
7					U 92	Note that uranium U is in the actinoid series.																		

7. 放射性核種汚染土壌の修復の手段と方法

土壌は常に変質し、核種は水の移行とともに土壌中を移行する。核種は、土壌構成物質と反応を繰り返し、そのフェイトは複雑なプロセスをたどり、移行速度は小さいとはいえ、可動性（モビリティ）がある。従って、Fig. 14(a-g) に示した現場修復手段の採用には、土壌の組成や性質、および周辺から流入する地表水・地下水ならびに雨水の水質に応じて適切なものを選択し、本来的に備わっている土壌の性質を損なわない、とくに透水性や吸着性等の機能の持続性が維持されるように、付帯事項をきめ細かく駆使して施工する必要がある。これは、修復後に農地等の利用を意図する際には特段に欠かせない配慮である。

例えば、汚染土壌の地下埋込では、汚染土壌の固化や圧縮・締固めを行い、埋込土壌周りにも床締層（締固めた層）を付帯的に施工する。リーチングで言えば、使用する水は真水ではなく、イオン交換用カウンター・イオンと Cl⁻ 等の対イオンを含む希薄塩溶液を用い、効果の確認や除染核種回収のための排水回収装置として明・暗渠を付設するなどの施工が合わせて必要である。必要なら、核種回収フィルターの設定もあるかもしれない。

修復手段は、どれか一つを選んで施工したからそれで良いというものではない。二つ、三つ、と幾つかの手段を同時に並行して施工し、各々が持つ効果を複合した修復効果を期待することがよい。例えば、(1)表層の汚染土壌の除去には、その後のリーチングの併用、(2)地中埋込みや覆土には土壌改良材投与による核種の不動態化の併用、(3)リーチングには植物利用の併用、等である。

それは、長期的に見て、埋込汚染土壌への水の浸入や移行を遮断ないしは減速し、汚染土壌の周辺に広がる土壌や地下水に汚染が拡大する可能性および

地下に侵入した核種が地表に再上昇する可能性を低減することにつながる。

また、修復手段の施工後には周辺のモニタリング（核種の濃度観察）は欠かせない。地下の広域にわたって希薄とはいえ汚染プルームが観測される、あるいは予期される場合には、Fig. 14(h)のように、モニタリング井の配置と、地下水の汲み上げ処理とともに核種を吸着遮断する透水性あるいは不透水性の反応壁の施工の併用が必要になる。

Table 2 土壤改良材の選択と改良手段

基本方針と手段	土壌の性質	流入水の水質	土壤改良材	備考
(a)不動態化して閉じ込め (耐久性(持続性)、未反応性、溶解性、微生物作用有り)				
(地下埋込)	粘土鉱物の種類	酸性かアルカリ性か	粘土-スメクタイト、バーミキュライト、イライト	Cs型、Sr型を作る
(覆土)	腐植物質の有無	(酸性雨)	火山性土-アロフェン、イモゴライト	リン酸の固定
[ライナー]	無機化合物の種類	溶解イオン	グリーン・タフ・ゼオライト	
	交換態イオンの種類	コロイドの種類	人エゼオライト(Y、X型)	
			腐植物質	
			アパタイト(燐灰石:Ca ₅ (PO ₄) ₃ (OH,F,Cl))	Sr ₃ (PO ₄) ₂ (不溶)を作る
			Ca-クエン酸塩-リン酸	SrHPO ₄ (不溶)を作る
			リン酸(H ₃ PO ₄)	SrCO ₃ (難溶)を作る
			クエン酸(C ₆ H ₈ O ₇ ・H ₂ O)	
			クエン酸カルシウム(C ₆ H ₅ O ₇) ₂ Ca ₃ ・4H ₂ O)	
			クエン酸アンモニウム(C ₃ H ₄ (OH)(CO ₂ NH ₄) ₂)	
			尿素(ウレア)(CO(NH ₂) ₂)	
			酸(ex.H ₂ SO ₄)	SrSO ₄ (難溶)を作る
(b)可溶態化して拡散希釈 (肥料の影響、灌漑水の影響、深層・地下水の汚染有り)				
(リーチング)	同上	同上	酢酸アンモニウム(NH ₄ CH ₃ COO)	CEC測定に用いる
	透水性		クエン酸アンモニウム(C ₃ H ₄ (OH)(CO ₂ NH ₄) ₂)	
	吸着性		NH ₃ ガス	
(c)植物による吸収 (肥料の影響、地表集積、植物体内濃縮およびその管理有り、収穫物の処理必要、深層および地下水汚染有り)				
(マルチング)	同上	同上		
<化学肥料>		肥料成分		
<灌漑水>		窒素肥料:	硫酸アンモニウム((NH ₄) ₂ SO ₄),	SrSO ₄ (難溶)を作る
<刈取>			硝酸アンモニウム(NH ₄ NO ₃)	
		燐酸肥料:	ex.燐灰石	SrHPO ₄ (不溶)を作る

8. おわりに

8.1. 電気泳動法について—Challenge—

物質移動学の立場から言って、土壌から汚染核種を回収する可能性を秘めた方法として魅惑的なものに電気泳動現象を利用するものがある。

希薄溶液の場合、電場がかけられている溶液中の荷電粒子は濃度勾配に加え電位勾配によって泳動する^{6,7}。溶液中の荷電粒子の電気化学ポテンシャル μ は、

$$\mu = \mu^0 + RT \ln c + zF\phi \quad (10)$$

ここで、 μ^0 は標準状態の電気化学ポテンシャル、 c は溶質濃度（活量）、 z は電荷数、 F はファラデー定数、 ϕ は電位、 R は気体定数、 T は温度である。ただし、活量係数を1としている。

荷電粒子がこの勾配によって駆動されるとすれば、土壌の単位面積当たりのフラックス q_e は、ネルンスト・プランク式から、

$$q_e = -\theta D_e \frac{\partial c}{\partial x} - \theta c \frac{\partial \phi}{\partial x} \quad (11)$$

ここで、 θ は体積含水率、 D_{ec} は濃度拡散係数であり $D_{ec} = \omega RT$ 、 $D_{e\phi}$ は電場拡散係数であり $D_{e\phi} = \omega zF$ 、 ω はモル移動度（単位電場 1 Vm^{-1} 当たりのイオンの移動速度）である。

土壌に電場が加えられたとき、土壌水の電気浸透が同時に発生し、土壌は脱水される。従って、核種の可動態化を促進する目的も含めて、小さい圧力勾配をかけて脱水を回避する程度に溶液を流し込む必要があり、この溶液の適切な選択が重要になる。現場で適用する際には、土壌改良材を投与したリーチングと併用することなどが考えられる。さらに、排出した水から核種を除去するための付帯施設の施工が必要であろう。

電気浸透現象は地盤の排水に適用した施工例があるが、電気泳動現象を利用した土壌中の汚染金属元素の回収例は、実験室規模では $2 \sim 5 \text{ VDC/cm}$ 程度の電位勾配のもとでの例はあるものの、汚染現場における土壌修復のための施工は例を知らない。室内実験規模の試験からはじめて、土壌からの核種回収の可能性を詳細に検討し、除去した汚染土壌から核種を取り除くプラント技術としても、また現場に適用する修復技術としても、成立する可能性があるかどうかチャレンジする意義は大きい。

8.2 放射性核種汚染土壌の修復のゴールについて

土壌修復は土壌から汚染物質の除去を図る行為であるが、土壌の性質をあえて品質（組成や構造等の性質）と機能（透水性や吸着性等の能力）に分けて捉えてみると、土壌の修復には、汚染物質の除去によって、(1)品質が元通りに復元され、機能も元通りに復活された、(2)品質がやや変更されたが、機能は元通りに復活した、(3)品質は元通りに復元されたが、機能がやや変更された、(4)品質がやや変更され、機能もやや変更された、等の4種のゴールが人の健康と命の安全および生態系の持続性に対する安心を保障するものとして用意されている。

土壌は岩石の風化を始点として地球史の中で熟成された天然資源であり²、人と生物の生存に欠かせないものであることを思うとき、放射性核種汚染土壌の修復は上記の4種の内のどのゴールを目指すのか。理想と現実の狭間の中で冷静に、地域環境と地球環境の未来を見通して、総合的に考えることが望まれる。

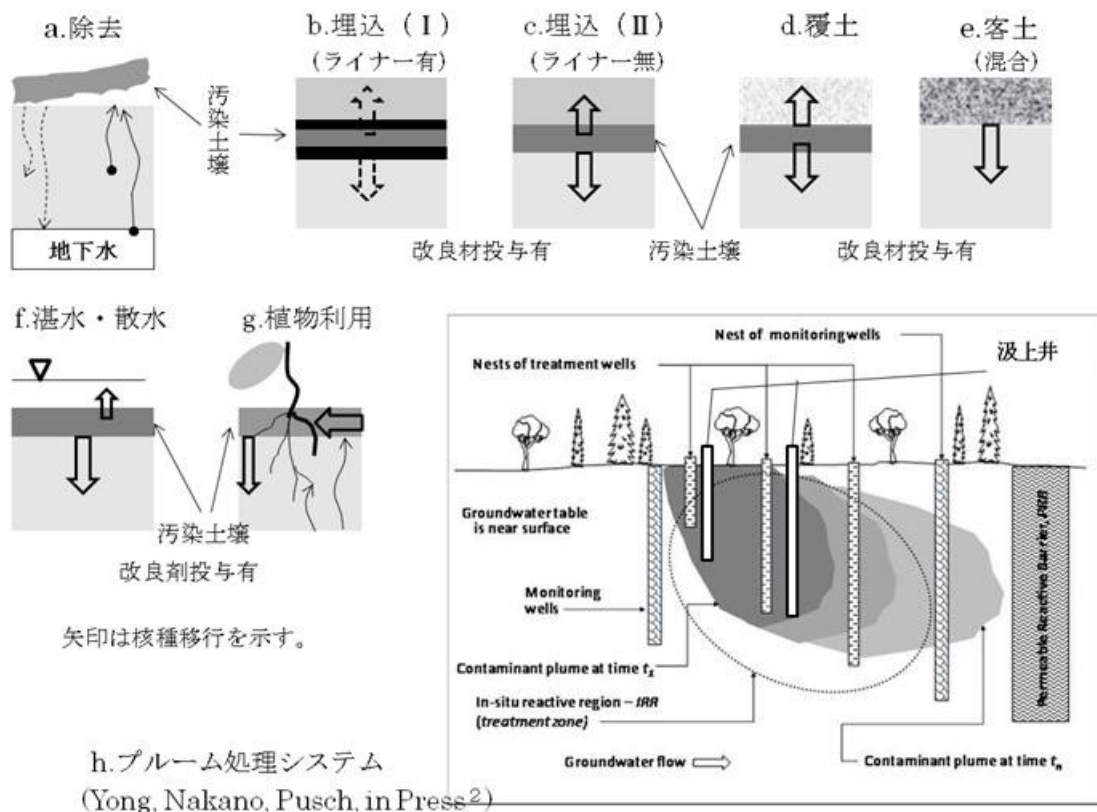


Fig. 14 いくつかの現場修復手段の例。矢印は、核種の可能な移行方向を示す。(a)から(g)までの手段は汚染程度や土地利用状況により使い分ける。

参考図書ーさらに詳しく知るためにー

1. 中野政詩、1998、土の物質移動学（第3刷）東京大学出版会。
2. Yong, Nakano, Pusch, in Press, Environmental soil properties and behavior, CRC Press, Taylor & Francis Group, Florida
3. 岡崎正規他 5 名、2010、図説日本の土壌、朝倉書店
4. 和田光史、1981、土壌粘土におけるイオンの交換・吸着反応ー土壌の吸着反応、日本土壌肥料学会編、博友社
5. Wada, K., 1989, Minerals in soil environments (2nd ed.), Soil Sci. Soc. Am., Madison, New York
6. 大塚利行、加納健司、桑畑進、2000、ベーシック電気化学、化学同人
7. 足立泰久、岩田進午編著、2003、土のコロイド現象、学会出版センター

引用文献

8. Vachaud, G. and Thony, J.L., 1971, Hysteresis during infiltration and redistribution in a soil column at different initial water content, Water Resour. Res., 7:111-125
9. Hanks, R.J., and Bowers, S.A., 1962, Numerical solution of the moisture flow equation for infiltration into layered soil, Soil Sci. Soc. Am. Proc., 26:530-534
10. 石田朋靖、1985、土壌-植物系における水分移動に関する研究、山形大学紀要、9:573-707.
11. Germann, P.F., and Beven, K., 1985, Kinetic wave approximation to infiltration into soils with sorbing macropores, Water Resour. Res., 21:990-996
12. 取出伸夫、1990、粘土中の Ca^{2+} ・ Na^{+} のイオン交換と移動に関する研究、学位論文（東京大学）
13. Lai, S.H., et al., 1978, Multicomponent cation adsorption during convective-dispersive flow through soils, Soil Sci. Am. J., 42:240-243
14. Nakano, M., and Kawamura, K., 2005, Adsorption sites of Cs on smectite by EXAFS analyses and molecular dynamics simulations, Clay Sci., 12-Supplement 2:76-81
15. Elsheikh, M.A., Abidin, Z., Matsue, N., Menmi, T., 2008, Competitive adsorption of oxalate and phosphate on allophane at low concentration, Clay Sci., 13:181-188
16. 飯塚文男、佐久間敏雄、岡島秀夫、1981、畑土壌における水分と無機塩類の挙動（3）、日本土壌肥料学会会誌、49:76-81