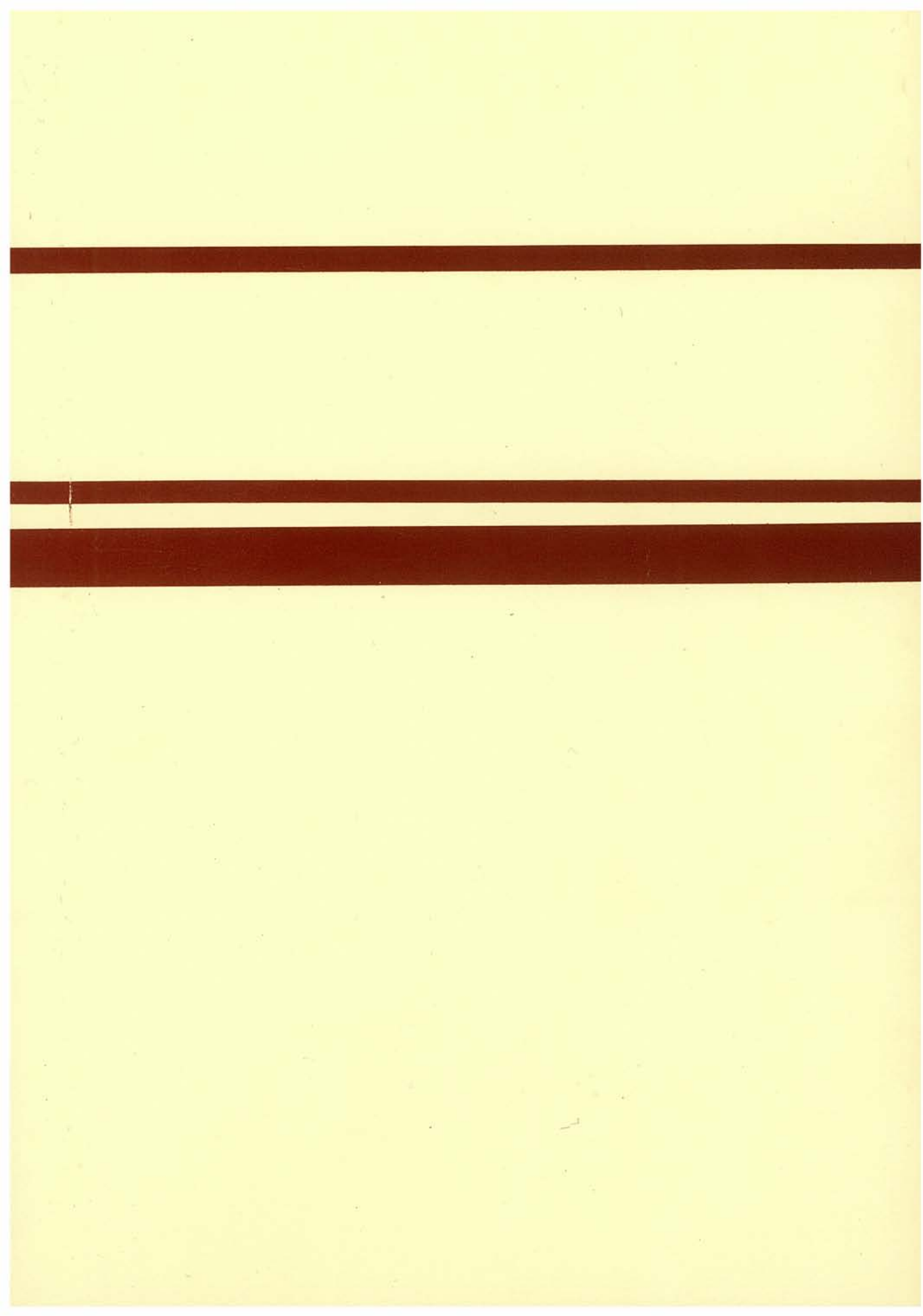


土壌と土壌溶液間の
放射性核種の分配係数

財団法人

原子力環境整備センター



環境パラメータ・シリーズ 2

土壤と土壤溶液間の
放射性核種の分配係数

ENVIRONMENTAL PARAMETERS SERIES 2

**Radionuclides Distribution Coefficient
of
Soil to Soil-solution**

Radioactive Waste Management Center

目 次

まえがき

1. 緒 言	1
2. 分配係数（土壌—土壌溶液）の定義	2
2-1 定義	2
2-2 参考文献	4
3. 分配係数を用いての放射性核種の地中における移動予測	5
3-1 はじめに	5
3-2 帯水層における放射性核種の移動	5
3-2-1 時間変換理論	5
3-2-2 解析解による地下水汚染の簡易評価法	9
3-3 通気層における放射性核種の移動	12
3-4 おわりに	14
3-5 参考文献	14
4. 分配係数の測定法およびその問題点	15
4-1 はじめに	15
4-2 バッチ法	15
4-3 カラム法	19
4-4 フィールドトレーサ法	22
4-5 自然環境中の安定同位元素分配係数からの推定法	25
4-6 おわりに	27
4-7 参考文献	28
5. 分配係数とその変動の影響因子	30
5-1 はじめに	30
5-2 分配係数値の物理的変動要因	33
5-2-1 粒度、接触時間、攪拌、温度	33
5-2-2 吸着損失	35
5-2-3 固・液量比	36
5-2-4 相分離（ろ過、遠心分離）	38
5-3 分配係数値の化学的変動要因	40
5-3-1 陽イオン交換容量（CEC）	40
5-3-2 pH	42
5-3-3 水溶液中濃度および等温吸着線（ITE）	44

5-3-4	酸化・還元状態と酸化物	47
5-3-5	有機物	47
5-4	地中挙動とKd	51
5-4-1	Kdによる挙動推定の問題点	51
5-4-2	バッチ法およびその他の方法によるKd値の比較	53
5-4-3	原位置で測定したKd (In situ Kd)	55
5-5	おわりに	57
5-6	参考文献	58
6.	分配係数 (Kd値) の一覧表	64
6-1	はじめに	64
6-2	土壌の分類	64
6-3	分配係数一覧	65
6-3-1	日本の土壌種別分配係数 (Kd) 表	66
6-3-2	諸外国の土壌種別分配係数 (Kd) 表	67
6-4	参考文献	68
付録資料 (1) 土壌-農作物経路における放射性核種移行に関する土壌の分配係数の利用について		
		78
1.	はじめに	78
2.	農耕地におけるRIの挙動および予測モデル	78
2-1	農耕地におけるRI挙動	78
2-2	農耕地におけるRI挙動の予測モデル	87
2-2-1	指数関数モデル	87
2-2-2	不均一分布モデル	87
3.	農作物への移行に関する土壌の分配係数の利用について	90
3-1	Kdを用いた農作物への移行予測モデル	90
3-2	Kd移行モデルの適用について	91
4.	おわりに	93
5.	参考文献	94
付録資料 (2) 元素記号表		
		95
環境パラメータ整備検討第一委員会名簿		
		96
あとがき		
		97

ま え が き

日本における原子力の歩みは、安全を先取りしながら進んで参りました。今後も引き続き、科学の粋を結集した安全確保が大切なことは申すまでもありません。

さて、人間が生活する環境における放射能を安全に管理するためには、放射線源から大気、陸圏、水圏を通じての人への放射性物質の移行を、計算モデルを用いて解明することが有効な手段となります。環境試料から検出が困難なほどに微量な放射能の水準を推定したり、先々の生活環境への影響を予測するためには、放射性物質の環境での挙動に関しての適切な移行モデルを用いて、原子力施設の立地条件等に適合した精度の高いパラメータを選定していくことが要求されます。

そのためには、環境科学における各分野の最新情報の収集と科学的な整理が必要となります。

したがって、当センターにおきましても、合理的かつ実際的なパラメータの検討に着手し、各専門科学者の協力によって検討を進めております。すなわち、放射性物質が人に移行する程度を予測するための多くのパラメータのうち、先ず土壌から農作物への移行係数を取りまとめ（環境パラメータ・シリーズ NO.1）、先に関係者の参考に供したところであります。科学者・技術者各位から、環境放射能安全評価モデルの精度向上に有効との激励に加えて、環境安全に関する一般の理解を深めるためにも役立つとの意見もいただきました。国際原子力機関（IAEA）からも照会状が届いております。

計算モデルの部分的検討にすぎない地道なデータ整理に関しての予想を上回る反響に答えて、ここに次のデータを報告する次第です。本書は、土壌と土壌溶液間における放射性核種の分配係数（ K_d ）をとりあげて、既往データの収集整理結果とともに、 K_d の変動要因に関する科学的検討成果を記載したものです。 K_d は種々の計算モデルに使用されますが、特に土壌中における放射性核種の移行速度を知るためへの利用が着目されます。つきましては、関係各位の参考に供していただきたく存じます。

終りに、本書の編集と執筆にあられた環境パラメータ整備検討第一委員会のメンバーを始め協力科学者各位に心より御礼を申し述べます。

1990年 5月

財団法人 原子力環境整備センター
理事長 福田 俊 雄

1. 緒 言

土壌と土壌溶液間における放射性核種の分配係数 (K_d) については、海外では多くの研究成果が報告されており、日本でも近頃とみに研究が盛んになり貴重なデータが提供されつつある。そこで、これまで発表されている K_d 値の中から、主として1980年以降に発表されたデータについて、日本と諸外国で測定された値を、核種別かつ土壌種別にまとめた。それは K_d 値は、元素の種類だけでなく土壌の種類によっても、かなり大きく変動するからである。

さらに K_d 値は、核種と土壌種だけではなく、その他の多くの因子により影響されることは勿論である。そこで、本書には、これら影響因子についての解説も掲載した。使用目的に適合する K_d データを選定するために、またデータの信頼性 (若しくは不確実性) 検討に供するためである。

環境における元素の移行に関しての評価にあたって、 K_d は色々に用いられている。本書には、放射性核種の土壌における移行速度を求める計算モデルに使用する K_d データを主眼としての検討成果を収録した。

なお、土壌から農作物への放射性核種の移行を知る目安としても、 K_d の活用がはかられている。しかし、現在の知識では、先に環境パラメータ・シリーズNo.1に示した移行係数の方が、農作物への移行を知るために実用的である。したがって、農作物への放射性核種の移行に関する K_d の関与については、本文中でなく付録として扱うこととした。

また、さらに詳しく専門的な検討をする際に便宜なように、全般にわたり引用文献を忠実に記録した次第である。

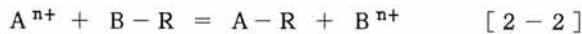
2. 分配係数(土壌-土壌溶液)の定義

2-1 定 義

放射性核種(以下、RIと記す)に関して、distribution coefficient土壌溶液中のRI濃度(C)と土壌中のRI濃度(q)とが平衡状態にある場合の両者の比が分配係数(Kd)と定義される。

$$Kd = q / C \quad [2-1]$$

土壌と土壌溶液とが作る系において、RIが土壌に吸着される機構がイオン交換反応であるとすれば、その反応式は[2-2]式で表される。(ここでは、簡略化のため、イオン価数の等しい場合を考える。)



ここに、n : A, Bイオンの価数

R : イオン交換能を有する固体(土壌)

イオンAⁿ⁺とBⁿ⁺との間の選択係数(交換平衡定数)K^{A_B}は、イオン交換反応の質量作用則により、次式で定められる。

$$K^{A_B} = \frac{[A-R][B^{n+}]}{[A^{n+}][B-R]} \quad [2-3]$$

ここに、[A-R]、[B-R] : 交換体内でのA, Bイオンのモル濃度

[Aⁿ⁺]、[Bⁿ⁺] : 溶液中でのA, Bイオンのモル濃度

注目するRI Aの分配係数K_{dA}は、[2-1]および[2-3]式により

$$K_{dA} = \frac{[A-R]}{[A^{n+}]} = K^{A_B} \cdot \frac{[B-R]}{[B^{n+}]} = K^{A_B} \cdot K_{dB} \quad [2-4]$$

ここに、K_{dB} : RI Aとのイオン交換反応にあずかる主要な共存イオンBの分配係数値

となる。

理論的には、RI Aとのイオン交換反応にあずかるイオンは、土壌水中に存在するすべて

のイオンとなるが、分配係数値 K_{dA} の大略の値を予測する場合には、高々数種類のイオン（例えば、カルシウムイオン (Ca^{2+})、マグネシウムイオン (Mg^{2+})、水素イオン (H^+) など) を考えれば十分である場合が多い¹⁾。

一方、土壌への物質の吸着機構は、イオン交換反応だけでは説明できないものもあり、実際の吸着現象から分配係数を定義する例も多い。土壌への物質の吸着反応式として良く用いられるものに、ラングミュアLangmuir式およびフロイドリッヒFreundlich式がある。ここでは、後者のフロイドリッヒ式を例にとり、その式を用いた分配係数の定義を述べる。

フロイドリッヒ式は、次式で表される。

$$q = a \cdot C^{1/n} \quad [2-5]$$

ここに、 a 、 n ：定数

この式はフロイドリッヒが実験的に導いたもので、土壌への物質の吸着は溶液中の濃度に依存することを示している。この吸着反応式は、他の吸着反応式と同様、あらゆる濃度範囲において成立するものではない。しかし、RIを対象とする場合は、その存在源より遠く離れた場所ではその安定同位体と同じ挙動をすると見なせるため、重金属汚染の場合と比べて、対象とする濃度範囲は、かなり狭い。このようなことから、土壌中におけるRIの吸着を表す式として [2-5] 式が有効であることが理解できる。

事実、いろいろなRIについて、どのような濃度において、[2-5] 式が成立するか調べた報告がいくつかあるが、一般的に、環境中の濃度の変動範囲内においては、[2-5] 式が成立する^{2,3)}と考えられる。問題は、 n の値である。すなわち、もし $1/n \approx 1$ であるならば、[2-5] 式は [2-1] 式と同じであり、

$$a = K_d \text{ (分配係数)}$$

となる。

これまでに、この $1/n$ の値について、いくつかの報告^{4,5)}では1.0に非常に近いことが示されている。しかし、あらゆる条件下で成立する訳ではないので、その対象とする核種で成立するかどうかをあらかじめ求めておく必要がある。その際、対象とする地域における土壌溶液中の主要な元素および対象核種の安定同位元素濃度変化を十分考慮する必要がある。

2-2 参考文献

- 1) 森澤真輔：「放射性廃棄物地中処分場の立地選定に関する工学的研究」、京都大学学位論文、33、1977.
- 2) 福井正美、桂山幸典：飽和砂層内におけるCsイオンおよび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第254号、37-48、1976.
- 3) 塚本正樹、大江俊昭：放射性核種の地中吸着機構 その1、原子力学会「昭和58年分科会」講演要旨集、257、1983.
- 4) 山本忠利、武部慎一、和達嘉樹：砂に対する ^{137}Cs と ^{85}Sr の吸着挙動と分配係数、Radioisotopes、29、373-376、1980.
- 5) 内田滋夫、鎌田 博：ストロンチウムの成層通気層土壌への吸着に関する研究、保健物理、22、179-187、1987.

(内田滋夫、山崎慎一)

3. 分配係数を用いての放射性核種の地中における移動予測

3-1 はじめに

核実験などによる放射性降下物や放射性廃棄物の陸地処分に係る線量評価を進めるにあたっては、先ず放射性核種（以下、RIと記す）の地中での移動経路、移動速度を把握する必要がある。本章では、地層中でのRI移動に関して、分配係数を用いることの工学的意味について解説する。なお、地層の空隙が地下水で飽和されているいわゆる滞水層と、不飽和のいわゆる通気層の2つに分類して解説する。

3-2 滞水層における放射性核種の移動

本節では、RIの地下水における挙動を表す基礎式を解析的に解き、分配係数をパラメータにして安全評価に適用した報告について記す。

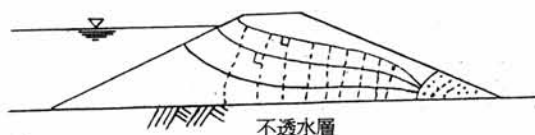
3-2-1 時間変換理論

井上⁽¹⁾は、

- (1) 地下水の流線網^{*注}は時間によらず一定である。
- (2) 地下水の拡散（分散）とこれに伴うRIの拡散（分散）とは等しい。

との仮定の基にRIの滞水層における物質収支式として次式を提案した。

*注： 流線網
土壤中の浸透水や地下水の流れを図解により定量化するために用いられるものであり、次の2種類の曲線により表される。
1) 流線とよばれる流れの方向に平行な線
2) 等ポテンシャル線とよばれる地下水位（または被圧地下水頭）の等しい点を結んでつくられる線
この2線は互いに直行する。（図参照）



———：流線， - - - - -：等ポテンシャル線

$$\frac{\delta}{\delta t} \left\{ c + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} = \frac{\delta}{\delta x} \left(D_x \frac{\delta c}{\delta x} \right) + \frac{\delta}{\delta y} \left(D_y \frac{\delta c}{\delta y} \right) +$$

$$\frac{\delta}{\delta z} \left(D_z \frac{\delta c}{\delta z} \right) - \frac{\delta}{\delta x} (V_x C) - \frac{\delta}{\delta y} (V_y C) - \frac{\delta}{\delta z} (V_z C)$$

[3 - 1]

- ここに、C : 地下水中のRI濃度
q : 土壌中のRI濃度
f : 地層の空隙率
ρ : 地層を構成する土壌の密度
D_x, D_y, D_z : RIの地下水中でx, y, z方向の拡散係数
V_x, V_y, V_z : 地下水のx, y, z方向の流速

この式は、単位体積の滞水層内でのRIの時間的変化の割合が、拡散項と水理学的輸送項によって与えられることを示したもので、RIの物理的崩壊は無視されている。井上は、地下水の流れは、一般に極めて遅いので、地下水中のRIと土壌中のRIとは常に平衡状態にあると考え、RIの土壌への吸着量を次式で評価し、

$$q = K_d \cdot C \quad (\text{ヘンリー型モデル}) \quad [3 - 2]$$

ここに、K_d: RIの土壌(固層)と地下水(液層)間の分配係数

さらに、この分配係数が、時間的に変化しないこと、およびRIの水中濃度などで変化しないことと考え [3 - 2] 式を [3 - 1] 式に代入し、次の時間に関する変数変換を施して、

$$t = \left\{ 1 + \frac{1-f}{f} \rho K_d \right\} T \quad [3 - 3]$$

ここに、T：地下水の移動速度

t：RIの移動速度

滞水層でのRI移動の支配方程式として、次式を導いた。

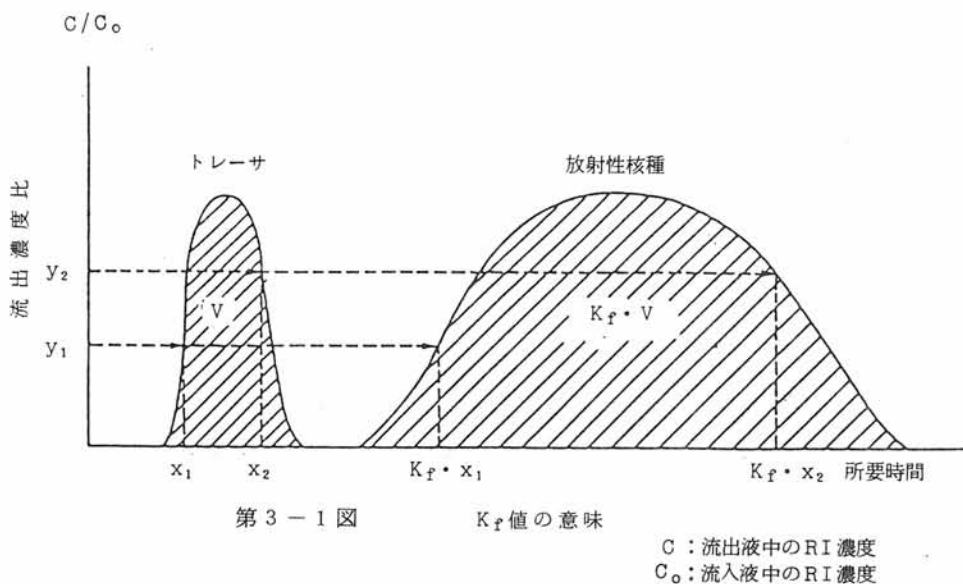
$$\frac{\delta C}{\delta T} = \frac{\delta}{\delta x} \left(D_x \frac{\delta C}{\delta x} \right) + \frac{\delta}{\delta y} \left(D_y \frac{\delta C}{\delta y} \right) + \frac{\delta}{\delta z} \left(D_z \frac{\delta C}{\delta z} \right) - \frac{\delta}{\delta x} (V_x C) - \frac{\delta}{\delta y} (V_y C) - \frac{\delta}{\delta z} (V_z C)$$

[3 - 4]

この式は、[3 - 1] 式～ [3 - 3] 式において $K_d = 0$ 即ち、RIが土壤に吸着されないと考えた場合の式と一致する。このことは、数学的には地下水そのものの移動を記述する基礎式がRIの移動を記述する基礎式と時間軸について相似であることを意味する。井上は、その新・旧時間の変化比 t/T を K_f 値と呼んでいる。

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho K_d \quad [3 - 5]$$

井上の理論は、特殊な場合を除き、解析的には解くことができない基礎式を解く代わりに、適当なトレーサー、例えば三重水素、色素などを用いて地下水そのものの挙動を把握し、その時間軸を [3 - 3] 式によって読み換えることにより、RIの挙動を予測する理論である。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ーを投入してその水理学的な輸送、拡散状態を知り、このうち時間にもみ K_f を乗じたものが対象とするRIの挙動を示すことになる (第 3 - 1 図)。



なお、上記の適応条件を厳密に満たす地下滞水層は現存しないが、これらの条件をほぼ満たす滞水層であれば本式を適応しての予測が可能と考えられる。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、適用できる範囲はさらに広がるものと思われる。ただし、岩の割れ目をRIを含んだ水が透過する場合などは、流れの様子が [3 - 1] 式と明らかに違うので用いることはできない。

3-2-2 解析解による地下水汚染の簡易評価法

福井ら²⁾は、パラメータが少なく、かつRIの特性である減衰および地質の不均質性などを考慮した条件を含めた数理モデルにより地下水RI濃度を評価する方法を提案した。

地層処分に際しては廃棄物を固化体として処分する方法が考えられるが、この計算モデルはRI溶液が連続注入された場合を想定したものである。すなわち、RI放出地点の地下水が一定濃度 C_0 となる条件を設定し、RIの減衰は地下水と混合され、地層を流動する地点から始まるものとして取り扱っている。この場合、地下水の間隙内平均流速を V 、分散係数を D とした時、崩壊定数 λ のRIの地下水中における流れの主軸方向の挙動を表す基礎式は次のとおりである。

$$\frac{\delta C}{\delta t} = D \frac{\delta^2 C}{\delta x^2} - V \frac{\delta C}{\delta x} - \frac{(1-p)\gamma}{p} \frac{\delta Q}{\delta t} \lambda C - \frac{(1-p)\gamma}{p} \lambda Q$$

[3-6]

ここで、 Q , C : 固、液相におけるRI濃度

t , x : 廃液注入開始後経過時間および注入地点からの距離

p , γ : 地層の間隙率および土粒子密度

D , V : 分散係数および間隙内地下水平均流速

λ : 崩壊定数

[3-6]式では分散および移流項とも主軸方向しか考慮していないが、これは評価上安全側の仮定である。

RIと土壌との吸着モデルに関しては、福井らは、適用範囲の広いヘンリー型^{*注}および非可逆吸着を対象とした一時反応式を複合したモデルを採用している。本節では、安全側の評価と考えられる[3-2式]で表せるヘンリー型吸着モデルについて検討する。

前述したような一定濃度を想定すれば、RI溶液の陸地処分の初期、境界条件は次のとおりである。

$$C=0 \quad x>0, \quad t=0$$

$$C=C_0 \quad x=0, \quad t>0$$

$$C=0 \quad x \rightarrow \infty, \quad t>0$$

この条件のもとに [3-2] 式を [3-6] 式に代入し、それをラプラス変換法を用いて解けば、任意の時間 t 、距離 x における地下水中のRI濃度は次式で表される。

$$C/C_0 = p(x, t) / 2 \quad [3-7]$$

$$p(x, t) = \exp \left\{ \frac{(U + \delta) x}{2 D'} \right\} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x + \delta t}{2 \sqrt{D' t}} \right\} \\ + \exp \left\{ \frac{(U - \delta) x}{2 D'} \right\} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x - \delta t}{2 \sqrt{D' t}} \right\}$$

ここで

$$\delta = \sqrt{4 D' \lambda + U^2}$$

$$\alpha' = p / (1 - p) \gamma$$

$$D' = D / (1 + K_1 / \alpha')$$

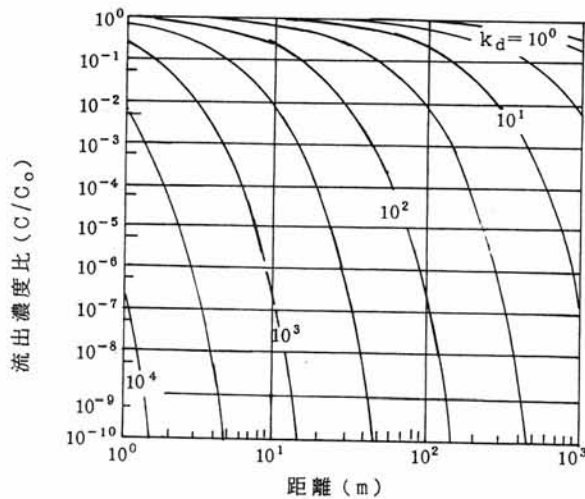
$$U = V / (1 + K_1 / \alpha')$$

[3-7] 式において $t \rightarrow \infty$ とした場合に誘導される [3-8] 式の定常解により求められる地下水中の濃度分布は、おもに分配係数 K_d と処分地点からの距離 x により決定される。

$$\frac{C}{C_0} = \exp \left\{ \frac{(U - \delta) x}{2 D'} \right\} \quad [3-8]$$

*注：ヘンリー型吸着式は、フレンドリッヒ型吸着式 $q = a C^{1/n}$ において $n = 1$ の場合である。(a = 定数, q = 土壌中の核種濃度, C = 溶液中の核種濃度) [第2章参照]

すなわち、[3-7]式においてRI溶液放出後の時間 t をパラメータとして得られる地下水中の濃度分布は $t \rightarrow \infty$ とすることにより1つの曲線(定常解)に漸近する。このような定常解は主として分配係数 K_d により変化するため K_d を $1 \sim 10^4 \text{ cm}^3/\text{g}$ と変化させた場合の ^{60}Co の地下水中濃度分布を第3-2図に掲げる。



第3-2図 地下水中の ^{60}Co 濃度におよぼす K_d 値の影響

$$V = 0.864 \text{ (m/日)}, \quad D/V = 1 \times 10^{-3} \text{ (m)}, \quad p = 0.42,$$

$$r = 2.62 \text{ (g/cm}^3\text{)}, \quad \lambda = 3.6 \times 10^{-4} \text{ (1/日)}$$

C : 流出液中のRI濃度

C_0 : 流入液中のRI濃度

この図によれば、 $K_d = 2000$ の場合、放出地点の濃度(C_0)が10桁以上小さくなる距離は10m未満であることが分かる。また、[3-8]式を他のパラメータについて整理することによって、より有用な公式が得られる。例えば、 K_d に関して変換すれば[3-9]式を得る。

$$K_d = \alpha' \frac{V}{\lambda} \left[\frac{D}{V} \left\{ \frac{\ln(C/C_0)}{x} \right\}^2 - \left\{ \frac{\ln(C/C_0)}{x} \right\} - \frac{\lambda}{V} \right] \quad [3-9]$$

[3-9] 式の右辺に含まれる α' ($=p/(1-p)\gamma$) および D/V 値は対象とする地層に対し、測定あるいは解析結果を基に固有の値として決定される。そして、右辺はRI溶液の放出地点から x の距離における敷地境界において、流入濃度 C_0 が C に低減されるための物理的に必要な条件値であることを示しており、この場合のパラメータは V/λ である。したがって、[3-9] 式はRI溶液の放出地点の地下水濃度 C_0 を距離 x において目的とする濃度 C に低減させるために必要な地層の物理、化学的な条件を判定するための簡便な評価式として用いることが可能である。

次に [3-8] 式を距離 x に関して変換すれば [3-10] 式を得る。

$$x = \frac{U}{2\lambda} \left(\sqrt{4 \frac{D}{V} \cdot \frac{\lambda}{U} + 1} + 1 \right) \ln \frac{C_0}{C} \quad [3-10]$$

[3-10] 式は対象とするRIの半減期が長く、 $4D\lambda/VU$ が1に比べて十分に小さい場合は次式のようにさらに簡単に表される。

$$x = U/\lambda \cdot \ln(C_0/C) \quad [3-11]$$

[3-11] 式は、RI溶液を連続的に注入してもそれ以上汚染圏が拡大しない範囲を簡易に評価できる。

上述した一連の解析においては、 V 、 p 、 γ など物理的条件によって決定される固有のパラメータおよび K_d などの化学的パラメータを一定とみなし、均質な地層を対象としたものである。

3-3 通気層における放射性核種の移動

通気層におけるRI移動に関する研究は、滞水層における研究に比べ少なからず遅れている。その主な原因は、通気層におけるRI移動の起動力となる水の流れは、不飽和浸透流を主体とするきわめて複雑な現象であるために十分にその流動機構が解明されていないこと、およびRI移動における遅延効果の根幹をなす土壌へのRI吸着現象における土中気相の関わり等が明らかにされていない点等にある。しかし、地中のRIと人間の生活活動による接触が、地下浅層を通じて起こる可能性が高いことを考慮すると、浅層地下水面と地表面との間に存在する通気層での核種移動の検討が重要となってくる。

最近の通気層におけるRI移動のモデル³⁻⁵⁾は、流れの成分を単成分から多成分へ細分化

することより精密となり現象をより正確にシュミレートできるようになった。しかしながら、その反面、モデルが数多くのパラメータを含むことによってその物理的な意味がきわめて曖昧となる傾向にある。安全評価においては、RIの移行を評価する複数の環境媒体サブモデルが組み合わされて全体的な評価が実施されるが、その際各々のモデル間の精粗の度合について統一を計る必要がある。したがって、地中移行のモデルのみを極度に詳細複雑化しても、被曝線量評価までを含めた最終結果の精度を考えると、あまり意味のあることではない。これらの点を考慮すると、地中でのRI移動モデルとしては、できる限り簡単なことが望ましい⁶⁾。ここでは、滞水層における井上の理論を井上、赤木が通気層へ拡張した予測モデルについて記す。

井上、赤木⁷⁾は、滞水層における井上理論を通気層へ拡張するために、前記3-2-1における(1)と(2)の仮定に加えて新たに「(3) 地層間隙の地下水による飽和度は時間的・空間的に一定であると見なせる」との仮定をした。

この仮定は、我国のように比較的湿潤な地域で均質な地層条件の下では、土壤水分は降雨時であってもほぼ一定であるという結果が数多くのフィールド観測によって認められているので、妥当な仮定であると思える。この仮定の下にRIの地中での物質収支式を記述し、通気層においては滞水層におけるKf値、式[3-5]に代わる時間変換として次式で定められるKfu、すなわち通気層におけるKf値を用いればよいことを示した。

$$Kfu = 1 + \frac{1-f}{fs} \rho Kdu \quad [3-12]$$

ここに、sは地層間隙体積中に占める土壤水分の体積の容積比率で表される地層間隙の飽和度であり、Kdu値は通気層におけるRIの分配係数である。

注. 実用上は通気層におけるKduと滞水層におけるKdが等しいことを暗黙の内に仮定する例が多い。
したがって、滞水層の場合と同じように、土壤に吸着されないRI(Kdu=0)の挙動を把握すれば、その時間を[3-12]式によりKfu倍すれば、土壤に吸着するRIの挙動を推定することができる。

3-4 おわりに

RIの地中での移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。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、実地の滞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、実際の地下滞水層に適応させようとする、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、分配係数を主要パラメータとするKf値を用いる方法、または、吸着反応式として簡単なヘンリー型を採用し、その吸着定数として分配係数を用い、解析解を得る方法は、適応範囲を誤らざれば、地層中でのRIの挙動を推定するのに有力な方法であろう。しかしながら、分配係数は他の物理的パラメータに比べて、核種を取りまく種々の環境因子や測定条件・方法などによりその値が変動し、予測結果に与える影響が大きいので、後章に記すKd変動要因について十分な配慮が必要である。

3-5 参考文献

- 1) 井上頼輝 : 放射性廃棄物の地中処分に関する基礎研究、京都大学学位論文、1970.
- 2) 福井正美、内田滋夫、桂山幸典 : 放射性廃棄物処分による地下滞水層汚染の簡易評価法、保健物理 16, 11-21, 1981.
- 3) Genuchten M. T. V. and Wierenga P. J. : "Mass transfer studies in sorbing porous media I. analytical solutions", Soil Sci. Soc. Am. J., 40, 473-480, 1976.
- 4) 森澤眞輔、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, 9-22, 1986.
- 5) 堀内将人、井上頼輝、颯田尚哉 : "クロムの不飽和土壌カラム内移動の解析" 土木学会第41回年次学術講演会(II)、745-746, 1986.
- 6) 馬原保典 : 放射性廃棄物の浅層陸地処分のための基礎的研究、京都大学学位論文、1988.
- 7) 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)、633-634, 1971.
- 8) 西牧研壮、森澤眞輔 : 放射性核種の地中での挙動—とくに遅延係数について—、保健物理 21, 191-198, 1986.

(内田滋夫、馬原保典)

4. 分配係数の測定法およびその問題点

4-1 はじめに

Kd の測定法には大別して室内試験による方法とフィールド試験・観測による方法がある。室内試験による方法はバッチ法とカラム法とに区分され、フィールド試験・観測による方法はフィールドトレーサ法と自然環境中の安定同位元素からの推定法とに区分される。以下にそれらの測定方法および問題点を記述する。

4-2 バッチ法

バッチ法は一定量の被吸着物質を含む溶液と土壌とを混合し、固液接触を十分に保った後に固体と液体とに分離し、液相中の被吸着物質濃度変化から固相への吸着量を算定する方法である。吸着量およびKdはそれぞれ次式で表される。

$$q = \frac{(C_o - C_e) V}{W} \quad [4-1]$$

ここに、Co：被吸着物質の初期濃度 (mg/l)

Ce：被吸着物質の平衡濃度 (mg/l)

V：溶液体積 (ml)

W：吸着剤(土壌)添加量 (g)

q：固相濃度 (mg/g)

$$Kd = \frac{q}{C_e} = \left(\frac{C_o}{C_e} - 1 \right) \frac{V}{W} \quad [4-2]$$

ここに、Kd：分配係数 (ml/g)

バッチ試験の検討事項を第4-1表に整理する。被吸着物質を含む溶液の作成段階では、被吸着物質濃度をどれくらいにするか、共存物質を何にして、どれくらいの濃度にするかを検討する必要がある。またこれに土壌を添加する段階では、固液比をどれくらいにするかを検討する必要がある。土壌添加量が小さい場合は、その添加した土壌が代表土壌としてふさわしいかが問題となり、逆に土壌添加量が大きい場合は十分な固液接触が確保され

るかが問題となる。一般には固液重量比で0.001~0.1程度¹⁾が採用されている。

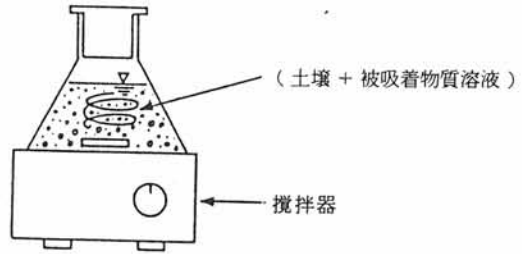
第4-1表 バッチ試験における実験ステップとその検討事項

実験ステップ	検討項目
被吸着物質を含む 溶液の作成	・被吸着物質濃度 ・共存物質とその濃度
土 壌 添 加	・固液比
固 液 接 触	・固液接触方法 ・固液接触時間
固 液 分 離	・固液分離方法

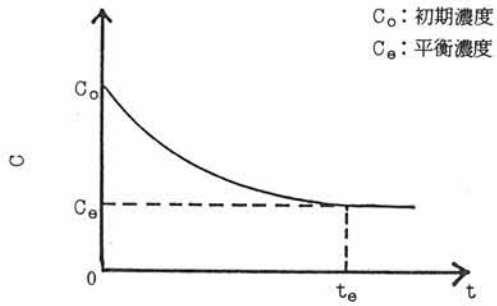
固液接触操作では、固液接触方法をどうするか、接触時間をどう設定するかが重要である。固液接触方法には、マグネチックスターラーによる方法および振とう器（レシプロ式、旋回式がある）による方法がある。マグネチックスターラーによる方法の模式図を第4-1図に示す。どちらの方法に対しても土壌粒子の破壊、摩耗による有効吸着表面積の増加を防止し、さらにマグネチックスターラーによる方法では、回転子の摩耗も防止する必要がある。そのため、極端に激しい攪拌あるいは振とうは避けなければならない。場合によっては、攪拌操作を行わない実験も必要である。固液接触時間は、固相-液相間の吸着反応が平衡に達するまで必要である。第4-2図に示すように、通常経過時間とともに被吸着物質の液相濃度が減少する。土壌による吸着反応の主要機構であるイオン交換反応は、土壌粒子内での拡散²⁾や内部吸着速度¹⁾³⁾を考慮する以外は通常瞬時に平衡に達するため、第4-2図中の t_e は非常に小さい。しかし、従来の実験では十分な吸着平衡を得るために数十分から1週間程度の固液接触時間を設定している。

固液分離方法には、遠心分離、メンブランフィルター濾過、限外濾過、膜分離等がある。被吸着物質がコロイド態を形成する場合⁴⁾⁵⁾には、分離方法は K_d 値に影響する。すなわち、コロイド態として存在する成分が液相成分に相当するか固相成分に相当するかにより相違を生じる。濾紙の孔径が小さくなるほど K_d は大きくなるので、目的に応じて固液分離法を使い分ける必要がある。

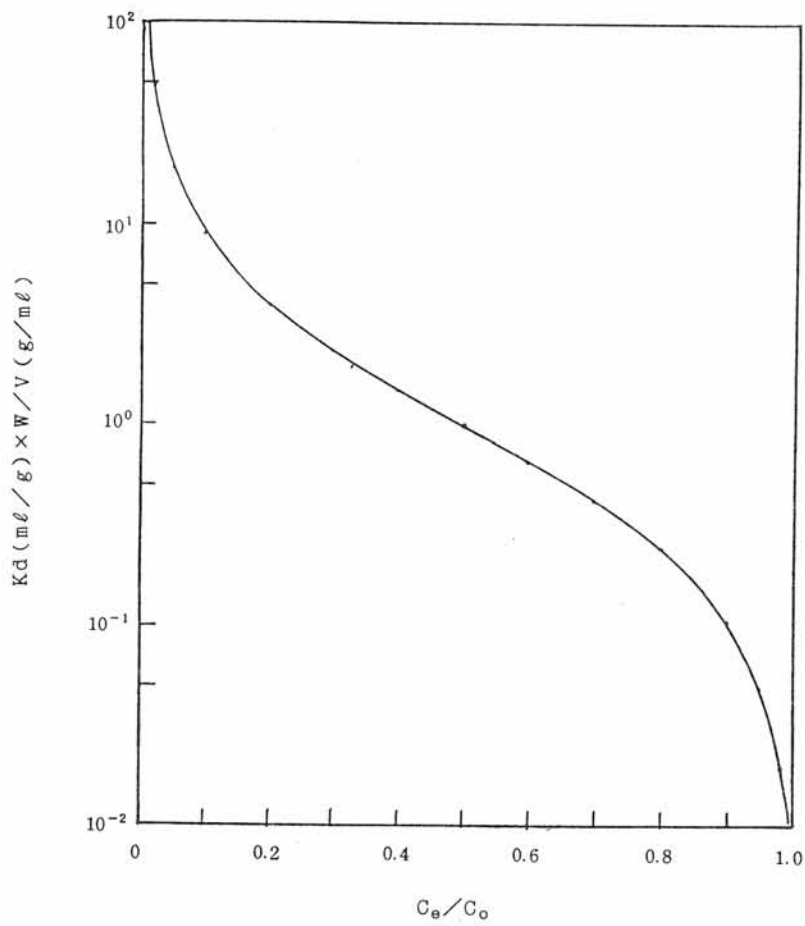
第4-3図は平衡濃度(C_e)と初期濃度(C_o)との比によって K_d がどのように変化するかを示した図である。 $C_e/C_o < 0.1$ および $C_e/C_o > 0.9$ なる領域では K_d 値が急激に変化する。精度のよい K_d を求めるためには、このような結果とならないような固液比あるいは初期濃度条件を設定する必要がある⁶⁾。



第 4 - 1 図 バッチ試験概要



第 4 - 2 図 バッチ試験における被吸着物質液相濃度の経時変化



第 4 - 3 図 分配係数 Kd と相対濃度 C_e/C_0 との関係

4-3 カラム法

カラム法は、円筒カラムに土壌試料を充填し、一端から溶液を流入させ、他端から流出する溶液中の被吸着物質濃度を、あるいはカラム途中に多孔質の採水器を埋設してそこを減圧することによって抽出した土中水の被吸着物質濃度を経時的に測定する方法で、フィールドの状況のある程度模擬できる簡便な方法である。

第4-2表 カラム試験における実験ステップとその検討事項

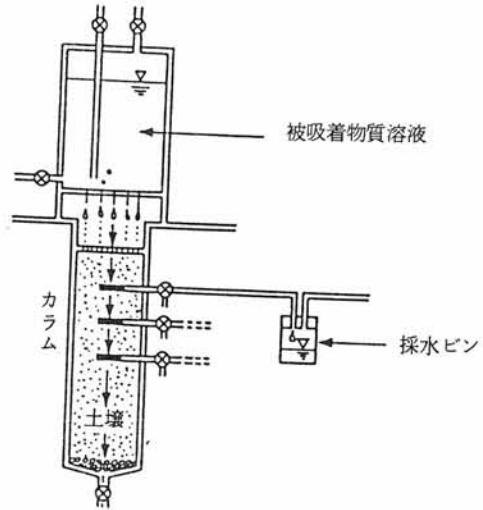
実験ステップ	検討項目
被吸着物質を含む 溶液の作成 カラムへの土壌充填	<ul style="list-style-type: none">・被吸着物質濃度・共存物質とその濃度・カラムサイズ・充填土壌密度・攪乱/未攪乱土壌
固液接触 (カラムへの通水)	<ul style="list-style-type: none">・飽和/不飽和・流速・通水方法
流出水・土中水 の採取	<ul style="list-style-type: none">・採取位置・採取頻度

カラム試験の検討事項を第4-2表に整理する。被吸着物質を含む溶液の作成段階では検討事項はバッチ法と同一である。カラムへの土壌充填時には、カラムサイズをどれくらいにするか、充填する土壌は攪乱か未攪乱かを定めることとなる。一般に用いられているカラムサイズとして、内径数十mm、高さ数cm程度のものから内径数十cm、高さ数mに及ぶものまであり、目的に応じて使い分けられている。すなわち、小カラム（内径数十mm、高さ数十cm程度）試験⁷⁾は、バッチ法とカラム法とを直接比較できるようなデータを取得したり、吸着のメカニズムを追及する目的で行われていることが多いが、大カラム（内径数十cm、高さ数m程度）試験⁸⁾は、実フィールドにできるだけ近い土壌環境条件を模擬し、フィールドで得られるであろう結果を室内で再現させるために行われている。場合によっては、円筒形のものでなく滯水層を模擬した矩形の土壌槽を用いることもある^{9) 10)}。

固液接触操作では、充填土壌層を飽和にするか、不飽和にするか、また通水方法はどうか（散水するか、ポンプによって圧入するか）、その際の流速はどれくらいにするかを検討する必要がある。通水速度は、フィールドと同様の流速となるように設定することが好ましいが、一般に地下水流速は非常に小さいので、通常の散水装置やチューブポンプ

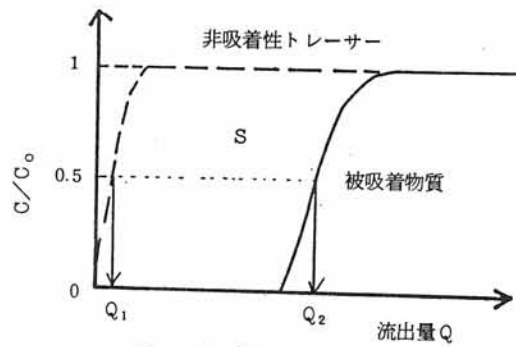
による超微流速の制御は困難である。

第4-4図はカラム法の一例を示す¹¹⁾。また、その結果得られる破過曲線の例を第4-5図に示す。第4-5図を用いてKdを見積もる場合次の3通りの方法がある。



フラクシオンコレクターへ

第4-4図 カラム試験概要¹³⁾



$$R_f = Q_2 / Q_1$$

$$\text{あるいは } K_d = \frac{S}{W \cdot C_0}$$

第4-5図 カラム試験で得られる
破過曲線からの分配係数算定法

- ① C (流出液中RI濃度) / C_0 (流入液中RI濃度) = 0.5に相当する非吸着性トレーサおよび被吸着物質の破過曲線の流出量を求め、遅延係数 R_f を算出する。 R_f は次式によって K_d に換算できる。

$$R_f = 1 + \frac{\rho_b}{\theta} K_d \quad [4-3]$$

ここに、 ρ_b : 土壤充填密度 (g/cm³)

θ : 体積含水率 (ml/cm³)

- ② 非吸着性トレーサの破過曲線と被吸着物質の破過曲線との間に囲まれる面積 (土壤への全吸着量に相当する) を求め、この値を土壤充填重量、さらに流入濃度で除する。
すなわち

$$K_d = \frac{S}{W \cdot C_0} \quad [4-4]$$

ここに、 S : 非吸着性トレーサの破過曲線と被吸着物質の破過曲線との間に囲まれる面積 (mg)

W : 土壤充填量 (g)

C_0 : 被吸着物質の流入濃度 (mg/l)

- ③ 次式で示される一次元移流拡散式を解き、 K_d および分散係数 D をカーブフィッティングから求める。

$$(\theta + \rho_b K_d) \frac{\delta c}{\delta t} + V \frac{\delta c}{\delta x} = \theta D \frac{\delta^2 c}{\delta x^2} \quad [4-5]$$

ここに、 V : 地下水流速 (cm/sec)

上式の初期および境界条件は以下のとおりである。

$$C(x, 0) = 0$$

$$C(0, t) = C_0$$

$$\left. \frac{\delta c}{\delta x} \right|_{x=L} = 0$$

ここに、L：土壤充填長（cm）

上記条件のうち第3番目の式は、カラム途中から土中水を採取し、流出端までの距離が十分に確保できる場合、次式を用いることができる。

$$C(\infty, t) = 0$$

この場合、比較的簡単な解析解が存在する¹²⁾。また、[4-5]式に減衰項を入れた場合も解析解¹³⁾が得られている。①②の方法では土壤と反応しない非吸着性トレーサの破過曲線を得る必要があり、③の方法では数値解析をする必要がある。破過曲線がシグモイド形とならない場合には、①②および③の方法はそのまま適用できないため、複数のKdを求めるなど別の算定法が必要である。

4-4 フィールドトレーサ法

フィールドトレーサ法によるKd測定法は、4-3で記述したカラム法と基本的に同一であるが、地下水の流動場が人工的に規定されていない点異なる。フィールドトレーサ法には、人工トレーサによる方法とフォールアウトを利用する方法がある。

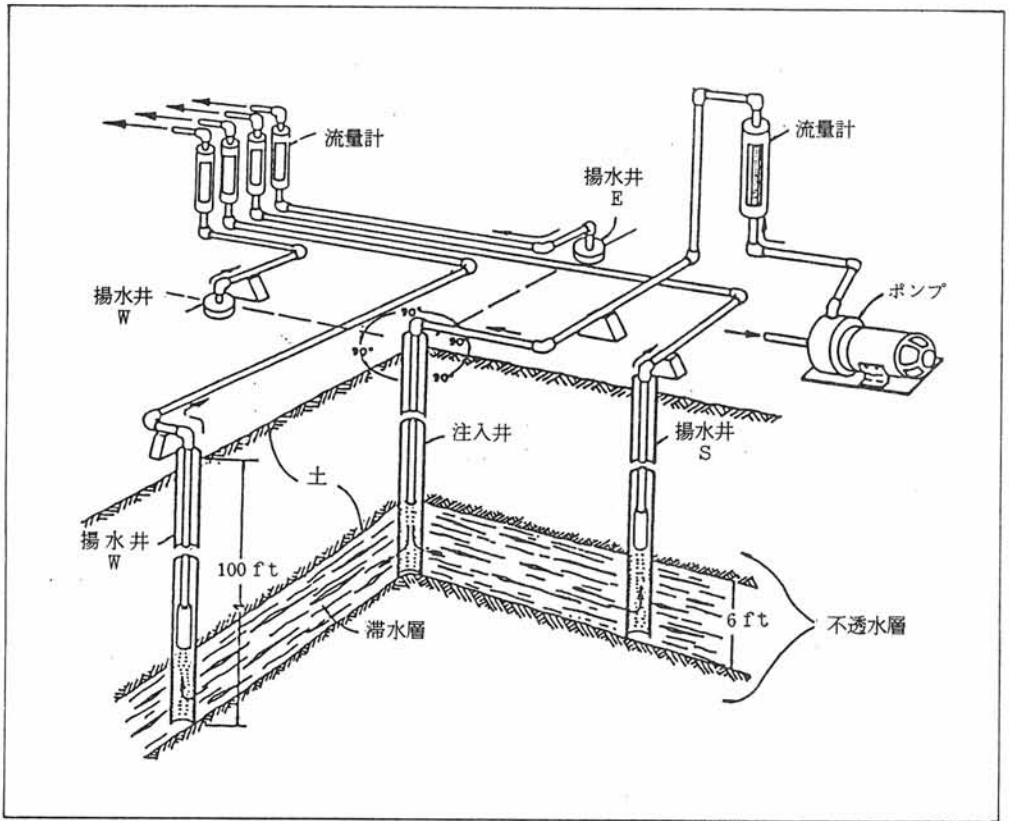
- ① 人工トレーサ法は、人工的にトレーサを自然環境中の不飽和土壤あるいは地下水中に投入し、トレーサの環境中での移行挙動を、土壤あるいは地下水試料を定期的に採取しての分析測定データによって追跡する方法である。
- ② フォールアウト利用法は、大気圏内の核爆発実験によって放出された核分裂生成物をトレーサとし、主に地表面から鉛直下方向の不飽和層中の移行を、未攪乱の土壤を採取し分析測定することによって追跡する方法である。

これらの方法は、人為的な要因に左右されないような条件下で実験・観測を行うことができる利点を有するが、バッチ法、カラム法と比較すると実験費用がかさみ、また実験期間も長期に及ぶ欠点あげられる。

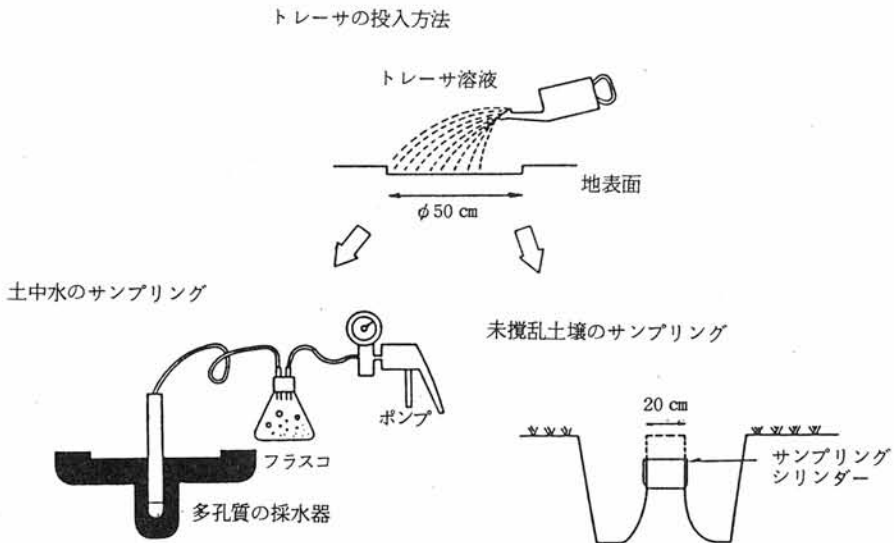
人工トレーサ法による方法のうち、トレーサを滞水層中に注入し、滞水層中移行を追跡する試験模式図を第4-6図¹⁴⁾に、トレーサを地表面に散布し、不飽和層中の降下浸透を追跡する試験模式図を第4-7図¹⁵⁾に示したが、国内においてRIをトレーサとして用いることは現在は困難であるため、それを模擬した安定同位元素をトレーサとして使用する方

法によることとなる。しかし、比較的広範囲におよぶフィールドにおいてトレーサを追跡する必要があるため、たとえ、放射化分析によって微量でも検出可能なアクチバブルトレーサを使用したとしても検出が困難なので、使用トレーサの投入濃度は高濃度になってしまう。このような方法で測定されたKdはトレーサ自身の濃度依存性、共存物質濃度依存性を明確にする必要がある¹⁵⁾。

フォールアウトを利用した例としては、馬原らが長崎で実施した1945年8月9日のプルトニウム型原爆を起源とするプルトニウム(Pu)、セシウム(Cs)およびストロンチウム(Sr)の不飽和土壌層¹⁶⁾¹⁷⁾や貯水池底泥中の濃度分布測定¹⁸⁾の研究はローカル・フォールアウトの利用例としてあげられるが、一般には大気圏内核爆発実験に由来するトリチウム¹⁹⁾²⁰⁾およびストロンチウム²¹⁾等のグローバル・フォールアウトを対象に不飽和土壌層中の濃度分布を測定した研究が多い。馬原らの研究の場合は存在する核種の量が把握されているが、グローバル・フォールアウト核種からKdを測定する場合には、核種の地表面降下量の経時変化等のデータに不確定な要素が多い。また、この方法を適用できる地質条件として、地下水位が深く不飽和層が厚いことが必要である。滞水層にまで適用した例は山形県における扇状地での観測例²²⁾を除いてほとんどない。ただし往時には、地下水流速測定のためにナトリウム-24(²⁴Na)やヨウ素-131(¹³¹I)をトレーサとして利用したアイソトープ流速計²³⁾を現場に適用してのフィールド実験が行われている。



第 4 - 6 図 滞水層フィールド試験概要 15)



第 4 - 7 図 通気層フィールド試験概要 16)

4-5 自然環境中の安定同位元素分配係数からの推定法²⁴⁾

一般に天然における元素の存在比は、極めて恒常的であって変動が少ない。揮発性で移動しやすく、化学的に変化しやすい軽元素ほどその存在比は変動しやすいものの、水素(H)で数%、リチウム(Li)、ホウ素(B)、炭素(C)、窒素(N)、酸素(O)、ケイ素(Si)、硫黄(S)などでは0.1~1%程度である²⁵⁾。このことは、液相だけでなく、固相に対しても成立することが確認された²⁴⁾。このことから、ある土壌・地下水系あるいは岩盤・地下水系においてもバックグラウンドとして存在する元素の固液相濃度比は一定であると判断される。この系にバックグラウンド濃度と比較して十分に低い濃度のRIが流入した場合、RIの固液相濃度比は、同位体交換反応等を通して、RI流入前の安定同位元素の固液相濃度比と一致すると考えられる。すなわち、バックグラウンド安定同位元素の分配係数をそのままRIの分配係数として適用できることが期待される。第4-3表は、不飽和ローム土壌とその土中水に対して安定SrおよびSr-90濃度を測定し、それぞれのKdを比較したものである。この表からストロンチウムに対してはKd値が比較的良好に一致することがわかる。また、第4-8図は地下水とその帯水層材料を同時に採取し、それをRIを用いたバッチ試験に供し、その結果測定されたRIのKd値と元々それら試料に含まれる安定同位元素濃度の測定値から求めたKd値と比較した図である。RIのKdはバッチ試験の実験回数を多くしたため分布範囲が広がったが、安定同位元素が極低濃度であるCsを除いて、RIのKdと安定同位元素のKdとが比較的良好に一致しているとみられる。この方法を確立していくために、今後ますます検証データを蓄積していく必要があるが、誘導結合プラズマ質量分析器(ICP-MS)等を用いて環境中の極低濃度の元素が精度よく測定されると、Kd測定法の有望な方法の一つになると考えられる。

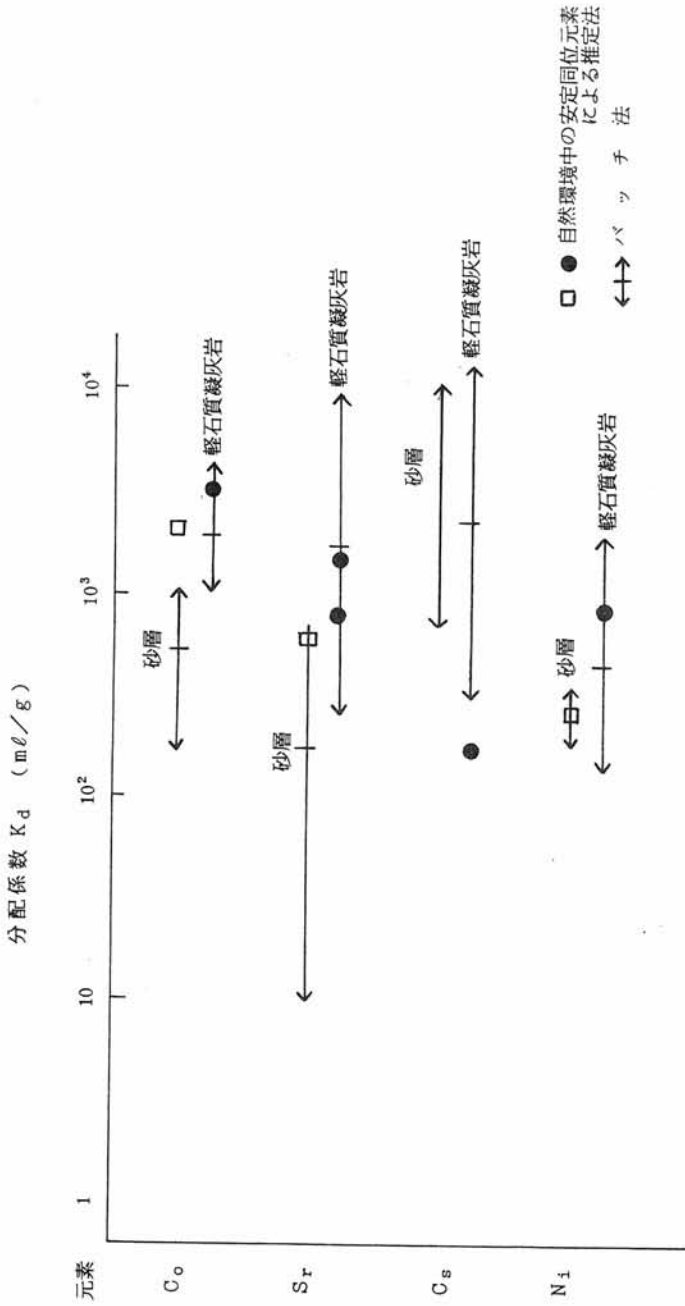
第4-3表 不飽和ローム土-土中水系の
放射性⁹⁰Srおよび安定Sr分配係数の比較

核種	液相濃度	固相濃度	分配係数(ml/g)
⁹⁰ Sr	0.026±0.004pCi/l*1	12.2±1.1pCi/Kg*1	470±80
安定Sr	56μg/l	35μg/l*2	630
		41μg/l*3	730

*1 科技庁放射能測定法シリーズ2, 放射性ストロンチウム分析法による

*2 1NCH₃COONH₄抽出による

*3 *1と同様の前処理による(発煙硝酸法)



第 4 - 8 図 バッチ法および自然環境中の安定同位元素からの推定法による分配係数の比較 (原図を一部修正)

4-6 おわりに

前記した各Kd 測定法の長所および短所をまとめると第4-4表のようになる。どの方法をとっても一長一短があり、今後とも各測定法の信頼性を高めるための努力は必要であるが、現時点では応用する目的に応じてKd 測定方法を選択する必要があるだろう。

第4-4表 各種分配係数測定法の比較

方 法	長 所	短 所
バッチ法	簡便である。 各パラメータの影響を把握するのが容易。	実験条件の設定が難しい。 実際のフィールド条件と異なる。
カラム法	移流項を伴う実験ではもっとも簡便である。	実験方法が多少煩雑である。
フィールドトレーサ法	実際のフィールド条件での試験・観測ができる。 長期に及ぶ挙動を観測できる	実験費用が莫大となる。 実験期間が長期に及ぶ。(速やかに成果を得がたい。) 人工トレーサ法では、天然状態より高濃度のトレーサを使用することとなり、それが Kd値へ影響を及ぼすことがある。 フォールアウト利用法では、降下した核種の存在量やその経時変化が不確実になり勝ちである。
自然環境中の安定同位元素からの推定法	実際の現場データである。 トレーサを使用する必要がない。 安定同位元素の分析以外は簡便である。 核種の吸着機構に左右されない。	極低濃度の安定同位元素の分析測定が必要であり、測定不可能の元素もある。 固相濃度の測定法が未確立である。 長期間の後に平衡に達した元素と、新たに導入された元素とが、同一行動をとるかの保証が必要。

4-7 参考文献

- 1) 例えば福井正美, 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第254号, 37~48, 1976.
- 2) 大江俊昭: 岩石中へのストロンチウムおよびセシウムイオンの吸着速度, 電中研研究報告 283102, 1984.
- 3) 加藤尚武, 中道孝一, 田坂広志, 浅野闘一: 土壌環境における多成分系破過曲線の推算, 原子力学会誌, **25**, 577~582, 1983.
- 4) 井上頼輝, 森澤真輔, 宮武法善: 非イオン状Y-90の地中移動, 原子力学会誌, **18**, 445~451, 1976.
- 5) Ohnuki, T. : Migration of radionuclides (^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs) in alkaline solution (pH12) through sandy soil layer, J. Nucl. Sci. Technol., **23**, 643~649, 1986.
- 6) Relyea, J. F., Serne, R. J., and Rai, D. : Methods for determining radionuclide retardation factors : Status Report, PNL-99352, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1980.
- 7) 例えば五十嵐敏文, 河西基, 馬原保典: バッチ試験およびカラム試験による砂の核種吸着特性, 電中研研究報告 U87003, 1987.
- 8) 山本忠利, 大塚芳郎, 小川弘道, 和達嘉樹: 未攪乱通気層土壌試料を用いた放射性核種移動試験, 原子力学会誌, **30**, 942~949, 1988.
- 9) 大貫敏彦, 大塚芳郎, 小川弘道他: 滞水砂層中における放射性核種 (^{60}Co , ^{85}Sr および ^{137}Cs) の移動, 保健物理, **19**, 13~18, 1984.
- 10) Ohtsuka, Y., Takebe, S., Yamamoto, T., and Wadachi, Y. : Migration behavior of radionuclides (^{60}Co , ^{85}Sr and ^{137}Cs) in aquifer, J. Nucl. Sci. Technol., **25**, 165~168, 1988.
- 11) 河西基: 確率論的手法による放射性核種地中移行解析, 電中研研究報告 U87078, 1988.
- 12) Ogata, A., and Banks, R. B. : A solution of the differential equation of longitudinal dispersion of porous media, U.S. Geol. Surv. Prof. Pap., 411-A 1961.
- 13) 福井正美, 内田滋夫, 桂山幸典: 放射性廃棄物処分による地下滞水層汚染の簡易評価法, 保健物理, **16**, 11~12, 1981.
- 14) 井上頼輝: 放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究, 京都大学工学部学位論文, 1970.

- 15) 五十嵐敏文, 馬原保典, 河西基他: 不飽和ローム層中の物質移行に関するフィールド試験, 電中研研究報告 U87087, 1988.
- 16) Mahara, Y., and Miyahara, S. : Residual plutonium migration in soil of Nagasaki, J. Geophys. Res., **89**, No. B9, 7931~7936, 1984.
- 17) 馬原保典: フォールアウトを利用したストロンチウム-90とセシウム-137の地中移動速度の検討, 電中研研究報告 385027, 1986.
- 18) Mahara, Y., Kudo, A., Kauri, T. et al. : Mobile Pu in reservoir sediments of Nagasaki, Japan, Health Physics, **54**, 107~111, 1988.
- 19) Shimada, J. : Study of soil water movement in the Kanto loam formation using environmental Tritium as a tracer, A Dissertation Doctor of Science, the University of Tsukuba, 1982.
- 20) 木村重彦: 水に含まれる放射性同位体による地中水の挙動解析, 農業土木試験報告, **25**, 1~91, 1986.
- 21) 森澤真輔, 井上頼輝, 鎌田博, 内田滋夫: フォールアウトSr-90の成層通気層内移動とその分布予測, 原子力学会誌, **25**, 1020~1034, 1983.
- 22) 寺崎恒信他: ^{131}I および fallout cesium をトレーサとした地下水の流動の測定, Radioisotopes, **11**, 386~387, 1962.
- 23) 落合敏郎: 放射能式地下水探査法, 昭晃堂, 203~208, 1965.
- 24) 五十嵐敏文, 馬原保典, 駒田広也: 自然環境中の安定核種による放射性核種分配係数推定法, 電中研研究報告 U87063, 1988.
- 25) 本田雅健: 元素, 三省堂, 26, 1977.

(五十嵐敏文)

5. 分配係数とその変動の影響因子

5-1 はじめに

放射性核種に限らず、元素が環境中を拡散・移動する場合、その多くは気・液・固各相の異なる2相間に分配され、各相間の濃度比が濃縮係数(CF)や分配係数(Kd)などと称されている。

これらの測定例は多いが、測定法が統一されていない上に、測定結果が多くの因子に影響されているため、データの相互の比較が困難な状況にある。

欧米では、多くの機関による共同測定も行われているが、測定方法の違いにより、同じ固・液試料を用いても第5-1, 2, 3表²⁾に示すように、得られたCs、SrおよびPuに対するKd値は変動している。

第5-1表 Csに対するkdの比較測定結果(岩石: 20~50メッシュ、7日間)²⁾

- 実験1. 石灰岩およびその接触地下水
- 実験2. 石灰岩およびWIPPサイト高塩分地下水
- 実験3. 玄武岩およびその接触地下水
- 実験4. 玄武岩およびWIPPサイト高塩分地下水

Csに対するKd値(ml/g ± 標準偏差)

研究所	実験			
	1	2	3	4
ANL (a)	65 ± 2	0.14 ± 0.01	401 ± 21	1.48 ± 0.05
AECL (e)	1.3 ± 0.4	0.2 ± 0.4 (f)	31 ± 2	1.4 ± 0.4
LASL (b)	88 ± 1	-0.12 ± 0.12 (f)	265 ± 4	0.6 ± 0.2
LBL (e)	49 ± 5	0.16 ± 0.9	296 ± 10	1.52 ± 0.04
LL (a)	60 ± 30	0.5 ± 0.5 (f)	290 ± 70	1.6 ± 0.1
ORNL-I (e)	227 ± 14	0.6 ± 0.3	380 ± 5	2.2 ± 0.2
ORNL-II (c)	663 ± 61	0.1 ± 0.3 (f)	453 ± 12	1.79 ± 0.01
PNL (b)	880 ± 160	3.3 ± 0.1	380 ± 70	4.6 ± 0.3
RHO (e)	6.8 ± 0.6	0.04 ± 0.03 (f)	255 ± 7	0.95 ± 0.13

- (a) 溶出液を濾過した。
- (b) 溶出液は16,000rpmで1時間遠心分離し、上澄水を傾瀉。3回くり返し。
- (c) 固液の接触時間は700時間。
- (d) 溶出液は7,000rpmで20分遠心分離。
- (e) 溶出液は遠心分離し、ブランク補正を行った。
- (f) 殆ど0。

第5-2表 Sr に対するKd の比較測定結果（実験条件は第5-1表と同じ）²⁾

Sr に対するKd 値 (ml/g ± 標準偏差)

研究所	実験			
	1	2	3	4
ANL (a)	5.4±0.3	0.18±0.01	68±17	0.05±0.005
ANCL	1.8±0.5	4.2±1.6	41±6	2.9±0.4
LASL (b)	1.4±0.2	0.1±0.2	81±1	0.2±0.2
LBL	2.4±0.1	0.1±0.1	55±2	0.1±0.1
LLL (a)	2.7±0.5	0.9±0.4	45±1	0.0
ORNL-I	5.9±0.2	1.0±0.1	89±5	0.7±0.3
ORNL-II (c)	9.3±2.4	0.9±0.1	93±6	0.4±0.1
PNL	14.9±4.6	3.4±0.3	92±3	3.6±0.8
RHO	13.4±0.6	8.0±1.2	73±4	0.23±0.02

(a) 溶出液は濾過した。

(b) 溶出液は16,000rpm で1時間遠心分離し、上澄水を傾瀉。3回くり返し。

(c) 固液の接触時間は7,000時間。

第5-3表 Pu に対するKd の比較測定結果（実験条件は第5-1表と同じ）²⁾

Pu に対するKd値 (ml/g ± 標準偏差)

実験

研究所	1	2	3	4
AECL (a)	547±356	69±14	1000±590	221±140
LASL (b)*	4745±4931	96±63	1078±716	294±80
LASL (c)	32000±11000	3709±2114	13000±8000	12000±3000
LBL (a)*	242±41	2.6±2.4	30±26	271±156
LBL (c)	1009±162	130±16	221±147	2473±1506
PNL (a)	690±320	150±20	15±2	220±30
RHO (a)	2616±1135	235±25	89±17	73±20

ANL (d)*	1027±41	1283±89	8.8±3.4	1304±222
LLL (d)	770±36	450±90	580±12	1260±504
ORNL-I (d)	198±50	280±21	592±134	2056±1405
ORNL-II (d,e)	63000±19000	1146±137	312±66	37000±41000
PNL (d)	1090±120	260±20	200±170	430±60

ANL (f)	2134±77	1457±75	67±14	1280±188
ANL (f) (Pu with Cs)	285±75	160±10	32±4	234±93
LASL (b,f)	3198±512	139±31	843±658	256±19

* いくつかの値は下請からのデータを用いてPNLが再計算した。

- (a) 溶出液は濾過せず。ブランクを補正してKdを計算した。
- (b) 溶出液は濾過せず。16,000rpmで1時間遠心分離、上澄水を傾瀉。3回繰り返し、ブランクを補正。
- (c) 溶出液は濾過せず。最初の液を用いてKdを算出。
- (d) 溶出液は濾過。ブランクを補正してKdを算出。
- (e) 接触時間は700時間。
- (f) 岩石が吸着した放射能を直接測定した。

IAEAは海洋底質土に関する従来のKd測定報告をまとめて、10項目の変動要因をあげている³⁾。

- ① 固・液量比 (ml/g)
- ② 溶液中における着目物質の初期濃度
- ③ 平衡到達前後の溶液のpH
- ④ 固体の粒度
- ⑤ 接触時間
- ⑥ 溶液濃度測定前の2相の分離（ろ過）法

- ⑦ 接触期間中の攪拌条件
- ⑧ K_d 算定に用いた相（液相のみか両相か）
- ⑨ 容器壁への吸着損失
- ⑩ 溶液中の他のイオンの阻害

これらの他にも次のような影響因子がある。

- ⑪ 固体試料の前処理法（水洗、乾燥、篩別法など）
- ⑫ 溶液中の酸化・還元電位
- ⑬ 難溶性化学物質などの沈澱物生成
- ⑭ 微生物活動
- ⑮ 有機物との結合等
- ⑯ 温度、光

さらに等温吸着線や脱離過程での K_d なども検討する必要があるだろう。

次に、前章に記したバッチ法により測定される K_d 値に影響する因子およびそれを実フィールドに適用する場合の問題点について論ずる。

5-2 分配係数値の物理的変動要因

5-2-1 粒度、接触時間、攪拌、温度

K_d 値に影響を及ぼす因子として、試料の粒度、接触時間、温度等がある。

このうち粒度と接触時間は関連があり、 C_s のように土粒子⁴⁾や岩石内⁵⁾へ拡散により吸着されるものは、接触時間を十分とることにより粒度や形状の影響を小さくすることができる。

これは S_r でも第5-1図⁶⁾のように確認されている。

しかしながら接触時間が短い場合や表面吸着に支配される核種では粒度すなわち表面積依存性が認められる⁷⁾。

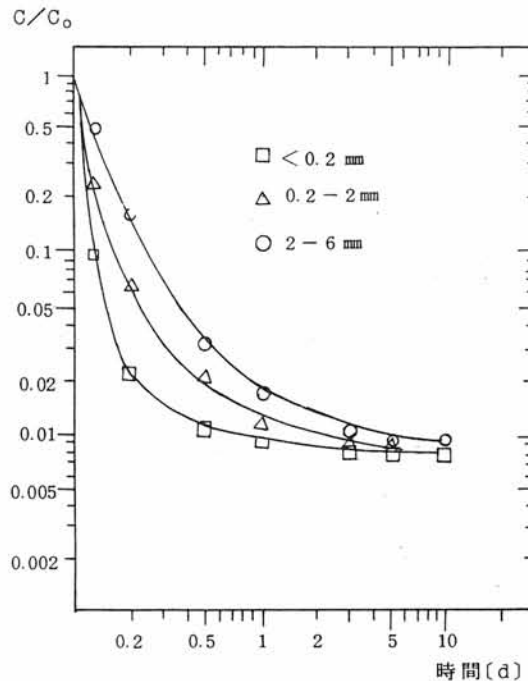
また、接触時間の長さは土粒子の接触水による変質を生じ、後述するような化学的変化の影響要因ともなりうる。従来の実験では短期（数時間～数日）、中期（数日～数週間）および長期（数ヶ月～数年）の接触期間により行われている。

接触期間は実験目的や用いる試料（粘土鉱物、土壌、岩石などの相違）により使い分けられることがのぞましい。

攪拌することによって、土壌試料はその破壊による表面積変化、土壌からの化学成分の溶出、さらに表面状態変化をもたらすことが考えられる。したがってバッチ実験において攪拌操作の影響を事前に検討しておく必要がある。

固・液相など非均質間の吸着反応が通常は発熱反応であることから、系の温度が高くなれば一般的に吸着濃度は低くなるすなわち K_d が小さくなる傾向にある。しかしながら、この場合も土粒子や岩石片への吸着が拡散律則であれば系の温度と吸着速度は正の相関を有すること⁷⁾ さらに放射性核種が微生物に摂取される環境では生物の活動が活発な温度範囲で K_d 値が高くなることも考えられる⁸⁾。

実環境温度の条件下で K_d を求めることがのぞましい。



第5 - 1 図 種々の粒径に粉碎した岩石に対する Sr の平衡到達状況⁶⁾

5-2-2 吸着損失

バッチ法によるKd測定は、通常簡便な液相濃度の変化から次式により算定される。

$$Kd = (C_0 C^{-1} - 1) V / m \quad [5-1]$$

ここで C_0 : 初期液相濃度 C : 吸着平衡時の液相濃度
 V : 液容量 m : 土壌試料乾燥重量

[5-1]式では、被吸着能が小さい試料での測定誤差は小さいが、希土類や超ウラン(TRU)⁹⁾などのKdが大きい核種の場合はバッチ容器、測定容器、採水器具などの壁への吸着が生じ、Kd値変動の要因になる。これについてはブランク・テストによる補正、測定用試料水への担体の添加、[5-1]式によらない固・液両相濃度の測定値から算定するなどの方法が考えられる。

土壌試料を水洗・乾燥することによってもKd値が変動する。⁸⁾

このような間隙水を含んだ生試料を用いた場合のKdは[5-2]式より算定される。

$$Kd = (C_0 C^{-1} - V' V^{-1} - \alpha V^{-1} C^{-1}) \cdot V / m \quad [5-2]$$

ここで V' : 湿潤土の付着水を含んだバッチ液容量
 α : 器壁の吸着損失量

一方、吸着前後における放射性核種の固・液両相によるバッチ内回収率(ξ)は[5-3]式で表される。

$$\xi = (mQ + V' C) / V C_0$$

ここで Q : 固相濃度 (unit/g)

したがって[5-2]式、第3項の吸着損失 α は ξ により次式で表される。

$$\alpha = (1 - \xi) C_0 V \quad [5-4]$$

バッチ実験を進めるにあたって、このように回収率や吸着損失を検討し、Kd値の精度を

高くすることができる。

5-2-3 固・液量比

大きな変動要因の一つに固・液量の比率 (V/m) があげられる。陸圏の地中環境での V/m は 1 ml/g より小さいが、バッチ実験系では、この比率を実際より大きく設定した系で算定されているのが一般的である。 V/m と K_d は次式の関係で表される¹⁰⁾。

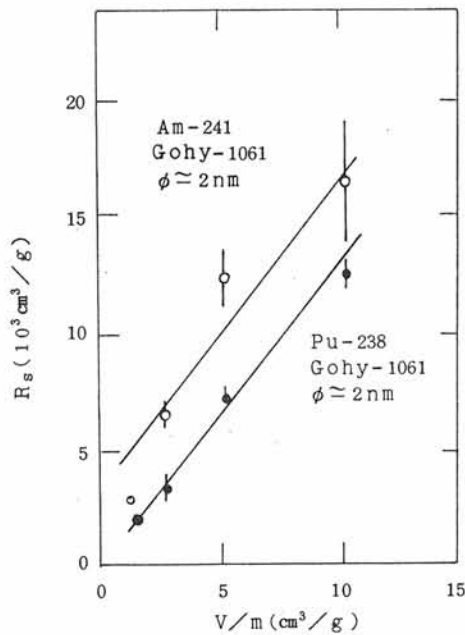
$$\log K_d = \log \left[\left(\frac{M_s}{m} \right) / \left(\frac{M_q}{V} \right) \right] \quad [5-5]$$

$$\log K_d = \log V - \log m + \log A \quad [5-6]$$

ここで M_s : 固相への吸着量

M_q : 液相における溶存量

A : M_s / M_q



第5-2図 固・液量変化に伴う分配係数の変化¹²⁾

[5-6]式において、Vもしくはmを変動させた実験系において、その変動分がAにより補償されればKd値は一定になる。AがVもしくはmの変動分を補償しないことによるKd変動（V/mとKd値とは正相関）の報告例は多くある^{4, 9, 11, 12)}ので、第5-2図¹²⁾に示されるようなv/mに伴う変動幅を把握しておくことも必要である。このような変動の原因は、たとえば液量を一定に保って固相の重量を増加させた場合、土粒子表面から液相に溶出する化学成分濃度が増加することにより吸着阻害効果が生ずることもその一つと考えられる。

実環境に近い条件としてV/mを小さくすればKd値も小さくなるため、実験室でのV/mが大きい条件で得られた値を、そのまま放射性核種の移動速度の評価に用いることは問題があろう。

そこで陸圏の試料では、V/m < 1 ml/g の範囲でKdを測定することが望まれる。

5-2-4 相分離（ろ過、遠心分離）

バッチ法で [5-1] 式もしくは [5-2] 式を用いて液相濃度変化のみから K_d を算定する場合、吸着平衡後の液相中にコロイドもしくは粘土鉱物などの微小な非沈澱性生成物が浮遊していることは十分に想定される。とくに攪拌操作は吸着表面の変質や粒子破壊による吸着能変化を生じさせる恐れがあるだけに相分離の操作を欠かすことはできない。バッチ系の液相において、粘土鉱物やコロイドなどの浮遊物が存在する場合に、相分離を行う必要性の判断基準について考察する。

いまバッチ液相のみに存在する全放射能を T とすれば

$$T = Q_c \cdot w \div (V - v) C \quad [5-7]$$

ここで Q_c : 浮遊物に吸着された放射能濃度 (unit/g)
 w : 液相中浮遊物の重量 (g)
 V : 浮遊物を含む全液相容量 (ml)
 v : 液相中での浮遊物の占める容量 (ml)
 C : 相分離後の溶液中放射能濃度 (unit/ml)

いま浮遊物に吸着されている放射能の T に対する比率を β とすれば、

$$\beta = Q_c \cdot w / T \quad [5-8]$$

これを書きかえれば¹³⁾

$$\beta = 1 / (1 + 1 \times 10^6 K_c^{-1} C_p^{-1}) \quad [5-9]$$

ここで K_c : 浮遊物と液相間の分配係数 (ml/g)
 C_p : 液相中浮遊物質濃度 (mg/l)

浅層地下水もしくは土壌水中における通常の浮遊物質濃度 C_p が、たとへば 1 mg/l 程度であるとすれば、 $K \times 10^5$ (ml/g) でも β は 10% 程度である。

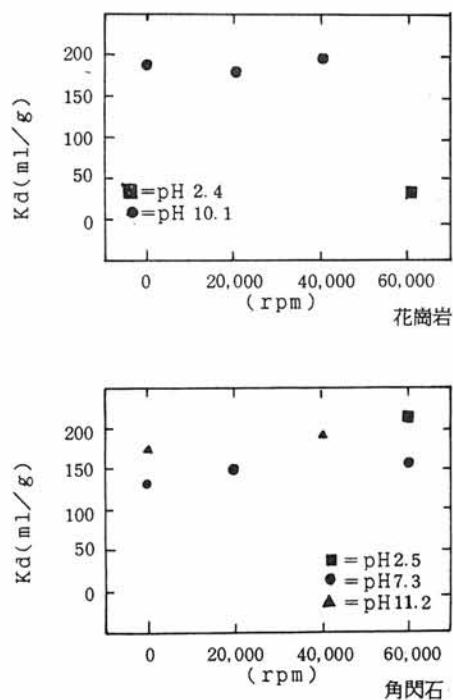
したがって相分離を行わずに、浮遊物質が測定液相に混入したとしても、そのことにより K_d 値は、それほど影響されないことが判る。他方、放射性核種がコロイドもしくは疑似コロイドの溶存形態で存在している場合に、ろ過操作による K_d の増加現象が多く報告

されている^{14,15)}。

これは上述した量的な考察すなわちK_cが大きくてもv、wが非常に小さいことから考えられない。したがってこの原因は微粒子がろ過操作によって物理的にろ過されるだけでなく、ろ紙⁶³⁾や器壁などに吸着されることにより液相中から除去されるためと考えられる。実際にろ過操作を用いず、 6×10^4 rpmまで段階的に遠心回転数を変化させた分離操作ではK_d値に顕著な変化は認められない(第5-3図¹⁶⁾)。

さらに自然環境下では降雨により濁質成分が増加した場合でも、それらが土壤に吸着されずに濁質として移動することも考えられる。

したがって、むやみに微小なフィルタを用いた相分離操作も避けることが望まれ、静置により浮遊物が沈澱する条件が好ましい。



第5-3図 遠心回転数に伴うPuのK_d変化¹⁶⁾

5-3 分配係数値の化学的変動要因

5-3-1 陽イオン交換容量 (CEC)

放射性核種の地質媒体に対する吸着機構のうち、イオン交換機構は主なものと考えられ、媒体が有するCECとKdとの相関が検討されてきた。Wahlbergら¹⁷⁾によれば、2価イオンのKdは質量作用の法則から[5-10]式で表される。

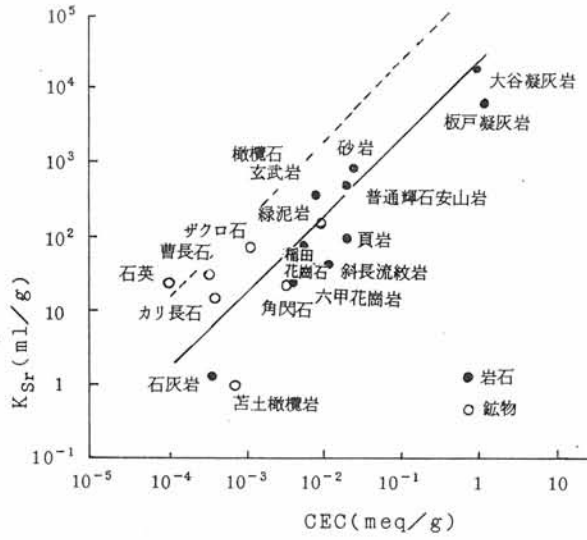
$$K_d = K_a \cdot CEC / B^{2+} \quad [5-10]$$

ここで K_a : 地下水中の着目する稀薄なイオンAのイオンBに対する選択係数
 B^{2+} : 地下水中のおもなイオンであるBの濃度

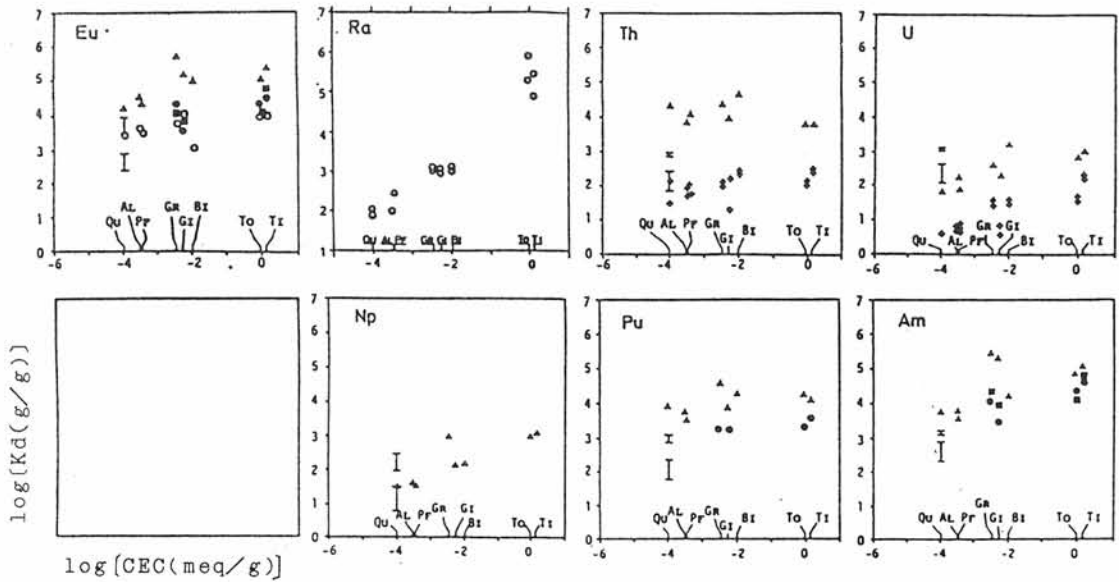
上式ではKdがCECと正比例の関係にあることを示しており、いわゆるKdモデルの理論的根拠となっている。

そしてSrのように水溶液中で主にイオン状として存在し、イオン交換による吸着が支配的と考えられる放射性核種については短期間のバッチ法により得られたKdが媒体の有するCECと正の相関があることは実験的にも確認されている^{18,20)} (たとえば第5-4 図19)。

しかしながら天然の地質媒体に含まれるCs、Srおよびバリウム(Ba)などの安定元素濃度がこれらのKd値に大きな影響を及ぼし、CECとの理論的な関係が成立しないとの報告²¹⁾、さらにユウロピウム(Eu)、ラジウム(Ra)、トリウム(Th)、ウラン(U)、ネプツニウム(Np)、Puおよびアメリシウム(Am)のなかでCECと正の相関があるのはRaのみであることも報告されている(第5-5 図²²⁾)ので、イオン交換吸着以外の機構説明も重要であるが、この場合も単なる固・液相間の濃度比として広義に考えた分配係数を採用することにより、放射性核種の移動速度等の評価に適用することも考えられる。



第5-4図 岩石鉱物へのSrの吸着とCECとの相関¹⁹⁾



■ ¹⁵²Eu, ²⁴¹Am共存

● ¹⁵²Eu, ²³⁶Pu, ²⁴¹Am共存

▲ ¹⁵²Eu, ²³⁸Th, ²³²U, ²³⁷Np, ²³⁹Pu, ²⁴¹Am共存

◆ Th入りガラスから溶出させた²³²Th, ²²⁸Th, ²³⁰Th共存
U入りガラスから溶出させた²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁵U共存

○ ¹⁵²Eu, ²²⁶Ra共存

I 吸着法, 脱着法の比較

第5-5図 種々の放射性核種の分配係数とCECとの相関²²⁾

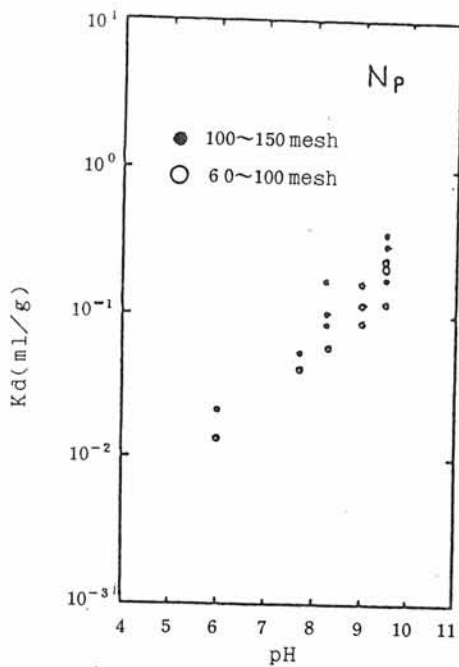
5-3-2 pH

重金属やTRU核種の土壌、底質土などの吸着現象に及ぼす水溶液中pHの影響に関する研究は多く行われている。

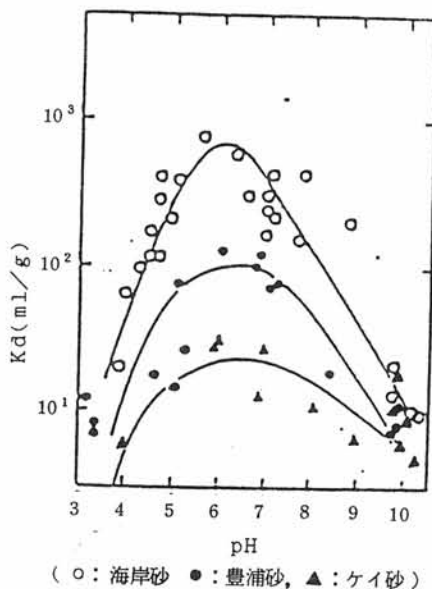
KdのpH依存性には正および負の相関さらに中性領域でピークを示す3とおりの型がある。重金属イオン²³⁻²⁵⁾ およびNp²⁶⁾ は正相関(第5-6図²⁶⁾)、U²⁷⁾、およびAm²⁸⁾ は中性領域でのピーク(第5-7図²⁸⁾)、イットリウム(Y)¹⁸⁾、ジルコニウム(Zr)ニオブ(Nb)²³⁾ およびヨウ素(I)^{29,30)} は負相関(第5-8図³⁰⁾)を示している。

正相関の傾向はpH増加により土粒子表面が多くの水酸基でしめられ、第5-9図²⁵⁾ に示されるような機構に基づいて、カチオンの吸着座が多くなるのが一つの原因と考えられる。負相関は低pH領域では水酸イオン(OH⁻)が少なくなり、負イオンを吸着する座が増加するためと考えられている。一般的に金属化合物の不溶化は硫化物>水酸化物>磷酸塩の度合いであり、粒子表面での難溶性物質生成やバッチ溶液内での沈澱物生成が高pH領域で現れることによる液相濃度減少も負相関の可能性として考えられる。

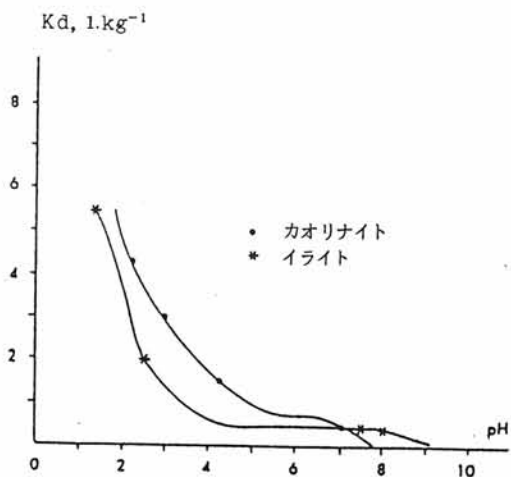
また金属イオンのKdがI⁻と同じようにアルカリ側で減少する原因は、水中に溶解した金属イオンがOH⁻や炭酸イオン(CO₃²⁻)と錯体を形成して負に帯電することも考えられる。このことが酸性領域では正相関、アルカリ領域では負相関を示すことから中性領域でKdのピークを生じる原因と推定される。このようなアルカリ側での放射性核種の吸着機構と挙動は、人工バリアとして用いられるコンクリート構造物の周辺では想定され得るので、バッチ法のみではなくカラム法による挙動の検討も望まれる。とくに、カラム法による挙動の検討において、水酸化物と推定される成分の移動速度が早くなる現象^{23,31,32)} は注目に値する。また、土壌などの地質媒体が土壌水や地下水中のpH変動に対して緩衝能を有することも、今後の核種挙動シミュレーションに必要な情報である。



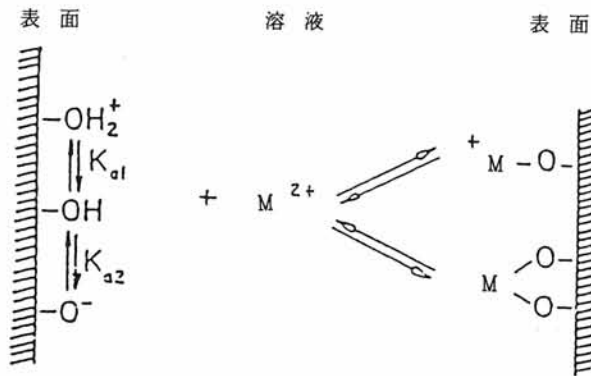
第5-6図 パーメキュライトに対するKdのpH依存性²⁴⁾



第5-7図 砂への²⁴¹Amの吸着に対するpH依存性²⁸⁾



第5-8図 粘土鉱物への吸着に対するヨウ素のpH依存性³⁰⁾



第5-9図 固相水酸基への金属元素の吸着座²⁵⁾

5-3-3 水溶液中濃度および等温吸着線 (ITE)

放射性核種に担体を添加し、その水溶液中濃度変化によるKd値への影響を検討した研究も行われており、その多くはKd値の濃度依存性を指摘している^{4,33-35)}。

すなわち水溶液中濃度が増加すればKd値は減少し(第5-10図³⁴⁾)、吸着濃度と液相濃度の関係を示すITEは多くの場合、フロインドリッヒ型で近似されている^{36,37)}。この関係は[5-10]式において、イオンAとBの交換に際してKdが一定値をとらないことを示すものではない。

なぜならば[5-10]式はイオンBが水中に支配的に溶存し、イオンAの濃度はBに比べて稀薄である場合に成立することが前提となっている。しかるに多くの実験ではBに比べて無視できない程度にまで担体を添加してAの濃度を高くしている。従って、B²⁺に相当する溶液中の総イオン濃度が増加することにより、Kd値が減少する傾向は[5-10]式から予測される必然的な結果である。溶液中の総イオン濃度を一定にした場合は、着目する溶質を高濃度にしてもヘンリー型のITEが得られ、Kdが一定になる(第5-11図⁴⁾)。

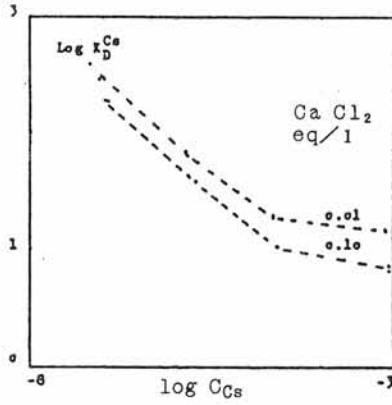
またCsやSr¹³⁾およびI(第5-12図³⁰⁾)では液相濃度変化に対してKdが一定値を保てない領域濃度が示されている。

このようなKdの濃度依存性は着目イオンAだけでなく、共存するBイオンとしてナトリウム(Na)およびカルシウム(Ca)³⁸⁻⁴¹⁾、鉄(Fe)およびアルミニウム(Al)⁴⁾、液相中総イオン(第5-13図²¹⁾)などの濃度変化でも報告されている。

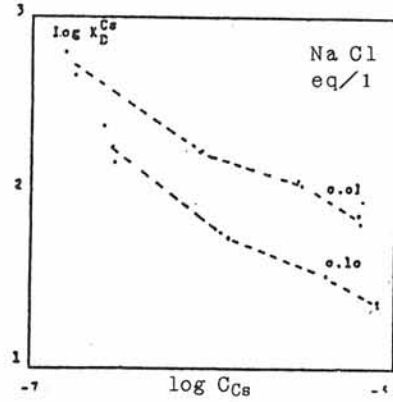
したがって、自然環境においては問題とする放射性核種の濃度だけではなく、化学成分としての濃度および共存する地下水水質濃度とその分布などに関する情報がKd変動を把握するうえで重要になる。

従来、多くのITEは吸着過程において得られており、脱離過程でのKd値に関する情報は少ない。この場合、いわゆる吸着のhysteresisが(*注)生じ、Kdの大きくなることは知られている^{14,42-44)}が、その程度や機構的な説明は十分になされていない。不可逆的に吸着する成分の同定やその機構および挙動のモデル化などをさらに究明することが望まれる。

*注) ヒステリシス(履歴現象)： ある量Aの変化にともなって、他の量Bが変化する場合に、Aを変化させる手段によって、同じAに対するBの値が異なる現象。
ここではおなじ試料を用いてKdを求めても吸着過程で得られた値と脱離過程で得られた値とが一致しないことをいう。

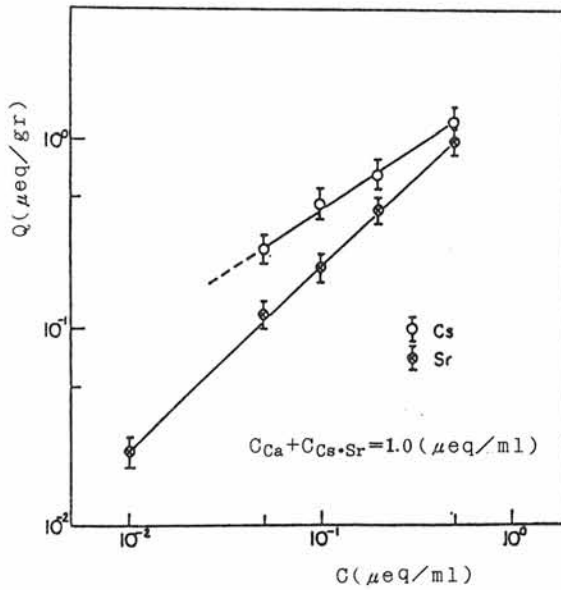


Ca-カオリナイトの K_d^{Cs} に対するCs-
キャリア濃度の影響

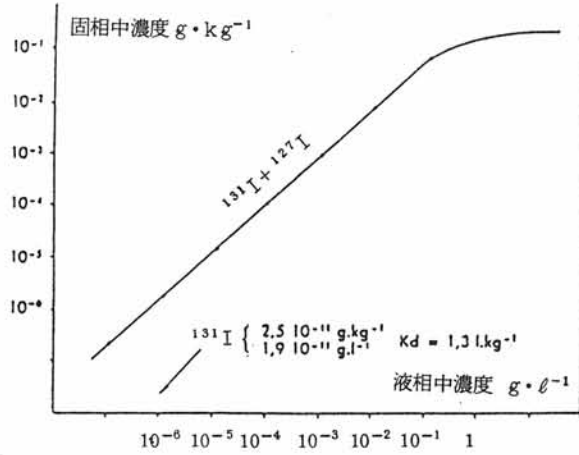


Na-カオリナイトの K_d^{Cs} に対するCs
キャリア濃度の影響

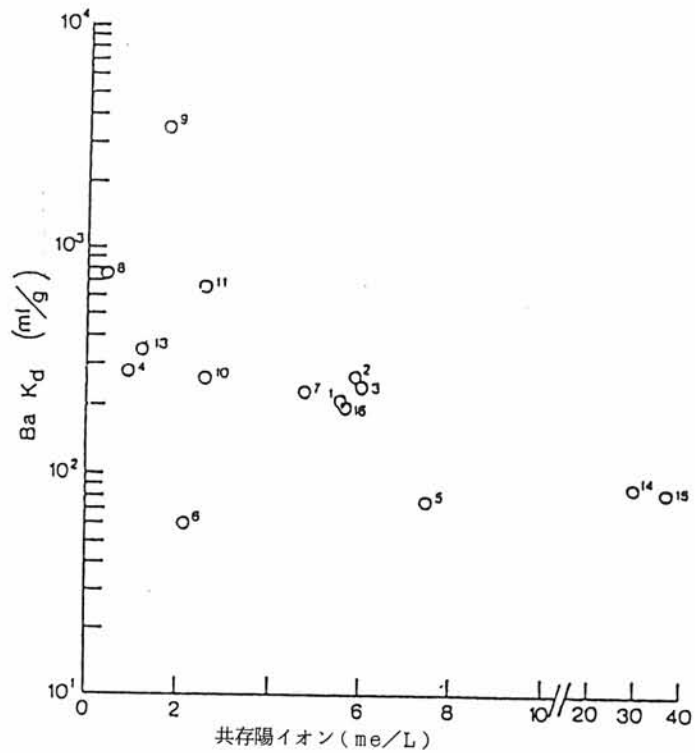
第5-10図 液相における担体濃度が K_d に及ぼす影響³⁴⁾



第5-11図 液相濃度を一定にして
カラム法から得た細砂
に対する等温吸着線⁴⁾



第 5 - 1 2 図 Cadarache サイトの石灰粘土質
土壌に対する I^{-1} の等温吸着線³⁰⁾



第 5 - 1 3 図 溶液中総カチオン濃度が
Ba の K_d に及ぼす影響²¹⁾

5-3-4 酸化・還元状態と酸化物

通気層部に掘削したトレンチに土壤水が浸透した場合、トレンチ内の滞留水は嫌氣的雰囲気にあることから還元性を示す場合がある。

このようなトレンチ水が不飽和土壤水領域に漏水すれば幾分かは酸化され、EhやpHの変化に応じて放射性核種の溶存形態がトレンチ水中とは異なり、土壤粒子への放射性核種の吸着挙動も複雑になる。第5-14図⁹⁾にはトレンチ水を酸化的な雰囲気に変えた場合の水中Feイオン濃度の変化を示した。これはFe²⁺が酸化され、土粒子表面にFeの酸化物が生成されることを意味する。

このような化合物に放射性核種が吸着されることは周知のとおりであるが、重金属に対する吸着能はMn酸化物>有機物>Fe酸化物>粘土鉱物の順⁴⁵⁾であるとされているように、これらの吸着能は粘土鉱物より大きい。したがって前述したバッチ実験に篩別や攪拌操作を用いることが、土粒子に形成されているこのような被覆物(第5-15図⁴⁶⁾)を破壊していることも考えられる。

実際に海水を用いて篩別した細粒度の海底土を6ヶ月以上保存してから測定したコバルト(Co)およびマンガン(Mn)に対するKdは篩別した直後の試料のKdより2オーダーほど大きい⁹⁾。このような時間経過による土粒子表面の変質効果による関する定量的な研究も少ない。

深地層では浅地層より環境の変化は少ないが、テクネチウム(Tc)、U、NpおよびPuなどは酸化・還元Eh電位により溶存形態が異なり¹⁴⁾、生成する錯体は電位の低下と共に不動性となると考えられている。

5-3-5 有機物

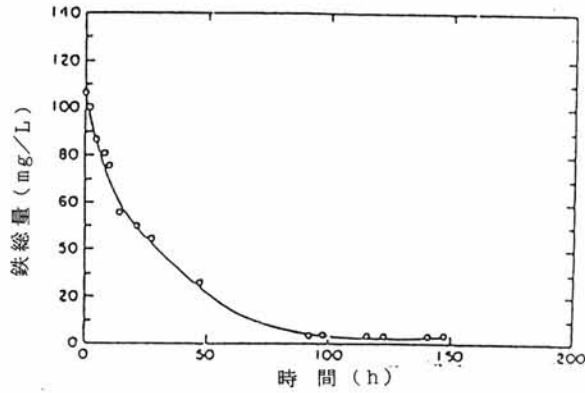
Kdの影響因子となる有機物には(a)腐植酸などの土壤有機物、(b)土壤微生物、(c)処分場での存在が想定される溶媒などの有機化学物質、などが考えられる。これらの存在により水中放射性核種の挙動が異なる原因は次のように考えられる。

- ① 無機物質には被吸着能が本来それほど大きくない核種が、不溶性の腐植物質に吸着され、不動性となる。
- ② 溶存性のフルボ酸やフミン酸および微生物や化学分解された有機物に吸着されて錯体を形成することにより化学沈殿の生成が少なくなり、有機物と挙動を共にする。
- ③ 有機物には還元剤となるものが多く、その存在下では溶解度が小さくなり、UやPuなどが不動性となる。

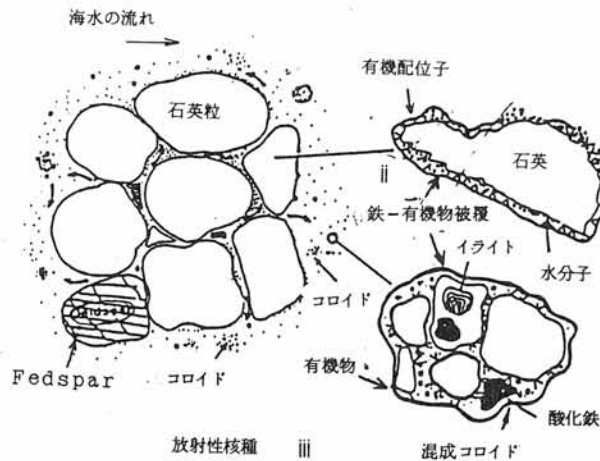
- ④ 粒子表面に吸着された核種上に有機物質が物理吸着し、水中イオンとの交換が妨害される。

土壤有機物質の吸着能が大きいことは重金属イオンに対してのみでなく、ヨウ素についても明らかにされている。

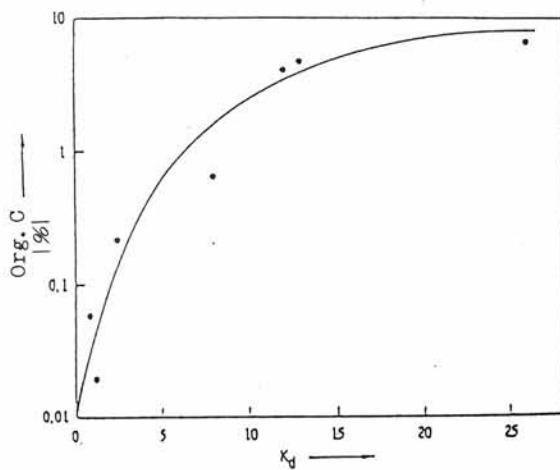
ヨウ素は第5-16図⁴⁷⁾に示すように土壤中の有機炭素含有量と共にKd値の増加することが知られている。



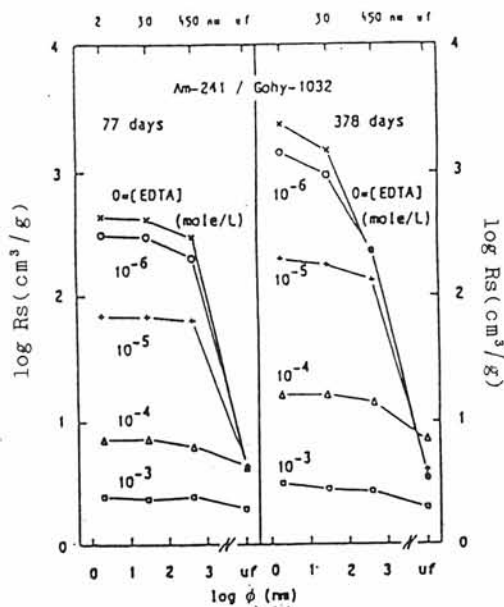
第5-14図 放射性廃棄物処分場
トレンチ水中のFeイオン
濃度変化⁹⁾



第5-15図 底質土の表面における
被覆状態の模式図⁴⁸⁾



第5-16図 ローム土壌に対するヨウ素の
吸着に及ぼす有機炭素含有量の影響⁴⁷⁾



第5-17図 キレート剤 EDTA 濃度が
²⁴¹Am の Gorleben 底質土
への吸着におよぼす影響¹²⁾

(注、農薬のような汚染物質が有機物である場合も、その評価には土壤中の有機炭素含有量で規格化した分配係数が用いられている⁴⁸⁾。)

不溶性および溶解性でも分子量が 10^5 以上の土壌有機物錯体は地中で難動と考えられるが、トレンチ水中では I^- の50%程度が有機物に結合した成分であることが報告されている⁴⁹⁾。従って、ヨウ素に限らず低分子量有機物に吸着された放射性核種の挙動も有機物濃度によっては重要になる。

溶存フミン酸濃度が増加するにつれてAm、Np、PuおよびThなどに対しては、玄武岩、花崗岩および Al_2O_3 などへのKdが減少する^{50,51)}。一方、腐植酸が土壌に吸着されることおよびCaイオンが増加するにつれて有機物が凝集する効果を示すことから核種移動は小さくなることが示唆されている⁵²⁾。しかしながら、実際の土壌水や地下水中の溶存土壌有機物は数ppm程度以下であり⁵³⁾、CaイオンがTRU元素の有機物錯体形成に競合すること⁵¹⁾および有機物の凝集効果はpHが高い地下水では起こりにくいことなどから、これらの条件下におけるKd測定も重要である。

放射性核種が、自然に存在する有機物のみでなく、有機化学溶剤(EDTA、DTPA、CDTA、1-1-1 トリクロロエタン、テトラクロロエタン)、抽出用有機溶媒(TBP)などと共存する場合は⁵⁴⁾、Co、UおよびPuなどの予想外に速い移動の原因となると考えられている^{49,55-57)}。またAmがEDTAと共存することによりKdが低下する(第5-17図¹²⁾)ことも室内実験で示されている。

底質土や土壌カラム内の微生物がCs⁵⁸⁾やTc⁵⁹⁾の吸着に寄与している、すなわちKdが大きくなることが滅菌による実験で示されている。

なお微生物が種々の有機物を分解することにより発生するCO₂等のガスによる水質変化も考えられる。

5-4 地中挙動とKd

5-4-1 Kdによる挙動推定の問題点

Kdの算定法には、前章に記されたように、バッチ法、カラム法、野外トレーサ法等がある。

従来は、測定の簡便さからバッチ法によるKd値が多く得られてきた。

カラム法からKdを得る操作はバッチ法に比べて複雑である。しかしながら、挙動に影響をおよぼす因子を検討する意味ではバッチ法より多くの情報が得られる。とくに蒸留水など溶離剤を用いた破過曲線による吸着構造の解明(第5-18図²⁹⁾、第5-19図⁶⁰⁾、pHや濃度などの影響因子による吸着分布変化(第5-20図²³⁾、⁶¹⁾、吸着の可逆性と脱離後の分布⁶²、⁶³⁾、コロイドなど被吸着能の小さい放射性核種が混在する場合の複合移動分布²³、⁶⁴⁾、などはバッチ法で検討することが困難である。

いまバッチ系において溶存形態が複合し、2種類の分配係数(K_1 、 K_2)を示す単一の放射性核種について、これらの係数値と平均的な分配係数Kdとの関係を誘導すれば以下のようなになる。

$$Kd = (K_1\zeta + K_2\eta) / (\zeta + \eta) \quad [5-11]$$

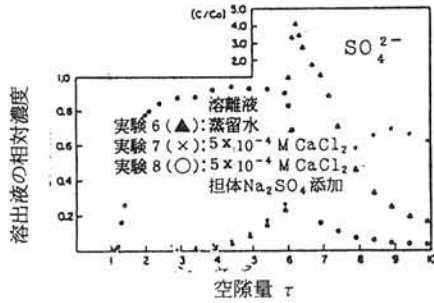
$$\text{ここで} \quad \zeta = (K_2 + \delta) / (K_1 + \delta) \quad [5-12]$$

δ : 固・液量比 (V/m)

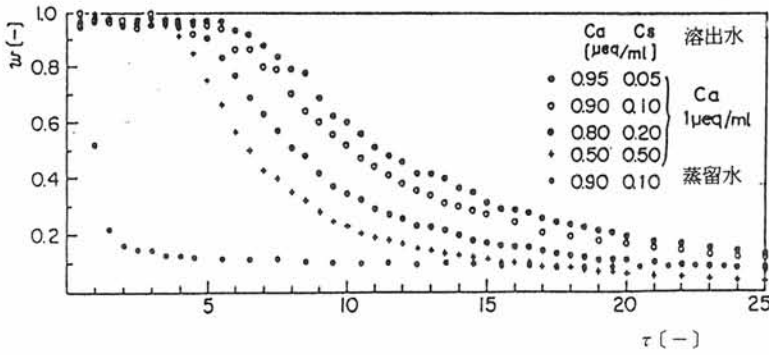
η : バッチ系液相における2成分溶存形態各々の初期濃度比 (C_{20}/C_{10})

液相の濃度変化からバッチ法により平均的なKd値を算定し、平均的な移動距離を推定しても、たとえば被吸着能が小さい K_2 で移動する成分($K_1 > K_2$)はKdで予想される位置より早く地中を移動するため、放射性核種の移動に関する評価において留意することが望ましい。したがって、このような系では K_1 および K_2 を個々にカラム法から算定し、挙動の評価モデルを構築する⁴²、⁶⁵⁾ことも必要になる。また前記したような時間経過により不可逆的な遅い吸着現象を伴う場合の吸着速度定数とKdをバッチ法により同時に推定する方法⁸⁾も提案されている。

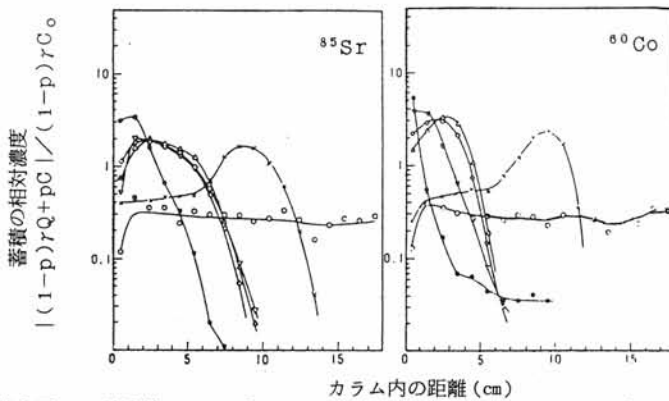
野外トレーサ法では通常、測定法の制約から現実的でない高濃度の安定同位元素をトレーサとして用いざるをえない場合⁶⁶⁾が多い。また、環境に放出された人工放射性核種は、濃度が希薄になれば同位体交換により天然に存在する同位元素に希釈され、類似した分布を示すことも考えられる⁶⁷⁾。(前章参照)



第5-18図 石英細砂カラムからの蒸留水
およびCaCl₂によるSO₄²⁻の溶出²⁹⁾



第5-19図 石英細砂カラムの蒸留水およびCaCl₂によるCs
イオンの溶出⁶⁰⁾



流入量 2τ , 流入液のpH: ○, 2.0; ×, 3.0; △, 4.1; ◇, 6.1; ▽, 8.1; ⊙, 11.1

第5-20図 石英細砂カラム内における放射性核種の移行におよぼすpHの影響²³⁾

5-4-2 バッチ法およびその他の方法によるKd値の比較

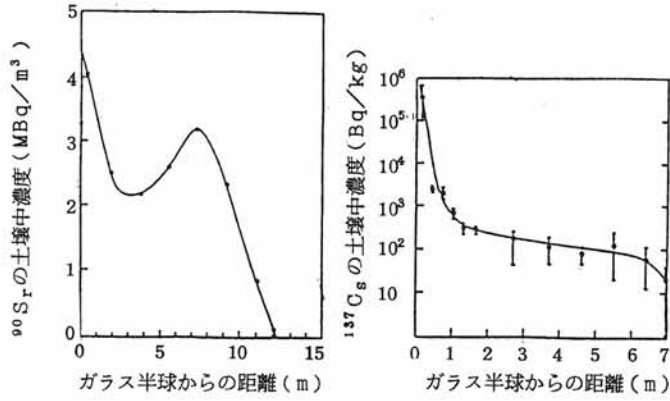
バッチ法で得られたKd とカラムやその他の方法で得られたものとの比較も検討されている。

バッチ法によるKd がカラムによる値より大きい場合⁶⁸⁾が多いが、ほぼ等しい場合⁶⁹⁾ や小さい場合⁹⁾もある。カラム法よりバッチ法でのKd が大きい理由は、バッチ法の固・液量比(V/m) が大きいことおよび粒子と液相の接触面積が広いこと、さらに、液が一回通過する操作によるカラム法に比べると概して接触時間が長いことなどが考えられる。カラム法のKdが大きいとした報告では、ループ状のカラムを用いて行われており、また実験期間が長期にわたるため単に接触時間の長さだけでなく微生物が増殖すること⁷⁰⁾ およびループ系カラムへの吸着損失による液相濃度低下などの理由が考えられる。

地中の挙動を推定するためのKd を求めるには、カラム法の方が自然環境に近いと思われる。しかしながら、カラム法によりKd値 を決定することは必ずしも容易ではない。被吸着能が低くて理想的なイオン交換反応に従うような放射性核種では、その遅延係数からKdを逆算することは容易であるが、たとえば⁹⁰Srの例でも認められるように、長期間においてはFe-Mn酸化物への不可逆的吸着現象が生じ、流入端での吸着濃度が高くなる(第5-21図⁷¹⁾)。

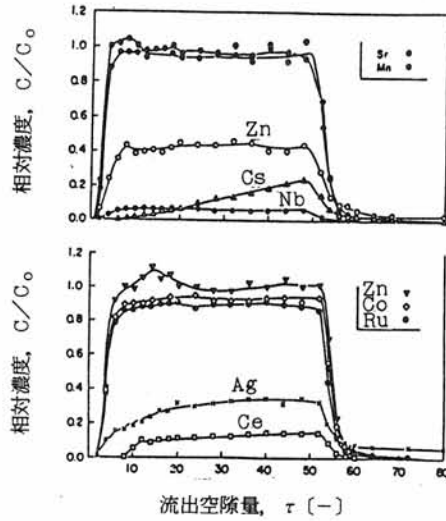
同様の分布は安定元素をトレーサとした原位置試験⁷²⁾でも認められる。また被吸着能が高い放射性核種では流入端にその多くが吸着され、分布にプラトー部が現れない²⁹⁾。この場合の破過曲線では流出液濃度が流入液濃度に至らずにプラトーを示す(第5-22図⁶²⁾)。

このような形状は不可逆的反応を考慮したモデルにより予測されることが知られている⁷³⁾。したがって、このような定常状態が得られない状況では吸着分布、破過曲線のいずれからも単一のKd を算定することは困難である。従って、放射性核種の土中挙動を求めるに際して、易動性に応じた複数のKd を便宜的に用いるとも考えられる。亀裂を有する岩体中挙動のモデル化でも、表面吸着を考えるかぎりは多孔性媒体と遅延係数に類似性がある⁷⁴⁾ため、流出濃度が流入濃度に漸近しにくい破過曲線⁷⁵⁾からKd値 を得ることは容易ではない。この場合は亀裂から岩体内への移行のKdを用いたモデルが必要になる。



第5-21図 ガラス固化体から溶出

^{90}Sr および ^{137}Cs の移行分布 ⁷¹



カラム：2 cm φ×2.0 cm，充填物：粗砂
 (美浜，原子力発電所敷地)，RI 流入
 量：カラム全空隙量の 50 倍量，溶解液
 0.001N CaCl_2 (pH 6.5)。

第5-22図 小カラムを用いた放射性核種の
 破過曲線にみられるプラトー部 ⁶²⁾

5-4-3 原位置で測定したKd (In situ Kd)

湖沼や海洋の底質土では間隙がほぼ水で飽和され、それを分離・捕集しやすいことから in situ Kdの測定は不飽和土壤に比べて容易である。

底質土でも水面近傍は下層に比べて酸化的環境にあり、Fe-Mn酸化物が有機物と結合した複合体の含有量が下層より多い。したがって、これに対する被吸着能が大きいFe、Mn、Coなどのin situ Kdは、第5-4表⁷⁶⁾に示すように、還元環境の値に比べて2~4桁高くなる。また湖底土では水面近傍より下層の間隙水中におけるNH₄⁺イオンが多量に溶存するため、これとの競合吸着から下層ほどCsのin situ Kdが小さくなる^{77,78)}とされている(たとえば第5-23図⁷⁹⁾)。このようなin situでの測定は、地域の特製を知るために役立つ。

第5-4表 酸化および還元環境における海底土、間隙水中の微量元素濃度と分配係数の比較⁷⁶⁾

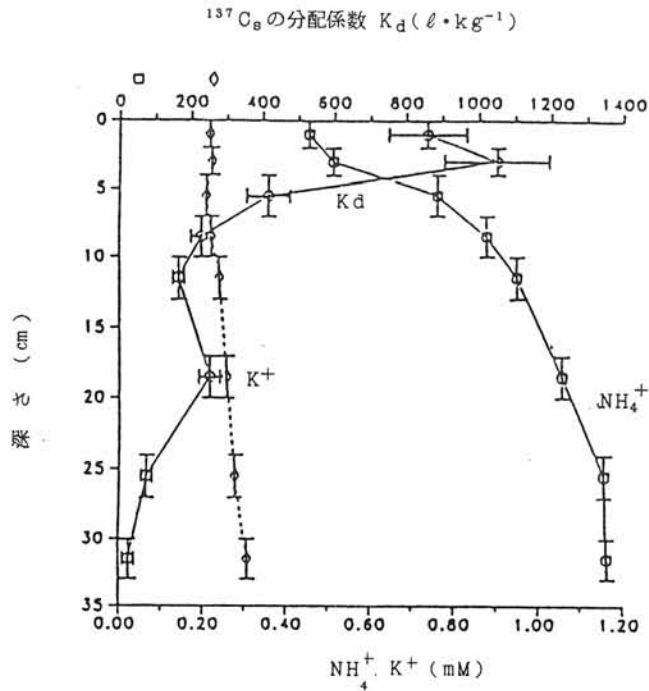
		Fe	Mn	Co	Ni	Cu	Cd
好気性	堆積物($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	1500	600	5.5	8	30	0.4
	間隙水($\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)	5	0.7	0.03	0.6	4	0.4
	Kd($\text{cm}^3\cdot\text{g}^{-1}$)	$3\cdot 10^5$	$9\cdot 10^5$	$2\cdot 10^5$	$1.3\cdot 10^4$	$8\cdot 10^3$	1000
亜酸化性	堆積物($\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)	2000	500	3.5	5.5	18	0.2
	間隙水($\mu\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)	1500	4500	3.5	3.5	15	0.6
	Kd($\text{cm}^3\cdot\text{g}^{-1}$)	1300	110	1000	1570	1200	330
Kd 好気性		225	7700	180	8.5	6.2	3
Kd 亜酸化性							

第5-5表 実験室およびフィールドで得られたKd値の比較⁴⁹⁾

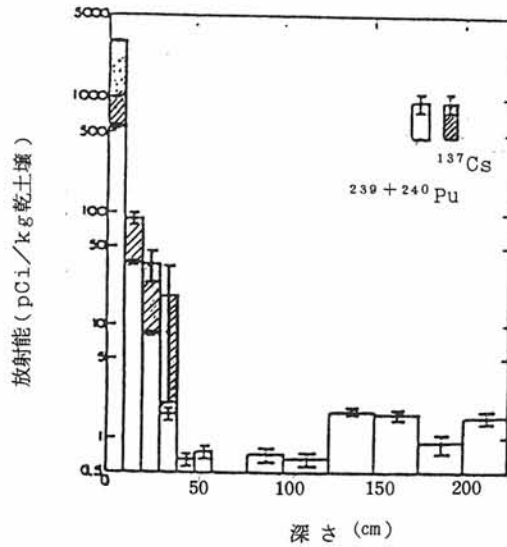
放射性核種	実験室のKd	易動性成分について現地で測定したKd
⁶⁰ Co	3560	9
¹⁰⁶ Ru	400	6
¹²⁵ Sb	19	4

不飽和土壌では長崎原爆のPuの深度分布とトリチウム水濃度から求めたin situ Kdが報告されている(第5-24図⁷⁹⁾)。この報告では、検出された分布のうち吸着能が大きい土壌表層の数十cmからKdを評価しているが、第5-24図にみらるるように量的には少ないものの深度2m付近でも数pCi/kg-dryのPuが検出されており、易動性Pu成分の存在することが示されている。他方ガラス固化体から漏洩したPuの80%は、砂に吸着されずに水と同じような速度で移動したとの室内実験で報告があり⁸⁰⁾、放射性核種が同じでも物理化学形態の違いが挙動に影響を及ぼすことを示唆している。

わが国では土中への処分が行われていないこともあり、RIのフィールド観測データは殆どないだけに、諸外国における事例⁸¹⁾は参考となる。たとえばSr⁸²⁾、Cs⁵⁸⁾、Coおよびルテニウム(Ru)(第5-5表⁴⁹⁾、PuおよびAm⁸³⁾などについて、実験室で得られた結果よりもフィールドの方が早く移動するとの報告もある。



第5-23図 ^{137}Cs の湖底土内における K_d の深度分布⁷⁸⁾



第5-24図 長崎西山地区における土壤中Puの深度分布⁷⁹⁾

5-5 おわりに

Kdは物理・化学・生物的要因により変動するので、それらの因子の影響を基礎的に検討するために単純化した系での実験が有効ではあるが、このような実験から得られた値がそのまま自然環境に適用可能とは限らない。パラメータKdの不確定要因による変動⁸⁴⁾を低減し一層、信頼性の高いKdを得る努力を期待すると共に、放射性核種の土中挙動を求めるKd値の採用にあたっては、本章ならびに前章に記した変動要因を考慮にいれて、対象とするサイトの特殊性や放射性核種の形態などに適応するKdの設定が望まれる。

5-6 参考文献

- 1) Rancon, D. : Influence of concentration distributions in solid medium on the assessment of radioelement distribution between the liquid and solid phases, in " Application of distribution coefficients to radiological assessment models " , 64, Elsevier applied science publishers, London and New York. 1986
- 2) Relyea, J. F. , Serne, R. J. : Waste isolation safety assessment program- Controlled sample program Pub. NQ2 ; Interlaboratory comparison of batch Kd values, PNL-2872, 1979.
- 3) IAEA : "Sediment Kds and concentration factors for radionuclides in the marine environment " , Technical Reports Series No. 247 , IAEA, Vienna, 1985.
- 4) 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、土木学会論報、第254号、37, 1976.
- 5) 下岡謙司、柳田 剛、山形 茂、他 : カコウ岩のセシウム吸着特性、原子力学会「昭58年会」要旨集、131, 1983.
- 6) Lang, H. , Klotz, D., Moser, H. : Nuclide migration in fractured rock, Ref. (1), 232, 1986.
- 7) Allard, B. , Rydberg. J. , Kipatsi, H. , et al . : Disposal of radioactive waste in granitic bed rock , in "Radioactive Waste in Geologic Storage" , 47, Amer . Chem . Soc. , Washington , D.C. 1979.
- 8) 福井正美、藤川陽子、井岡達也、他 : 沿岸海底土への放射性核種の分配および吸着挙動、原子力誌、31, 1165-1175, 1989.
- 9) Pietrzak, R. , Czyscinski, K. S. , Weiss, A. J. : Evaluation of isotope-Land burial, NUREG/CR-2616, 1982.
- 10) Alberts, J. J., Pinder III, J.E., Wurtz, E., et al. : The effect of pH, solid phase , particle concentration and equilibration time on the partition coefficient of curium on natural sediments , Ref. (1), 72, 1986.
- 11) 伊藤勝雄、菅野卓治 : テクネチウムの人工および天然バリアへの吸着機構、原子力学会「昭60年会」要旨集、56, 1985.
- 12) Rommel, H. , Kim, J. I. : Colloid generation and solid-liquid distribution of transuranic elements in natural aquifer systems , Ref. (1), 120, 1986.
- 13) Fukui, M. : Uptake of radionuclides onto suspended particulate matter in coastal water , J. Nucl . Sci. and Technol. 25, 934, 1988.

- 14) Strickerts, R. G. : Sorption of redox-sensitive elements critical analysis, PNL-3432, UC-70, 1980.
- 15) 中山真一、森山裕丈、東 邦夫 : ^{241}Am の吸着に関する実験、原子力学会「昭59分科会」要旨集、281, 1984.
- 16) Torstenfelt, B. , Rundberg, R. S. , Mitchell, A. J. : Actinide sorption on granites and minerals as a function of pH and colloids/pseudocolloids, Radiochemica Acta , **44/45**.111 .R.Oldenbourg Verlag , Munchen.1988.
- 17) Wahlberg, J. S. , Barker, J. H. , Vernon, R. W. et al. : Exchange adsorption of strontium on clay minerals, U. S. Geological Survey Bulletin 1140-C, 1965.
- 18) 井上頼輝、森澤眞輔 : 放射性核種の土壌と水との間の分配係数値、原子力誌、**18**、524, 1976.
- 19) 秋葉健一、橋本裕之 : 岩石鉱物へのストロンチウムの分配係数、原子力学会「昭62秋の大会」予稿集、228, 1987.
- 20) 内田滋夫、鎌田 博 : ストロンチウムの成層通気層土壌への吸着に関する研究、保健物理、22、179, 1987.
- 21) Gillham, R. W. , Sharma, H. D. , Reddy, M. R. , et al. : Barium and radium migration in unconsolidated canadian geological materials, AECB, INFO-0048, 1981.
- 22) 中西 孝 : 各核種の吸着特性 (岩石・鉱物-合成地下水間における α 放射体の分配) 地層処分研究成果報告会論文集、58, 原子力安全研究協会, 1986.
- 23) 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(Ⅲ)-石英砂層カラム内における長寿命放射性核種の移動に及ぼすpHの影響-、保健物理 **13**, 93, 1978.
- 24) Rochon, J. , Rancon, D. , Gourmel, J. P. : Recherche en laboratoire sur la retention et le transfert de produits de fission et de transuraniens, Underground disposal of radioactive wastes , Vol. II, IAEA-SM-243/155, 271, 1980.
- 25) Bourg, A. C. M. : A coordination chemistry approach for modeling trace element adsorption , Ref. (1), 25, 1986.
- 26) 長崎晋也、田中 知、山脇道夫、他 : 地下環境中におけるネプツニウムの存在化学形と吸着挙動、原子力学会「昭63年会」、47, 1988.
- 27) 白石鶴美、小坂哲夫、佐藤正知、他 : 岩石に対するウランイオンの吸着係数の測定 原子力学会「昭59年分科会」、279 .1984.
- 28) 白石浩一、妹尾宗明、森山 昇 : ^{241}Am の砂への吸着挙動、原子力学会「昭62秋の大会」、227, 1987.

- 29) 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(Ⅱ)－石英砂層カラムによる放射性無機陰イオンの破過曲線について－、保健物理、11、193, 1976.
- 30) Rancon, D. : Comparitive study of radioactive iodine behavior in soils under various experimental and natural conditions, Ref. (16), 187, 1988.
- 31) Girardi, F. , Avogadro, A. , Bertozzi, A. , et al. : A risk analysis methodology for deep underground radioactive waste repositories and ralated experimental research , Ref. (24), 407 , 1980.
- 32) 大貫敏彦、大塚芳郎、小川弘道、他： 滞水砂層中における放射性核種 (^{60}Co 、 ^{85}Sr および ^{137}Cs) の移動、保健物理、19、13, 1984.
- 33) Loggia, E. D. : Survey of research perfomed in the European Community on the migration of radionuclides in rocks, Proc. of the Workshop of Long-lived Radionuclides in the Geosphere , 123 , 1979.
- 34) Bo, P. : Ion exchange properties of soil fines , 同上、279, 1979.
- 35) 菅野卓治、橋本裕之：花崗岩に対する Cs および Sr の分配について、原子力学会「昭57年会」、31, 1982.
- 36) Kuo, S. , Mikkelsen, D. S. : Zinc adsorption by two alka line soils, Soil Sci. , 128, 274 , 1979.
- 37) 小西正郎、岡島幸雄、山本耕一郎、他： Cs , Sr , Am の数種天然鉱物への吸着挙動(Ⅱ)、原子力学会「昭61分科会」、136 , 1986.
- 38) 筒井天尊、西牧研社： 放射性廃棄物地中処分の安全性の評価に関する研究(1)、放射性陽イオンの交換吸着体におよぼす Ca^{2+} の影響、保健物理、10、79, 1975.
- 39) Routson, R. C. , Jansen , G. , Robeinson, V. : ^{241}Am , ^{237}Np , and ^{99}Tc sorption on two United States subsoils from differing weathering intensity areas , Health Phys . , 33, 311 , 1977.
- 40) Beall, G. W. , Ketelle, B. H. , Haire, R. G. , et al . : Sorption behavior of trivalent actinoides and rare earths on clay minerals , Ref. (7), 201, 1979.
- 41) Nikodic, J. , Pieri, J. : Sorption kinetics of ^{60}Co by main clay-type minerals present in estuaries concentration, pH, salinity and temperature effects on K_d values equilibrium dialysis application, R ef. (1), 83, 1986.
- 42) 福井正美：海水中での放射性核種の拡散・沈着過程の検討、被曝線量評価のための環境における放射性核種の分布と挙動に関する試験研究(昭和55年度科学技術庁原子力平和利用研究報告書)、10、原子力安全研究協会, 1981.

- 43) Failor, R. , Isherwood, D. , Rabe, R. , et al. : Laboraotry studies of radionuclide transport in fractured Climax granite, UCRL-53308 , 1982.
- 44) 中山真一、森山裕之、有本 一、他：アクチニド元素の岩石に対する分配係数、原子力学会「昭60年会」、57,1985.
- 45) Means, J. L. , Crearar. D. A, Borcsik, M. P. : Adsorption of Co and selected actinides by Mn and Fe oxides in soils and sediments, *Geochimica Cosmochimica Acta* ,**42**,1763,1978.
- 46) Hamilton, E. I. : Kd values;an assessment of field v laboratory measurements, Ref. (1), 35,1986.
- 47) Bors, J. , Martens, R. , Kuhn, W. , et al . : Studies on the role of natural and anthropogenic organic substances in the mobility of radioiodine in soils , Ref. (16), 201 , 1988.
- 48) Rao, P. S. C. , Nkedi-Kizza, P. , Davidson, J. M. , et al. : Retention and transformations of pesticides in relation to nonpoint source pollution from croplands, in "Agricultural Management and Water Quality", 126 , Iowa State University Press, Ames , 1983.
- 49) Fruchter, J. S. , Cowan, C. E. , Roberson, D. E. , et al . : Radionuclide migration in ground water , NUREG/CR-40 30, PNL-5299, 1985.
- 50) Righetto, L., Bidoglio, G., Marcandalli, B. , et al. : Surface interactions with alumina colloids , Ref. (16)73, 1988.
- 51) Ewart, F. T., Williams, S. J. : A literature survey of the possible effects of humic and fulvic acids on the desposal of LLW and ILW, AERE R 12023, 1986.
- 52) 阪上正信、山本政儀：有機形超ウラン元素の生成、KURRI-TR-240、23 1986.
- 53) Reuter, J. H. , Perdue, E. M. : Importance of heavy metal-organic matter interactions in natural waters, *Geochemica Cosmochimica Acta* ,**41**, 325 ,1977.
- 54) Goode, D. : Nonradiological groundwater quality at low-level radioactive waste disposal sites, NUREG-1183, 1986.
- 55) Means, J. L. , Crerar, D. A. , Duguid, J. O : Migration of radioactive wastes:radionuclide mobilization by complexing agents, *Science*, **200**,1477,1978.
- 56) Means, J. L. , Hastings, D. W. : Status report on the importance of natural organic compounds in groundwater as radionuclide-mobilizing agents , ONWI-84, 1979.
- 57) Silveira, D. J. : The potential influence of organic compounds on the transport of radionuclides from a geologic repository, PNL-3414, UC-70, 1981.

- 58) Champ, D. R. , Merritt, W. F. : Particulate transport of cesium in groundwater , Cand . Nucl . Soc. 2nd Annual Conf . , 66, 1981.
- 59) Pignolet, L. , Fonsny, K. , Auvray, F. , et al . : Microbial actin on fixation in a marine sediment , Ref.(1),361 ,1986.
- 60) Fukui, M. , : Evaluation of a combined sorption model for describing cesium transport in a soil, Health Phys . , 35, 555, 1978.
- 61) 山本忠利、武部慎一、和達嘉樹：通気砂層中における放射性核種の挙動－担体濃度の影響、保健物理、17,3,1982.
- 62) 福井正美、桂山幸典：土壌水中における長寿命放射性核種の移動、保健物理、11, 275 ,1976.
- 63) Friedman, A. M. , Fried, S. : Kinetic effects in migration ,Ref.(7),191, 1979.
- 64) Ohnuki, T. , Tanaka, T. : Migration of radionuclides controlled by several different migration mechanisms through a sandy soil layer, Health Phys. 56,47, 1989.
- 65) 下岡謙司、岡川誠吾、平井光之：土壌充填材中での核種吸着及び移行特性、原子力学会「昭63年会」、31,1988.
- 66) 藤原 靖、下茂道人、谷沢房郎、他：核種地中移行に関する原位置試験(Ⅱ)、原子力学会「昭61年会」、133 , 1986.
- 67) 五十嵐敏文、馬原保典、駒田広也：バックグラウンド安定核種分析による放射性核種分配係数の推定、原子力学会「昭62秋の大会」、226 , 1987.
- 68) Relyea, J. F., Serne, R. J., Rai, D : Methods for determining radionuclide retardation factors : Status Report , PNL-3349UC-70, 1980.
- 69) Avogadro, A. , Bidoglio, G. : Effects of environmental parameters on distribution coefficients , Ref. (1), 131 , 1986.
- 70) Winkler, A. , Bruhl, H. , Trapp, CH. : Mobility of technetium in various rocks and defined combinations of natural minerals ,Ref.(16), 183 ,1988.
- 71) Melnyk, T. W. , Walton, F. B. , Johnson, H. L. ; High-level waste glass field burial tests at CRNL:The effect of geochemical kinetics on the release and migration of fission products in a sandy aquifer, AECL-6836,1983.
- 72) 五十嵐敏文、馬原保典、河西 基、他：核種地中移行に関する原位置試験(Ⅲ)、原子力学会「昭61分科会」、134 ,1986.
- 73) 福井正美：飽和土壌水中における放射性核種の非線形吸着モデルに関する研究、保健物理、16, 111 , 1981.

- 74) 福井正美：地質媒体中における放射性核種の吸着・移動モデル、原子力誌、**29**, 498, 1987.
- 75) 坂本義昭、牟田光治、佐藤正知、他：花崗岩中でのU(IV)の移動挙動、原子力学会「昭61分科会」、139, 1986.
- 76) Van der Loeff, R. M. M. , Waijers, D. A. : Mobility of trace elements in deep-sea sediments : The use of in-situ Kd values, Ref. (1), 181, 1986.
- 77) Evans, D. W. , Alberts, J. J, Clark III. R. A. : Reversible ion-exchange fixation of cesium-137 leading to mobilization from reservoir sediments , Geochemica Cosmochemica Acta , **47**. 1041, 1983.
- 78) Comans, R. N. J. , Middelburg, J. J. , Zonderhuis, J. et al : Mobilization of radiocesium in pore water of lake sediments , Nature , **339**, 367, 1989.
- 79) 馬原保典：フォールアウトPuの通気層中での移動及び分配係数の推定、原子力学会「昭58分科会」、260, 1983.
- 80) Avogadro, A. , Murray, C. N. , DE Plano, A. : Laboratory experimental development for the study of transuranic migration in porous media, Ref. (33), 137, 1979.
- 81) 福井正美：米国における低レベル放射性廃棄物の管理と処分、保健物理、**24**, 259, 1989.
- 82) Lu, A. H. , : Modeling of radionuclide migration , from a low-level radioactive waste burial site , Health Phys. , **34**, 39, 1978.
- 83) Travis, B. J. , Nuttall, H. E. : A transport code for radiocolloid migration , With an assessment of an actual low-level waste site, LA-UR 84-3954, 1984.
- 84) 加藤正平、藪田 肇：放射性廃棄物浅地中処分の安全評価に用いる分配係数、原子力誌、**28**, 344 , 1986.

(福井正美)

6. 分配係数 (Kd 値) の一覧表

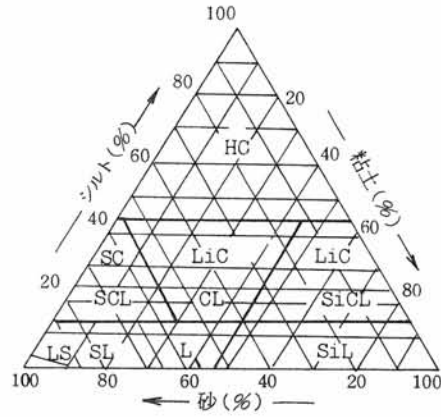
6-1 はじめに

土壌と土壌溶液の間の、元素の分配係数 (Kd 値) については、多くの測定結果が発表されており、それらをまとめたものとしては、日本では加藤・藪田両氏の報告 (加藤正平、藪田 肇: 放射性廃棄物浅地中処分の安全評価に用いる分配係数、日本原子力学会誌 28, 344 ~351, 1986.) があるが、これは各元素毎に、その Kd 値の範囲が示されている。しかしこれまでに記されているように、Kd 値は種々の因子による変動があるほか、土壌の種類による相異がかなり大きいと考えられる。そこで、これまでに発表されている Kd 値の中から、主として1980年以降に発表されたデータについて日本と諸外国で測定された値を、それぞれ土壌種別にまとめた。

6-2 土壌の分類

土壌分類の要点は次の通りである。

- 対象土壌は、岩石、砂、ローム、粘土、水中堆積物とし、これらの分類に含まれないものを土壌とした。諸外国の測定値については、岩石を花崗岩とその他の岩石、日本の測定値は、花崗岩、凝灰岩、その他の岩石とした。
砂、ローム、粘土の区別は、報告書に記されている分類に従い、またこれらの混合したものについて、その混合割合の明かなものについては、国際土壌学会法の組成分類 (図参照) に従って区分した。また、諸外国の測定値の中に泥炭のデータがあるので、これを一つの項とした。
- 水中堆積物は、諸外国の測定値について海水と淡水と分けた。日本の測定値には堆積物として分類されたものがなかったので、収集したデータから海水中浮遊物と海底土に分類した。日本の測定値は実験室におけるものが多く、主として淡水を用いた結果であった。
- 土壌は、施肥などの関係で、農耕土壌と非耕作土壌とで組成が異なると考えられるので、農耕土壌と明記されているものを別の項とした。



国際(土壌学会)法

S:sand LS:loamy sand SL:sandy loam L:loam
 SiL:silt loam SCL:sandy clay loam CL:clay loam
 SiCL:silty clay loam SC:sandy clay LiC:light clay
 SiC:silty clay EC:heavy clay Si:silt C:clay

第6-1図 粒径組成と土壌種の関係

6-3 分配係数(Kd)表

6-3-1 日本の土壌種別分配係数(Kd)表

(第6-1表 参照)

6-3-2 諸外国の土壌種別分配係数(Kd)表

(第6-2表 参照)

6-3-1 日本の土壌種別分配係数 (Kd) 表 (単位はml/g Data of soil/soil-solution distribution coefficients (Kd) obtained from various Japanese rock, soil, sediment etc.

	岩 石 (rock)			砂 (sand)	ローム (loam)	粘土 (clay)	土 壌 (soil)		海中 (suspended m)
	花 崗 岩 (granite)	凝 灰 岩 (tuff)	そ の 他 (others)				農 耕 土 (cultivated soil)	そ の 他 (others)	
Na		6.1×10^0 (31)		7.0×10^0 (31)		$7.0 \times 10^0 - 1.0 \times 10^3$ (24)			
Mg		3.7×10^2 (31)		1.1×10^2 (31)		$3.2 \times 10^1 - 1.2 \times 10^4$ (24)			
Al		6.3×10^5 (31)		5.4×10^5 (31)					
K		1.2×10^3 (31)		5.5×10^2 (31)		$2.8 \times 10^1 - 2.8 \times 10^3$ (24)			
Ca		1.5×10^3 (31)		8.5×10^1 (31)		$1.0 \times 10^3 - 3.0 \times 10^4$ (24)			
Cr		2.0×10^2 (31)		$2.0 \times 10^2 - 2.4 \times 10^2$ (27, 31)					
Mn		9.6×10^5 (31)		$4.0 \times 10^0 - 1.2 \times 10^4$ (1, 5, 27, 31, 34)		$7.0 \times 10^1 - 1.0 \times 10^4$ (1)			$2.9 \times 10^1 - 3.5 \times 10$
Fe				$5.0 \times 10^0 - 1.0 \times 10^3$ (1, 27)		$1.5 \times 10^1 - 5.0 \times 10^2$ (1)			
Co		3.2×10^3 (31)		$3.0 \times 10^0 - 4.2 \times 10^3$ (1, 5, 17, 27, 31, 32,) (33, 34)	$1.0 \times 10^1 - 3.3 \times 10^3$ (33, 39)	$2.0 \times 10^1 - 1.2 \times 10^4$ (1, 17, 24, 43)		$4.5 \times 10^1 - 3.0 \times 10^3$ (16, 35)	$5.9 \times 10^1 - 5.1 \times 10$
Ni		8.5×10^2 (31)		2.2×10^2 (31)					
Cu		7.5×10^3 (31)		3.9×10^2 (31)					
Zn		4.6×10^3 (31)		$2.0 \times 10^1 - 8.0 \times 10^3$ (1, 5, 27, 31)		$2.0 \times 10^2 - 4.0 \times 10^3$ (1)			$3.3 \times 10^1 - 2.4 \times 10$
Br		1.7×10^2 (31)		9.4×10^1 (31)					
Rb						$8.8 \times 10^2 - 1.3 \times 10^3$ (24)			
Sr	$0 - 2.0 \times 10^1$ (6, 20, 25)	1.5×10^3 (31)	1.8×10^1 (9)	$5.0 \times 10^{-1} - 6.8 \times 10^2$ (1, 4, 5, 13, 17, 26,) (27, 32, 33)	$5.0 \times 10^{-1} - 2.7 \times 10^3$ (26, 28, 33, 39)	$1.0 \times 10^1 - 9.0 \times 10^3$ (1, 13, 17, 18, 22, 24,) (27, 43)		$3.0 \times 10^1 - 4.0 \times 10^2$ (35)	$7.7 \times 10^0 - 1.0 \times 10$
Mo				$1.0 \times 10^0 - 2.7 \times 10^2$ (1)		$1.3 \times 10^1 - 4.0 \times 10^2$ (1)			
Tc	$2.7 \times 10^0 - 6.0 \times 10^1$ (8, 25)	$3.0 \times 10^0 - 5.9 \times 10^2$ (8, 25)	$1.9 \times 10^0 - 6.4 \times 10^2$ (8, 21)						
Ru				$9.0 \times 10^1 - 8.0 \times 10^2$ (5, 27)					
Ag				$1.0 \times 10^1 - 4.0 \times 10^3$ (1, 27)		$8.0 \times 10^1 - 3.0 \times 10^2$ (1)			
Cd				$1.5 \times 10^1 - 8.7 \times 10^2$ (5)					
Sn				$2.0 \times 10^2 - 1.0 \times 10^3$ (27)					
I		1.9×10^2 (31)		4.0×10^1 (31)			$6.8 \times 10^1 - 1.9 \times 10^2$ (40)		
Cs	$2.6 \times 10^0 - 1.5 \times 10^3$ (3, 7, 10, 23, 25)	$1.0 \times 10^0 - 1.1 \times 10^5$ (23, 25, 31)	$3.3 \times 10^1 - 6.0 \times 10^3$ (9, 22, 23)	$3.0 \times 10^0 - 8.0 \times 10^3$ (1, 7, 4, 5, 13, 17, 26,) (27, 32, 33)	$1.0 \times 10^0 - 2.5 \times 10^3$ (26, 33, 39)	$5.0 \times 10^1 - 7.0 \times 10^4$ (1, 13, 17, 22, 26, 41,) (43)		$5.0 \times 10^1 - 3.0 \times 10^3$ (16, 35)	$2.9 \times 10^0 - 1.7 \times 10$
Ba		4.2×10^3 (31)		$2.0 \times 10^1 - 8.8 \times 10^4$ (27, 31)		$3.3 \times 10^2 - 3.6 \times 10^3$ (24)			
Ce				$5.0 \times 10^2 - 2.0 \times 10^3$ (5, 27)					
Pb		3.3×10^4 (31)		4.2×10^3 (31)					
Th				8.0×10^2 (31)					
Pa	$2.4 \times 10^0 - 7.3 \times 10^0$ (19)	$1.5 \times 10^0 - 6.5 \times 10^1$ (19)	$3.7 \times 10^{-1} - 2.1 \times 10^1$ (19)						
U		4.2×10^3 (31)	$2.0 \times 10^2 - 1.0 \times 10^3$ (15)	4.6×10^3 (31)					
Np	$8.0 \times 10^{-1} - 2.2 \times 10^0$ (19)	$2.1 \times 10^0 - 7.5 \times 10^0$ (19)	$4.0 \times 10^{-1} - 2.0 \times 10^0$ (19, 30, 37)						
Pu		$3.6 \times 10^3 - 3.7 \times 10^3$ (25, 38)		$3.7 \times 10^2 - 1.9 \times 10^3$ (38)	$2.4 \times 10^3 - 4.6 \times 10^3$ (38)	$6.0 \times 10^2 - 7.0 \times 10^2$ (12)			
Am	$1.7 \times 10^2 - 1.7 \times 10^4$ (11, 19)	$5.0 \times 10^1 - 4.9 \times 10^3$ (11, 19)	4.2×10^3 (19)	$1.0 \times 10^1 - 1.0 \times 10^3$ (29)	$6.0 \times 10^1 - 7.0 \times 10^4$ (27)	$1.6 \times 10^3 - 3.5 \times 10^4$ (26)			

(単位はml/g Data of soil/soil-solution distribution coefficients (Kd) obtained from various Japanese rock, soil, sediment etc.

石 (rock)		砂 (sand)	ローム (loam)	粘土 (clay)	土 壤 (soil)		海中浮遊物 (suspended matter in the sea)	海底土 (coastal sediment)
灰岩 (tuff)	その他 (others)				農耕土 (cultivated soil)	その他 (others)		
		7.0×10^0 (31)		$7.0 \times 10^0 - 1.0 \times 10^3$ (24)				
		1.1×10^2 (31)		$3.2 \times 10^1 - 1.2 \times 10^4$ (24)				
		5.4×10^5 (31)						
		5.5×10^2 (31)		$2.8 \times 10^1 - 2.8 \times 10^3$ (24)				
		8.5×10^1 (31)		$1.0 \times 10^3 - 3.0 \times 10^4$ (24)				
		$2.0 \times 10^2 - 2.4 \times 10^2$ (27, 31)						
		$4.0 \times 10^0 - 1.2 \times 10^4$ (1, 5, 27, 31, 34)		$7.0 \times 10^1 - 1.0 \times 10^4$ (1)			$2.9 \times 10^1 - 3.5 \times 10^4$ (36)	1.1×10^4 (44)
		$5.0 \times 10^0 - 1.0 \times 10^3$ (1, 27)		$1.5 \times 10^1 - 5.0 \times 10^2$ (1)				
		$3.0 \times 10^0 - 4.2 \times 10^3$ (1, 5, 17, 27, 31, 32, 33, 34)	$1.0 \times 10^1 - 3.3 \times 10^3$ (33, 39)	$2.0 \times 10^1 - 1.2 \times 10^4$ (1, 17, 24, 43)		$4.5 \times 10^1 - 3.0 \times 10^3$ (16, 35)	$5.9 \times 10^1 - 5.1 \times 10^4$ (36)	1.3×10^4 (44)
		2.2×10^2 (31)						
		3.9×10^2 (31)						
		$2.0 \times 10^1 - 8.0 \times 10^3$ (1, 5, 27, 31)		$2.0 \times 10^2 - 4.0 \times 10^3$ (1)			$3.3 \times 10^1 - 2.4 \times 10^3$ (36)	3.1×10^3 (44)
		9.4×10^1 (31)						
				$8.8 \times 10^2 - 1.3 \times 10^3$ (24)				
	1.8×10^1 (9)	$5.0 \times 10^{-1} - 6.8 \times 10^2$ (1, 4, 5, 13, 17, 26, 27, 32, 33)	$5.0 \times 10^{-1} - 2.7 \times 10^3$ (26, 28, 33, 39)	$1.0 \times 10^1 - 9.0 \times 10^3$ (1, 13, 17, 18, 22, 24, 27, 43)		$3.0 \times 10^1 - 4.0 \times 10^2$ (35)	$7.7 \times 10^0 - 1.0 \times 10^2$ (36)	3.8×10^0 (44)
		$1.0 \times 10^0 - 2.7 \times 10^2$ (1)		$1.3 \times 10^1 - 4.0 \times 10^2$ (1)				
5.9×10^2 (8, 25)	$1.9 \times 10^0 - 6.4 \times 10^2$ (8, 21)							
		$9.0 \times 10^1 - 8.0 \times 10^2$ (5, 27)						
		$1.0 \times 10^1 - 4.0 \times 10^3$ (1, 27)		$8.0 \times 10^1 - 3.0 \times 10^2$ (1)				
		$1.6 \times 10^1 - 8.7 \times 10^2$ (5)						
		$2.0 \times 10^2 - 1.0 \times 10^3$ (27)						
		4.0×10^1 (31)				$6.8 \times 10^1 - 1.9 \times 10^2$ (40)		
1.1×10^5 (23, 25, 31)	$3.3 \times 10^1 - 6.0 \times 10^3$ (9, 22, 23)	$3.0 \times 10^0 - 8.0 \times 10^3$ (1, 2, 4, 5, 13, 17, 26, 27, 32, 33)	$1.0 \times 10^0 - 2.5 \times 10^3$ (26, 33, 39)	$5.0 \times 10^1 - 7.0 \times 10^4$ (1, 13, 17, 22, 26, 41, 43)		$5.0 \times 10^1 - 3.0 \times 10^3$ (16, 35)	$2.9 \times 10^0 - 1.7 \times 10^2$ (36)	$1.0 \times 10^2 - 2.7 \times 10^2$ (42, 44)
		$2.0 \times 10^1 - 8.8 \times 10^4$ (27, 31)		$3.3 \times 10^2 - 3.6 \times 10^3$ (24)				
		$5.0 \times 10^2 - 2.0 \times 10^3$ (5, 27)						
		4.2×10^3 (31)						
		8.0×10^2 (31)						
6.5×10^1 (19)	$3.7 \times 10^{-1} - 2.1 \times 10^1$ (19)							
	$2.0 \times 10^2 - 1.0 \times 10^3$ (15)	4.6×10^3 (31)						
1.5×10^0 (19)	$4.0 \times 10^{-1} - 2.0 \times 10^0$ (19, 30, 37)							
3.7×10^3 (25, 38)		$9.7 \times 10^2 - 1.9 \times 10^3$ (38)	$2.4 \times 10^3 - 4.6 \times 10^3$ (38)	$6.0 \times 10^2 - 7.0 \times 10^2$ (12)				$1.0 \times 10^4 - 4.8 \times 10^5$ (14)
4.9×10^3 (11, 19)	4.2×10^3 (19)	$1.0 \times 10^1 - 1.0 \times 10^3$ (29)	$6.0 \times 10^1 - 7.0 \times 10^4$ (27)	$1.6 \times 10^3 - 3.5 \times 10^4$ (26)				

6-3-2 諸外国の土壌種別分配係数 (Kd) 表 (単位はml/g) Data of soil/soil-solution distribution coefficients (Kd) obtained from foreign rock, soil.

	岩 石 (rock)		砂 (sand)	ローム (loam)	粘 土 (clay)	土 壌 (soil)		泥 炭 (peat)	堆 積 物 (sediment)	
	花 崗 岩 (granite)	そ の 他 (others)				農 耕 土 (cultivated soil)	そ の 他 (others)		海 水 (sea water)	淡 水 (fresh w)
C	0 (11)	$3.5 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$ (11)	$8.0 \times 10^{-1} \sim 2.6 \times 10^0$ (11)		$1.3 \times 10^0 \sim 8.6 \times 10^0$ (11)					
Na									$1.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^2$ (22, 33)	1.0×10^2 (22)
Cl					$4.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^2$ (51)				1.0×10^0 (22, 33)	1.0×10^0 (22)
Ca					$6.2 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^3$ (51)	$3.0 \times 10^3 \sim 5.0 \times 10^3$ (25)			$1.0 \times 10^2 \sim 1.6 \times 10^2$ (33)	
Cr			1.0×10^2 (40)	1.0×10^3 (40)		$4.8 \times 10^2 \sim 7.4 \times 10^3$ (25)	$6.0 \times 10^0 \sim 2.6 \times 10^2$ (41)		$1.0 \times 10^4 \sim 3.6 \times 10^5$ (22, 33)	3.0×10^4 (22)
Mn					$5.4 \times 10^1 \sim 4.1 \times 10^3$ (12)	$4.9 \times 10^1 \sim 3.0 \times 10^2$ (12, 25)	$1.9 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^2$ (22)		$1.0 \times 10^4 \sim 2.6 \times 10^7$ (22, 33)	$1.0 \times 10^4 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)
Fe				4.9×10^2 (40)		$2.2 \times 10^2 \sim 2.6 \times 10^3$ (25)	$4.0 \times 10^0 \sim 3.0 \times 10^0$ (22)		$4.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^8$ (22, 33)	$4.0 \times 10^3 \sim 9.0 \times 10^7$ (22)
Co		$1.2 \times 10^2 \sim 1.1 \times 10^5$ (8, 43, 44, 47)	$1.0 \times 10^2 \sim 4.8 \times 10^3$ (24, 38)		$2.0 \times 10^0 \sim 1.2 \times 10^4$ (8, 12, 21, 32, 38, 43, 44, 47)	$1.4 \times 10^2 \sim 3.6 \times 10^3$ (12, 25, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^5$ (8, 10, 22, 26, 27, 35)	$1.2 \times 10^2 \sim 4.5 \times 10^3$ (29)	$2.0 \times 10^4 \sim 6.7 \times 10^6$ (22, 33)	$5.0 \times 10^1 \sim 4.8 \times 10^3$ (22, 2)
Ni					1.3×10^3 (51)	$2.0 \times 10^3 \sim 3.3 \times 10^3$ (25)	2.0×10^1 (22)		2.5×10^4 (22)	$3.9 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^4$ (22, 3)
Cu						$1.4 \times 10^2 \sim 8.7 \times 10^2$ (25)				1.4×10^3 (39)
Zn					$3.0 \times 10^3 \sim 2.8 \times 10^4$ (12)	$5.9 \times 10^2 \sim 5.1 \times 10^3$ (12, 25, 48)	1.0×10^2 (22)		$1.0 \times 10^4 \sim 6.1 \times 10^5$ (33)	$2.0 \times 10^3 \sim 8.0 \times 10^5$ (22, 3)
As									1.1×10^5 (33)	1.5×10^3 (39)
Se		$3.0 \times 10^{-2} \sim 7.6 \times 10^0$ (2, 36)					$2.0 \times 10^0 \sim 7.0 \times 10^1$ (22, 45)	$3.5 \times 10^0 \sim 1.5 \times 10^3$ (45)	$1.0 \times 10^3 \sim 1.3 \times 10^4$ (22, 33)	$3.1 \times 10^2 \sim 2.4 \times 10^4$ (22)
Br							2.0×10^0 (22)		$1.0 \times 10^0 \sim 1.9 \times 10^0$ (22, 33)	
Rb									$1.0 \times 10^2 \sim 2.5 \times 10^2$ (22, 33)	1.0×10^4 (22)
Sr	$0 \sim 9.0 \times 10^1$ (11, 18)	$0 \sim 6.8 \times 10^4$ (2, 8, 11, 16, 18, 43, 44, 51, 56)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.7 \times 10^2$ (1, 6, 9, 13, 19, 24, 38, 46, 58)	$9.0 \times 10^{-1} \sim 1.5 \times 10^2$ (24)	$1.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^5$ (5, 8, 12, 14, 16, 17, 21, 43, 44, 46, 47, 52)	$1.3 \times 10^1 \sim 3.5 \times 10^1$ (12, 31, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 3.0 \times 10^3$ (8, 10, 26, 35)	$2.0 \times 10^2 \sim 4.8 \times 10^3$ (29)	$1.0 \times 10^1 \sim 2.1 \times 10^2$ (22)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^3$ (22, 3)
Zr	$1.0 \times 10^3 \sim 3.2 \times 10^3$ (18)								$6.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)	2.1×10^3 (29)
Nb					6.0×10^3 (51)				$5.3 \times 10^2 \sim 8.3 \times 10^5$ (22)	$1.0 \times 10^5 \sim 1.0 \times 10^6$ (23)
Mo							$7.7 \times 10^0 \sim 5.0 \times 10^1$ (22, 41)		2.5×10^2 (22)	$2.8 \times 10^2 \sim 3.0 \times 10^2$ (22, 31)
Tc	$0 \sim 7.9 \times 10^1$ (18)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 6.0 \times 10^2$ (2, 4, 16, 18, 36)	2.0×10^{-1} (53)	$0 \sim 9.0 \times 10^{-1}$ (40)	$0 \sim 1.0 \times 10^0$ (5, 16)	$1.5 \times 10^{-1} \sim 8.9 \times 10^{-1}$ (31, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 2.3 \times 10^0$ (22, 26, 41)	2.0×10^0 (42)	1.0×10^2 (22)	1.0×10^2 (22)
Ru		2.1×10^2 (18)	$5.0 \times 10^0 \sim 4.9 \times 10^2$ (46)		8.0×10^2 (46)	$2.3 \times 10^1 \sim 2.0 \times 10^2$ (31, 48)	$1.0 \times 10^0 \sim 5.8 \times 10^2$ (22, 26, 27)	$3.9 \times 10^4 \sim 8.7 \times 10^4$ (29)	$1.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)	$1.5 \times 10^2 \sim 2.0 \times 10^3$ (22, 25)
Ag							5.0×10^1 (22)		2.0×10^3 (22)	4.0×10^3 (22)
Cd						$3.1 \times 10^2 \sim 4.5 \times 10^2$ (25)	$3.2 \times 10^1 \sim 5.0 \times 10^1$ (22)		$1.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)	$5.0 \times 10^2 \sim 4.0 \times 10^3$ (22)
Sn									$1.0 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^5$ (22)	$1.0 \times 10^4 \sim 5.0 \times 10^4$ (22)
Sb							$4.0 \times 10^0 \sim 4.0 \times 10^3$ (22, 26, 27)		$3.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^4$ (22)	$3.0 \times 10^2 \sim 7.6 \times 10^2$ (22)
I	$0 \sim 7.9 \times 10^1$ (18)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^3$ (2, 11, 16, 43, 54)			$5.0 \times 10^{-1} \sim 1.5 \times 10^3$ (16, 54)	$5.2 \times 10^0 \sim 1.8 \times 10^1$ (31, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 3.7 \times 10^2$ (22, 26, 41, 45, 54, 55)	$2.0 \times 10^{-1} \sim 3.1 \times 10^2$ (42, 45)	$1.3 \times 10^{-1} \sim 9.0 \times 10^1$ (22, 60)	$3.0 \times 10^2 \sim 3.0 \times 10^3$ (22)
Cs	$1.0 \times 10^0 \sim 8.4 \times 10^3$ (11, 18, 20, 37)	$1.0 \times 10^0 \sim 1.9 \times 10^5$ (2, 3, 8, 11, 16, 18, 20, 43, 44, 47, 51, 56)	$6.0 \times 10^0 \sim 3.8 \times 10^3$ (1, 24, 27, 38, 46)		$4.0 \times 10^{-1} \sim 1.1 \times 10^5$ (3, 8, 12, 14, 16, 17, 21, 32, 38, 43, 44, 46, 47, 51, 52)	$2.0 \times 10^2 \sim 1.7 \times 10^4$ (12, 31, 48)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^4$ (8, 10, 22, 26, 27, 35, 41, 45)	$8.0 \times 10^0 \sim 1.5 \times 10^5$ (29, 45)	$2.0 \times 10^{-1} \sim 3.4 \times 10^4$ (22, 59)	$3.6 \times 10^0 \sim 2.5 \times 10^3$ (22, 24)
Ba		$6.8 \times 10^1 \sim 4.7 \times 10^2$ (18)							$1.0 \times 10^3 \sim 3.0 \times 10^4$ (33)	
Ce	$2.0 \times 10^1 \sim 2.5 \times 10^4$ (18)	$5.7 \times 10^1 \sim 5.2 \times 10^3$ (18)				$6.2 \times 10^2 \sim 2.5 \times 10^4$ (31, 48)			$1.0 \times 10^3 \sim 7.4 \times 10^7$ (22, 33)	$6.0 \times 10^2 \sim 5.0 \times 10^4$ (22)
Nd	$1.6 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^4$ (18)									
Sm					$4.0 \times 10^0 \sim 4.9 \times 10^1$ (21)				1.0×10^7 (22)	6.0×10^4 (22)
Eu	$7.9 \times 10^3 \sim 3.2 \times 10^4$ (18)	$1.1 \times 10^1 \sim 2.6 \times 10^4$ (5, 18)			$1.0 \times 10^1 \sim 5.6 \times 10^3$ (5, 14, 21)		$3.7 \times 10^1 \sim 1.7 \times 10^5$ (10)		$1.0 \times 10^6 \sim 1.4 \times 10^7$ (22, 33)	1.0×10^4 (22)
Pb		$1.0 \times 10^1 \sim 1.9 \times 10^2$ (36)					3×10^4 (45)	$1.7 \times 10^3 \sim 6.0 \times 10^4$ (45)		$1.0 \times 10^3 \sim 4.8 \times 10^3$ (39)
Ra	$1.0 \times 10^7 \sim 5.0 \times 10^2$ (18)									2.9×10^3 (39)
Th	$5.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^4$ (18)		$2.8 \times 10^2 \sim 5.8 \times 10^3$ (15, 46)		$7.0 \times 10^2 \sim 2.4 \times 10^4$ (15, 17, 46)		$2.2 \times 10^2 \sim 1.3 \times 10^3$ (41)		$1.0 \times 10^6 \sim 1.9 \times 10^8$ (33)	
Pa			1.2×10^3 (15)		$7.0 \times 10^2 \sim 5.0 \times 10^3$ (15, 17)					
U	$4.0 \times 10^0 \sim 5.0 \times 10^1$ (18, 50)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^5$ (2, 7, 11, 16, 18, 50, 56)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 2.2 \times 10^3$ (32, 40, 46)	$2.0 \times 10^0 \sim 7.3 \times 10^1$ (40)	$2.0 \times 10^0 \sim 6.5 \times 10^2$ (16, 17, 21, 46, 50)		$1.0 \times 10^{-1} \sim 3.0 \times 10^5$ (41, 45)	$2.8 \times 10^1 \sim 1.9 \times 10^4$ (42, 45)	$5.6 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^3$ (33)	$1.2 \times 10^1 \sim 9.4 \times 10^3$ (39)
Np	$1.0 \times 10^1 \sim 2.2 \times 10^2$ (11, 22, 18, 50)	$2.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$ (2, 11, 16, 18, 22, 50)	$8.0 \times 10^0 \sim 3.9 \times 10^1$ (22, 28)	$8.0 \times 10^0 \sim 1.4 \times 10^2$ (22)	$2.0 \times 10^1 \sim 2.7 \times 10^2$ (16, 17, 22, 50)	$7.9 \times 10^2 \sim 9.3 \times 10^2$ (22)	$1.6 \times 10^{-1} \sim 3.3 \times 10^2$ (22, 41)	$3.1 \times 10^1 \sim 2.6 \times 10^3$ (42)	$9.9 \times 10^2 \sim 2.0 \times 10^4$ (22)	
Pu	$1.5 \times 10^1 \sim 9.4 \times 10^2$ (18, 50)	$1.5 \times 10^1 \sim 1.7 \times 10^5$ (2, 5, 11, 18, 50)	$3.2 \times 10^1 \sim 1.8 \times 10^3$ (15, 46)		$4.0 \times 10^1 \sim 4.0 \times 10^4$ (5, 15, 17, 46, 50)		$7.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$ (22, 28)		$4.5 \times 10^{-1} \sim 2.5 \times 10^6$ (22)	$1.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^7$ (22)
Am	$2.5 \times 10^3 \sim 3.2 \times 10^4$ (11, 18)	$1.0 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^7$ (2, 5, 8, 11, 16, 18, 51)	$7.5 \times 10^1 \sim 8.0 \times 10^2$ (15, 28)		$4.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^7$ (5, 8, 15, 16, 17, 21)		$6.9 \times 10^0 \sim 1.2 \times 10^6$ (8, 10, 22)	$1.2 \times 10^5 \sim 4.5 \times 10^6$ (29)	$1.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^6$ (22)	$1.0 \times 10^3 \sim 1.7 \times 10^6$ (22, 29)
Cm			$6.0 \times 10^1 \sim 2.5 \times 10^4$ (22)	$9.3 \times 10^1 \sim 3.1 \times 10^4$ (22)	$3.0 \times 10^0 \sim 5.2 \times 10^4$ (21, 22)	$5.1 \times 10^3 \sim 6.8 \times 10^3$ (22)	$9.6 \times 10^1 \sim 5.2 \times 10^4$ (22)		$5.0 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^6$ (22)	$1.0 \times 10^3 \sim 2.3 \times 10^6$ (22, 57)

2 諸外国の土壌種別分配係数 (Kd) 表 (単位はml/g) Data of soil/soil-solution distribution coefficients (Kd) obtained from foreign rock, soil.

岩 石 (rock)		砂 (sand)	ローム (loam)	粘土 (clay)	土 壌 (soil)		泥 炭 (peat)	堆 積 物 (sediment)	
花 崗 岩 (granite)	そ の 他 (others)				農 耕 土 (cultivated soil)	そ の 他 (others)		海 水 (sea water)	淡 水 (fresh water)
11)	$3.5 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$ (11)	$8.0 \times 10^{-1} \sim 2.6 \times 10^0$ (11)		$1.3 \times 10^0 \sim 8.6 \times 10^0$ (11)				$1.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^2$ (22, 33)	1.0×10^2 (22)
				$4.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^1$ (51)				1.0×10^0 (22, 33)	1.0×10^0 (22)
				$6.2 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^3$ (51)	$3.0 \times 10^2 \sim 5.0 \times 10^3$ (25)			$1.0 \times 10^2 \sim 1.6 \times 10^2$ (33)	
		1.0×10^2 (40)	1.0×10^3 (40)		$4.8 \times 10^2 \sim 7.4 \times 10^3$ (25)	$6.0 \times 10^0 \sim 2.6 \times 10^2$ (41)		$1.0 \times 10^4 \sim 3.6 \times 10^5$ (22, 33)	3.0×10^4 (22)
				$3.4 \times 10^1 \sim 4.1 \times 10^3$ (12)	$4.5 \times 10^1 \sim 3.0 \times 10^2$ (12, 25)	$1.9 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^2$ (22)		$1.0 \times 10^4 \sim 2.6 \times 10^7$ (22, 33)	$1.0 \times 10^4 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)
			4.9×10^2 (40)		$2.2 \times 10^2 \sim 2.6 \times 10^3$ (25)	$4.0 \times 10^0 \sim 3.0 \times 10^0$ (22)		$4.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^8$ (22, 33)	$4.0 \times 10^3 \sim 9.0 \times 10^7$ (22)
	$1.2 \times 10^2 \sim 1.1 \times 10^5$ (8, 43, 44, 47)	$1.0 \times 10^2 \sim 4.8 \times 10^3$ (24, 38)		$2.0 \times 10^0 \sim 1.2 \times 10^4$ (8, 12, 21, 32, 38, 43, 44, 47)	$1.4 \times 10^2 \sim 3.6 \times 10^3$ (12, 25, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^5$ (8, 10, 22, 26, 27, 35)	$1.2 \times 10^2 \sim 4.5 \times 10^3$ (29)	$2.0 \times 10^4 \sim 6.7 \times 10^6$ (22, 33)	$5.0 \times 10^1 \sim 4.8 \times 10^3$ (22, 24, 29)
				1.3×10^3 (51)	$2.0 \times 10^3 \sim 3.9 \times 10^3$ (25)	2.0×10^1 (22)		2.5×10^4 (22)	$3.9 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^4$ (22, 33)
					$1.4 \times 10^2 \sim 8.7 \times 10^2$ (25)				1.4×10^3 (39)
				$3.0 \times 10^3 \sim 2.8 \times 10^4$ (12)	$5.9 \times 10^2 \sim 5.1 \times 10^3$ (12, 25, 48)	1.0×10^2 (22)		$1.0 \times 10^4 \sim 5.1 \times 10^5$ (33)	$2.0 \times 10^3 \sim 8.0 \times 10^5$ (22, 33)
								1.3×10^5 (39)	1.5×10^3 (39)
	$3.0 \times 10^{-2} \sim 7.6 \times 10^0$ (2, 36)					$2.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^1$ (22, 45)	$3.5 \times 10^0 \sim 1.5 \times 10^3$ (45)	$1.0 \times 10^3 \sim 1.3 \times 10^4$ (22, 33)	$3.1 \times 10^2 \sim 2.4 \times 10^4$ (22)
						2.0×10^0 (22)		$1.0 \times 10^0 \sim 1.9 \times 10^0$ (22, 33)	
								$1.0 \times 10^2 \sim 2.5 \times 10^2$ (22, 33)	1.0×10^4 (22)
9.0×10^1 (11, 18)	$0 \sim 6.8 \times 10^4$ (2, 8, 11, 16, 18, 43, 44, 51, 56)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.7 \times 10^2$ (1, 6, 9, 13, 19, 24, 38, 46, 58)	$9.0 \times 10^{-1} \sim 1.5 \times 10^2$ (24)	$1.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^5$ (5, 8, 12, 14, 16, 17, 21, 43, 44, 46, 47, 52)	$1.9 \times 10^1 \sim 3.5 \times 10^1$ (12, 31, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 3.0 \times 10^3$ (8, 10, 26, 35)	$2.0 \times 10^2 \sim 4.8 \times 10^3$ (29)	$1.0 \times 10^1 \sim 3.1 \times 10^2$ (22)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^3$ (22, 24, 29)
$1 \times 10^3 \sim 3.2 \times 10^3$ (18)								$5.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)	2.1×10^3 (29)
				6.0×10^3 (51)				$5.3 \times 10^2 \sim 8.3 \times 10^5$ (22)	$1.0 \times 10^5 \sim 1.0 \times 10^6$ (29)
						$7.7 \times 10^0 \sim 5.0 \times 10^1$ (22, 41)		2.5×10^2 (22)	$2.8 \times 10^2 \sim 3.0 \times 10^2$ (22, 33)
7.9×10^1 (18)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 6.0 \times 10^2$ (2, 4, 16, 18, 36)	2.0×10^{-1} (53)	$0 \sim 9.0 \times 10^{-1}$ (40)	$0 \sim 1.0 \times 10^0$ (5, 16)	$1.5 \times 10^{-1} \sim 8.9 \times 10^{-1}$ (31, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 2.3 \times 10^0$ (22, 26, 41)	2.0×10^0 (42)	1.0×10^2 (22)	1.0×10^2 (22)
	2.1×10^2 (18)	$5.0 \times 10^0 \sim 4.9 \times 10^2$ (46)		8.0×10^2 (46)	$2.9 \times 10^1 \sim 2.0 \times 10^2$ (31, 48)	$1.0 \times 10^0 \sim 5.8 \times 10^2$ (22, 26, 27)	$3.9 \times 10^4 \sim 8.7 \times 10^4$ (29)	$1.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)	$1.5 \times 10^2 \sim 2.0 \times 10^3$ (22, 29)
						5.0×10^1 (22)		2.0×10^3 (22)	4.0×10^3 (22)
					$3.1 \times 10^2 \sim 4.5 \times 10^2$ (25)	$3.2 \times 10^1 \sim 5.0 \times 10^1$ (22)		$1.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^5$ (22)	$5.0 \times 10^2 \sim 4.0 \times 10^3$ (22)
								$1.0 \times 10^4 \sim 2.0 \times 10^5$ (22)	$1.0 \times 10^4 \sim 5.0 \times 10^4$ (22)
						$4.0 \times 10^0 \sim 4.0 \times 10^3$ (22, 26, 27)		$3.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^4$ (22)	$3.0 \times 10^2 \sim 7.6 \times 10^2$ (22)
7.9×10^1 (18)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^3$ (2, 11, 16, 43, 54)			$5.0 \times 10^{-1} \sim 1.5 \times 10^3$ (16, 54)	$5.2 \times 10^0 \sim 1.8 \times 10^1$ (31, 48)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 3.7 \times 10^2$ (22, 26, 41, 45, 54)	$2.0 \times 10^{-1} \sim 3.1 \times 10^2$ (42, 45)	$1.3 \times 10^{-1} \sim 9.0 \times 10^1$ (22, 50)	$3.0 \times 10^2 \sim 3.0 \times 10^3$ (22)
$1 \times 10^0 \sim 8.4 \times 10^3$ (11, 18, 20, 37)	$1.0 \times 10^0 \sim 1.9 \times 10^5$ (2, 3, 8, 11, 16, 18, 20, 43, 44, 47, 51, 56)	$6.0 \times 10^0 \sim 3.8 \times 10^3$ (1, 24, 27, 38, 46)		$4.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^5$ (5, 8, 12, 14, 16, 17, 21, 43, 44, 46, 47, 51, 52)	$2.0 \times 10^2 \sim 1.7 \times 10^4$ (12, 31, 48)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^4$ (8, 10, 22, 26, 27, 35, 41, 45)	$8.0 \times 10^0 \sim 1.5 \times 10^5$ (29, 45)	$2.0 \times 10^{-1} \sim 3.4 \times 10^4$ (22, 50)	$3.6 \times 10^0 \sim 2.5 \times 10^3$ (22, 24, 29, 59)
	$6.8 \times 10^1 \sim 4.7 \times 10^2$ (18)							$1.0 \times 10^3 \sim 3.0 \times 10^4$ (33)	
$1 \times 10^1 \sim 2.5 \times 10^4$ (18)	$5.7 \times 10^1 \sim 5.2 \times 10^3$ (18)				$6.2 \times 10^2 \sim 2.5 \times 10^4$ (31, 48)			$1.0 \times 10^3 \sim 7.4 \times 10^7$ (22, 33)	$6.0 \times 10^2 \sim 5.0 \times 10^4$ (22)
$1 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^4$ (18)				$4.0 \times 10^0 \sim 4.9 \times 10^1$ (21)					1.0×10^7 (22)
$1 \times 10^3 \sim 3.2 \times 10^4$ (18)	$1.1 \times 10^1 \sim 2.6 \times 10^4$ (5, 18)			$1.0 \times 10^1 \sim 5.6 \times 10^3$ (5, 14, 21)		$3.7 \times 10^1 \sim 1.7 \times 10^5$ (10)		$1.0 \times 10^6 \sim 1.4 \times 10^7$ (22, 33)	1.0×10^4 (22)
	$1.0 \times 10^1 \sim 1.9 \times 10^2$ (36)					3×10^4 (45)	$1.7 \times 10^3 \sim 6.0 \times 10^4$ (45)		$1.0 \times 10^3 \sim 4.8 \times 10^3$ (39)
$1 \times 10^2 \sim 5.0 \times 10^2$ (18)									2.9×10^3 (39)
$1 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^4$ (18)		$2.8 \times 10^2 \sim 5.8 \times 10^3$ (15, 46)		$7.0 \times 10^2 \sim 2.4 \times 10^4$ (15, 17, 46)		$2.2 \times 10^2 \sim 1.3 \times 10^3$ (41)		$1.0 \times 10^5 \sim 1.9 \times 10^6$ (33)	
		1.2×10^3 (15)		$7.0 \times 10^2 \sim 5.0 \times 10^3$ (15, 17)					
$1 \times 10^0 \sim 5.0 \times 10^1$ (18, 50)	$3.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^5$ (2, 7, 11, 16, 18, 50)	$1.0 \times 10^{-1} \sim 2.2 \times 10^3$ (33, 40, 46)	$2.0 \times 10^0 \sim 7.3 \times 10^1$ (40)	$2.0 \times 10^0 \sim 6.5 \times 10^2$ (16, 17, 21, 46, 50)		$1.0 \times 10^{-1} \sim 3.0 \times 10^5$ (41, 45)	$2.8 \times 10^1 \sim 1.9 \times 10^4$ (42, 45)	$5.6 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^3$ (33)	$1.2 \times 10^1 \sim 9.4 \times 10^3$ (39)
$1 \times 10^1 \sim 2.2 \times 10^2$ (11, 22, 18, 50)	$2.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$ (2, 11, 16, 18, 22, 50)	$8.0 \times 10^0 \sim 3.9 \times 10^1$ (22, 28)	$3.0 \times 10^0 \sim 1.4 \times 10^2$ (22)	$2.0 \times 10^1 \sim 2.7 \times 10^2$ (16, 17, 22, 50)	$7.9 \times 10^2 \sim 3.3 \times 10^2$ (22)	$1.6 \times 10^{-1} \sim 9.9 \times 10^2$ (22, 41)	$3.1 \times 10^1 \sim 2.6 \times 10^3$ (42)	$8.9 \times 10^2 \sim 2.0 \times 10^4$ (22)	
$1 \times 10^1 \sim 9.4 \times 10^2$ (18, 50)	$1.5 \times 10^1 \sim 1.7 \times 10^5$ (2, 5, 11, 18, 50)	$3.2 \times 10^1 \sim 1.8 \times 10^3$ (15, 46)		$4.0 \times 10^1 \sim 4.0 \times 10^4$ (5, 15, 17, 46, 50)		$7.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^4$ (22, 26)		$4.5 \times 10^{-1} \sim 2.5 \times 10^6$ (22)	$1.0 \times 10^2 \sim 1.0 \times 10^7$ (22)
$1 \times 10^3 \sim 3.2 \times 10^4$ (11, 18)	$1.0 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^7$ (2, 5, 8, 11, 16, 18, 51)	$7.5 \times 10^1 \sim 8.0 \times 10^2$ (15, 28)		$4.0 \times 10^0 \sim 1.0 \times 10^7$ (5, 8, 15, 16, 17, 21)		$6.9 \times 10^0 \sim 1.2 \times 10^6$ (8, 10, 22)	$1.2 \times 10^5 \sim 4.5 \times 10^5$ (29)	$1.0 \times 10^3 \sim 1.0 \times 10^6$ (22)	$1.0 \times 10^3 \sim 1.7 \times 10^6$ (22, 29, 57)
		$6.0 \times 10^1 \sim 2.5 \times 10^4$ (22)	$9.9 \times 10^1 \sim 3.1 \times 10^4$ (22)	$3.0 \times 10^0 \sim 5.2 \times 10^4$ (21, 22)	$5.1 \times 10^2 \sim 5.8 \times 10^3$ (22)	$9.8 \times 10^1 \sim 5.2 \times 10^4$ (22)		$5.0 \times 10^1 \sim 1.0 \times 10^6$ (22)	$1.0 \times 10^3 \sim 2.3 \times 10^6$ (22, 57)

6-4 参考文献

分配係数一覧表をまとめるために収集した文献を参考文献として掲載した。

- 各文献について、分配係数測定法が明かになっているものはその方法を記した。地下水とそれに接している土壌、海水とそれに接している海底土、堆積物を同時に λ_2 採取し、それぞれに含まれている元素濃度の比として分配係数を算出したものは、フィールド試験とした。
- 固体（土壌）と液体を分離する方法は、濾過、遠心分離（遠沈と略記）、静置と分けて記載した。「バッチ法（遠沈・濾過）」というのは、バッチ法で固液を分離する場合に、最初に濾過し、その濾液を遠心分離した場合である。「バッチ法（遠沈、濾過）」はバッチ法で、固液分離に濾過と遠心分離を別々に行ったものである。
- 分配係数算出にあたって、1つの核種について測定した試料の数が15以上のものには*印、30以上のものには**印を付けた。

国 内

- 1) 井上頼輝，森澤眞輔：放射性核種の土壌と水との間の分配係数值，日本原子力学会誌18,524-534,1976. [バッチ法，カラム法，*]
- 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 第254号,37-48,1976. [バッチ法（静置），カラム法，**]
- 3) 山形 茂，下岡謙司，妹尾宗明，荒木邦夫，天野 恕：カコウ岩と水におけるセシウムの分配係数（Kd）測定，日本原子力学会昭和55年秋の分科会予稿集（第II分冊），48,1980. [バッチ法（静置）]
- 4) 山本忠利，武部慎一，和達嘉樹：砂に対する ^{137}Cs と ^{85}Sr の吸着挙動と分配係数，RADIOISOTOPES 29, 373-376,1980. [バッチ法（遠沈）]
- 5) 桂山幸典，福井正美：地下水における放射性核種の易動性について，放出放射能による環境汚染と被曝評価に関する研究，昭和53・54年度文部省科学研究費総合研究（A）報告書，1980. [カラム法]
- 6) 井上頼輝，森澤眞輔，倉元秀樹：砕化花崗岩への ^{85}Sr の吸着，脱離に関する予備的研究，昭和53・54年度文部省科学研究費補助金（総合研究A）研究成果報告書，1980. [バッチ法，カラム法，**]

- 7) 菅野卓治, 橋本裕之: 花崗岩に対するCsおよびSrの分配について, 日本原子力学会昭和57年(第20回)年会要旨集(第Ⅱ分冊), 31, 1982. [バッチ法, *]
- 8) 伊藤勝雄, 菅野卓治: 還元処理したテクネチウムの岩石への吸着について, 日本原子力学会昭和57年(第20回)年会要旨集(第Ⅱ分冊), 32, 1982. [バッチ法(濾過)*]
- 9) 下岡謙司, 村岡 進, 田坂広志: 岩盤中の非放射性元素の移行評価に関する予備的検討 3, 非放射性元素の岩盤内移行特性, 日本原子力学会昭和57年秋の分科会予稿集(第Ⅱ分冊), 126, 1982. [バッチ法]
- 10) 下岡謙司, 柳田 剛, 山形 茂, 中村治人: 花崗岩のセシウム吸着特性, 日本原子力学会昭和58年(第21回)年会要旨集(第Ⅱ分冊), 131, 1983. [バッチ法(静置)*]
- 11) 森山裕丈, 間野 正, 石川秀高, 東 邦夫: ^{241}Am の花崗岩及び凝灰岩に対する吸着係数(Kd)の測定, 日本原子力学会昭和58年秋の分科会予稿集(第Ⅱ分冊), 259, 1983. [バッチ法(濾過, 遠沈)]
- 12) 馬原保典: フォールアウトPuの通気層中での移動速度及び分配係数の推定, 日本原子力学会昭和58年秋の分科会予稿集(第Ⅱ分冊), 260, 1983. [フィールド調査]
- 13) 瀧澤 誠, 室井正行, 藤田矩彦, 石樽顕吉, 丹羽 茂, 間野 正: ベントナイト-ゼオライト, ベントナイト-石英砂混合物中のCs, Srの移行, 日本原子力学会昭和58年秋の分科会予稿集(第Ⅱ分冊), 261, 1983. [カラム法]
- 14) 中西 孝: 水圏環境中のプルニウム. 日本放射線影響学会 第26回大会講演要旨集, 6-8, 1983. [フィールド試験]
- 15) 白石鶴美, 小坂哲生, 佐藤正知, 古屋広高, 新谷貞夫, 松尾多盛: 岩石に対するウランイオンの吸着係数の測定, 日本原子力学会昭和59年秋の分科会予稿集(第Ⅱ分冊), 279, 1984. [バッチ法(遠沈)**]
- 16) T. Watabe, S. Uchida and H. Kamada: Transfer of radionuclides through soil-plant pathway, J. of Radiat. Res. **25**, 274-282, 1984. [バッチ法(静置)]
- 17) 平田征弥, 福吉健夫, 吉原恒一, 手塚 瞳, 上田眞三: 陸地処分における充填材の性能に関する研究(1), 日本原子力学会昭和59年秋の分科会予稿集(第Ⅱ分冊), 266, 1984. [カラム法.]
- 18) 山岸 功, 三村 均, 秋葉健一: ゼオライトによる高汚染水の処理(1) - 混合ゼオライトへのCsとSrの分配 -, 日本原子力学会昭和60年秋の分科会予稿集(第Ⅱ分冊), 248, 1985. [バッチ法(遠沈), **]
- 19) 山中眞一, 森山裕丈, 有本 一, 東 邦夫, 新谷貞夫, 松尾多盛: アクチニド元素の岩石に対する分配係数, 日本原子力学会昭和60年年会講演要旨集(第Ⅱ分冊), 57, 1985. [バッチ法(濾過, 遠沈), **]

- 20) 塚本政樹：岩石中へのストロンチウムおよびセシウムイオンの吸着速度（その2）
—粒子内拡散の温度依存性—，電力中央研究所・研究報告285007，1985．[バッチ法
（静置）**]
- 21) 伊藤勝雄，菅野卓治：テクネチウムの人工および天然バリヤへの吸着機構，日本原子
力学会昭和60年年会要旨集（第Ⅱ分冊），56，1985．[バッチ法（遠沈・濾過）*]
- 22) 秋葉健一，橋本裕之，奥野孝晴，矢野一郎：岩石のイオン交換容量とセシウムの分
配係数，日本原子力学会昭和61年秋の分科会予稿集（第Ⅱ分冊），135，1986．[バッチ
法（遠沈）*]
- 23) 菅野卓治，秋葉健一：核種移行に関する地球化学的考察—核種の吸着と陽イオン交
換容量との関係—，地層処分研究成果報告会論文集，動力炉・核燃料開発事業
団，（財）原子力安全研究協会，20-26，1986．[バッチ法（静置）**]
- 24) 松田敏彦：核種移行に関する地球化学的考察—粘土鉱物のイオン交換特性に関する
研究—，地層処分研究成果報告会論文集，動力炉・核燃料開発事業団，（財）原子力
安全研究協会，66-73，1986．[バッチ法（遠沈）*]
- 25) 原安協・地層分科会（主査 天沼 稔）：地層処分への一里塚—地層分科会の5年
の歩み—，地層処分研究成果報告会論文集，動力炉・核燃料開発事業団，（財）原子力
安全研究協会，1-10，1986．[総括]
- 26) 小西正郎，岡島幸雄，山本耕一郎，柳 忠：数種土壤の埋め戻し材としての特
性，日本原子力学会昭和62年秋の大会予稿集（第Ⅱ分冊），224，1987．[バッチ法
（遠沈），カラム法，**]
- 27) 渡部輝久：分配係数を用いる数学的方法—分配係数法—，大桃洋一郎，田中義一郎
編，放射性物質の農作物への移行，放医研環境セミナーシリーズ No.13，NIRS-M-65，
61-68，1987．[バッチ法]
- 28) 内田滋夫，鎌田 博：ストロンチウムの成層通気層土壤への吸着に関する研究，保
健物理22，179-187，1987．[バッチ法（濾過），**]
- 29) 白橋浩一，妹尾宗明，森山 昇： ^{241}Am の砂への吸着挙動，日本原子力学会昭和
62年秋の大会予稿集（第Ⅱ分冊），227，1987．[バッチ法（遠沈），**]
- 30) 山田憲和，中山眞一，森山裕丈，東 邦夫：ネプツニウム（V）の石英粉充填カ
ラム中の移行，日本原子力学会昭和62年秋の大会予稿集（第Ⅱ分冊），230，1987．
[カラム法]
- 31) 五十嵐敏文，馬原保典，駒田広也：自然環境中の安定核種による放射性核種分配係
数推定法，電力中央研究報告：U87063，1988．[フィールド試験]
- 32) 田中忠夫，山本忠利：分配係数の土壌粒度依存性に及ぼす土壌物性の影響，日本原
子力学会誌30，933-941，1988．[バッチ法（静置），*]

- 33) 山本忠利, 大塚芳郎, 小川弘道, 和達嘉樹: 未攪乱通気層土壤試料を用いた放射性核種移動試験, 日本原子力学会誌 **30**, 942-949, 1988. [カラム法]
- 34) 島 茂樹, 松鶴秀夫: 土壤層移行に及ぼす放射性核種の化学形の影響について, 日本原子力学会昭和63年年会講演要旨集 (第II分冊), **30**, 1988. [カラム法, バッチ法]
- 35) 下岡謙司, 岡川誠吾, 平井光之: 土壤充填材中での核種吸着及び移行特性, 日本原子力学会昭和63年年会講演要旨集 (第II分冊), **31**, 1988. [カラム法, バッチ法]
- 36) M. Fukui: Uptake of radionuclides onto suspended particulate matter in coastal water, Journal of Nuclear Science and Technology **25**, 934-942, 1988. [バッチ法 (濾過), *]
- 37) 長崎晋也, 田中 知, 山脇道夫, 高橋洋一: 地下環境中におけるネプツニウムの存在化学形と吸着挙動, 日本原子力学会昭和63年年会講演要旨集 (第II分冊), **47**, 1988. [カラム法, *]
- 38) 妹尾宗明, 白橋浩一, 坂本義昭, 小西正郎, 森山 昇: 浅地層土壤と合成地下水系におけるプルトニウムの分配係数の測定, JAERI-M, 88-038, 1988. [バッチ法 (遠沈),]
- 39) 五十嵐敏文, 馬原保典, 河西 基, 満木泰郎, 荒木 洋: 不飽和ローム層中の物質移行に関するフィールド試験, 電力中央研究所報告・研究報告: U87087, 1988. [フィールド試験, **]
- 40) 内田滋夫, 松村康行, 住谷みさ子, 大桃洋一郎, 山口秀甫: 放射性ヨウ素の土壤から水稲への移行に関する基礎的研究, RADIOISOTOPES **38**, 57-62, 1989. [バッチ法]
- 41) 塚本政樹, 大江俊昭: 地層処分条件における緩衝材中の核種移行挙動—イオン成分の吸着・拡散挙動と予備的長期予測手法の検討—, 電力中央研究所報告・研究報告: T88033, 1989. [バッチ法 (遠沈) **]
- 42) 海上保安庁水路部: 昭和62年放射能調査報告書, 1989.
- 43) 川地 武, 喜田大三: 不飽和ベントナイトの吸着特性, 日本原子力学会1989年 (第27回) 年会要旨集 (第II分冊), **202**, 1989. [フィールド試験]
- 44) 福井正美, 藤川陽子, 井岡達也, 木村雄一郎, 本田嘉秀, 桂山幸典: 沿岸海底土への放射性核種の分配および吸着挙動, 日本原子力学会誌 **31**, 1165~1175, 1989. [バッチ法 (静置), **]

諸 外 国

- 1) Jackson, R. E., Inch, K. J., Patterson, R. J., Lyon, K., Spoel, T., Merritt, W. F., and Risto, B. A. : Adsorption of radionuclides in a fluvial-sand

- aquifer ; measurement of the distribution coefficients K_d^{Sr} and K_d^{Cs} and identification of mineral adsorbents. Edited by Baker R. A. "Contaminants and Sediments" Vol1, 311-329, An Arbor Science Publishers , 1980. [バッチ法 (濾過)]
- 2) Ames , L. L., Mc Garrah , J. E. ,: Investigation of basalt-radionuclide distribution coefficients ; Fiscal year 1980 annual report, RHO-BWI-C-108, PNL-3462, 1980. [バッチ法, *]
 - 3) Ames , L. L., and Mc Garrah , J. E. : Investigation of basalt-radionuclide distribution coefficient for Columbia river basalts , RHO-BWI-C-111, PNL-3250, 1980. [バッチ法]
 - 4) Relyea , J. F. , Serne, R. J., and Rai, D. , : Methods for determining radionuclide retardation factors; Status report , PNL-3349, UC-70, 1980. [バッチ法 (遠沈)]
 - 5) Nowak, E. J. : Radionuclide sorption and migration studies of getters for backfill barriers , SAND-79-1110, 1980. [バッチ法 (遠沈・濾過) *]
 - 6) Pickens, J. F., Jackson, R. E. and Inch , K. J. : Measurement of distribution coefficients using a radial injection dual-tracer test. Resources Research 17, 529-544, 1981. [フィールド試験, バッチ法 (濾過) , *]
 - 7) Dosch, R. G. : Solubility and sorption characteristics of uranium (VI) associated with rock samples and brines /ground waters from WIPP and NTS, US DOE Rep. SAND-80-1595, 1981. [バッチ法 (濾過) , **]
 - 8) Czyscinski, K. S. and Weiss, A. J. : Evaluation of isotope migration-land burial , NUREG/CR-1862, 1981. [バッチ法 (遠沈・濾過) , *]
 - 9) Killey , R. W. D. : Long-term strontium-90 behaviour in a sand aquifer, Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA-SM-257/86P, 811, 1982. [バッチ法]
 - 10) Pietrzak , R. , Czyscinski , K. S. and Weiss, A. J. : Evaluation of isotope migration-land burial, water chemistry at commercially operated low-level radioactive waste disposal sites, status report October 1980-September 1981, NUREG/CR-2616, 1982. [バッチ法 (濾過) , カラム法, *]
 - 11) Andersson, K. , Torstenfelt, B. and Allard , B. : Sorption behaviour of long-lived radionuclides in igneous rock, Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived

- Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA-SM-257/20, 111-131, 1982.
[バッチ法 (遠沈) , カラム法, **]
- 12) Miettinen, J. K., Nikula, A. and Leskinen, S. : Distribution coefficients of radionuclides between Finnish soils and ground water. Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA-SM-257/16P, 153-158, 1982. [バッチ法 (遠沈・濾過)]
- 13) Ryan, J. P. : Batch and column strontium distribution coefficients with water-saturated soil strata from the Savannah River Plant burial ground, Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel cycle, IAEA-SM-257/69, 133-145, 1982. [バッチ法 (遠沈) , カラム法, **]
- 14) Carlsen, L. and Bo, P. : Sorption of radionuclides on clay materials, Proceedings of an International Symposium on Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle, IAEA-SM-257/82, 97-109, 1982. [バッチ法, **]
- 15) Allard, B., Olofsson, U., Torstenfelt, B., Kipatsi, H. and Andersson, K. : Sorption of actinides in well-defined oxidation states on geologic media. Lutze W. edited ; Scientific Basis for Radioactive Waste Management 5, 775-782, 1982. [バッチ法 (遠沈) , *]
- 16) Westsik, J. H. JR., Bray, L. A., Hodges, F. N. and Wheelwright, E. J. : Permeability, swelling and radionuclide retardation properties of candidate backfill materials. Stephen V. Topp edited : The Scientific Basis for Nuclear Waste Management, 329-336, 1982. [バッチ法]
- 17) Torstenfelt, B., Kipatsi, H., Andersson, K., Allard, B. and Olofsson, U. : Transport of actinides through a bentonite backfill. Lutze W. edited: Scientific Basis for Radioactive Waste Management-5, 659-668, 1982. [バッチ法 (遠沈)]
- 18) Vandergraaf, T. T. : A compilation of sorption coefficients for radionuclides on granites and granitic rocks. Atomic Energy of Canada Limited Technical Record TR-120, 1982. [バッチ法 (遠沈・濾過・静置) , **]
- 19) Jackson, R. E. and Inch, K. J. : Partitioning of strontium-90 among aqueous and mineral species in a contaminated aquifer, Environmental Science and Technology, 17 231-237, 1983. [フィールド試験]

- 20) Torsténfelt, B., Eliasson, T., Allard, B., Andersson, K., Höglund, S., Ittner, T. and Olofsson, U. : Radionuclide migration into natural fracture surfaces of granitic rock, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol15, 339-346, 1983. [バッチ法]
- 21) Oscarson, D. W. and Cheung, S. C. H. : Evaluation of phyllosilicates as a buffer component in the disposal of nuclear fuel waste, AECL-7812, 1983. [**]
- 22) Coughtrey, P. J., Jackson, D., Jones, C. H., Kane, P. and Thorne, M. C. : Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems, Vol1-5, A. A. BALKEMA, 1983. [総説]
- 23) Lu, P. C. : Distribution coefficient of toxic metals in relation to soils conditions, DOE-METC-84-34, 456-462, 1984. バッチ法 (遠沈・濾過)]
- 24) Routson, R. C., Barney, G. S. and Smith, R. M. : Radionuclide sorption on low-exchange capacity Hanford site soils, Commun. In Soil Sci. Plant Anal. **15(4)**, 375-400, 1984. [バッチ法 (遠沈) **]
- 25) Wong, K. - F. V., Sengupta, S. and Dasgupta, D. : Prediction of cation mobility in soils from the linear distribution coefficient, ASTM STP **851**, 81-91, 1984. [バッチ法 (濾過) , *]
- 26) Hoeffner, S. L. : Radionuclides sorption on Savannah River Plant burial ground soil-a summary and interpretation of laboratory data, DP-1702, 1985. [バッチ法 (遠沈) , **]
- 27) Rancon, D. : Influence of concentration distributions in solid medium on the assessment of radioelement distribution between the liquid and solid phases. Appl. Distrib. Coeff. Radiol. Assess. models, 64-71, 1986. [バッチ法]
- 28) Avogadro, A. and Bidoglio, G. : Effects of environmental parameters on distribution coefficients, Appl. Distrib. Coeff. Radiol. Assess. Models, 131-137, 1986. [バッチ法, カラム法]
- 29) Schell, W. R., Sanchez, A. L., Underhill, D. W. and Thomas, E. : Natural geochemical repositories for wastes; field and laboratory measurements of diffusion and distribution coefficients in age dated peat bogs. Appl. Distrib. Coeff. Radiol. Assess. Models, 207-223, 1986. [バッチ法 (濾過) , *]
- 30) Alberts, J. J., Pinder, J. E., III, Wurtz, E. and Lesnek, S. : The effect of pH, solid phase, particle concentration and equilibration. time on the partition coefficient of curium on natural sediment, Appl. Distrib. Coeff.

- Radiol. Assess. Models, 72-82, 1986. [バッチ法 (濾過), **]
- 31) Bunzl, K., Bachhuber, H. and Schimmack, W. : Vertical and horizontal variability of the distribution coefficients of several radionuclides in a cultivated field, Appl. Distrib. Coeff. Radiol. Assess. Models, 267-275, 1986. [バッチ法 (遠沈), **]
 - 32) Cremers, A. and Maes, A. : Radionuclide partitioning in environmental systems; a critical analysis, Appl. Distrib. Coeff. Radiol. Assess. Models, 4-14, 1986. [バッチ法, **]
 - 33) Hamilton, E. I. : Kd values; an assessment of field v. laboratory measurements, Appl. Distrib. Coeff. Radiol. Assess. Models, 35-63, 1986.
 - 34) Rommel, H. and Kim, J. I. : Colloid generation and solid-liquid distribution of transuranic elements in natural aquifer systems, Appl. Distrib. Coeff. Radiol. Assess. Models, 120-129, 1986. [バッチ法 (濾過)]
 - 35) Killey, R. W. D., and Devgun, J. S. : Hydrogeologic studies for CRNL's proposed shallow land burial site, Proceedings of the 2nd International Conference on Radioactive Waste Management, 106-115, 1986. [バッチ法, カラム法]
 - 36) Bode, W. and Wolfrum, C. : Investigations on radionuclide retardation at ASSE salt mine-R and D program and first results, Proceedings of the 2nd International Conference on Radioactive Waste Management, 121-130, 1986. [バッチ法 (遠沈), **]
 - 37) Vandergraaf, T. T. Grondin, D. M., Vilks, P. and Drew, D. J. : Radionuclide migration studies in the laboratory, Proceedings of the 2nd International Conference on Radioactive Waste Management, 142-150, 1986. [カラム法]
 - 38) Buckley, L. P., Arbique, G. M., Tosello, N. B. and Woods, B. L. : Evaluation of backfill materials for a shallow-depth repository, Proceedings of the 2nd International Conference on Radioactive Waste Management, 212-216, 1986. [バッチ法]
 - 39) Hynes, T. P., Meadley, T., Thompson, N. A. and Schmidt, R. M. : Radionuclide and heavy metal concentrations in water, sediments and biota in the vicinity of Cluff mining operations, Proceedings of the 2nd International Conference on Radioactive Waste Management, 281-288, 1986. [フィールド試験]
 - 40) Sheppard, M. I. and Sheppard, S. C. : A soil solute transport model evaluated on two experimental systems. Ecological Modelling **37**, 191-206, 1987. [バッチ法 (遠沈・濾過)]

- 41) Sheppard, M. I., Thibault, D. H. and Mitchell, J. H. : Element leaching and capillary rise in sandy soil cores; experimental results, *Journal of Environmental Quality* **16**, 273-284, 1987. [フィールド試験, **, バッチ法]
- 42) Sheppard, M. I. and Thibault, D. H. : Migration of technetium, iodine, neptunium and uranium in the peat of two minerotrophic mires. *Journal of Environmental Quality* **17**, 644-653, 1988. [フィールド試験**, バッチ法(遠沈)*]
- 43) Bêrci, K., Deák, J., Friedrich, V., Házi, E., Juhász, J., Maleczki, E. and Mojzes, A. : Safety assessment and investigations for a shallow land disposal facility in Hungary. *Proceedings of a Symposium on the Management of Low and Intermediate Level Radioactive Wastes 1988. Vol 1*, 163-178, 1988. [バッチ法, **]
- 44) Buckley, L. P., Philipose, K. E. and Torok, J. : Engineered barriers and their influence on source behaviour. *Proceedings of a Symposium on the Management of Low and Intermediate Level Radioactive Waste 1988. Vol 1*, 147-161, 1988. [カラム法]
- 45) Sheppard, S. C. and Evenden, W. G. : The assumption of linearity in soil and plant concentration ratios; an experimental evaluation. *J. Environ. Radioactivity* **7**, 221-247, 1988. [フィールド試験, **]
- 46) Bell, J. and Bates, T. H. : Distribution coefficients of radionuclides between soils and groundwaters and their dependence on various test parameters. *The Science of the Total Environment* **69**, 297-317, 1988. [バッチ法(遠沈), *]
- 47) Torok, J. and Buckley, L. P. : The physical and chemical environment and radionuclide migration in a low level radioactive waste repository, AECL-9685, 1988. [フィールド試験]
- 48) Bunzl, K. and Schimmack, W. : Distribution coefficients of radionuclides in the soil; analysis of the field variability. *Radiochimica Acta* **44/45**, 355-360, 1988. [バッチ法, **]
- 49) Berry, J. B., Brown, C. H. J. R., Fowler, V. L. and Robinson, S. M. : Treatment of ORNL process waste. *Proceedings of SPECTRUM '88, Nuclear and Hazardous Waste Management International Topical Meeting*, 416-420, 1988. [**]
- 50) Torstenfelt, B., Rundberg, R. S. and Mitchell, A. : Actinides sorption on granites and minerals as a function of pH and colloids/pseudocolloids.

- Radiochimica Acta **44/45**, 111~117, 1988. [バッチ法 (遠沈), **]
- 51) Berry, J. A. Bourke, P. J. Coates, H. A. Green, A., Jefferies, N. I. and Littleboy, A. K. : Sorption of radionuclides on sandstones and mudstones. Radiochimica Acta **44/45**, 135~141, 1988. [バッチ法 (遠沈・濾過), *]
- 52) Erten, H. N., Aksoyoglu, S., Hatipoglu, S. and G. Öktürk, H. : Sorption of cesium and strontium on montmorillonite and kaolinite. Radiochimica Acta **44/45**, 147~151, 1988. [バッチ法 (遠沈), **]
- 53) Winkler, A., Brühl, H., Trapp, Ch. and Bock, W-D. : Mobility of Technetium in various rocks and defined combinations of natural minerals. Radiochimica Acta **44/45**, 183~186, 1988. [カラム法, バッチ法, **]
- 54) Rancon, D. : Comparative study of radioactive iodine behavior in soils under various experimental and natural conditions. Radiochimica Acta **44/45**, 187-193, 1988 [バッチ法 (濾過), *]
- 55) Bors, J., Martens, R. and Kühn, W. : Studies on the role of natural and anthropogenic organic substances in the mobility of radioiodine in soils. Radiochimica Acta **44/45**, 201~206, 1988. [バッチ法 (濾過), **]
- 56) Meyer, R. E., Arnold, W. D., Blencoe, J. G., O' Kelley G. D., and Land, J. F. : Progress in evaluation of radionuclide geochemical information developed by DOE high-level nuclear waste repository site projects; report for April 1986-September 1987. NUREG/CR-4708-Vol 2, 1988. [バッチ法 (遠沈), カラム法, **]
- 57) Nakayama, S. and Nelson, D. M. : Comparison of distribution coefficients for americium and curium ; effects of pH and naturally occurring colloids. J. Environ. Radioactivity **8**, 173~181, 1988. [バッチ法 (濾過), **]
- 58) Jackson, R. E. and Inch, K. J. : The in-situ adsorption of ⁹⁰Sr in a sand aquifer at the Chalk River nuclear laboratories. Journal of Contaminant Hydrology **4**, 27-50, 1989. [フィールド試験, **]
- 59) Lieser, K. H. and Steinkopff, Th. : Chemistry of radioactive cesium in the hydrosphere and in the geosphere. Radiochimica Acta **46**, 39-47, 1989. [バッチ法 (濾過), **]
- 60) Lieser, K. H. and Steinkopff, Th. : Chemistry of radioactive iodine in the hydrosphere and in the geosphere. Radiochimica Acta **46**, 49-55, 1989. [バッチ法 (静置), **]

付録資料(1)

土壌－農作物経路における放射性核種移行に関する

土壌の分配係数の利用について

1 はじめに

農耕地に放射性核種（以下、RIと記す）が混入した場合の取り扱いについて、これまでは通常、そのRIの物理的半減期のみを考慮し、土層からの漏出は考慮されなかった。しかし、長半減期核種の場合は、安全評価の対象期間が長期間となるため、土壌への蓄積効果が過大に評価される結果となる。他方、上記のような取り扱いでは、一たん農耕地に混入したRIは、その大部分が表層に補足されたままで、ほとんど移動せず深部などへの移行が全く考慮されないことになり、長半減期核種については、やはり問題であろう。本章では、このような問題点をふまえて農耕地にRIが混入した場合の挙動について検討する。

RIの農耕地への供給は、大気中のRIが直接または雨水と共に地表面に降下する場合や、RIを含んだ河川水や地下水を灌漑水として利用する場合などが考えられる。本章では、この供給経路の違いについては考慮せず、土壌に供給された後のRIの挙動、すなわち、表層土壌からより深部への移動および土壌から農作物への移行に焦点を絞って記す。最初に、農耕地におけるRIの挙動に関して、幾つかのデータを紹介し、それらの挙動予測について、Kdを用いたモデルについて検討する。次に、農耕地から農作物へのRIの移行について、Kdを導入した移行計算モデルとその適用に関する実験データについて紹介する。

2 農耕地におけるRIの挙動および予測モデル

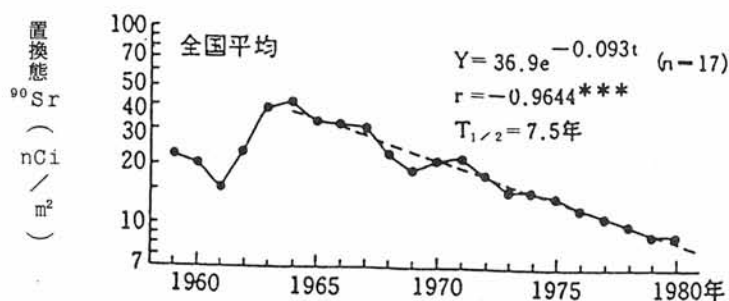
2-1 農耕地におけるRIの挙動

農耕地にRIが混入した場合、RIがどのような速度で土壌中を移動してゆくかという研究報告は、未耕地や滞水層などを対象とした研究と比較すると非常に少ない。この理由としては、前述したように、これまでの原子力施設の安全評価やフォールアウトRIの影響評価においては、作土層から下層土への移動を考慮していないこと、および作土層は耕うんするため、RIが混入しても均一分布として取り扱うことができること等が挙げられる。

小林ら¹⁾は、水田および畑作土中におけるフォールアウト⁹⁰Srや¹³⁷Cs濃度の経年変化を求めてきた。第付-1図および第付-2図に、それぞれ水田および畑土壌の全国平均値を

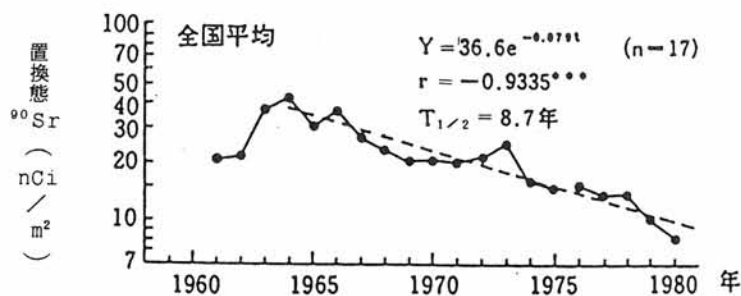
示す。小林らは、これらのデータを解析し、全国各地における水田および畑作土中の ^{90}Sr の環境減衰係数 (λ_E) を求めている。この減衰係数は、ウェザリング減衰係数と呼ばれることもあるが、物理的崩壊以外の要因による作土層からのRIの損失の程度を表すものであり、作土層中の環境半減期 (T_E) とは、次式のような関係がある。

$$\lambda_E = \frac{0.693}{T_E} \quad [\text{付-1}]$$



第付-1図 水田作土中の交換態 ^{90}Sr の経年推移

(注) 1964年から1980年までの ^{90}Sr 少量降下期のデータを使用
 Y : 1964年から t 年目の作土中の交換態 ^{90}Sr 含量 (nCi/m^2)
 $***$: $p=0.001$ で高度に有意
 $T_{1/2}$ 半減期(滞留)



第付-2図 畑作土中の交換態 ^{90}Sr の経年推移

(注) 記号などは第付-1図参照

小林らが求めた全国各地の λ_E 、並びに T_E の値を第付-1表および第付-2表にまとめて示す。第付-1表は、水田土壌における値であり、第付-2表は畑土壌の値である。これらの値は、土壌中に存在する ^{90}Sr の全量ではなく、INの中性酢酸アンモニウムで抽出した、いわゆる交換態量^注である。これは小林らが、農作物への移行という観点からフォーアウト ^{90}Sr の濃度を求めているためである。(注：第付-1表および第付-2表に示した値は、各採取地における1964年以降1980年までの間の ^{90}Sr 降下量、並びにその期間の ^{90}Sr の物理的半減期などの補正を行っていない。 ^{90}Sr の年間降下量を考慮に入れると、これらの T_E は、さらに長くなることが予想される。) このように、作土層や表層土壌中からのRIの流出を指数関数で表現する方法を用いている報告は、IAEAのSafety Series No. 57²⁾にも見られる。

第付-1表 水田作土中の交換性⁹⁰Srの減少速度

地域	試料採取場所	試料数	相関係数	回帰式	環境半減期 (年)	年間減少率 (%/年)
I. 北海道	札幌, 北海道	17	-0.922***	$Y = 43.8e^{-0.104t}$	6.7	9.9
日本海側	(1) 秋田, 秋田県	17	-0.923***	$Y = 57.8e^{-0.068t}$	10.3	6.6
	(2) 高田, 新潟県	17	-0.931***	$Y = 111.0e^{-0.091t}$	7.6	8.7
	(3) 野々市, 石川県	17	-0.948***	$Y = 67.6e^{-0.118t}$	5.8	11.1
	(4) 鳥取, 鳥取県	10	-0.948***	$Y = 49.0e^{-0.119t}$	5.8	11.2
	(5) (1)~(4)	61	-0.745***	$Y = 68.9e^{-0.094t}$	7.4	9.0
太平洋側	(1) 盛岡, 岩手県	16	-0.946***	$Y = 20.9e^{-0.084t}$	8.2	8.1
	(2) 仙台, 宮城県	17	-0.853***	$Y = 31.0e^{-0.066t}$	10.5	6.4
	(3) 水戸, 茨城県	17	-0.903***	$Y = 37.6e^{-0.129t}$	5.4	12.1
	(4) 鴻巣, 埼玉県	17	-0.872***	$Y = 20.7e^{-0.076t}$	9.2	7.3
	(5) 立川, 東京都	12	-0.946***	$Y = 19.7e^{-0.150t}$	4.6	14.0
	(6) 甲府, 山梨県	17	-0.766**	$Y = 14.1e^{-0.123t}$	5.7	11.6
	(7) 津, 三重県	9	-0.809***	$Y = 32.8e^{-0.045t}$	8.1	8.1
	(8) 羽曳野, 大阪府	17	-0.919***	$Y = 14.6e^{-0.118t}$	5.9	11.1
	(9) 山陽町, 岡山県	17	-0.845***	$Y = 14.5e^{-0.093t}$	7.5	8.9
(10) (1)~(9)	139	-0.698***	$Y = 21.8e^{-0.106t}$	6.6	10.1	
III. 九州	筑紫野, 福岡県	17	-0.797***	$Y = 20.8e^{-0.145t}$	4.8	13.5
IV. 全国平均 (全データ使用)		234	-0.560***	$Y = 30.5e^{-0.104t}$	6.7	9.9
V. 全国平均 (各年の全国平均値を使用)		17	-0.987***	$Y = 36.9e^{-0.093t}$	7.5	8.9

*** 相関係数 $P = 0.001$ で高度に有意, ** $P = 0.01$ で高度に有意
 Y : 1964年から t 年目における水田作土中の交換性⁹⁰Sr量 ($n\text{ ci}/\text{m}^2$)

第付-2表 畑作土中の交換性⁹⁰Srの減少速度

試料採取場所	試料数	相関係数 (r)	回帰式	環境半減期 (年)	年間減少率 (%/年)
札幌(北海道)	17	-0.820***	$Y = 30.0e^{-0.063t}$	10.9	6.2
秋田(秋田県)	6	-0.721			
長岡(新潟県)	17	-0.879***	$Y = 82.1e^{-0.056t}$	12.5	5.6
盛岡(岩手県)	16	-0.751***	$Y = 38.9e^{-0.065t}$	10.7	6.4
岩沼(宮城県)	12	-0.726**	$Y = 36.4e^{-0.044t}$	15.8	4.4
水戸(茨城県)	17	-0.849***	$Y = 32.0e^{-0.095t}$	7.3	9.1
北本(埼玉県)	9	-0.811**	$Y = 29.7e^{-0.107t}$	6.5	10.3
立川(東京都)	11	-0.890***	$Y = 37.7e^{-0.145t}$	4.8	13.5
甲府(山梨県)	16	-0.974***	$Y = 25.2e^{-0.166t}$	4.2	15.3
羽曳野(大阪府)	9	-0.748*	$Y = 14.5e^{-0.079t}$	8.8	7.6
山陽町(岡山県)	16	-0.927***	$Y = 24.7e^{-0.115t}$	6.1	10.9
甘木(福岡県)	17	-0.875***	$Y = 24.1e^{-0.107t}$	6.5	10.2
全国平均(I)	163	-0.575***	$Y = 32.6e^{-0.095t}$	7.3	8.1
全国平均(II)	17	-0.933***	$Y = 36.6e^{-0.079t}$	8.7	7.7

相関係数の記号 *, **, *** は夫々 $P = 0.05, 0.01, 0.001$ を示す。
 $Y = 1964$ 年から t 年目における畑作土中の交換性⁹⁰Sr量 ($n\text{Ci}/\text{m}^2$)。
 滞留時間は半減期 ($T^{1/2}$) として示した。
 全国平均 I : すべてのデータを用いた。
 “ II : 年間の平均値を用いた。

地域	Groot Ammers		Hooglanderveen		Valburg	
	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am
放射性核種						
深さ(cm)	(mBq/kg)	(mBq/kg)	(mBq/kg)	(mBq/kg)	(mBq/kg)	(mBq/kg)
0-5	655	340	311	96	500	173
5-10	400	190	318	141	545	70
10-15	110	100	111	70	132	38
15-20	26	70	11	15	72	21
20-25	26		7			
25-30	11		7			
30-35	26		7			
35-40	18		4			
40-50	15					

*注：交換態

植物は、土壌中に存在する元素のすべてを根から吸収できるわけではない。土壌に存在する物質で植物に吸収されやすい形態の画分を可給態という。一般に土壌に強く結合した形態の元素は吸収されにくく、比較的簡単に他の元素と交換される形態のもの、すなわち交換態のものは、吸収されやすい。

交換態量をもとめる方法としては、1モル程度の濃度の酢酸アンモニウムや、塩化マグネシウム、硝酸マグネシウム、硝酸カルシウム、塩化カルシウムなどで、抽出する方法が用いられる。 ^{90}Sr については、1M酢酸アンモニウムで抽出される交換態画分を植物が吸収できる形態(可給態)全量とみなして問題ないようである。

[参考文献：佐伯誠道編“環境放射能”，pp.174-175,ソフトサイエンス社,1984,東京]

Frissel, M. J. and Pennders, R.³⁾ は、牧草地 (grazed pastures) の表層土壌における RI の移動について研究を進めている。第付-3 表は、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{241}Am の地表から 50cm の深さまでを各 5cm ごとに分割し、その濃度を調べたものである。この表から、 $^{239+240}\text{Pu}$ の場合は Hooglanderveen と Valburg の地点において、また ^{241}Am の場合は Hooglanderveen において、0~5cm 層の濃度よりも 5~10cm 層の方が高くなっていることが分かる。第付-3 図および第付-4 図には、それぞれ ^{90}Sr および ^{137}Cs の各土層 (^{90}Sr の場合は、0~5cm および 5~10cm の 2 層、 ^{137}Cs の場合は、0~5、5~10、10~15 および 15~20cm の 4 層) における経時変化を示したものである。詳細な実験条件がこの報告では記載されていないので詳しい検討はできないが、少なくともこれらの結果から、表層にこれらの RI が、強く保持されるものの、長期間の間には、徐々に下方へ移行してゆくこと、さらにこの移動速度は土壌の性質や RI の種類により異なることが分かる。

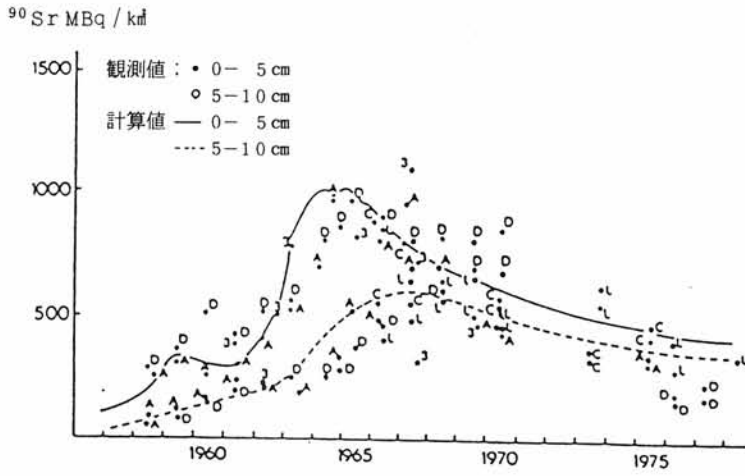
第付-5 図は、テクネチウム-95m ($^{95\text{m}}\text{Tc}$) の表層土壌における挙動を、いろいろ条件を変えて検討したもの⁴⁾ である。Tc を添加した深さは、16~20、24~26 および 32~36cm の 3 種類である。

第付5-1 図は、地下水面を 26cm に維持した場合である。地下水面よりも上に添加した時は、表層土壌の濃度が最も高くなっている。これは、この実験期間中、土壌表面をカバーしていたため土壌中の水分移動は蒸発散だけであり、上方への水分移動と共に $^{95\text{m}}\text{Tc}$ が移動したと思われる。地下水面および地下水面下に添加した実験では、拡散などにより汚染域が拡大しているが、いずれも添加層に最大値があり、地下水面上に添加した場合ほどの大きな動きは観察されていない。第付5-2 図は、同様に 3 種類の深さに $^{95\text{m}}\text{Tc}$ を添加した後、地下水面を 18-34cm の間で変化させた結果である。この場合、地下水面を一定にした実験結果よりも全体的に動きが少ない。これは、Tc の土壌中での挙動について、酸化状態の方が、還元状態よりも動きやすいことを示すものと考えられる。そして、この推定は、第付5-1 図において、地下水面上に添加した場合 (地下水面および地下水面下への添加と比べると酸化的である) が一番動きやすいという結果とも一致する。

第付-6 図には、U による同様の実験結果を示した。U は、Tc と比べるとかなり動きにくく、地下水面の変化にあまり関係なく、大部分が添加層に残っていることが分かる。

このように、RI の種類によっては、地下水面の動き、酸化・還元状態、蒸発散量などが、作土層中の RI の動きに大きく影響するものもあるが、全体的には、土壌表面に添加された RI は、徐々に下層に移動してゆくことが分かる。

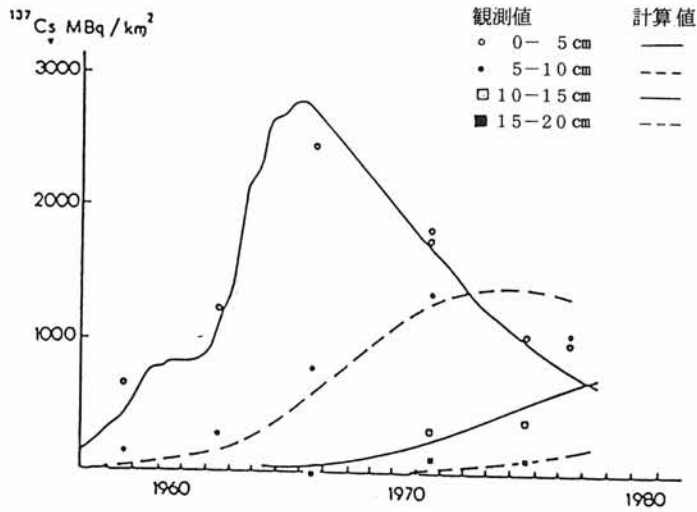
次に、実際の安全評価の面から、作土層中の RI の移動に関して、Kd を用いた予測モデルについて検討する。



第付-3図 土壌中の ^{90}Sr 濃度の経年変化

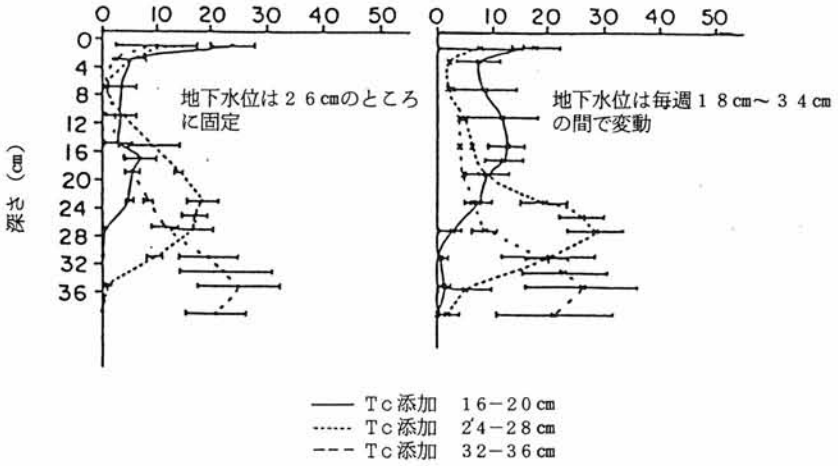
A:Alkmaar, D:Loosdrecht, C:Amiens [石灰質土壌]

L:Amiens [黄土], 3:Heino pH3.5



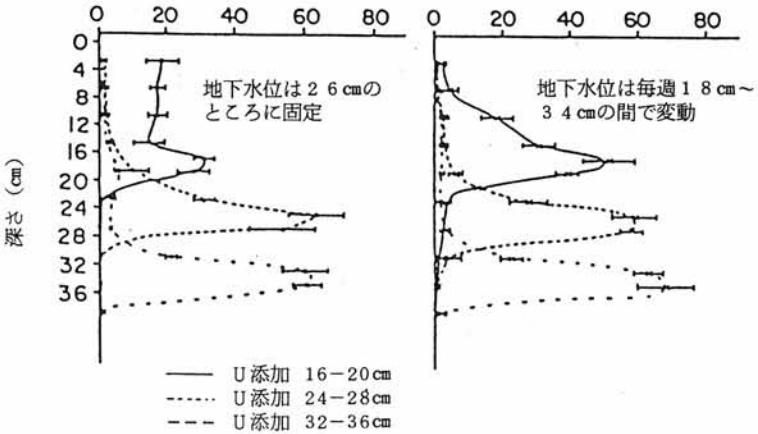
第付-4図 Alkmaarにおける土壌中の ^{137}Cs 濃度の経年変化

汚染層に添加された ^{95m}Tc の深さによる分布割合



第付5-1図 (地下水位一定) 第付5-2図 (地下水位変化)
 3種類の深さに添加した ^{95m}Tc の土壤中濃度分布
 注) 試料数: 4

汚染層に添加されたUの深さによる分布割合



第付6-1図 (地下水位一定) 第付6-2図 (地下水位変化)
 3種類の深さに添加したウランの土壤中濃度分布

2-2 農耕地におけるRI挙動の予測モデル

2-2-1 指数関数モデル

最初に、第付-1図および第付-2図に示した、指数関数による取り扱いが可能な場合について述べる。水田や畑では、前述したように、農作物の栽培前に耕うんが行われ、作土層中のRIは、均一に分布すると考えられる。このような場合、作土層内におけるRI分布については、考慮する必要がなく、作土層全体のRI濃度の変化を予測すれば良いことになる。したがって、RIの物理学的減衰以外の植物による吸収や下層土への移動など、種々の減少の要因を1つにまとめ、 λ_E として取り扱うことができる。

λ_E は、このように作土層中のRIの濃度変化を予測するのに重要なパラメータであるが、室内実験でこのデータを求める場合は、長時間の実験が必要であるため、ほとんど得られていない。実際にデータが得られているのは、フォールアウト ^{90}Sr や ^{137}Cs など非常に限られたRIである。この λ_E とKdとの関係が、NCRP No. 76⁵⁾に示されており、それは[付2]式で表される。この式を利用することにより、多くのRIの λ_E 値をKd値から推定することが可能である。

$$\lambda_E = \frac{V_w}{ds[1 + \rho/\theta \cdot Kd]} \quad [\text{付2}]$$

V_w : 作土層中の水の降下速度 (cm/y)

ds : 作土層の厚さ (深さ) (cm)

ρ : 土壌かさ密度 (g/cm³)

θ : 土壌水分率 (ml/cm³)

Kd: 分配係数 (ml/g)

ここで、 $Rf = (1 + \rho/\theta \cdot Kd)$ は、通気層 (不飽和水領域) における遅延係数⁶⁾である。したがって、 V_w/Rf は、作土層中のRIの降下速度であり、 $ds/(V_w/Rf)$ は、RIの作土層平均通過時間を、そして λ_E はこの平均通過時間の逆数である。

2-2-2 不均一分布モデル

次に作土層中で均一分布をしない場合について記す。果樹園、牧草地および茶畑などでは、水田や畑と比べると、十分な耕うんをしない。また、果樹などは、その根圏域が他の

農作物に比べると深い。このような点を考慮すると、これらの農作物の作土層内のRI分布は、不均一であるとした方が現実的であると考えられる。地表付近のRI分布を予測する方法は、大別して解析的に求める方法⁷⁾と数値解を得る方法⁸⁾とがある。対象とする地域の土層が何層にもなっている場合は、後者の数値解析が有効である。しかし、本節で検討しているような根圏域内の土層は、それほど複雑ではないと考えられるため、ここでは解析的に求める方法⁹⁾について記す。

根圏域内で以下の仮定が成り立つとする。

I) 根圏域内では、[3-2]式のヘンリー型吸着式が成立するものとし、RIの崩壊も考慮する。

II) 根圏域内の間隙率、水分率、密度はすべて一定とする。

この時、降水等によって希釈された灌漑水中の濃度を C_i (Bq/cm^3)とすると土壌表面から深さ z の地点における土壌間隙水中濃度 $C(z)$ (Bq/cm^3)は、飽和水層での核種濃度分布理論式⁷⁾を応用すれば次式で表される。

$$\frac{C(z)}{C_i} = \exp \left[- \frac{(\delta - U)}{2 \cdot D'} z \right] \quad [\text{付-3}]$$

ここで、 $D' = D / (1 + Kd/\alpha)$

$U = V_w / (1 + Kd/\alpha)$

$\delta = \sqrt{(4\lambda_1 \cdot D') + U^2}$

$\alpha = \theta / [(1 - \varepsilon) \cdot \rho_t]$

$= \theta / \rho$

D : 分散係数 (cm^2/y)

V_w : 土壌中の水降下速度 (cm/y)

Kd : 分配係数 (cm^3/g)

λ_1 : 核種の崩壊定数 ($1/y$)

θ : 土壌水分率 (ml/cm^3)

ε : 土壌の間隙率 (空隙+水分) (-)

ρ_t : 土壌の真密度 (g/cm^3)

ρ : 土壌かさ密度 (g/cm^3)

[付-3]式より、深さ z (cm)における単位体積土壌中のRI濃度 $C_s(z)$ は、次式で表される。

$$\begin{aligned}
C_s(Z) &= \theta \cdot C(Z) + (1 - \varepsilon) \cdot \rho t \cdot K_d \cdot C(z) \\
&= (\theta + \rho \cdot K_d) \cdot C(z) \\
&= (\theta + \rho \cdot K_d) \cdot \exp \left[- \frac{(\delta - U)}{2 \cdot D'} z \right] \cdot C_i \quad [\text{付-4}]
\end{aligned}$$

ここで、深さ ds (cm) までの根圏域内での平均間隙水中濃度を C_e (Bq/cm³) とすると、[付3]式より[付5]式が誘導される。

$$\begin{aligned}
C_e &= C_i \cdot \int_0^{ds} C(z) dz / ds \\
&= C_i / (k \cdot ds) \cdot [1 - \exp(-k \cdot ds)] \quad [\text{付5}]
\end{aligned}$$

ここで、 $k = (\delta - U) / (2 \cdot D')$

$$\begin{aligned}
&= 2\lambda_1 / U \cdot \frac{1}{\sqrt{(1 + 4 \cdot \beta \cdot \lambda_1 U) + 1}} \\
\beta &= D / V_w
\end{aligned}$$

分散を無視すると $D=0$ より $\beta=0$ となり

$$k = \lambda_1 / U$$

従って [付5] 式は下式のようになる

$$C_e = C_i \cdot \tau \cdot [1 - \exp(-1/\tau)] \quad [\text{付6}]$$

ここで、

$$\tau = U / (\lambda_1 \cdot ds) = \frac{V_w}{\lambda_1 \cdot (1 + \rho / \theta \cdot K_d) \cdot ds}$$

上式の指数関数内の $1/\tau$ は、

$$1/\tau = \frac{\lambda i \cdot ds}{V_w / (1 + \rho/\theta \cdot K_d)}$$

ここで、 $V_w / (1 + \rho/\theta \cdot K_d)$ は土壤中の核種降下速度を表しており、 $ds / \{V_w / (1 + \rho/\theta \cdot K_d)\}$ は、深さ ds を核種が降下する時間になる。従って [付5] 式は土壤中を降下する間の核種の崩壊を考慮した平均濃度の評価式となる。

根圏域内の単位体積の土壤に含まれる核種(間隙水中に存在する核種と土壤粒子に吸着されている核種)の平均量 C_m (Bq/cm^3) は、次式で表される。

$$\begin{aligned} C_m &= \theta \cdot C_e + (1 - \varepsilon) \cdot \rho_t \cdot K_d \cdot C_e \\ &= (\theta + \rho \cdot K_d) \cdot C_e \\ &= (\theta + \rho \cdot K_d) \cdot \tau \cdot \{1 - \exp(-1/\tau)\} \cdot C_i \quad \text{[付7]} \end{aligned}$$

このように、 K_d やいくつかの土壤の物理的定数を求めれば、土壤間隙水中のRI濃度や単位体積土壤中のRI濃度などが、[付3] [付7] 式から得られる。

3 農作物への移行に関する土壤の分配係数の利用について

3-1 K_d を用いた農作物への移行予測モデル

このモデル(以下、 K_d 移行モデルと記す)は、1976年にDorpら¹⁰⁾により提案されたモデルであり、次式で表される。

$$C_{ve} = F \cdot S \cdot P_t / P_{ep} \cdot TC \cdot C_t / L (\theta + \rho K_d) \quad \text{[付8]}$$

ここで、 F : 農作物におけるRIの可食部への移行率(転位率)

S : 選択(吸収)係数

P_t : 年間単位地表面積当たりの農作物総生産量 ($g/cm^2/yr$)

P_{ep} : 年間単位地表面積当たりの農作物の可食部生産量 ($g/cm^2/yr$)

TC : 蒸散係数(農作物単位重量当たりの蒸散量) (ml/g)

C_t : 土壤単位地表面積当たりのRI量 (Bq/cm^2)

L : 土壤深さ(根圏域深さ) (cm)

θ : 土壤水分率 (ml/cm^3)

ρ : 土壌のかさ密度 (g/cm³)

Kd : 分配係数 (ml/g)

このモデルは、「植物は、土壌溶液中に含まれているRIを土壌溶液とともに吸収する」という考えの下に構成されている。すなわち、土壌に吸着しているRIを土壌溶液への供給源とみなし、その反応式を次式で仮定している。

$$Q_{\text{soil}} = Kd \cdot C_{\text{solution}}$$

[付9]

ここで、 Q_{soil} : 土壌に吸着したRI量 (Bq/g)

C_{solution} : 土壌溶液 (液相) 中のRI量 (Bq/ml)

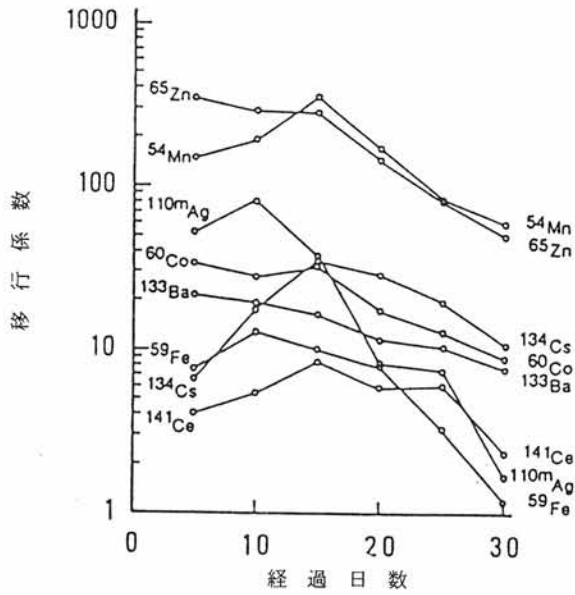
土壌溶液中のRIを農作物が吸収する場合、土壌溶液の吸収量、いわゆる蒸散量やRIと水との吸収能力比 (選択性) が問題となるが、それらは [付8] 式の中にTCおよびSとして導入されている。また、農作物全体の中での可食部へのRIも式に含まれている。

このように [付8] 式においては、各パラメータの物理的意味が明白であるため、環境条件が異なっても移行量の予測が可能である。パラメータの数が多いのでその選定には十分注意を払う必要があるが、 P_t 、 P_{ep} 、TCは農学分野ではかなり研究されているパラメータであり、また θ や ρ の測定は比較的簡単である¹¹⁾。Fに関しては、トレーサー実験によって得られたデータやフィールドでの安定同位元素の測定などによりある程度求められる。また、このモデルでは、土壌に関するパラメータとして、Kdが重要なパラメータとなっているが、土壌から農作物へのRIの移行という観点から、Kdを求めた事例はほとんどなく、どのような測定条件下でKdを求めればよいかを十分検討する必要がある。(例えば、地下水でのRI移動を目的とした場合は、その地下水を使用すれば良いが、農作物への移行を目的とした場合は、灌漑水を使用するのが適当と思われる。しかし、実際の栽培では肥料を添加することがあるため、その影響も検討する必要がある。))

Kd移行モデルのフィールドでの摘要については、いくつかの問題点を含んではいるが、前記したように、①各パラメータの物理的意味が明白であること、②農学分野において利用できるデータの蓄積があること、等により検討すべき価値は高い。

3-2 Kd移行モデルの適用について

Kd移行モデルでは多くのパラメータが用いられているが、それらのパラメータはいずれも現実的な意味を持ち、値を経験的にあるいは実験的に求め得るものであることはすでに述べた。ここでは、Kd移行モデルの中のキーパラメータであるKdに関し、渡部が行った



第付一七図 放射性核種の移行係数値の植物の成長にともなう推移

第付一四表 バッチ法で求めた分配係数値及び植物吸収量より推定した分配係数

放射性核種	方法 A	方法 B	方法 C
^{110m}Ag	4000	2100	580
^{133}Ba	200	420	34
^{141}Ce	2000	1200	210
^{60}Co	50	360	81
^{51}Cr	1000	na	na
^{134}Cs	500	300	130
^{59}Fe	700	2500	200
^{54}Mn	20	60	22
^{103}Ru	800	na	na
^{113}Sn	1000	na	na
^{65}Zn	300	27	10

方法 A : バッチ法で求めた k_d 値

方法 B : Dorpらの式により計算した k_d 値

方法 C : 植物 (コマツナ) の滲液中の RI 濃度から求めた k_d 値

na : 植物中の濃度が検出限界以下の RI

実験の結果¹²⁾について述べる。

経根吸収実験は、コマツナ (*Brassica rapa var. peridis*) を用い、植物栽培装置内で行った。砂質ローム土壌を風乾後、2mmのフルイでふるい、1/2000aワグネル・ポットに充填した。コマツナを移植後、RIを添加した灌漑水を連続的に土壌表面より注入した。コマツナは、5日ごとに地上部を切り取り、そのRI濃度を測定した。さらに、30日後に茎の下部を切り取り、溢泌液を採取し、そのRI濃度を測定した。この経根吸収実験では、土壌溶液も採取した。また、経根吸収実験に供した土壌を用いて、バッチ法によりKdを求めた。

第付-7図は、コマツナによるRIの吸収を乾燥土壌（砂質ローム土壌）中濃度に対する乾燥植物中濃度の比（移行係数）の経日変化として表したものである。移行係数の値は、植物の生育とともに減少する傾向を示したけれども、栽培終了時における移行係数は、これまでに報告された値に比較し、かなり大きな値となっている。一般的に、ポット実験においては植物の根の存在量に対する土壌量が自然環境における状態より小さいため、添加したRIは、より効果的に植物に利用されること、また、本実験のように、灌漑水中にRIを添加した吸収実験では、大きな移行係数が得られることが知られている。

実験に用いた土壌の「バッチ法」で求めたKdを第付-4表の左端の欄に示す。この栽培実験では、水収支等を正確に管理し、Kd以外のパラメータの値も把握した。したがって、植物の吸収量から土壌溶液中RI濃度が逆算され、植物栽培時のKd値を推定することができる。また、栽培30日後に地上部を刈り取って採取した溢泌液中のRI濃度から、土壌溶液中濃度が推定され、同様に、Kdの推定値を得ることができる。このようにして得られたKd値も第付-4表に示した。これらのKdの値は、三者の間で、およそ一桁の誤差以内で一致した。

これらの実験結果から、渡部は、RIを含んだ河川水や地下水を灌漑水として利用する場合の農作物への移行予測にこのKd移行モデルが有効であると述べている。

4. おわりに

陸圏環境にRIが放出された場合、それらのRIの一部にはさまざまな食物連鎖を経て人体に摂取される場合がある。

土壌-農作物経路については、RIの移行係数（注・RWMC環境パラメータ・シリーズNo.1, 1988）により、その程度を把握することが出来るが、さらに、RIの土壌中での挙動や土壌から農作物への移行機構に関しては、Kdを用いて解析する知見を収集することが望ましい。

5. 参考文献

- 1) 小林宏信, 駒村美佐子, 津村昭人: 農業環境における人工放射性核種の挙動に関する解析的研究, 農業技術研究所報告 B, 36, 115-170, 1984.
- 2) IAEA: Safety Series No 57. "Generic Models and parameters, for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases", 57-58, 1982.
- 3) Frissel, M. J. and Penners, R.: Models for the migration of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239}\text{-}^{240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the top layer of soils, Proc. in "Environmental Migration of Long-lived Radionuclides", IAEA SM-257/4 P, 1982.
- 4) Sheppard, S. C. and Gevenden, W.: Mobility and uptake by plants of elements placed near a shallow water table interface, J. Environm. Quality, 14, 554-560, 1985.
- 5) National Council on Radiation Protection and Measurement: NCRP Report No 76. "Radiological Assessment: Predicting the transport, bioaccumulation, and uptake by man of radionuclides released to the environment", 64, 1984.
- 6) 西牧研社, 森澤真輔: 放射性核種の地中での挙動, 保健物理, 21, 191-198, 1986.
- 7) 福井正美, 内田滋夫, 桂山幸典: 放射性廃棄物処分による地下滞水層汚染の簡易評価法, 保健物理, 16, 11-21, 1981.
- 8) 森澤真輔, 井上頼輝, 鎌田 博, 内田滋夫: フォールアウト Sr-90 の成層通気層内移動とその分布の予測, 原子力学会誌, 25 1020-1034, 1983.
- 9) 福井正美: 私信
- 10) F. van Dorp, Eleveld, R. and Frissel, M. J.: A new approach for soil-plant transfer calculations, Proc. in "Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries", 399-406, IAEA SM-237/13, 1979.
- 11) 内田滋夫, 大桃洋一郎, 鎌田 博, 佐伯誠道: 土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル, 原子力学会誌, 26, 935-941, 1984.
- 12) 渡部輝久: 分配係数の利用, 放医研環境セミナー「放射性物質の農作物への移行」, 61-68, 1987.

(内田滋夫, 山崎慎一)

付録試料(2) 元素記号表

元素記号	元素名	元素記号	元素名	元素記号	元素名
A c	アクチニウム	H g	水銀	R u	ルテニウム
A g	銀	H o	ホロミウム	S	硫黄
A l	アルミニウム	I	ヨウ素	S b	アンチモン
A m	アメリカシウム	I n	インジウム	S c	スカンジウム
A r	アルゴン	I r	イリジリウム	S e	セレン
A s	ヒ素	K	カリウム	S i	ケイ素
A t	アスタチン	K r	クリプトン	S m	サマリウム
A u	金	L a	ランタン	S n	スズ
B	ホウ素	L i	リチウム	S r	ストロンチウム
B a	バリウム	L r	ローレンシウム	T a	タンタル
B e	ベリリウム	L u	ルテチウム	T b	テルビウム
B i	ビスマス	M d	メンデレビウム	T c	テクネチウム
B k	バークリウム	M g	マグネシウム	T e	テルル
B r	臭素	M n	マンガン	T h	トリウム
C	炭素	M o	モリブデン	T i	チタン
C a	カルシウム	N	窒素	T l	タリウム
C d	カドミウム	N a	ナトリウム	T m	ツリウム
C e	セリウム	N b	ニオブ	U	ウラン
C f	カリホルニウム	N d	ネオジウム	V	バナジウム
C l	塩素	N e	ネオン	W	タングステン
C m	キュリウム	N i	ニッケル	X e	キセノン
C o	コバルト	N p	ネプツニウム	Y	イットリウム
C r	クロム	N o	ノーベリウム	Y b	イッテルビウム
C s	セシウム	O	酸素	Z n	亜鉛
C u	銅	O s	オスミウム	Z r	ジルコニウム
D y	ジスプロシウム	P	リン		
E r	エルビウム	P a	プロトアクチニウム		
E s	アインスタニウム	P b	鉛		
E u	ユウロピウム	P d	パラジウム		
F	フッ素	P m	プロメチウム		
F e	鉄	P o	ポロニウム		
F m	フェルミウム	P r	プラセオジウム		
F r	フランシウム	P t	白金		
G a	ガリウム	P u	プルトニウム		
G d	ガドリニウム	R a	ラジウム		
G e	ゲルマニウム	R b	ルビジウム		
H	水素	R e	レニウム		
H e	ヘリウム	R h	ロジウム		
H f	ハフニウム	R n	ラドン		

環境パラメータ整備検討第一委員会名簿

委員

- 内 田 滋 夫 (放射線医学総合研究所 那珂湊支所, 環境放射生態学研究部
主任研究官)
- 大 桃 洋一郎 (主査) (放射線医学総合研究所 那珂湊支所, 環境放射生態学
研究部長)
- 茅 野 充 男 (東京大学 農学部 教授)
- 山 崎 慎 一 (農業環境技術研究所, 水質動態研究室長)

協力者

- 馬 原 保 典 (電力中央研究所 我孫子研究所)
- 五十嵐 敏 文 (" ")
- 福 井 正 美 (京都大学 原子炉実験所)

オブザーバー

- 科学技術庁原子力安全局 (大越實)
- 日本原燃サービス株式会社 (滝本察春, 大柿一史, 倉戸 甲)
- 日本原燃産業株式会社 (米本弘司, 松村勝秀, 大森茂美, 竹内光男, 佐々木規行,
村部良和)

事務局〔(財)原子力環境整備センター〕

- 佐伯誠道, 濱田茂宏, 嶋野 昭, 林 勝, 岡林弘之

あ と が き

本書は（財）原子力環境整備センターに、昭和62年5月に設けられた環境パラメータ整備検討第一委員会の委員と、その他の協力科学者によって執筆されました。この内容は、全般にわたって当委員会で検討吟味されたものですが、次のような分担で執筆にあたりました。

執筆分担（敬称略） CONTRIBUTOR

全般的な整備と編集（緒言等を含む）

佐伯 誠道（M. SAIKI），大桃 洋一郎（Y. OHMOMO）

分配係数（土壌－土壌溶液）の定義

内田 滋夫，（S. UCHIDA），山崎 慎一（S. YAMASAKI）

分配係数を用いての放射性核種の地中における移動予測

内田 滋夫，馬原 保典（Y. MAHARA）

分配係数の測定法およびその問題点

五十嵐 敏文（T. IGARASHI）

分配係数とその変動の影響因子

福井 正美（M. FUKUI）

分配係数（Kd値）の一覧表

岡林弘之（H. OKABAYASHI），内田滋夫

土壌－農作物経路における放射性核種移行に関する土壌の分配係数の利用

内田滋夫，山崎慎一

環境パラメータシリーズ 2

土 壤 と 土 壤 溶 液 間 の
放 射 性 核 種 の 分 配 係 数

平成2年 6月15日刊 行

平成2年10月15日第2版

財団法人 原子力環境整備センター

〒105 東京都港区虎ノ門2-8-10
(第15森ビル)

Tel 03(504)1081 (代表)

June 1990

RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT CENTER

No15 Mori Bldg.

Toranomon 2-8-10 Minato-ku

Tokyo 105 JAPAN

Tel. (03)504-1081

