

話 題

「天然バリア K_d 」専門研究会

—京都大学原子炉実験所,
1999年11月24~25日—

福井正美^{*1}

原子力施設・廃棄物処分場・ウラン採鉱場内外などのニアフィールド環境およびチェルノブイリなどの事故に起因する環境中での放射性物質並びに有害化学物質の分布、挙動、モデルなどの学問的基盤を総合化してリスク評価に資することは21世紀の環境分野における重要な研究課題である。

K_d とは本来、理論的に定義されたパラメータではないため、多くの矛盾を内在している。従って、純粋・基礎科学の領域で用いることはできない。にもかかわらず多くの測定データが1950年代から累積され続けている理由は何か。 K_d の厳密な定義とそのパラメータとしての妥当性の議論はエンドレスであり、これに結論が下されてからでなければ使用できないという立場をとるならば、例えば核廃棄物の地層処分は実行され得ない。すなわち、若干の曖昧性を残しつつも安全評価という定量的結果を社会に還元すべき研究分野にとって、現時点でも K_d は必要・不可欠なパラメータとなっている。しかしながら数字が一人歩きすることのないよう、 K_d は継続して移行現象と比較・対比されるべきであり、ここに K_d や移行係数・濃縮係数といった環境パラメータに関連する研究の意義が見い出される。このような観点から1995年度以降、筆者は環境・廃棄物・動態をキーワードにした研究会を開催してきた(保健物理学会 *NEWS LETTER*, No. 17, Oct. 1998)。また、関連する研究者が情報交換する場を提供することは過去の研究の総括及び最先端の研究等の討議を介して若手研究者育成にも資すると思われる。以上のような趣旨から今年度は標記の研究会を開催した(所内責任者: 福井正美, 所外責任者: 木村英雄)。

Masami FUKUI: Scientific Meeting on "Distribution Ratios, K_d on Natural Barriers."

^{*1} 京都大学原子炉実験所原子炉安全管理研究部門; 大阪府泉南郡熊取町(〒590-0494)
Division of Nuclear Safety and Management, Research Reactor Institute, Kyoto University; Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan.

第1表に示した口答発表22件および誌上発表2件の報告概要について述べる。

小林ら(横浜国大, No. 1)は黒ぼく土や関東ローム土壌に対する揮発性有機塩素化合物(PCE, TCE, *cis*-DCE, 1,1-DCE, MC)の吸着平衡を乾燥土壌(バッチ法)および湿潤土壌(カラム吸着)について実施し、特に湿潤土壌については土壌水分の被覆を考慮し、土壌や化学物質の特性値のみから吸着量を推定するモデルを提案した。

結田(農業環境技研, No. 2)は筑波台地上の林地、畑地および水田試験地において土壌浸透水(2.5 mまで)や地下水(50 mまで)を3年間経時的に採水し、これらの水中濃度レベルとその変化を、土地利用形態、水理地質、土壌水分など環境因子との関連で解析することにより土壌表層に負荷されたヨウ素とフッ素の長期間挙動を検討した。

No. 3(伏協ら, 神奈川衛研)では、松くい虫駆除のための有機リン系農薬フェニトロチオンの空中散布後の森林環境(大気, 樹木, 落葉, 雨水, 土壌など)をモニタリングし、その残留性は樹木, 落葉に高いこと、森林土壌中では室内実験よりも微生物の分解効果が高く、濃度が早く低下することなどが明らかにされた。

No. 4(鈴木, 東京都衛研)は、ゴルフ場周辺や多摩地区の飲用井戸水中農薬をモニタリングすると共に、室内実験により得られる土壌の物理・化学・生物学的パラメータ(土壌有機物に対する分配係数, 土壌中有機物含有量, 土壌中分解速度など)を用いて簡便に地下水汚染を予測する評価式に適用し、農薬汚染の可能性を推定した。

宮内ら(日本原燃, No. 5)は青森県六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターに隣接する汽水湖尾駁沼における線量評価のため、 ^{14}C の底質・水棲生物への移行・濃縮係数を比放射能法により測定し、 ^{14}C の文献値と近似されることを示した。

三浦(高エネ研, No. 6)は12 GeVの陽子加速器により地中で放射化される放射性物質の地下水移行による管理区域境界での被ばく線量を評価し、飲料水摂取に基づく推定値が10 $\mu\text{Sv}/\text{年}$ 以下であることを確認した。

広城ら(九州大学, No. 7)は有機物の分布の違いから、土壌表面から深部にかけて陽イオン交換容量が減少することに着目し、不攪乱試料を用いたカラム実験法により、Ca, Mg, K, Naなどの主要陽イオンが共存する場合の移行現象において、CECが一定でない交換反応モデルにより再現されることを示した。

No. 8(坂本, 原研)では、1960年にカナダ, チョー

第1表 「天然バリア K_d 」専門研究会 プログラム

発表題目	および	発表者 (所属)
(1)	揮発性有機塩素化合物の土壌への気相吸着平衡モデル	小林 剛 (横浜国立大学工学部物質工学科) 他
(2)	ヨウ素およびフッ素の土壌・地下水系における分布と移行 一筑波台地上の水田, 畑地, 林地一	結田康一 (農水省農業環境科学技術研究所)
(3)	松くい虫防除による殺虫剤フェントロチオン散布後の環境中での残留性	伏脇裕一 (神奈川県衛生研究所) 他
(4)	多摩地域地下水中農薬のモニタリング及び汚染予測モデル	鈴木俊也 (東京都立衛生研究所)
(5)	尾駁沼における底質, 水棲生物への核種移行挙動	宮内善浩 (日本原燃環境整備部) 他
(6)	高エネルギー加速器周辺土壌及び地下水中の放射能濃度評価	三浦太一 (高エネルギー加速器研究機構)
(7)	陽イオン交換容量の空間分布を考慮した不攪乱土壌中の陽イオン輸送解析	広城吉成 (九州大学工学研究科) 他
(8)	砂質土壌中での Sr 及び Cs の移行挙動	坂本義昭 (日本原子力研究所東海研究所)
(9)	コンクリートに対してのセシウム, コバルト, ストロンチウムの K_d , K_f 測定について	井伊博行 (和歌山大学システム工学科)
(10)	浅地層土壌等における長寿命核種の分配係数	武部慎一 (日本原子力研究所東海研究所)
(11)	解体廃棄物等の処分計画に係る動向と特異な核種の挙動	佐々木規行 (日本原燃環境整備部) 他
(12)	天然バリア分配係数の空間的分布に関する評価	上田真三 (三菱マテリアル総合研究所)
(13)	岩石に対する陽イオンの吸着メカニズム	北村 暁 (核燃料サイクル開発機構)
(14)	Cs, Sr, Co, Np の鉱物に対する分配係数	大貫敏彦 (日本原子力研究所東海研究所)
(15)	炭酸及び酢酸形 ^{14}C の土壌, 岩石への吸着機構	長尾誠也 (日本原子力研究所東海研究所) 他
(16)	土壌間隙水を利用した野外土壌分配比の評価	颯田尚哉 (岩手大学農学部) 他
(17)	ICP-MS 法を用いた土壌・土壌溶液間のウラン, トリウム等の分配係数の測定について	田上恵子 (放射線医学総合研究所) 他
(18)	安定元素の分配係数測定法	塚田洋文 (環境科学技術研究所) 他
(19)	分配係数におよぼす土壌乾燥処理の影響	内田滋夫 (放射線医学総合研究所) 他
(20)	分配係数の比較実験及びアンケート調査	高橋知之 (京都大学原子炉実験所) 他

第1表 つづき

	発表題目 および 発表者 (所属)
(21)	酸化還元雰囲気と分配係数 五十嵐敏文 (電力中央研究所) 他
(22)	日本の土壌に対するヨウ素の分配係数 吉田 聡 (放射線医学総合研究所)
(23)	金属酸化物表面での IO_3^- 吸着構造 虎石 貴 (東京大学システム量子工学科) 他
(24)	各種測定法による溶質の K_d 比較 福井正美 (京都大学原子炉実験所)

クリバーで地下3m砂質帯水層に埋設された半球状のガラス固化体 (人工バリアなし) からの核種移行研究から、原位置での30年後の K_d を求め、 ^{90}Sr は7割程度がイオン交換 (K_d は5.2-9.4 ml/g), 残りが非晶質鉄酸化物への吸着であること、 ^{137}Cs は経時的に K_d が2桁ほど増加する (3.3-338 ml/g) ため速度論的な取扱いが必要な吸着機構であることなどが報告された。

井伊 (和歌山大, No. 9) は低レベル放射性廃棄物の浅地層処分のための主要構造物であるコンクリートへの核種の吸着を粉末の K_d (cm^3/g) 及びディスク試料の K_f (cm) として測定し、300-500 cm^3/g (^{137}Cs), 0.2-15 cm^3/g (^{60}Co) および40-70 cm (^{137}Cs), 0.1-0.5 cm (^{60}Co) であることを報告した。

武部 (原研, No. 10) はバッチ法についての K_d 測定法における曖昧さについて言及すると共に、RI・研究所等廃棄物の評価に欠けている ^{36}Cl , ^{99}Tc , ^{75}Se などの長寿命核種の地質材料に対する K_d を測定し、主として陰イオンであるこれらの核種も僅かに吸着されることを示した。

佐々木ら (日本原燃, No. 11) は原子炉解体廃棄物の埋設処分に際しての影響評価において、クリティカルな核種が ^{14}C や ^{36}Cl などの長寿命であることを試算し、人工バリアによる封じ込め技術の重要性を指摘した。

No. 12 (上田, 三菱マテリアル) では、六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターの安全評価を目的として実施した ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{137}Cs の K_d を地質ごとに測定し、平均的には軽石凝灰岩層が粗粒砂岩層試料よりこの核種順に大きいこと、理由は不明であるがカラム法の K_d はバッチ法 (固液比: 0.1 ml/g) より大きいこと (オーダでは一致) が報告された。

北村 (サイクル機構, No. 13) は、石英に対する種々の陽イオン分配係数 (バッチ法) および種々の電解質溶液中での固相表面電荷密度 (滴定法) により測定し、こ

れらのpHおよびイオン強度依存性からイオンの水和と界面平衡定数の関連について考察した。

大貫 (原研, No. 14) は ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{238}U , ^{237}Np などの鉱物 (イライト, スメクタイトなど) に対する吸着・脱離および長期にわたる鉱物の変質機構の解明 (非晶質の結晶化) とその過程におけるこれら核種の再分布を吸着機構の観点から報告した。

長尾ら (原研, No. 15) は低レベル廃棄物地中処分の管理期間300年後に問題となる核種に着目し、土壌・岩石試料に対する炭酸および酢酸形 ^{14}C の K_d をバッチ法で測定した。これらの形態は類似した吸着挙動を示し、脱離過程からスメクタイトのような永久荷電鉱物よりもアロフェン, ハロイサイト, イライトなどのpH変異荷電鉱物の含有量に影響されることを報告した。

颯田ら (岩手大, No. 16) は原子吸光光度法を用い、畑地などの不飽和土壌の遠心抽出した土壌水および0.2N硝酸アンモニウムでカラム抽出したイオン交換態の土壌元素濃度の比として安定元素の分配比を測定すると共に、Na, Sbを除くK, Ca, Mg, Srなどの分配比が全陽イオンの固・液相濃度比と相関のあることを報告した。

No. 17 (田上ら, 放医研) では水田土壌試料に純水を添加した条件で、溶液および土壌試料を全分解した固相濃度の比として安定元素の K_d がICP-MSにより測定され、従来のトレーサ法よりも2~3桁高い値が得られたことが報告された。筆者も指摘しているように、このような評価上危険側の測定法を改良するために、今後、土壌濃度を得るための元素の抽出条件の確立が望まれる。

塚田ら (環境技研, No. 18) はNo. 16と同様に高速遠心で採取した土壌水分の安定元素濃度から測定した K_d やNo. 17と同様に純水に抽出した条件から得た K_d を比較し、1桁以内で一致していることを示した。ここで固相濃度はいずれも全分解された安定元素濃度であ

り、他の実験条件（固液比、期間、温度など）についても詳しく検討されている。

内田（放医研，No. 19）は、畑及び水田土壌のバッチ実験における供試条件として、生、風乾、100°C乾燥の3状態で ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{65}Zn 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co の K_d を比較し、この順に K_d は小さくなることを報告しているが、オーダーが変わるほどの変化はない。

No. 20（高橋ら，京大炉）では4機関（フェーズ1）および9機関（フェーズ2）による K_d の比較測定を行い、種々の変動要因のうち特にバッチの液性や攪拌法についての条件の違いによる K_d 変動の大きいことが報告されている。

五十嵐（電中研，No. 21）らは泥質砂岩および泥岩の細粒（<1 mm）試料に対するCsおよびSe（IV，VI）の K_d 測定（純水、海水系）を酸化・還元条件で行い、還元環境を維持する条件を検討すると共に、還元剤添加によるpH低下からCsの K_d は少し低下し、その反面、陰イオン状Seの K_d が増加することを報告した。

吉田（放医研，No. 22）は全国の水田および畑地土壌の68生試料に対する I^- と IO_3^- の K_d を好気的条件下でバッチ法により測定し、有機物含有量と相関のあること、乾燥による K_d 値の低下、他のハロゲン元素（ Br^- 、 Cl^- ）より安定ヨウ素濃度の影響が大きいことを示した。

No. 23（虎石ら，東大）では、 Fe_2O_3 に対する IO_3^-

の吸着におけるpH依存性をラマン分光法と分子軌道法による分子振動のスペクトル変化から検討し、低pH側で吸着エネルギーが大きく、分子の対称性が崩れる形で吸着されていることを推察した。

福井（京大炉，No. 24）は過去に実施した石英砂に対するバッチ（B）法、カラム（C）法、拡散（D）法により得られた10種類のマルチトレーサーとしての K_d を比較し、C法ではB及びD法に較べて1桁程度、低い値が得られること、またC法ではpHが中性〜アルカリ側では間隙水と同程度で移行する核種が複数認められるなど、B法のような平均的 K_d では危険側となる現象が観察されることから、フィールドでの移行を評価するうえで留意すべき K_d 測定法確立の必要性を報告した。

本研究会の報告書は、この記事が読者の目に触れるころには出版されているので、希望される方は当方（fu-kuim@rri.kyoto-u.ac.jp）まで連絡いただければ送付します。

2000年度は「環境保健物理2000」と題した専門研究会の開催が承認されているため、20世紀の総括的な関連する演題を募集します。また2000年度からは原子力学会にも保健物理・環境科学部会が設立の運びとなる予定であり、保健物理学会のみならずこれら関連学会とも協力して21世紀に向けた環境・安全研究の推進が望まれるところである。（2000年2月1日受付）