

# 土壌カラム実験による $^{137}\text{Cs}$ の分配係数の経時変化 Temporal Changes in Distribution Coefficient of $^{137}\text{Cs}$ Using Soil Column Experiments.

佐藤匠<sup>1</sup>・砂川優樹<sup>2</sup>・橋井一樹<sup>2</sup>・登尾浩助<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 明治大学農学部・<sup>2</sup> 明治大学大学院農学研究科

## 要旨(Abstract) :

福島第一原子力発電所事故により放出された  $^{137}\text{Cs}$  の土壌中での移動を予測する手法の 1 つに移流分散方程式(CDE)があるが、沈着から 15 年以上が経過するまでの期間では、 $^{137}\text{Cs}$  の実測値と CDE の予測値との間に乖離が生じることがわかっている。より短期間での  $^{137}\text{Cs}$  の汚染評価に向けて、本研究ではカラム試験により短期間における  $^{137}\text{Cs}$  の分配係数を測定することを目的とした。

キーワード：放射性物質,  $^{137}\text{Cs}$ , 分配係数, カラム実験, CDE

Key words : Radioactive materials  $^{137}\text{Cs}$  Distribution coefficient Column experiment CDE

## 1. はじめに

福島第一原子力発電所事故によって大量の放射性物質が放出され、環境が汚染された。放出された放射性物質の中でも  $^{137}\text{Cs}$  は半減期が 30.2 年と長いので、 $^{137}\text{Cs}$  の土壌中での濃度分布を知ることは環境汚染対策を考えるうえで重要である。濃度分布は以下の式で表される CDE(Convection-Dispersion Equation)を用いて評価できる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = De \frac{\partial^2 C}{R \cdot \partial x^2} - \bar{u} \frac{\partial C}{R \cdot \partial x}$$

$R$  : 遅延係数  $C$  : 土中の溶液濃度(mg/L)

$t$  : 時間(s)  $De$  : 有効拡散係数( $\text{cm}^2/\text{s}$ )

$x$  : 深さ(cm)  $\bar{u}$  : 平均間隙流速( $\text{cm}/\text{s}$ )

しかし Bossew and Kirchner(2004)は、 $^{137}\text{Cs}$  の場合 CDE は  $t > 15$  年でなければ正確な予測をできないことを報告している。

そこで、本研究では短期間での  $^{137}\text{Cs}$  の分布予測のために分配係数  $K_d$  を把握することを目的とする。

## 2. 方法

### (1) 実験試料・器具

実験は、明治大学生田キャンパスにおいて室温 25 °C の実験室でカラムに充填した供試

土を使って実施した。

供試土は真砂土と黒ボク土で、それぞれの物理性は表 1 に示す。

使用したカラムを写真 1 に示す。供試土を充填したカラムはアクリル製(内径 50 mm、長さ 150 mm)であり、両端にヘッドスペースのある固定器具を装着した。3D プリンターで作成した Tough-PLA 製の板で 45  $\mu\text{m}$  径のステンレスメッシュを挟み、これをカラムの両端の固定器具内に取り付けた。

$^{137}\text{Cs}$  溶液は福島県飯舘村矢岳で採取した落ち葉を 30 %過酸化水素水で分解して作成した。

溶液の化学性は、 $^{137}\text{Cs}$  濃度が 200 Bq/L ( $4.86 \times 10^{-10}$  mmol/L)、pH が 2.6、EC が 167 mS/m であった。

### (2) カラム実験

実験の概略図を図 1 に示す。マリオット管とペリスタポンプを用いて一定流速でカラムへと通水した。カラム下端より 1 mM の  $\text{CaSO}_4$  溶液を通水して、カラムを飽和状態にした。飽和後に上端より 1 mM  $\text{CaSO}_4$  溶液を流速 10 mL/h にして通水した。その後、溶液を  $^{137}\text{Cs}$  溶液に切り替えて 72 時間通水した。カラム下端の排水

表 1 : 供試土壌の物理性

	黒ボク土	真砂土
平均粒径	36.6	67.8
土性	埴壤土	砂質土壌
母材	火山灰	花崗岩
砂(%)	59.6	62.5
シルト(%)	21.4	18.7
粘土(%)	19.0	18.8
乾燥密度(g/cm <sup>3</sup> )	1.18	1.32
採取場所	岩手大学 下台圃場	福島県 明神岳



写真 1 : カラム

をフラクションコレクター (CHF122SC, 株式会社アドバンテック製) で 1 分毎に回収した。

### (3) データ解析

通水後, カラム内の土壌試料を厚さ 1 cm ごとに採取し, 1 M 酢酸アンモニウムで 1 時間振とうした。ろ液と炉乾した土壌試料の Cs 濃度を Ge 半導体検出器 (IGC16190S, Princeton Gamma-Tech 社製) で測定した。フラクションコレクターで回収した排液の Cl<sup>-</sup>, K<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 濃度を, イオンクロマトグラフィーにて測定した。測定結果をもとに, CXTFIT/Excel (Tang et al., 2010) を用いて K<sub>d</sub> と D を決定した。

### 3. 結果

予備実験の結果を図 2 に示す。予備実験で用いた器具と試料は本実験のものとは異なる。供試土には豊浦砂を用いた。カラム長は 10 cm で, 充填密度は 1.66 g/cm<sup>3</sup> とした。通水溶液は水道水を使用した。Cl<sup>-</sup> の BTC を図 2 に示す。排出溶液の体積が 1.67 PV になるまでフラクションコレクターで 1 分毎に排出溶液を回収した。その結果から  $\bar{u}$  は 0.4 cm/min であった。D = 1.28 × 10<sup>-2</sup> と推定された。宮崎ら (2005) と

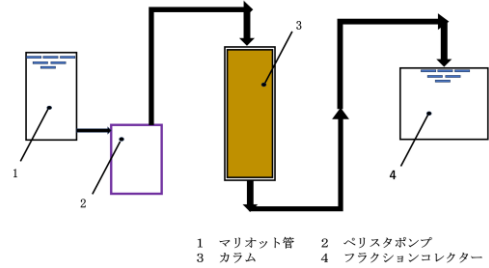


図 1 : 実験の概略図

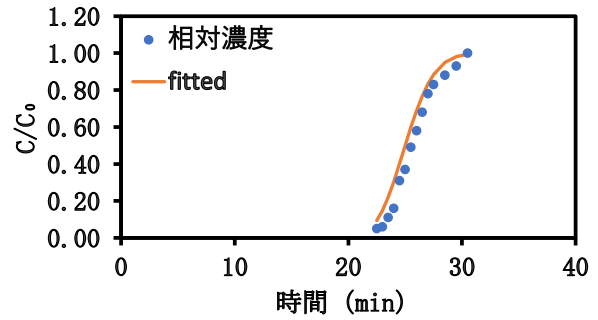


図 2 : 予備実験の BTC

ジュリーとホートン (2004) に記載された豊浦砂や砂質土壌の水力学的分散係数 ( $D_h$ ) と, 本研究で得られた  $D$  を比較したところ, 概ね一致した。 $u$  が非常に遅い場合を除き,  $D$  は  $D_h$  とほぼ一致することが知られていることから, 予備実験の BTC を使って CXTFIT/Excel で求めた  $D$  は妥当であると判断した。

### 4. 今後の展望

実験中に間隙流速が変わらないように <sup>137</sup>Cs 溶液と CaSO<sub>4</sub> 溶液の化学性を調整する。その後, 2. 方法に記載の手順で本実験を実施し, <sup>137</sup>Cs の K<sub>d</sub> を求める。

#### 参考文献

- 1) 中尾淳. (2021). 福島第一原子力発電所事故により放出された放射性セシウムの土壌中での動態と制御因子. 地球科学. 55: pp.96-109
- 2) Kirchner et al. (2009). Vertical migration of radionuclides in undisturbed grassland soils. Chemosphere. 281: pp.716-720
- 3) Bossew and Kirchner. (2004). Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection-dispersion equation revisited. Journal of Environmental Radioactivity. 73: pp.127-150
- 4) Jury and Horton. (2004). Soil Physics 6<sup>th</sup> edition. Wiley. (ジュリーとホートン 井上 光弘・長 裕幸・西村 拓・諸泉 利嗣・渡辺 晋生 (訳) (2006). 土壌物理学—土中の水・熱・ガス・化学物質移動の基礎と応用 築地書館)
- 5) 宮崎ら. (2005): 土壌物理学, p. 59. 朝倉書店, 東京.
- 6) Tang et al. (2010). CXTFIT/Excel-A modular adaptable code for parameter estimation, sensitivity analysis and uncertainty analysis for laboratory or field tracer experiments. Computers and Geosciences 36: pp.1200-1209