

報 文

微量元素による土壌汚染と環境問題

福井正美*

Concerns over the Environment Related to Soil Contamination by Trace Elements

Masami Fukui

Research Reactor Institute, Kyoto University

Summary

There is no doubt that some elements in all waste materials disposed of on land sooner or later react with soil constituents, and reach the food chain via surface and underground water, resulting in a potential threat to the health of human beings. Recently, because of the increasing quantity and variety of wastes, this threat has been enhanced.

This paper presents information on the movement of trace elements involving radionuclides, based on data obtained from the ongoing research program, the author's experience, and reviews of the literature. A number of abiotic (physical, chemical) and biotic reactions take place, which affects the rate of movement of contaminants from sources to the surrounding soil. Although sharp distinctions of these processes cannot be made, relatively simple examples are described.

Physical processes in the subsurface environment, composed of advection, dispersion, preferential flow, and so on, affect the movement of contaminants, though for low ground water flow less than ca. 10^{-3} cm/s molecular diffusion may dominate the contaminant transport. It is noted that the dispersion coefficient itself is not a parameter representing the dispersion phenomena, but the ratio of the coefficient divided by the interstitial velocity is related to the extent of the diffusivity. Among biological processes involving microorganisms, the three important mechanisms influencing migration of trace metals are oxidation-reduction, mineralization-immobilization, and production of organic constituents. Chemical processes affect contaminant transport by causing interactions between ionic compounds and geologic materials, such as chemical adsorption and ion exchange processes, or by affecting the form of the contaminant, i.e., hydrolysis and precipitation. For nonionic compounds, the adsorption is commonly hydrophobic with organic carbon on the soil surface. Based on the information on the environmental processes mentioned above, it is pointed out that an improved understanding about transport/interaction mechanisms of individual/mixed contaminants is needed to limit any risks from subsurface contamination in the future.

Key words : soil, food chain, underground water, trace element, radionuclide, colloid

(Soil Phys. Cond. Plant Growth, Jpn., 67, 29-37, 1993)

1. はじめに

産業革命が始まって以来、人体を含む環境にとって有害な物質による土壌汚染は人類が意識する・しないにかかわらず発現し、とくに今世紀のはじめからは鉱工業の発展に伴って増加してきたことは周知のとおりである。

*京都大学 原子炉実験所

しかしながら一口に有害な物質と言ってもその種類は多く、一例としては無機・有機物質について以下のように類別される。

(1) 酸, アルカリ, 有機溶媒などの化学物質, (2) 重金属類, (3) 農薬類, (4) PCB, (5) 炭化水素化合物 (ガソリン, 軽油, 重油など), (6) 引火性物質, (7)

キーワード: 土壌, 食物連鎖, 地下水, 微量元素, 放射性核種, コロイド

放射性物質, (8) し尿・肥料, など

これらの物質のうち, (3), (5)および(8)は特に生活環境に関連が深く, 使用に際してメリットが大きい反面, 農作物や地下水・飲料水の汚染として身近な経路でフィードバックされるリスクが存在する。これら以外の物質に関しては通常, 廃棄物として正しく管理された場合は近い将来のリスクは小さいが, 健全性期間が保証されない処分場への投棄は問題を末裔に委ねる結果となり, これら化学物質の開発・利用にあたっては本来, その長期にわたるリスクベネフィット評価が行われるべきである。

2. 環境汚染と時間・空間スケール

上述したようなsource termとしての人工汚染物質の影響評価には, 環境中での賦存状態と共に, 汚染により想定される時間・空間的スケールについても考慮する必要がある。気体および液体として廃棄される放射性物質の多くは半減期が短く, そのリスクは急激に小さくなるが, 半減期が長い放射性物質や変質され難い有機物および金属元素などは自然・人工バリアにより固定されない限り, 遅かれ速かれ生活環境サイクルに取り込まれる。従って, その総合的なリスクは生体が暴露される時間や濃度および範囲(人口)の積に比例する。例えば半減期が5700年の¹⁴Cを北緯30度以北の大気圏に瞬時に放出した場合, 人間を含む短寿命動植物の生体系コンパートメントは数年, 土壌の腐植物質など炭素サイクルが長いコンパートメントでは50年程度の時間経過後に濃度のピークが現われ, 10年以上にわたって放射線により人体が暴露されることが評価されている¹⁾。また分解され難いPCBが太平洋の魚類に検出されたことも報告されているが, これについてはその自然環境におけるdegradationの率を究明することが影響評価の観点からは不可欠である。このような数10km以上の地域(regional)から数千km以上の地球規模的(global)な環境汚染問題は, 局地的(local)な領域(発生源近傍)での行政を含めた規制対応の未熟さに起因していると言える。勿論, 生活圏におけるアクティビティーの結果である廃棄物すべてを末代まで隔離し続けることは不可能であるが, 廃棄物処理・処分の2大原則である濃縮・隔離と希釈・拡散の考え方を現時点での「都合よく」ではなく, 将来的にも「安全かつ合理的な」処分が可能であることを現在の科学的知識に照らして実証することが肝要である。この目的(インパクト評価と汚染制御)のためには放出源近傍における環境汚染物質の気圏, 水圏, 地圏における動態を解明することが重要になるが, 前2者については移流・拡散などの物理的な移行過程が支配的であるため, これ

らに忠実なモデルを用いれば放出源近傍の挙動は1桁以内の精度で予測可能と考えられる。また, 地球規模でも不活性, 揮発性ガスや水分など反応性に乏しい保存性物質についてはコンパートメントモデル^{2,3)}だけではなく物理モデル^{4,5,6)}が開発されている。しかしながら放出源近傍と言えども地圏における自然環境は複雑であり, 土壌/岩石と土壌水/地下水で代表される不均質系での挙動を評価するための精度の高いモデルはまだ開発されていない。このような評価・汚染防止研究の進展を妨げてきたのは汚染現象がポーリングや掘削などアクセスの困難な地中で発生し, かつ土壌の緩衝効果のために地下水汚染として顕在化するのに時間を要することやこれまで自然の浄化機構が不明であっても経済的にブラックボックスとしてではあるが地中への多くの汚染物廃棄が効果的であったことなどによる。そこで以下では室内で行われた移行・挙動研究を含めてこのような不均質系における物質移動に影響する諸過程とその問題点について言及する。

3. 土壌中における物質移動の諸過程

1) 物理過程

地下水中での溶質挙動に影響を及ぼす物理過程には移流および拡散(分散)があり, この現象に対応したパラメーターには間隙内流速および拡散(分散)係数がある。分散係数は溶質が多孔性媒体を移動する場合, その異方性や幾何学的形状により機械的に分散される現象をモデル化するために導入されたパラメーターであり, 厳密には濃度勾配により生ずるフラックスの比例定数として定義された分子拡散係数とは異なる。これらのパラメーター値は本来, その現象の大きさの程度を表す物理量でなければならない。溶液中における分子拡散定数は古来より多くの測定例があり, 拡散する溶質に固有の値が報告されている。他方, 土壌物理やその他の分野でも分散係数についての測定例は多いが, その結果は分散係数値が流速に依存する(比例もしくは正の相関がある)とされている^{7,8)}。このことは例えば, カラムによる溶出曲線において流速を大きくすれば分散現象が大きくなると理解されがちである。また本来, 分散係数とその物理量を表すパラメーターであれば, この理解は正しいはずである。しかしながら, 水のトレーサーとしてよく用いられるトリチウム水を32cmの豊浦細砂充填カラムに通水した破過曲線の結果(図-1)が示すように⁹⁾, 10^{-2} ~ 10^{-3} cm/sのオーダーで間隙内流速を変化させても分散の程度はほとんど変わらない。そしてこの結果から各流速に対応した分散係数を算定すれば, フィッティングされたベクレ数(VL/4D)が一定である(分散が同程度である)

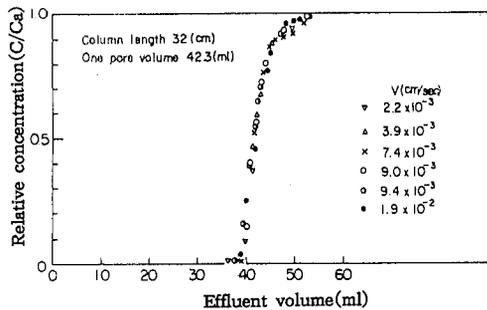


図-1 豊浦砂32cm充填カラムによるトリチウム水の破過曲線

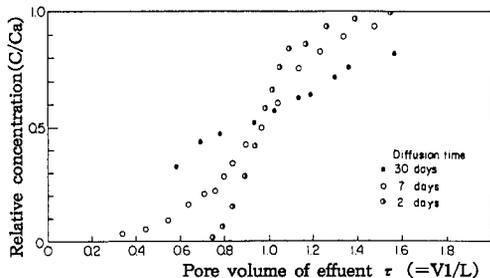


図-2 豊浦砂32cm充填カラム内でのフロント停止期間に伴う分子拡散の影響

ことから、必然的に $D \propto V$ の関係が成立することになる。したがって分散係数そのものが実際の分散量を表すパラメーターとは言えず¹⁰⁾、その比例定数である D/V が多孔性媒体の物理量と関連する分散の程度を表す基本のパラメーターであることに留意すべきである。

溶質の輸送媒体である地下水の流速が大きい場合は分子拡散による分散の程度は無視できるが、 $2 \times 10^{-3} \sim 10^{-4}$ cm/s以下となる流速域では分子拡散による移動現象が卓越する^{9,11)}。たとえば豊浦細砂を充填した10cmのカラム内中央で、流入させたトリチウム水フロントを2, 7, 30日と停止させ、その後流出させた結果(図-2)⁹⁾をみれば分子拡散による影響は明らかである。このように滞留時間が長い地下環境における溶質移動の解析に分子拡散を無視することはできない。以上のような拡散(分散)、移流のほかに、汚染物質の地中における挙動で重要な過程には物理吸着がある。これはvan der Waals力に基づき、とくに汚染物質が疎水性農薬の場合には、その土壌への吸着が土壌の有機炭素量に比例するとされており、含有炭素重量比率とオクタノール/水への分配係数¹²⁾から推定できる収着係数が定量的評価に用いられている。

不飽和水分領域における土壌中の溶質移動研究では、水分移動そのものにdiffusivityを導入した飽和流と同様の拡散型方程式で解析する手法が用いられてきた。しかしながら飽和領域に比べて降雨浸透や蒸発散による水分移動は非定常性が強いとため、溶質濃度と連立させた解析は後述する溶質-媒体間のinteractionを線形と仮定した場合に限られ、かつ空間スケールが大きくなれば水分移動もピストン流として単純化して解析せざるをえないことが指摘されている¹³⁾。この原因の1つは、溶質の媒体に対するinteractionが単純にモデル化できず、水分移動を厳密に解析することが溶質移動の予測精度を高くすることにはならないためである。

飽和-不飽和領域の界面では土壌中に広く分布する揮発性物質たとえばラジウムの崩壊生成物であるラドン¹⁴⁾、¹⁵⁾(不活性ガス)や米国の放射性廃棄物処分場で容易に検出されているトリチウム¹⁶⁾さらに有機化学物質(トルエン、ベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンなど)については、液相から気相への物質移動現象としての蒸発・希散も考慮する必要がある。この場合は物質固有の溶解度、蒸気圧、気-液相間のヘンリー定数などのパラメーター¹⁷⁾や気-液相界面の面積、間隙率とその分布などが関連する。さらに液状炭化水素系化学物質の場合は密度が水よりも軽いか重いかにより、地下水面上に浮かんだり、汚染フロントが均一に浸透しないfingerling現象が生ずるなど複雑な挙動が問題となっている。

以上のほかにも多孔性媒体中の間隙の分布や亀裂などにより発生する卓越流などの現象があり、その解析には岩石中における亀裂やマトリックス内拡散などを考慮した手法^{18,19)}が役立つと考えられるが今後の研究課題である。

2) 生物過程

土壌中の生物はバクテリア(1~10 μ m)、放線菌、fungi、藻類、小動物などに分類されている。微生物を滅菌することにより、CsやTcの土壌への分配が小さくなるとの報告^{20,21)}はあるが、脱窒、腐植化、固定などの現象にかかわる微生物の活動が直ちに汚染物質の移行に大きな影響を及ぼすことは一般的には考えにくい。しかしながら活動の結果が土壌の化学的環境を規定する場合には、その影響は大きい。例えば炭素や窒素化合物の分解・固定(CO₂やN₂の生成とその固定による循環サイクル)、有機酸の生成などの結果として土壌水のpH、酸化還元環境の変化や反応性の増加が考えられる。一般的には水中有機物分解の過程でH⁺濃度が上昇し、酸素が消費されることにより還元環境になり、微量金属元素の

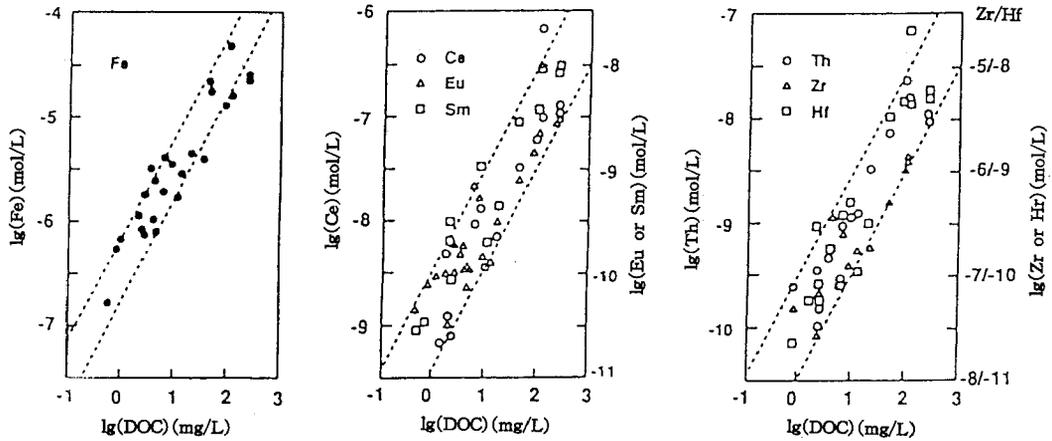


図-3 深層地下水におけるDOCと微量元素濃度²⁵⁾

地中での易動性は大きくなる。この酸化・還元反応には電子の受容体として数多くの微生物が関与し、このような有機物の無機化はmineralization, その逆の過程(微量金属元素が有機物に取り込まれて減少する)はbio-immobilizationと言われている²⁵⁾。したがって微生物が関与する生物過程は化学過程にも密接に関連し、明確に区別することは困難であり、複雑な生物作用を汚染物質の移行に組み込んだ挙動モデルはまだ開発されていない。その原因は例えば土壌有機物だけに限定しても、地中(土壌/地下水)での挙動に不確定性が多く、水中有機物と反応する汚染物質のモデルを構築するまでには至っていないのが現状である。そこで以下には微量金属元素の地中移行に関連する土壌有機物について言及する。

動物や植物が微生物により分解される過程でフルボ酸(分子量300-2000)やフミン酸(分子量1000-5000)および分解され難い腐植質(分子量5000-100,000)が生成される。フルボ酸は可溶性であるが、フミン酸は低pH域で凝集・沈殿し、腐植質は強い還元性を有することが知られている。また分子量の小さいフルボ酸よりも大きいフミン酸のほうが多くの官能基を有しているため反応性に富み、溶存有機物濃度が高い水中ではフミン酸の占める割合が大きい。新しい沖積層などで続成作用が十分に進行していない地層ではカルボキシル基、アミノ基、水酸基などの種類は多いが、続成が進行するにつれて土壌有機物中のカルボキシル基、ケトン基が増加するとともにフェノール性およびアルコール性水酸基が減少する。このような官能基の質的・量的変化は汚染物質の土壌に対する等温吸着線すなわち挙動に影響する。また汚染物質がイオン性であるか電気的に中性であるかも

しくは極性の有無などによって吸着特性が著しく変わることは言うまでもない。このように地中に微量元素や有機化学物質などの汚染物質が存在する場合、1)無機物質への親和性が小さい汚染物質が、不溶性の腐植物質に吸着されて不動化される、2)溶存性のフルボ酸やフミン酸などと錯体を形成して、溶存有機物と挙動を共にする、などのケースが考えられる。従来開発されているモデル^{23,24)}ではこのような有機物の消長は考慮されておらず、このためには凝集や沈殿などpH, 塩分濃度, イオン強度などに関連する土壌有機物の性状をさらに究明し、挙動の観点から水を媒介とした土粒子-有機物-汚染物の反応と移動をモデル化する必要がある。図-3²⁵⁾にはドイツの深層地下水における微量金属元素濃度を溶存有機物濃度(DOC)の関数として実測した結果を掲げる。

3) 化学過程

土壌水溶液中のpH, 酸化還元電位および土壌の交換容量や鉄・マンガン酸化物などは微量元素の土壌における易動性に影響を及ぼし、これらの変化は自然環境では水質, 溶存酸素, 有機物, 微生物活動と分解ガスの生成などにより変動する。

微量元素が金属イオンの場合、交換による土壌への吸着は質量作用の法則から誘導される分配係数(=選択係数×陽イオン交換容量/主成分イオンの水中濃度)²⁶⁾により定量化される。従って、交換容量の大きい土壌中では分配係数が大きくなり、移行速度が遅くなることは良く知られているが、超ウラン元素はこの法則に従わないとする報告もある²⁷⁾。このような法則は比較的単純な系では成立するが、廃棄物処分場のように種々雑多な汚染

物が処分されるような複合汚染環境では沈殿や溶解度が律速する場合もあり、移行と関連させたモデル研究は今後の課題である。

土壤溶液のpHは土粒子の表面電荷の状態を規定することから、溶質の溶存状態に応じた挙動に大きな影響を及ぼす。例えば珪酸が主成分である石英砂のzero point of charge pHは2程度であることから、pH5~7程度の土壤水溶液中では粒子表面はnegative chargeであり、カチオンに対する親和性は大きい。例えば図-4²⁸⁾は3種類のCa-Csの濃度溶液(total:1 μ eq/ml)をCaCl₂溶液

(1 μ eq/ml,1L)によりコンディショニングしたカラム(石英砂100g充填, 20cm長さ)に264cm³(10 pore volume(τ))だけ通水した場合の相対吸着濃度分布(流入端での吸着濃度に対する比率)である。流入させるCs濃度が高くなるにつれてフロントの移行速度が大きくなり、分配係数が一定でないことを示しているものの、Cs濃度が0.1 μ eq/mlの場合の吸着フロントは1 τ (20cm)を破過しつつあり、水流速のほぼ1/10の移行速度であることが判る。図-5²⁹⁾は同様の実験で、Csの流出/流入濃度比がほぼ等しくなるまで50 τ ほど流入させ、その

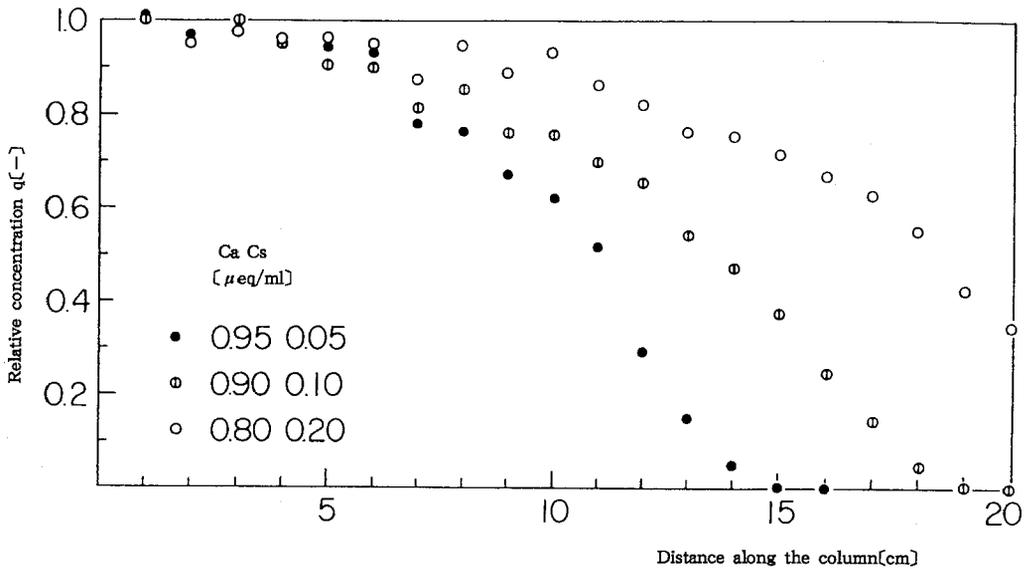


図-4 3種類の濃度の¹³⁷CsCl溶液を各々10 τ 流入させた場合の相対吸着濃度分布

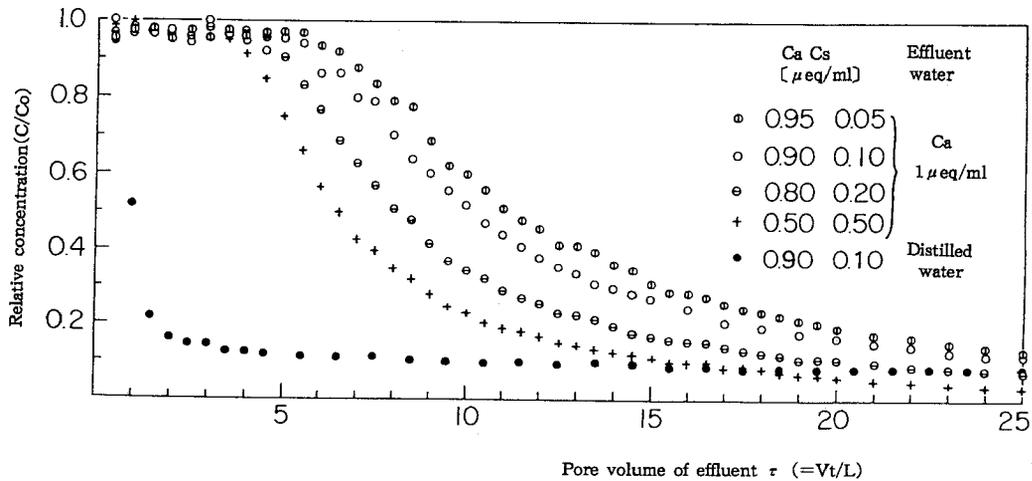


図-5 4種類の濃度の¹³⁷CsCl溶液の溶出曲線：流入量、各濃度とも50 τ 溶離液、各場合ともCaCl₂溶液(1 μ eq/ml)および蒸留水(¹³⁷CsCl溶液0.1 μ eq/mlの場合のみ追加)

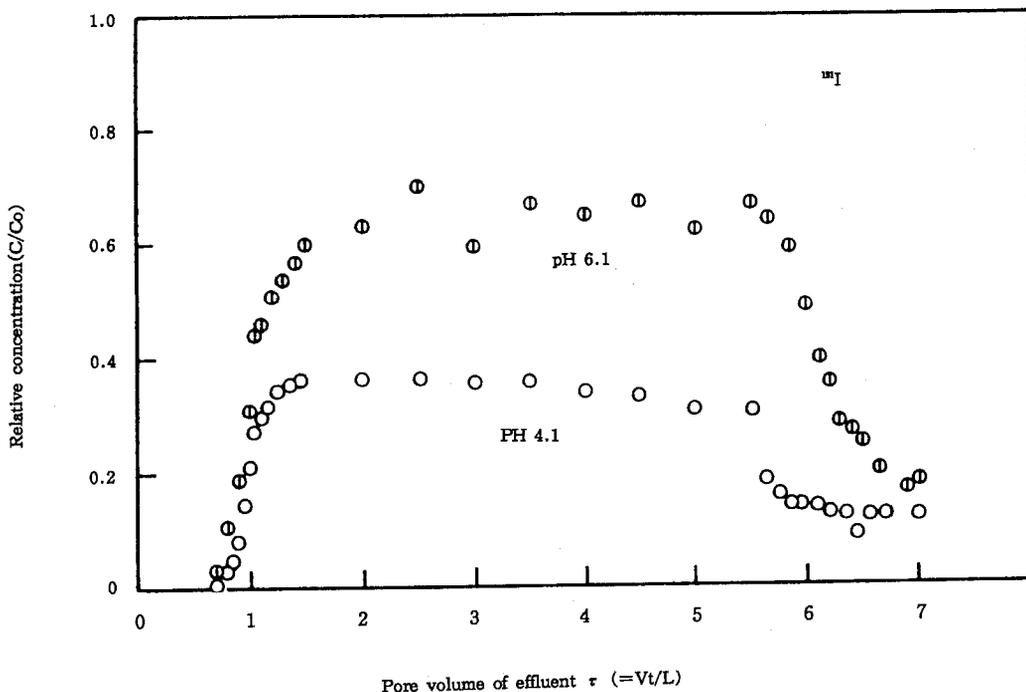


図-6 無担体状の希薄な¹²⁵I-イオンの溶出曲線：流入量、各pH液とも5τ 溶離液、各場合ともCaCl₂溶液 (1 μeq/ml)

後CaCl₂溶液(1 μeq/ml)で溶出させた場合の相対流出液濃度である。これらの結果、流入濃度が高いほど脱離速度も速く、可逆的な反応であることは確認できた。しかしながら、Csが0.1 μeq/mlの場合について蒸留水を溶離水とした結果(図-5, ●印)に示すように、Caイオンによる脱離曲線(○印)とは大きく異なり、2τ以後からテーリングの効果が著しく、蒸留水による物理的な脱離(結晶格子内拡散)現象の生じていることが判明した。図-5でのCaイオン水との脱離曲線の面積の差がイオン交換による吸着成分と考えられることから、カラム砂層への総吸着量を基にして粒子内拡散量も評価することが可能である。

図-6³⁰⁾には同様の方法でコンディショニングした石英砂充填カラム(20cm)に無担体状ヨウ素(I⁻)イオンを添加した原液を5τ流入させて、再び同濃度のCaCl₂液で溶出させた破過曲線を流入原液のpHが4.1と6.1に調整した場合について示す。どちらの場合も破過点は1τ付近であり、フロントは水流速と同じすなわち砂層に吸着されない様相を呈しているが、流出/流入濃度比が1に漸近せず、不可逆的な吸着現象が生じていることが判る。そして流入溶液のpHが低いほどプラトー(流出濃度がほぼ一定に到達する)濃度は低く(よく吸着され)、吸着へのpH依存性がカチオンとは逆の傾向になることは妥

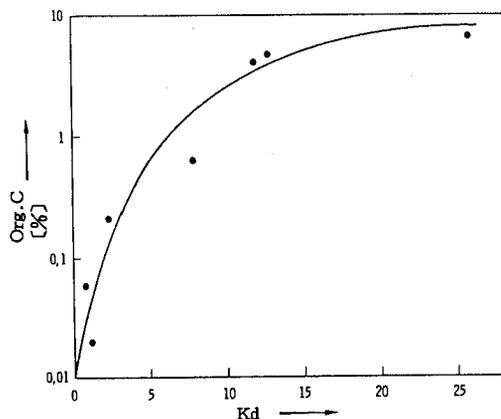


図-7 ポドゾルに対する¹²⁵Iの土壌含有有機炭素量(%)と分配係数の関係³¹⁾

当な結果である。しかしながらヨウ素(I⁻)は、この不可逆的に吸着された成分が蒸留水やコンディショニングと同じCaCl₂溶液(1 μeq/ml)により脱離されない。また、その吸着が極性を帯びない疎水性農薬と同様に、土壌の有機炭素含有量に正の相関があることも報告されている(図-7)³¹⁾。従って挙動そのものは従来提案した可逆および不可逆反応を含めた合成モデル²³⁾による破過曲線と類似していることから定量的な評価は可能であるが、そ

の不可逆性も含めて吸着機構はまだ十分に解明されていない。

同条件のカラムに ^{35}S をトレーサーとした希薄な硫酸イオンを流入させ、ヨウ素と同様にしてコンディショニングと同じ CaCl_2 溶液($1\ \mu\text{eq/ml}$)および蒸留水により溶離した破過曲線の結果を図-8³⁰⁾に示す。これによれば吸着された成分が蒸留水により著しく高い(流入させた濃度の4倍以上)濃度液として流出される(Δ 印)ことから、イオン交換と類似した CaCl_2 溶液により流出され

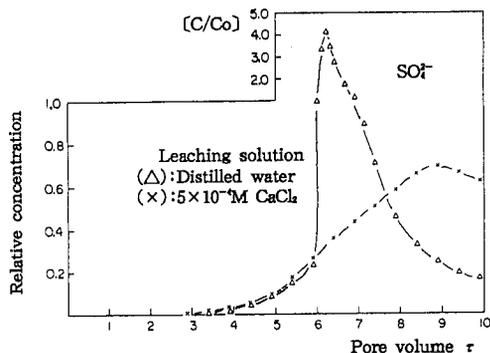


図-8 無担体状の希薄な SO_4^{2-} イオンの溶出曲線：流入量、各 $5\ \tau$ 溶離液、 CaCl_2 溶液($1\ \mu\text{eq/ml}$)および蒸留水(Δ 印)

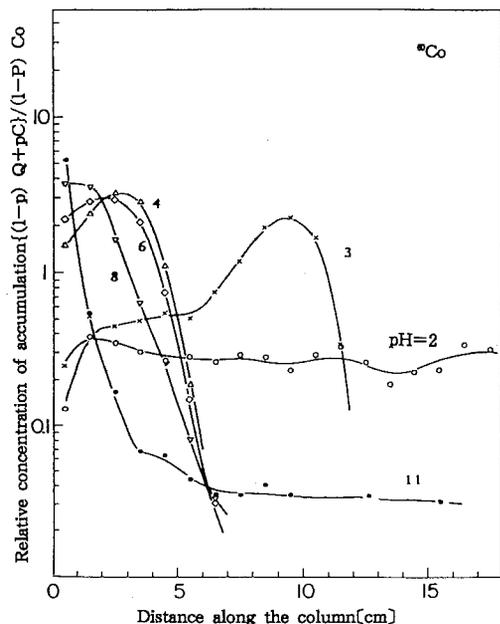


図-9 豊浦砂20cm充填カラム内の微量元素濃度分布：流入液、各々 $2\ \tau$

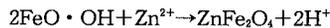
た硫酸イオンの溶離曲線(\times 印)は、土粒子表面での Ca との化学反応に基づくことが判明した。

図-9³²⁾はやはり同じ条件のコンディショニングした20cmカラムに希薄な十数種の放射性カチオン($0.001\sim 0.04\text{ppm}$)を混合した溶液を $2\ \tau$ だけ流入させた場合の ^{60}Co の吸着分布を示す。流入液のpHが $4\sim 8$ の範囲では移動速度への影響は少ないが、全般的な傾向としてはpHが低くなるほど吸着分布フロントの移動速度は速く(吸着され難く)なり、特にpHが4以下でその影響の大きいことは、最近指摘されている酸性雨による土壌の劣化現象を予期したものである。他方、pHが11と高くなれば、流入端近傍での吸着濃度が低pHに比べて高くなるものの、加水分解によるコロイド成分($\text{Co}(\text{OH})_2$)が増加して低濃度ではあるが水と同程度の速さで間隙水中を移動する現象も発現する^{32,33)}。このように機構が異なる吸着現象が複合している場合は吸着速度定数の異なる合成モデルを適用することが必要になる³²⁾。また溶質が放射性核種のように質量濃度として非常に希薄な場合で、かつ不可逆的な吸着現象も生ずる場合はそれを簡略化した1次反応モデルと可逆線形モデルとを流れ系内の反応式として複合する^{23,24)}ことにより量的評価が可能になる³²⁾。

以上のように挙動の観点から見れば個々の核種の移動および吸着挙動は種々の条件により異なっており、バッチ法やカラム法などにより得られた知見^{35,36)}をさらに累積すると共に、フィールドにも適用可能なそれらのモデル化が今後の課題である。

4. 廃棄物処分場での挙動と問題

鉄・マンガン(水)酸化物は、例えば以下のような反応により微量金属元素を吸着する²²⁾。



他方、元素によっては還元環境において溶解度が小さい化学形態をとるもの(Tc, U, Puなど)もあるが、一般的には有機物の分解により生成・発生する有機酸や CO_2 の結果として溶液中のpHが若干低下することから、微量金属元素の土壌による捕捉効果が低下して易動度が大きくなることが推定される。したがって、微量金属元素を吸着した土壌に有機物の豊富な廃棄物、例えば下水汚泥を混合して廃棄した場合、金属元素の還元の溶出現象の生ずることが考えられ、廃棄物処分に際しては何でも混合して廃棄するのではなく、処分後の影響を考慮した処分方式を確立する必要がある。

低レベル放射性廃棄物の処分場では紙、布、ゴム、ガラス、金属、動植物遺体など種々雑多な廃棄物のほかにオイルや除染用の界面活性剤などの有機化学物質も投棄

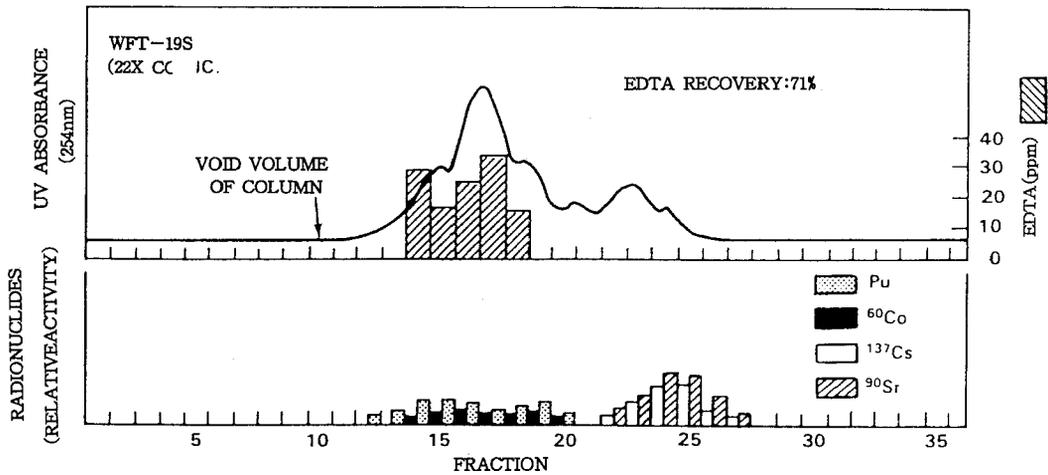


図-10 Sephadex-15カラムを用いてフラクションに分離した溶液中の放射性核種と溶存有機物：使用溶液、米国低レベル放射性廃棄物のトレンチ浸出水³⁷⁾

され、雨水の浸透水中に検出されている。これを採取してsephadex-15により分離したフラクション溶液には、図-10³⁷⁾に示すように、Pu, Co-60がキレート剤(EDTA)と共に流出し、Cs-137, Sr-90は疎水性化学物質と共に流出したことが報告されているが、土壌有機物とともにこれらに対する吸着とその挙動についてはまだ解明されていないことが多い。

有機物の挙動とも関連するが、最近、colloidal enhanced transportとして注目されているのが 10^{-3} ~ $1\mu\text{m}$ のコロイドである³⁸⁾。室内実験では数mmの移動と推定されたPu, Amが、ロスアラモス研究所の廃棄物処分場で鉛直方向に33m、水平方向にはその100倍程度の地点から検出されたことが報告されている³⁹⁾。一般的に土壌水・地下水中のコロイド生成には以下のような機構が考えられている。

- 1) pHや酸化還元電位の変化による土壌の溶解・風化
- 2) 溶液中における無機成分の過飽和による沈殿物の生成
- 3) 汚染物注入、地下水の汲み上げ、雨水の浸透などによる流速・地下水面の変動などによる乱れ
- 4) ウイルスやバクテリアの移動・分解
- 5) 有機溶媒によるエマルジョン生成
- 6) 土壌有機物の凝集・分解

このようなコロイド挙動の解明には古典的なる過作用に関連するコロイドの粒径やその分布、コロイドの安定性、易動性などに関連する表面電荷状態などのコロイド科学分野の情報・知見が必要である。最近ではヘマタイ

トやポリスチレン製ラテックス粒子を用いたコロイド移行研究により、間隙水よりもコロイド粒子の移行が速い成分の存在することやvan der Waalsや電気二重層ポテンシャルを含むDLVO理論によりコロイドと地質媒体表面間の斥力を評価してコロイド移行を予測することも試みられている^{40,41)}。

5. あとがき

本報で述べたように汚染物質が多岐にわたり、かつ土壌という複雑な媒体と複合してinteractすることから、それらの挙動の解明にはまだ多くの時間を必要とするが、わが国の一般の廃棄物処分場でも処分容量が10年分にも満たないことから、種々の有害物質や汚染物質による健康被害や汚染の拡大という形で公衆にフィードバックされるリスクが増大する可能性は大きい。そこでこのように複合された汚染物質の移行過程を素過程として個々に解明することは、フィードバック経路を遮断するもしくは汚染土壌修復の方策を確立するために不可欠であり、土壌物理・化学・生物の分野が社会に果たす役割は今後さらに大きくなると考えられる。

参考文献

- 1) Bergman, R., McEwan, C.: Dose and dose commitment due to Carbon-14 from the nuclear industry, Commissioned by the Swedish Board, Dsf/p59, S-548, 1977.

- 2) UNSCEAR: Ionizing Radiation: Sources and Effects, United Nations Publication, New York, 1982.
- 3) Easterty, C. E., Jacobs, D. G.: Tritium release strategy for a global system, In: Proc. of an Intern. Conf. on Radiation Effects and Tritium Technol. for Fusion Reactors, Vol. III, J. S. Watson and F. W. Wiffen (eds.), CONF-750989, 1975.
- 4) Dickerson, M. H., Sullivan, T. J.: ARAC Response to the Chernobyl Reactor Accident, UCID-20834, 1986.
- 5) MacDonald, H. F., Apsimon, H. M., Wilson, J. J. N.: As Initial Assessment of the Chernobyl-4 Reactor Accident Release Source, CEGB-TPRD/B-0823/R86, Central Electricity Generation Board, 1986.
- 6) van Egmond, N. D., Kesseboom, U.: Mesoscale air pollution dispersion models-1, Eulerian grid model, Atmos. Environ. 17, 257-265 1983.
- 7) Rifai, M. N. E., Kaufman, W. J., Todd, D. K.: Dispersion phenomena in laminar flow through porous media, Univ. of California, Sani. Enging. Res. Lab., Rept. 3, 1956.
- 8) Scheidigger, A. E.: The Physics of Flow Through Porous Media. 3rd edn, University of Toronto Press, Toronto, 1974.
- 9) Fukui, M., Katsurayama, K.: Fundamental study on longitudinal dispersion of tritiated water through saturated porous media, Health Phys., 28, 717-725, 1975.
- 10) 福井正美, 桂山幸典: 飽和多孔性媒質内における分子の拡散および分散現象に関する研究, 土木学会論文報告集, 第246号, 73-82 1976.
- 11) Tucker, W. A., Nelken, L. H.: Diffusion coefficients in air and water. In: Handbook Chemical Property Estimation Methods-Environmental Behaviour of Organic Compounds, W. J. Lyman, W. F. Reehl and D. H. Rosenblatt (Eds.), (Chapter 17), McGraw-Hill, 1982.
- 12) Karickhoff, S. W.: Semi-empirical estimation of sorption of hydrophobic pollutants on soils and sediments, Chemosphere, 10, 833-846, 1981.
- 13) Wagenet, R. J., Rao, P. S. C.: Basic concepts of modeling pesticide fate in the crop root zone, Weed Sci. 33, 25-32, 1985.
- 14) Fukui, M.: ^{222}Rn concentrations and variations in unconfined groundwater, J. Hydrol. 79, 83-94, 1985.
- 15) Wilkening, M.: Radon in the environment, Elsevier, Amsterdam, 1990.
- 16) Czysciwski, K. S., Weiss, A. J.: Evaluation of Isotope Migration-Land Burial, NUREG/CR-1864, 1981.
- 17) Samiullah, Y.: Prediction of the Environmental Fate of Chemicals, Elsevier Applied Science, London and New York, 1990.
- 18) Neretnieks, I.: Diffusion in the rock matrix: An important factor in radionuclide retardation, J. Geophys. Res., 85, 4379-4397, 1980.
- 19) Fujikawa, Y., Fukui, M.: Adsorptive solute transport in fractured rock: Analytical solutions for delta-type source conditions, J. Contam. Hydrol., 6, 85-102, 1990.
- 20) Champ, D. R., Merritt, W. F.: Particulate transport of cesium in groundwater, Cand. Nucl. Soc., 2nd. Ann. Conf., 66-67, 1981.
- 21) Pignolet, L., Fonsny, K., et. al.: Microbial action on fixation in a marine sediment, In: Application of distribution coefficients to radiological assessment models, Elsevier Applied Sci. Publishers, 361-370, 1986.
- 22) Fuller, W. H.: Movement of selected metals, asbestos, and cyanide in soil: Applications to waste disposal problems, EPA-600/2-77-020, 1977.
- 23) 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, 111-121, 1981.
- 24) Rao, P. S. C., Jessup, R. E.: Development and verification of simulation models for describing pesticide dynamics in soils, Ecol. Modelling, 16, 67-75, 1982.
- 25) Kim, J. I.: Geochemistry of actinides and fission products in natural aquifer systems, In: CEC Project MIRAGE, Second Summary Progress Report, EUR 12229EN, Brussels, 1989.
- 26) Wahberg, J. S., Barker, J. H. et. al.: Exchange adsorption of strontium on clay minerals, U.S. Geological Survey Bulletin, 1140-C, 1965.
- 27) 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, 58-65, 原子力安全研究協会, 1986.
- 28) 福井正美, 桂山幸典: 飽和砂層内におけるCsおよび

- 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.
- 29) Fukui, M.: Evaluation of a combined sorption model for describing cesium transport in a soil, *Health Phys.*, 35, 555-562, 1978.
 - 30) 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) - 石英砂層カラム内における放射性無機陰イオンの破過曲線について, *保健物理*, 11, 193-200, 1976.
 - 31) Bors, J., Martens, R., et al.: Studies on the role of natural and anthropogenic organic substances in the mobility of radionuclide in soils, In: *Proc. of the Intern. Conf. on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere*, 201-206, R. Oldenbourg Verlag, 1987.
 - 32) 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) - 石英砂層ラム内における長寿命放射性核種の移動におよぼすpHの影響, *保健物理*, 13, 93-101, 1978.
 - 33) 五十嵐敏文: 飽和砂層中のコバルトの移動特性, *日本原子力学会誌*, 35, 237-244, 1993.
 - 34) 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帯水層汚染の簡易評価法, *保健物理*, 16, 11-22, 1981.
 - 35) 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, *日本原子力学会誌*, 29, 498-507, 1987.
 - 36) 福井正美: 放射性廃棄物処分の環境影響評価における分配係数の変動要因, 同上, 32, 142-48, 1990.
 - 37) Kirby, L. J., Toste, A. P., et al.: Radionuclide distributions and migration mechanisms at shallow land burial sites, *NUREG/CR-4670*, 1991.
 - 38) 福井正美: 環境動態研究と放射性廃棄物, *RADIOISOTOPES*, 42, 133-134, 1993.
 - 39) Nyham, J. W., Drennon, B. J., et al.: Distribution of Plutonium and americium beneath a 33-yr-old liquid waste disposal site, *J. Environ. Qual.*, 14, 501-508, 1985.
 - 40) Sabatini, D. A., Knox, R. C. (eds.): *Transport and remediation of subsurface contaminants*, ACS Symp. Series. 1992.
 - 41) 長崎晋也, 田中知: コロイド粒径粒子の挟隘経路内の移行, 大学・原研共同研究報告書, 平成5年3月の移行, (受稿年月日1993年1月7日)