

放射性Csの添加による 土壌への固定状態の経時変化

東京大学大学院農学生命科学研究科
生物環境工学専攻 農地環境工学研究室

塩沢 昌、光岡伸子

放射性同位元素施設設

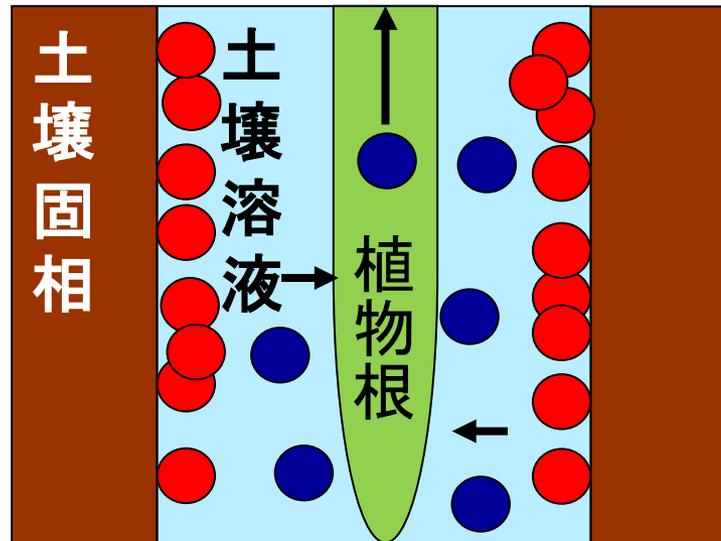
二瓶直登、田野井慶太郎

研究の背景

放射性セシウムは土壌に固定されやすい



- 土壌水とともに移動しにくい
- 植物に吸収されにくい



- 土壌固相に固定されたCs
- 水溶性Cs

セシウムの土壌への固定

1. 弱い固定:

土粒子の電荷による一般的な陽イオン固定。

負電荷をもつ土粒子や有機物は陽イオンを引きつけている

: 交換性陽イオン (Ca^{2+} 、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Cs^+)

2. 強い固定

特定の粘土鉱物(2:1型層状珪酸ケイ酸塩)の表面へのCsの特異的な固定

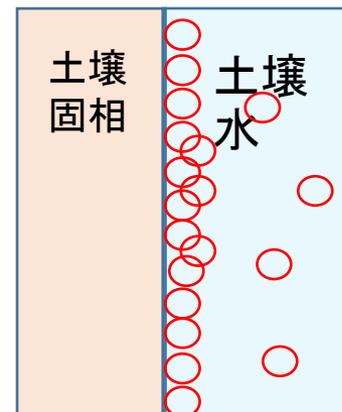
$$\text{分配係数 } (K_d) = \frac{\text{土壌に固定されたCs量 (mg/kg土)}}{\text{土壌水中のCs量 (mg/L水)}}$$

IAEA handbook: $K_d = 1200$ (平均) (Sr: $K_d = 57$)

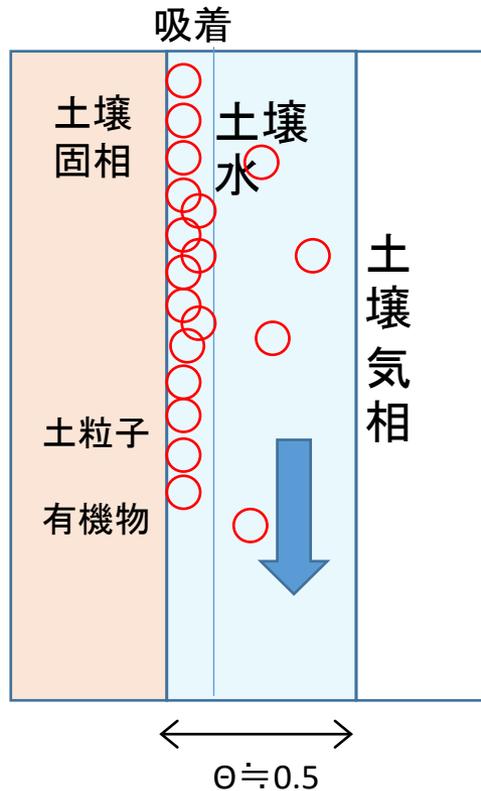
日本の水田土壌での実験室での測定によれば、

$K_d = 200 \sim 20000$ (数千)

(石川、内田、田上, Radioisotopes, 56, (2007))



浸透水とセシウム(Cs)の移動速度(理論)



$$\begin{aligned} \text{水の浸透量} &= \text{降水量 (1600mm/y)} - \text{蒸発散量} \\ &= 1000 \text{ mm/y} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{水分子の速度} &= \text{浸透量} / \text{体積含水率} (\theta) \\ &\doteq 1000 / 0.5 \\ &= 2000 \text{ mm/y} = 2 \text{ m/y} \end{aligned}$$

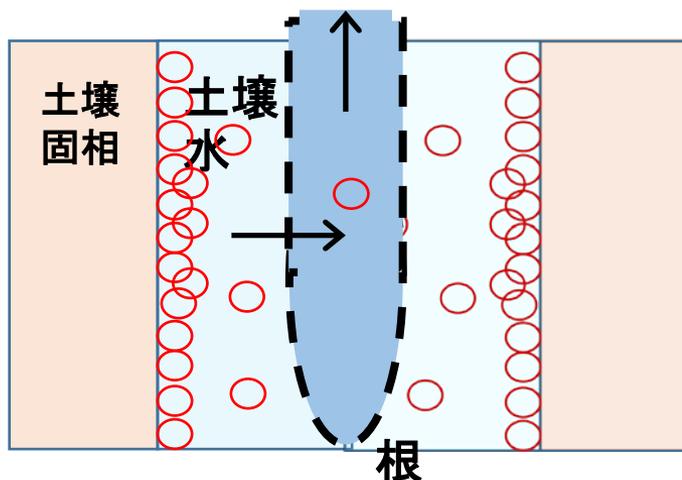
$$\frac{\text{Csの移動速度}}{\text{水の移動速度}} = \frac{\text{土壌水中のCs量}}{\text{土壌のCs量}} \approx \frac{\rho_b}{K_d \theta}$$

(ρ_b : 乾燥

密度)

文献の K_d によれば
= 1 / 1000 程度
 1-5 mm/y 程度

根のイオン吸収



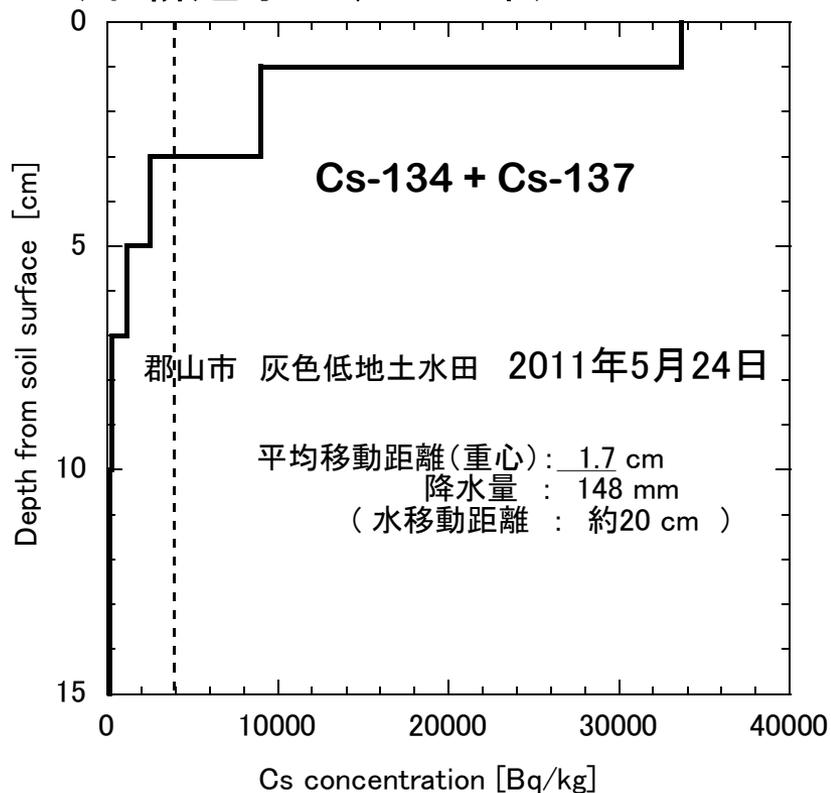
根は水に溶解したCsイオンを土壌水とともに(選択的に)吸収する。

根による吸収されやすさ(移行係数)も

$$\frac{\text{Csの移動速度}}{\text{水の移動速度}} = \frac{\text{土壌水中のCs量}}{\text{土壌のCs量}}$$

を反映する。

放射性セシウムの当初の鉛直分布と移動速度 (不耕起水田、2011年)

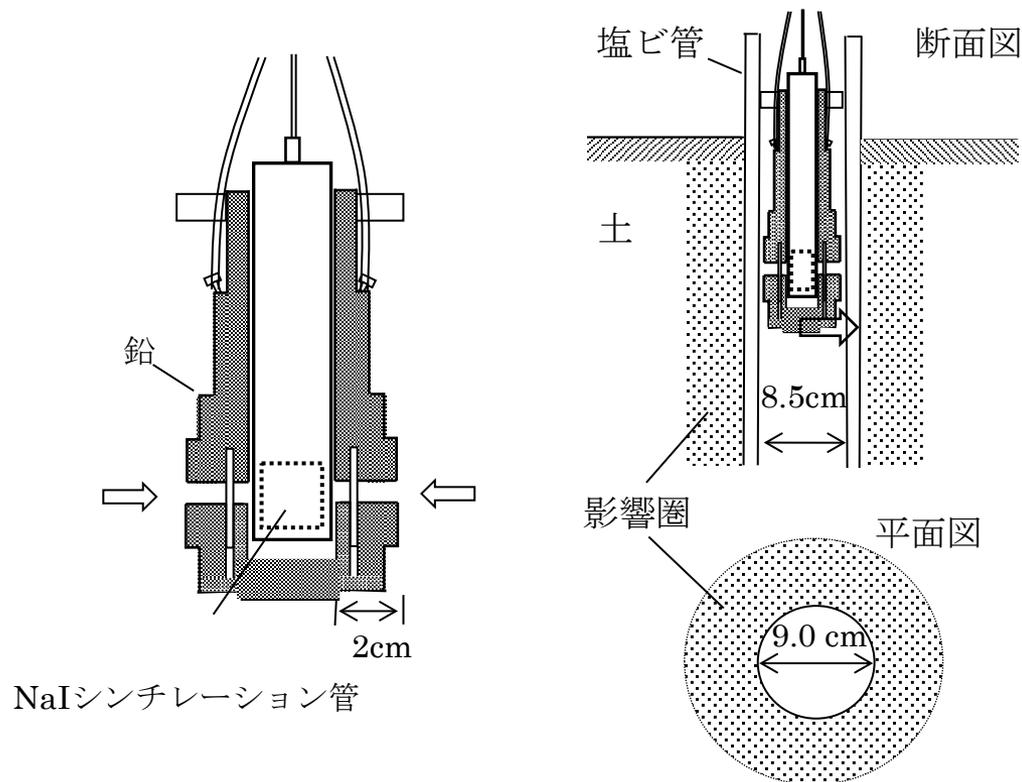


(塩沢・田野井・根本ら: *RADIOISOTOPES*, 60, 2011)

6月上旬までの2～
3ヶ月間は、予想外に
速く移動した:
水分子の速度の1/10

現場の長期測定や
実験室での吸着平衡実験か
らの予想では、
水分子の速度の
1/1000

土中ガンマ線源量測定システム



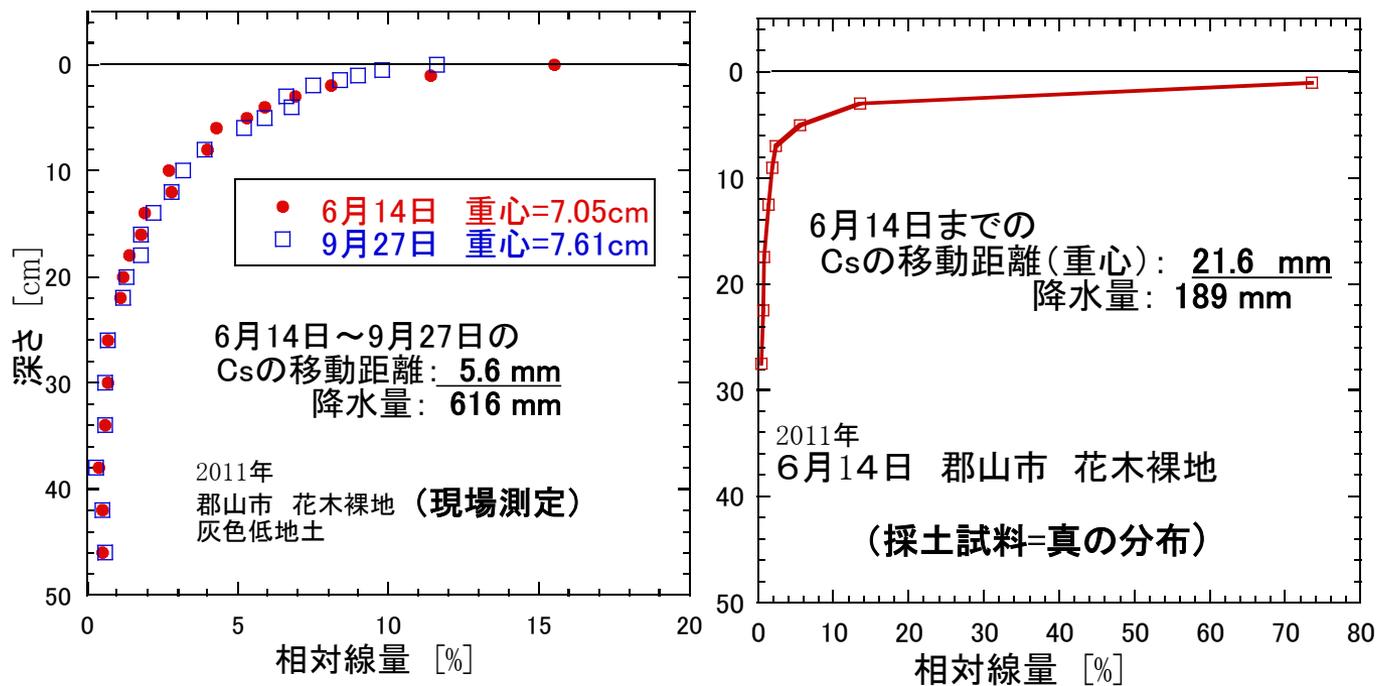
シンチレーションサーベイメータにコリメータを付け、土中の塩ビパイプ内で、水平方向に入射するガンマ線量を測定する:

2時点の分布を比較して、放射性Csの平均移動距離を求める。

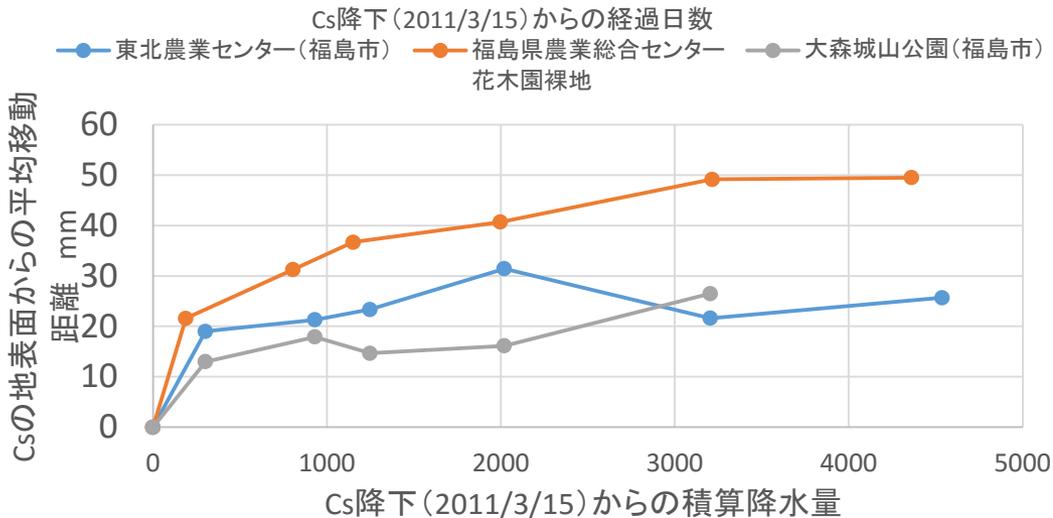
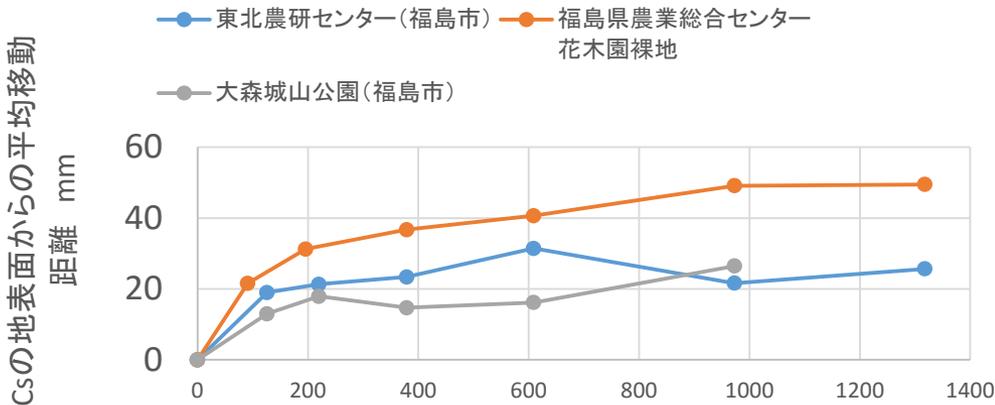
土中ガンマ線源量モニタリングパイプと測定



土中放射線分布の2時点の比較: 裸地

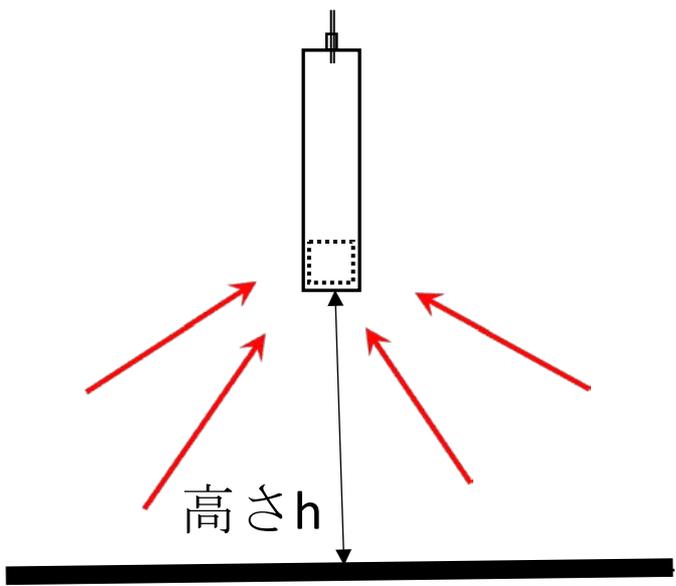


土中のCs移動量モニタリング結果

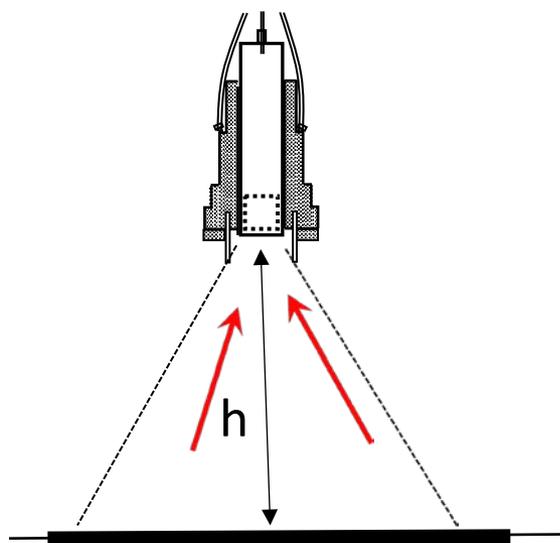


ファールアウトから2-3か月間は、水分子の速度の1/10~1/20であったが、その後は、1/500~1/1000(数mm/y)に低下: 土壌への強い固定が進行

土壌表面Cs濃度の水平分布 表面濃度の測定原理: コリメータ



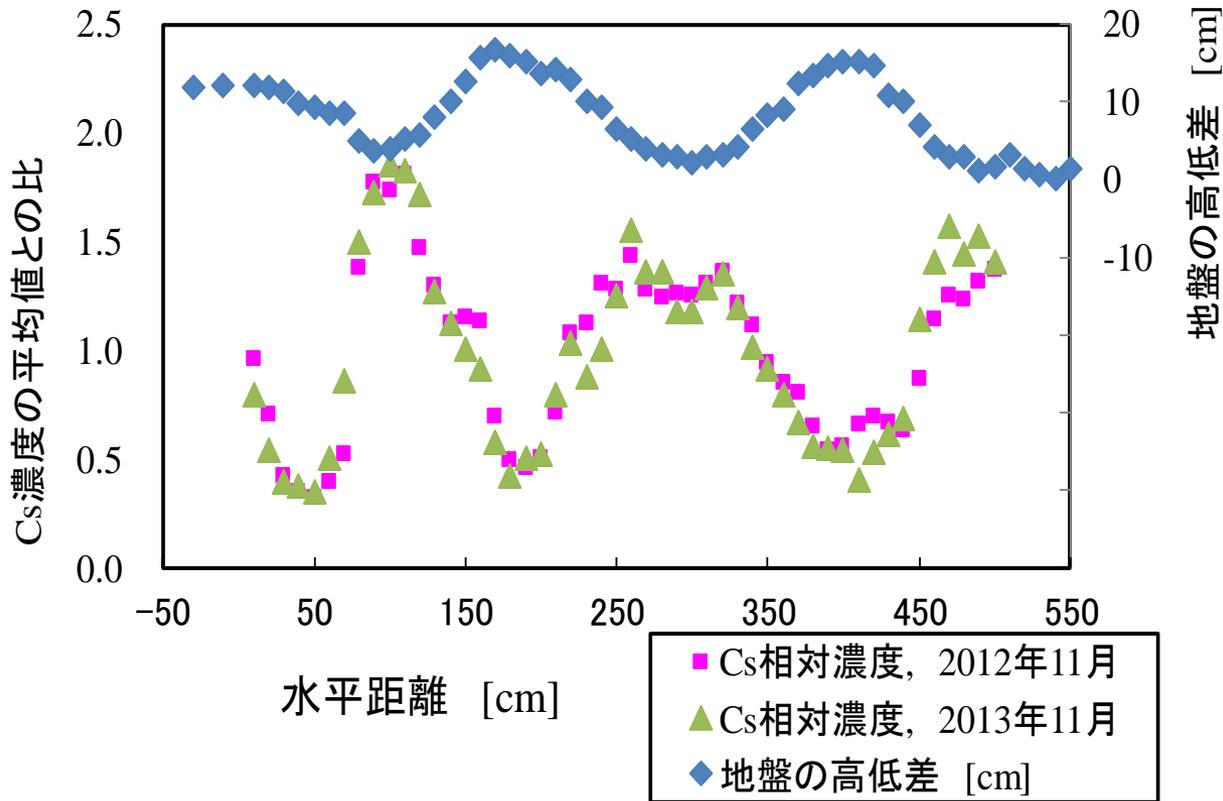
表面濃度が均一ならば測定値は高さによらない; 均一でなければ高さによる



鉛で視野外を遮蔽して、測定対象範囲に視野を狭める: コリメータ



透水性の低い土壌表面の水平方向のCs濃度分布

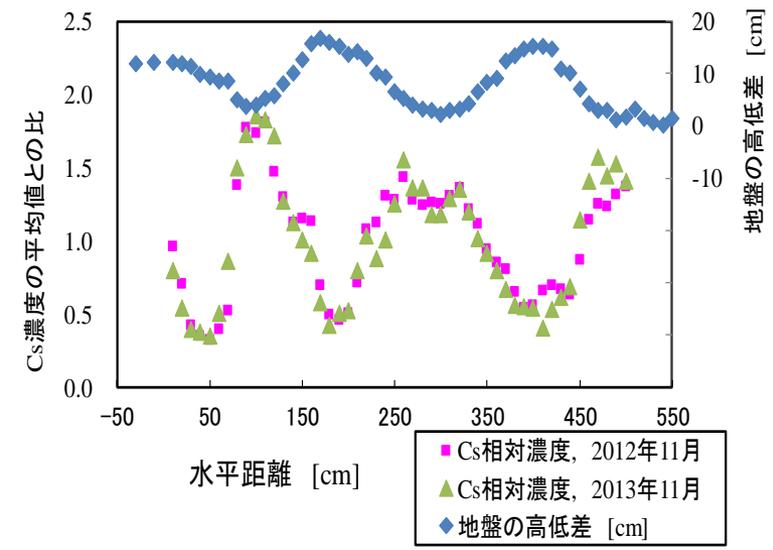
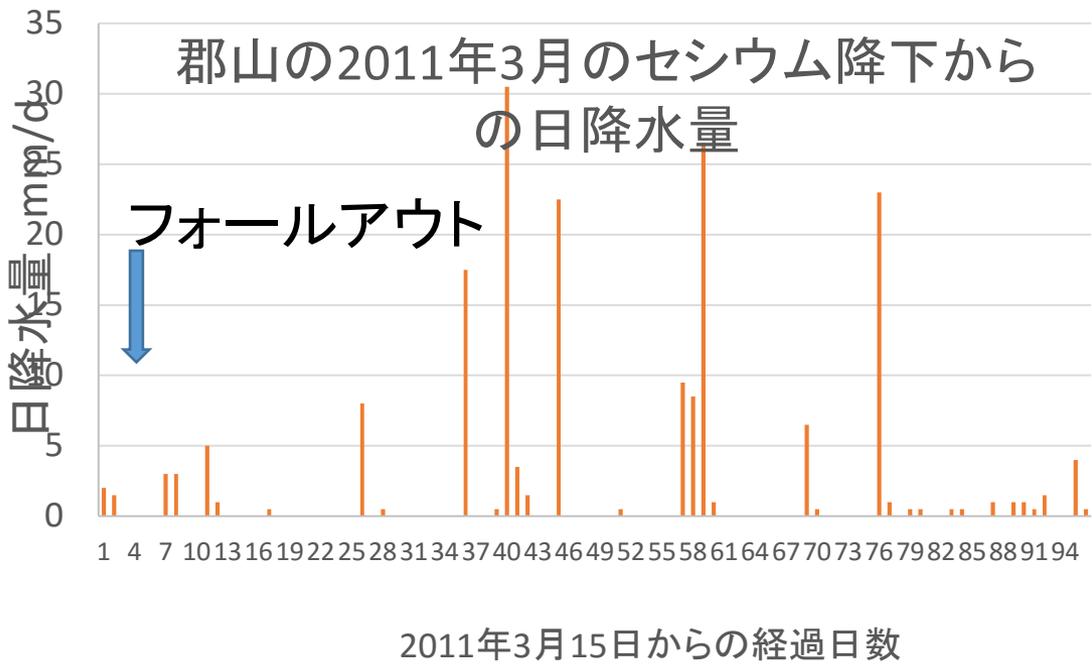


畝の山で濃度が低く、谷で高い
2011年4-5月の3回の降雨(20-30mm/d)によって、水溶性の形態で地表面を流れたと考えられる。2012年と2013年の分布はほぼ同じ:

フォールアウトから2ヶ月程度は水溶性Csがあって、水とともに移動しやすかった。

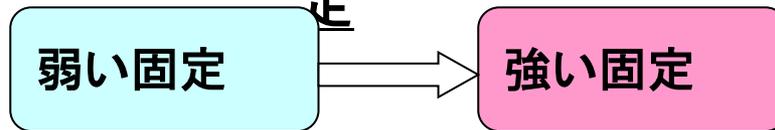
Fig.5 花木園 (農業総合センター) の畝に直交する測線上のCs相対濃度 (測線上の平均値に対する比) 分布と地盤高分布。測定高さ4 cm (影響圏直径10cm) .Cs濃度の測線平均値は431 kBq/m²(2012年)と316 kBq/m²(2013年)である。

フォールアウトから1~2ヶ月後の降雨浸透で水平移動した：
水溶性Csがかなりあった。



作物への移行係数

セシウムの土壌への固

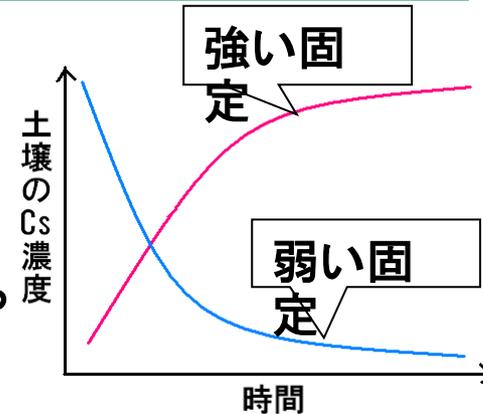


・交換性陽イオン

・植物に吸収されうる

・一度固定されたら離れない

・植物にほとんど吸収されない



$$\text{移行係数} = \frac{\text{作物中の放射性セシウム濃度(Bq/kg生重)}}{\text{土壌中の放射性セシウム濃度(Bq/kg乾土)}}$$

↓

土中のセシウムの固定状況を示す

↓

事故後数ヶ月の間の短期間の推移は分かっていない

方法：移行係数の算出

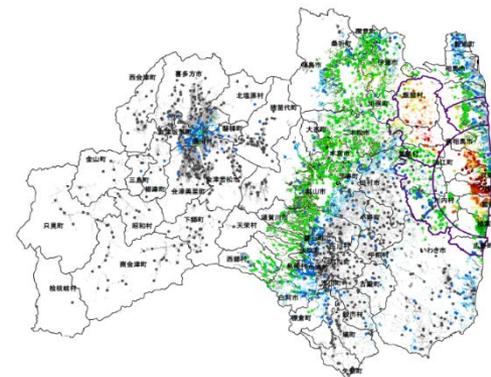
$$\text{移行係数} = \frac{\text{作物中の放射性セシウム濃度(Bq/kg生重)}}{\text{農地土壤中の放射性セシウム濃度(Bq/kg乾土)}}$$

福島県農林水産物
モニタリングデータ

- ・ホウレンソウを用いる
- ・2011年だけで300サンプル以上
→サンプル数が多い！
- ・収穫時期と吸収時期が近い
→生育期間が1～1.5ヶ月と短い

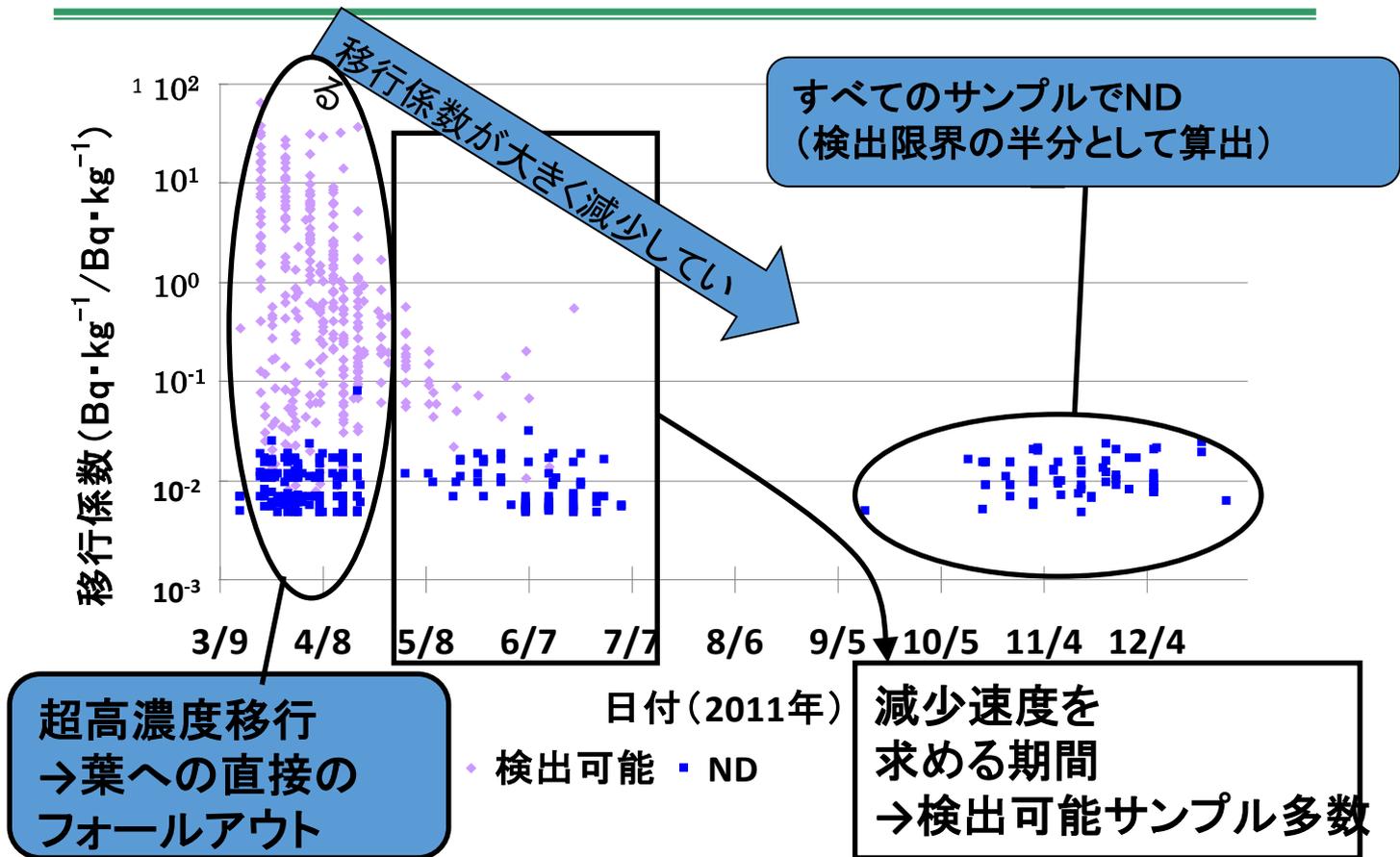
農林水産技術会議の
農地モニタリングデータ

- ・2247地点
- ・59市町村ごとに算出



光岡伸子卒業論文(2014)

結果: 移行係数の推移



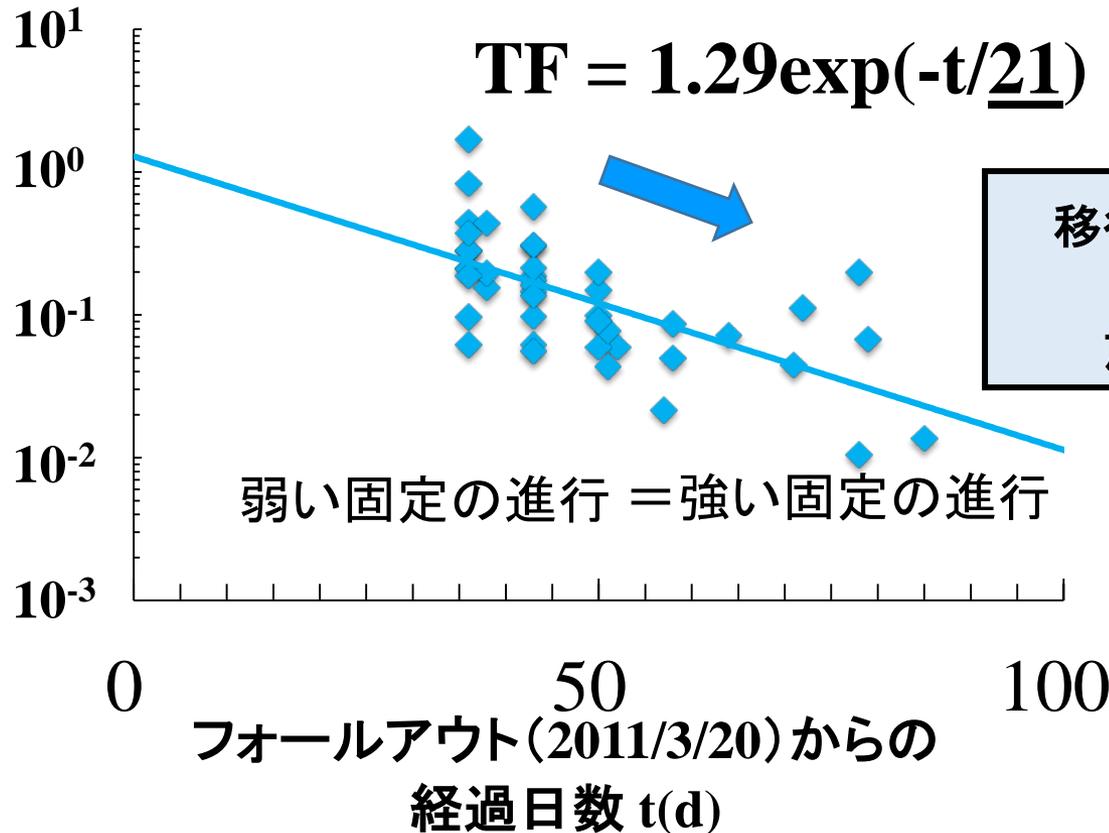
光岡卒論(2014): Csの土壌への強い固定速度の推定

移行係数 =

$$\frac{\text{作物中の放射性セシウム濃度(Bq/kg_湿重)}}{\text{土壌中の放射性セシウム濃度(Bq/kg_乾土)}} = \frac{\text{ハウレンソウの放射性Cs濃度}}{\text{農地土壌の放射性Cs濃度}}$$

モニタリングデータ使用
(福島県 & 農林水産省)

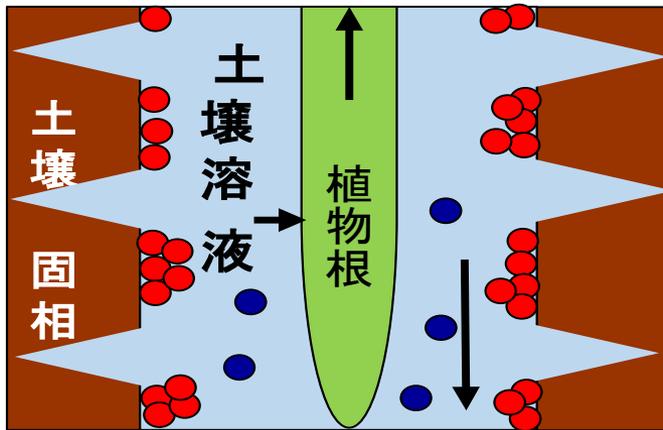
移行係数TF



移行係数の半減期: = **約15日**
↓
放射性セシウムの強い固定

弱い固定

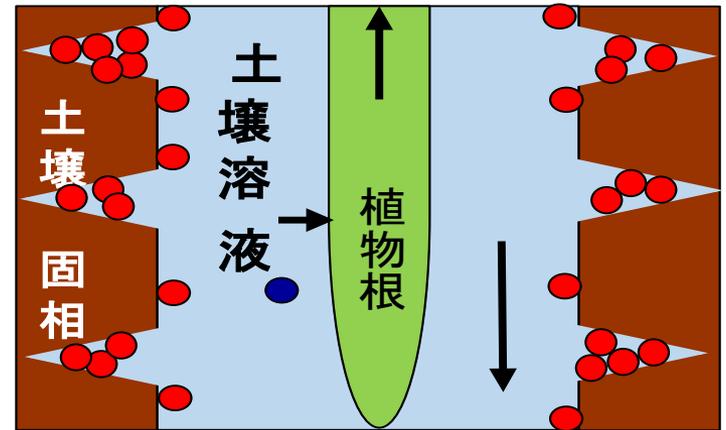
一般的な交換性陽イオン
溶存態が相対的に多い
土壌水とともに移動しやすい
植物に吸収されやすい



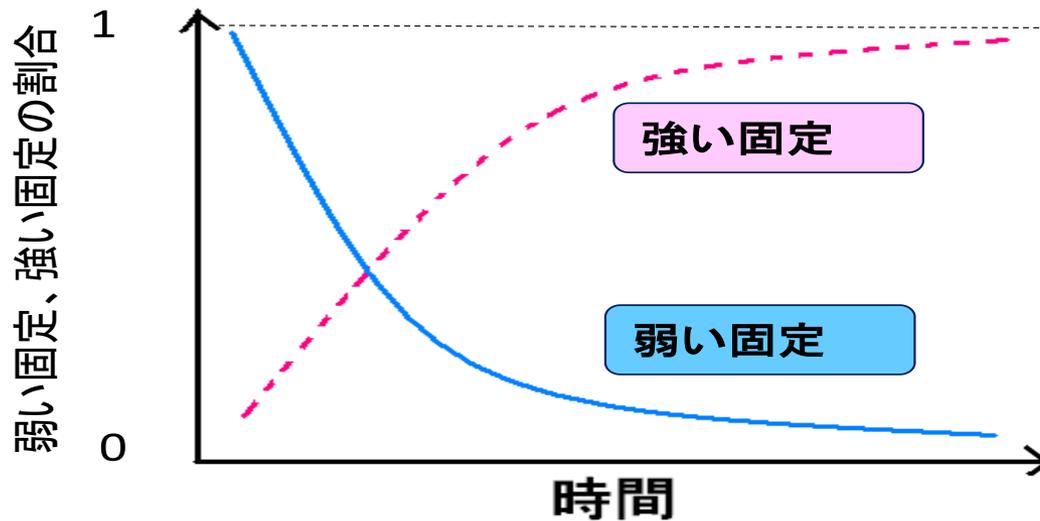
1~2数ヶ月
間は速く、そ
の後はゆっく
り進む

強い固定

粘土粒子への特異的吸着
溶存態が極めて少ない
土壌水とともに移動しにくい
植物に吸収されにくい



● 固相に固定
されたCs
● 溶存態Cs

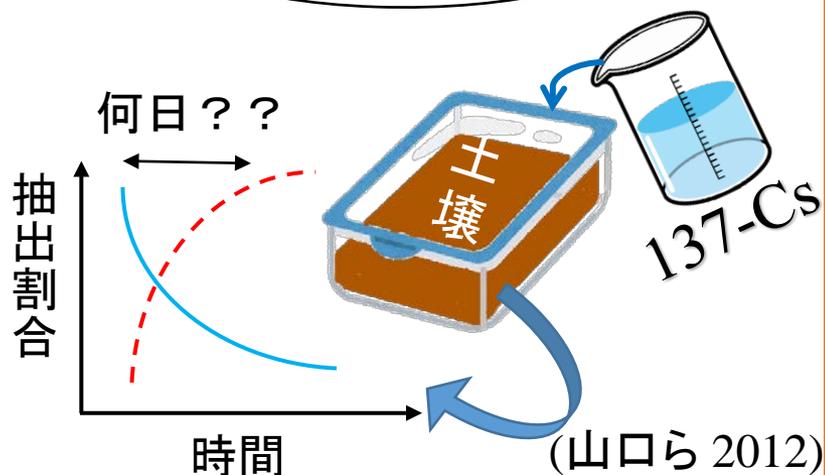


研究の目的および概要

目的: 放射性Csを土壤に添加する室内実験によりCsの土壤への固定状態の経時変化を詳しく調べる

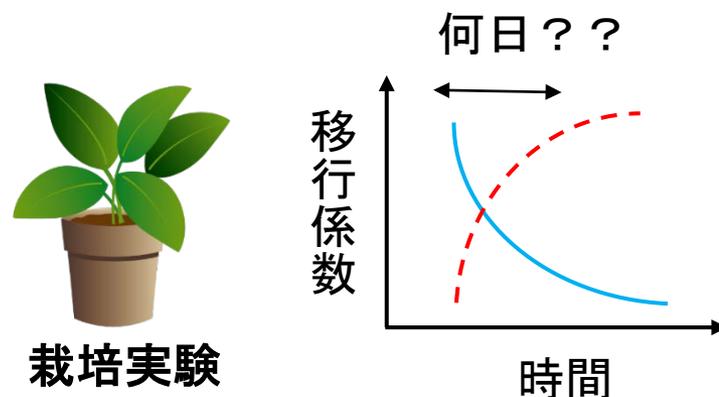
実験①: ^{137}Cs を添加した土壤の1M酢酸アンモニウム抽出Cs割合の経時変化を求める

$$= \frac{\text{抽出Cs濃度}}{\text{土壤Cs濃度}}$$



実験②: ^{137}Cs を添加した土壤でのホウレンソウ栽培実験による移行係数の経時変化の測定

$$= \frac{\text{植物Cs濃度}}{\text{土壤Cs濃度}}$$



実験①

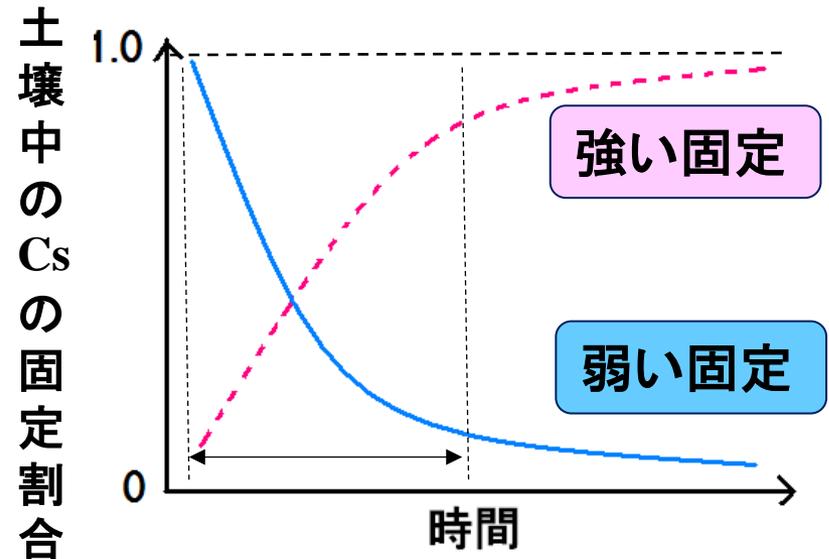
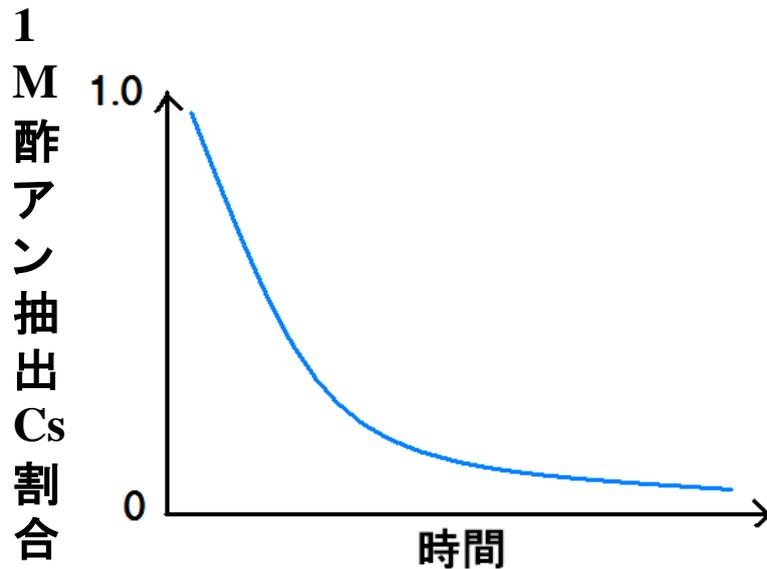
1M酢酸アンモニウム (酢アン)
抽出Cs割合の経時変化

実験①目的

① ^{137}Cs の添加による土壌への強い固定への進行速度を
弱い固定の減少速度から求める



1M酢アン抽出Cs割合の減少速度



②土壌の種類による強い固定の進行速度の違いを求める

土壤試料: 3種類の水田土壤

汚染米非検出

郡山市

福島県農業総合
センターの水田土壤

- 福島県の
典型的な土壤

汚染米検出 (2011年)

伊達市

水田土壤

- 暫定基準
500 Bq/kg超過米

汚染米検出(2013年)

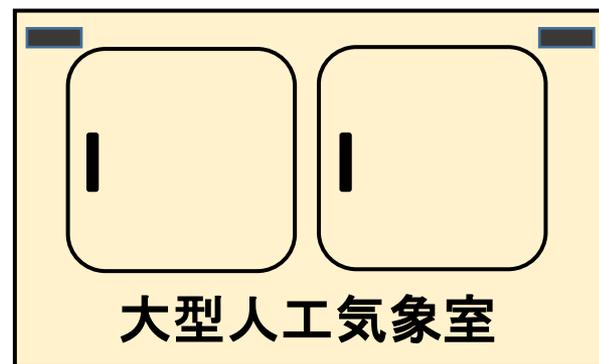
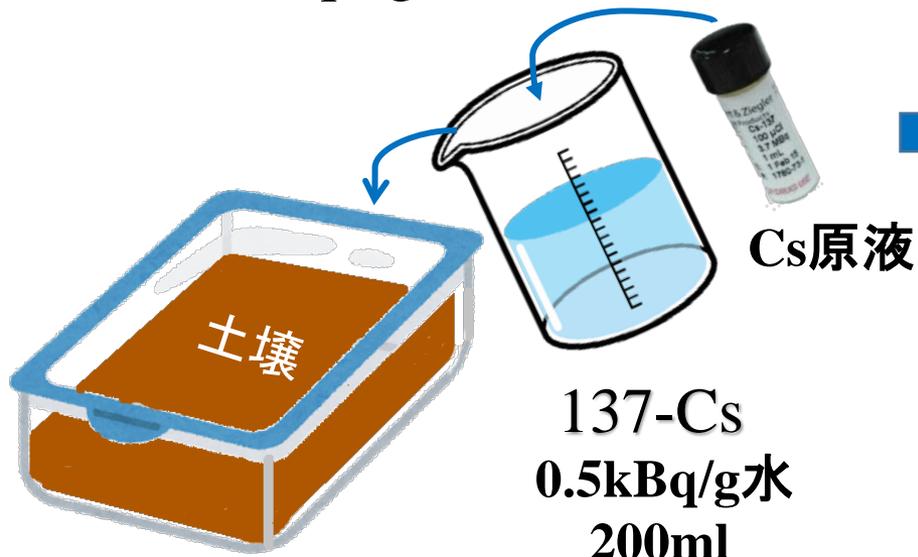
南相馬市太田川流域

水田土壤

- Cs吸収抑制剤として
カリウム、ゼオライト施用
- 現行基準100 Bq/kg 超過米

セシウム散布・保管方法

100(kBq/kg_乾土)作成



0.5~10(kBq/kg_乾土)
各1kg

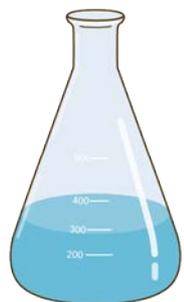
容器のフタを開けて保管

昼12h 25°C
夜12h 20°C

含水比30%⇔3%

2週間に1度蒸発分
の水を加える

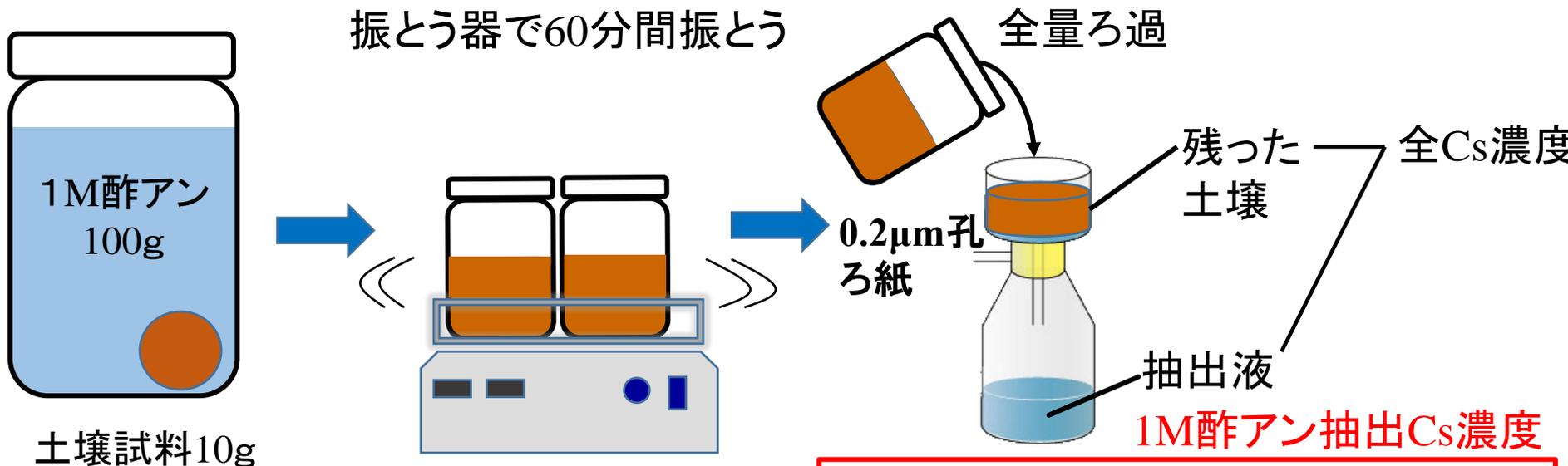
1M酢アンCs抽出測定
(2,7,14,28,42,56,70,
107,161,242日後)



RI管理区域内で実験

1M酢アンによるCs抽出方法・測定方法

1M酢酸アンモニウム溶液にてCsを抽出 = 土壤に弱く固定されたCs



$$\text{抽出割合} = \frac{\text{1M酢アン抽出Cs濃度}}{\text{土壤中の全Cs濃度}}$$

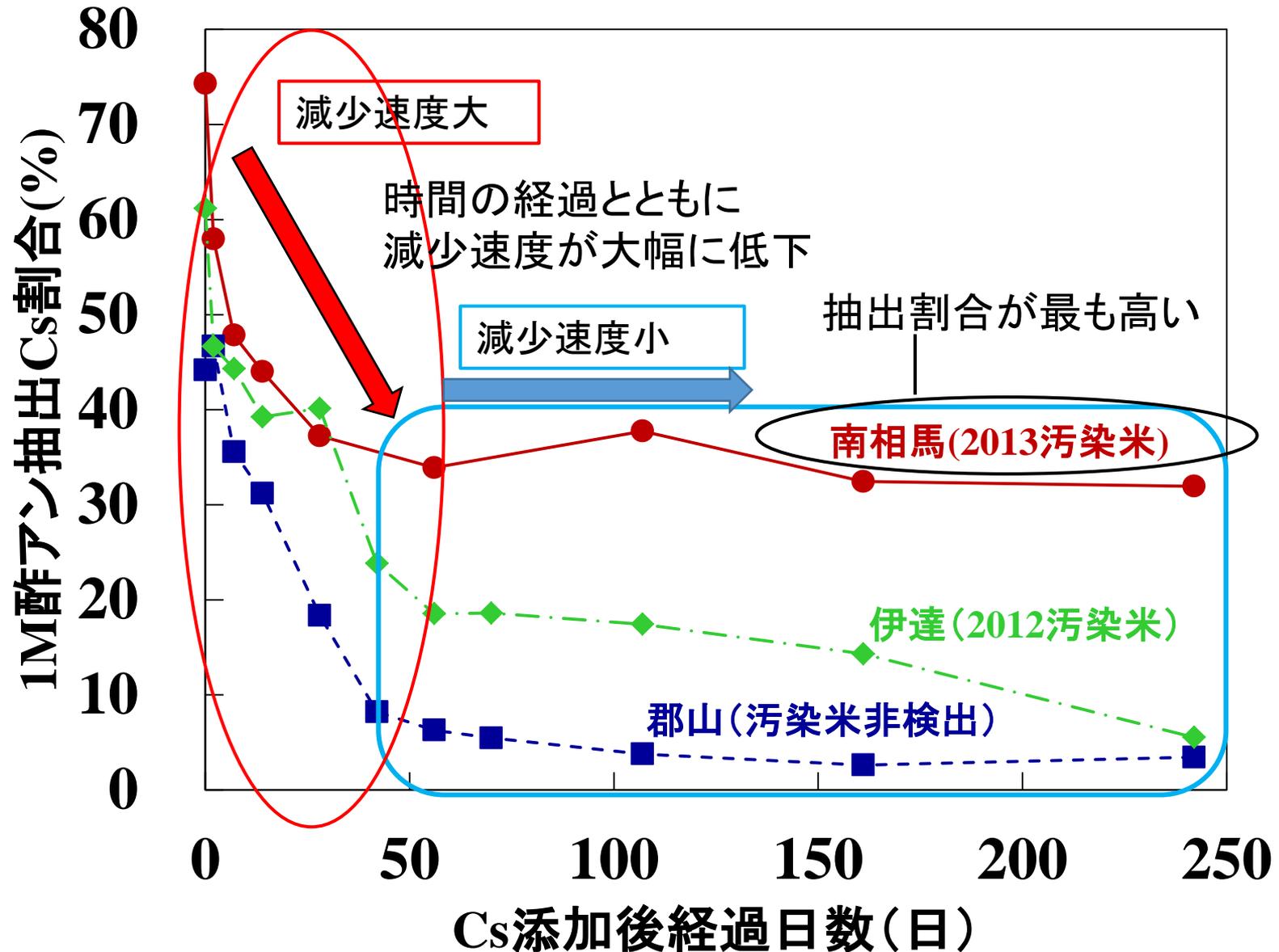
抽出液、残った土壤をそれぞれ容器に入れる



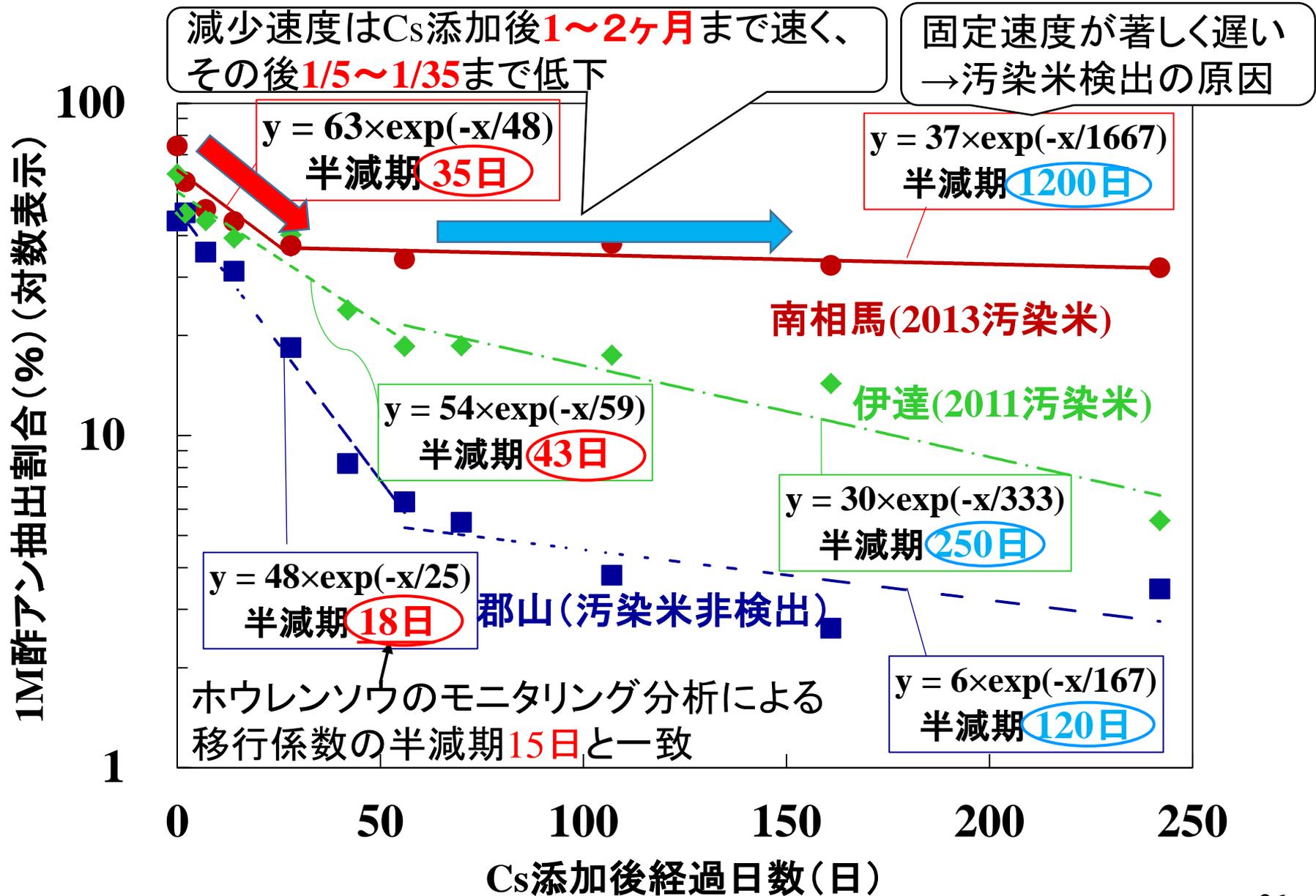
NaIシンチレーションカウンターにて放射性Cs濃度を測定

RI管理区域内で実験

1M酢アン抽出割合の経時変化



1M酢アン抽出割合の経時変化



試料の土壤理化学性

土壤 (Cs添加後1-2ヶ月経過後 の半減期)		汚染米 非検出 郡山 (半減期 120日)	2011年 汚染米検出 伊達 (半減期 250日)	2013年 汚染米検出 南相馬 (半減期 1200日)
有機物含量(%)		1.07	1.51	1.80
CEC(cmol/kg)		50.47	38.46	46.52
粒度分布 (%)	砂 (0.02mm-2.0mm)	61.59	62.18	80.14
	粘土(0.002以下)	20.45	19.68	12.44
RIP(mmol/kg)		1990	1520	1160

※RIP: RIP (Radiocesium Interception Potential) 土壤中のCs特異吸着サイト(FES)の量を表す指標。
高RIP=Csを強く固定する土壤 (Cremers 1988)

土壤の理化学性、RIPではCsの固定の進行速度の土壤による著しい違いを説明できない

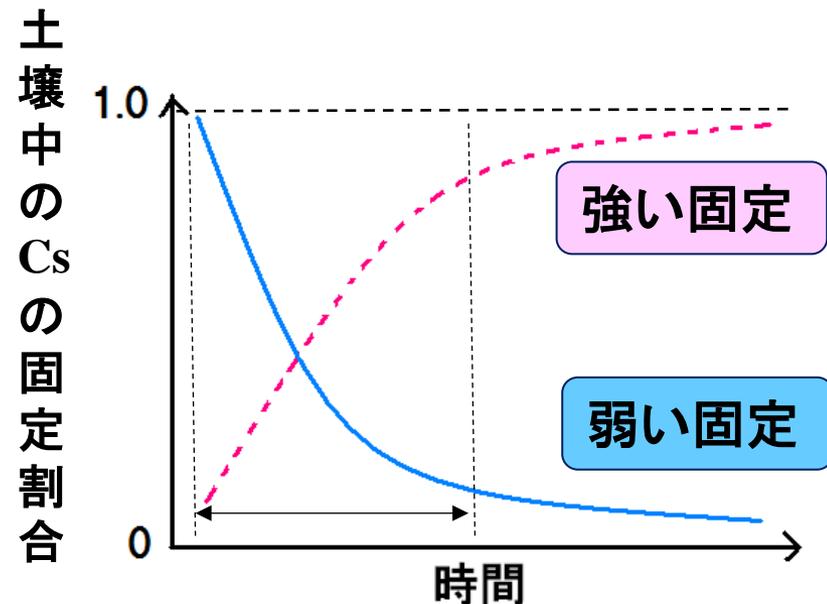
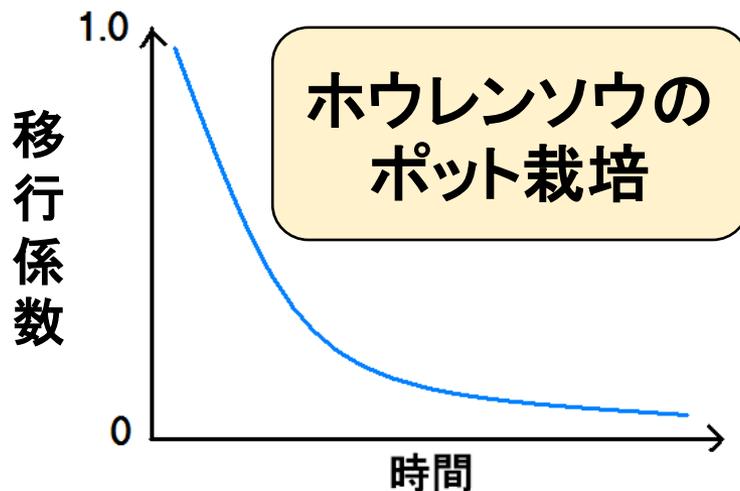
実験②

植物への移行係数の経時変化

実験②目的

137-Csの添加による土壌への強い固定への進行速度を
弱い固定の減少速度から求める

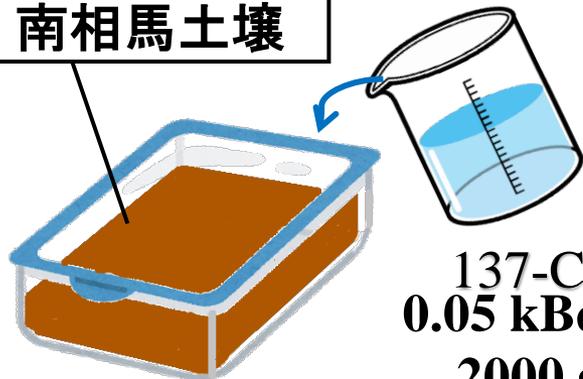
移行係数の減少速度



ホウレンソウの栽培方法・Csの測定方法

10 (kBq/kg_乾土)作成

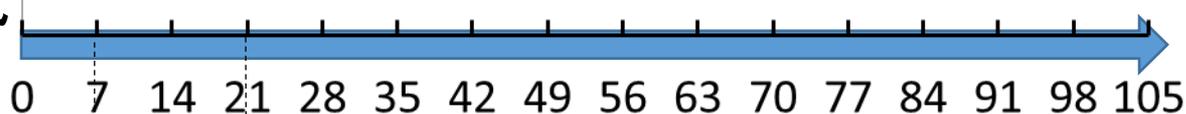
郡山市および
南相馬土壤



$^{137}\text{-Cs}$
0.05 kBq/g水
2000 g

0.5~3 (kBq/kg_乾土)10 kg

Cs添加後経過日数(日)



60日間栽培



67日目収穫



60日間栽培



81日目収穫



60日間栽培



95、109、214、242日目
収穫

NaIシンチレーションカウンター
にて放射性Cs濃度測定

地上部

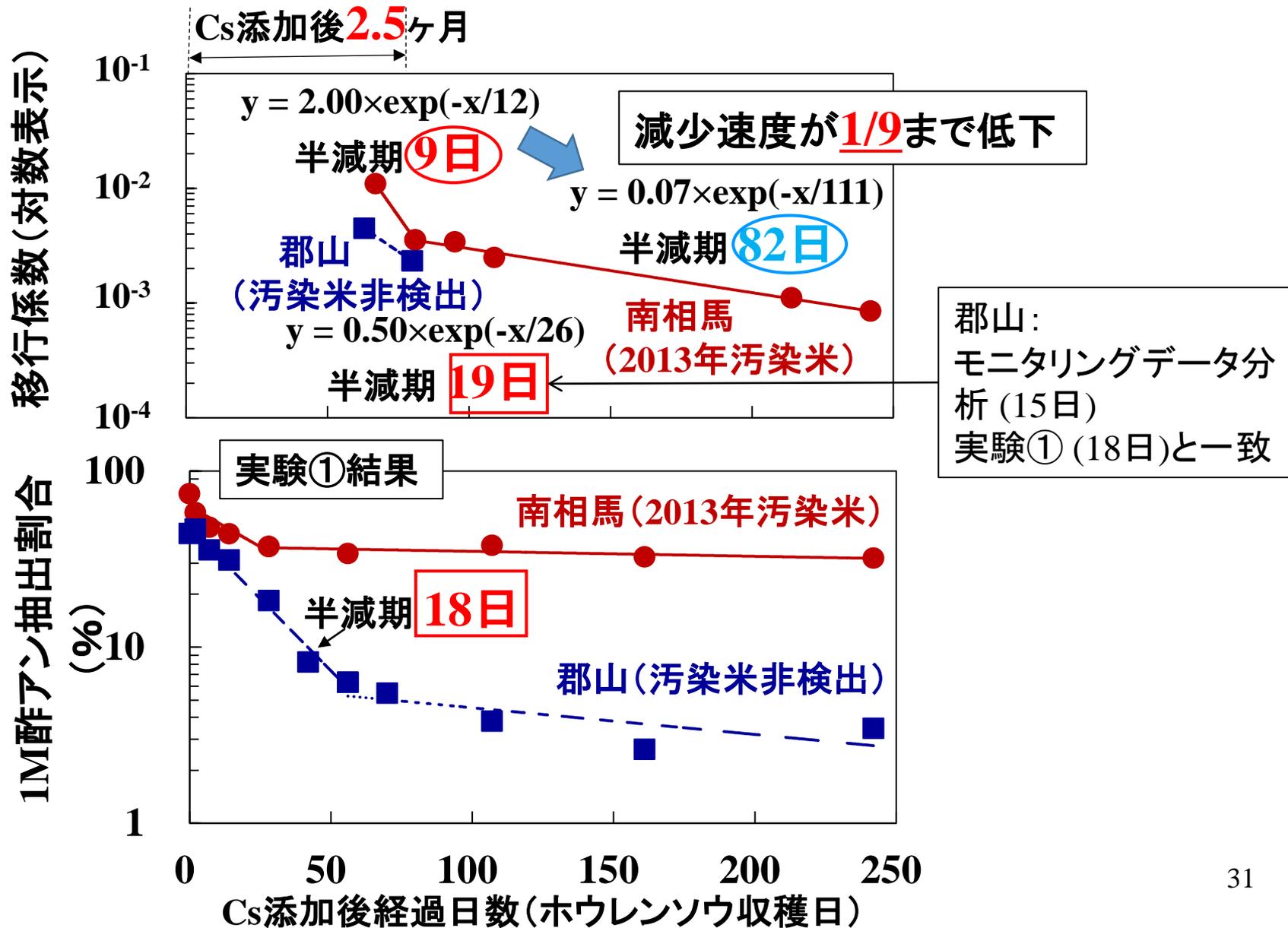
ポット内土壤

移行係数 =

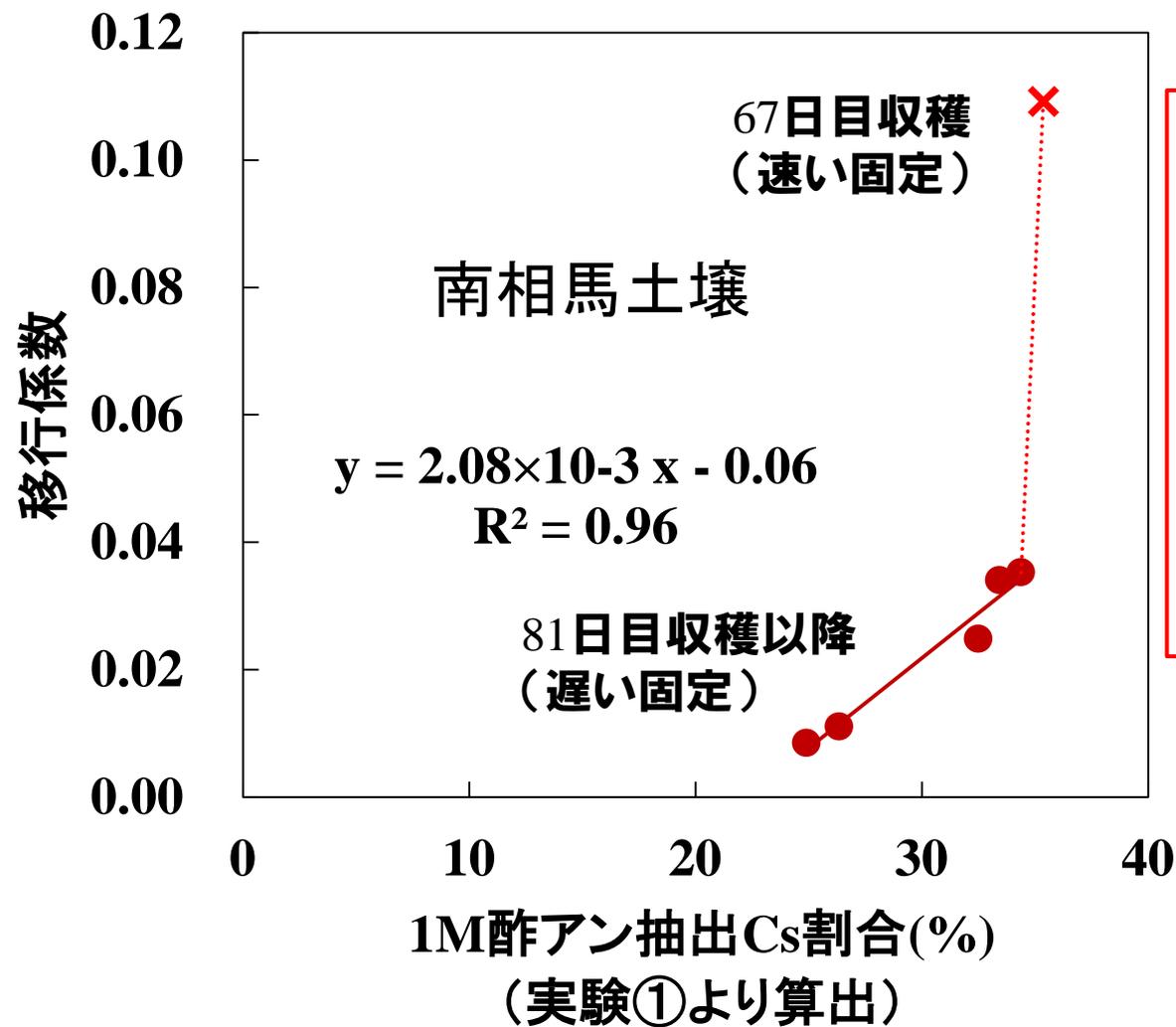
ホウレンソウ中の放射性Cs濃度 (Bq/kg_湿重)

土壤中の放射性Cs濃度 (Bq/kg_乾土)

ホウレンソウへの移行係数の経時変化



1M酢酸アンモニウム抽出Cs割合と移行係数の関係



- 移行係数と1M酢アン抽出Cs割合がほぼ比例関係()
- ↓
- 植物への可給性の指標として有効

まとめ

作物へのCs移行は土壌への強い固定の進行によって
時間とともに著しく減少する

①その進行速度は、

Cs添加後**1~2.5ヶ月**は速く(半減期9~43日)

それ以降は**1/5~1/35**の速度まで低下(半減期18~1200日)

②その進行速度は土壌によって異なり、

汚染米検出土壌では著しく遅かった

(南相馬土壌で半減期3.5年(1200日))

③移行係数と1M酢アン抽出割合には高い相関があり、

植物への可給性の指標として有効

ありがとうございました

大気圏核実験以降の放射性Cs降下量

玄米と白米のCs濃度の経年推移

1963年から3年間で
1/10
その後
1990までに1/10000

1963年から3年で1/10
その後、1990年までに1/100
移行係数の半減期: 約9年

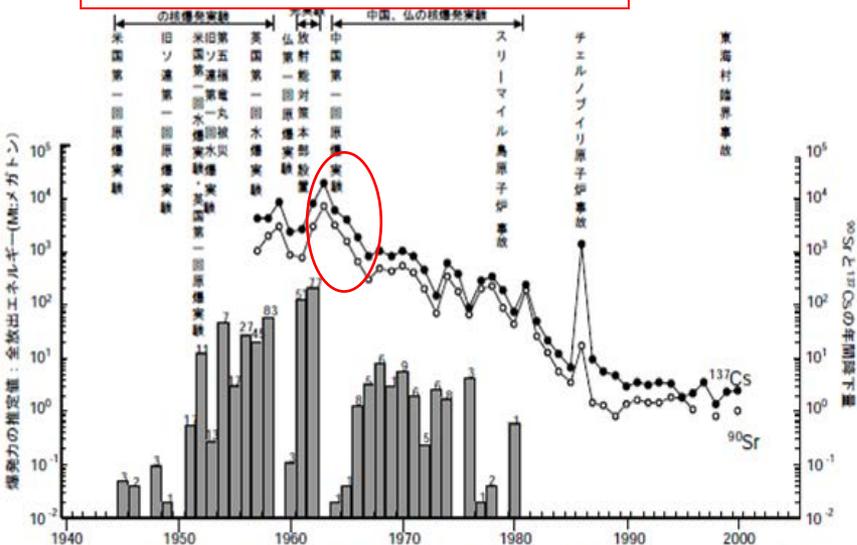


図1 大気圏内核爆発実験の年次ごとの回数と爆発力の推定値およびわが国における⁹⁰Srと¹³⁷Csの降下量
(原子力安全委員会 (1983)、青山ら (1996) および気象庁:放射能観測報告 (2003) を参考に作図)
注) 棒線は爆発力の推定値。その上の数字は核爆発実験回数を示す。折れ線は⁹⁰Srと¹³⁷Csの年間降下量である。

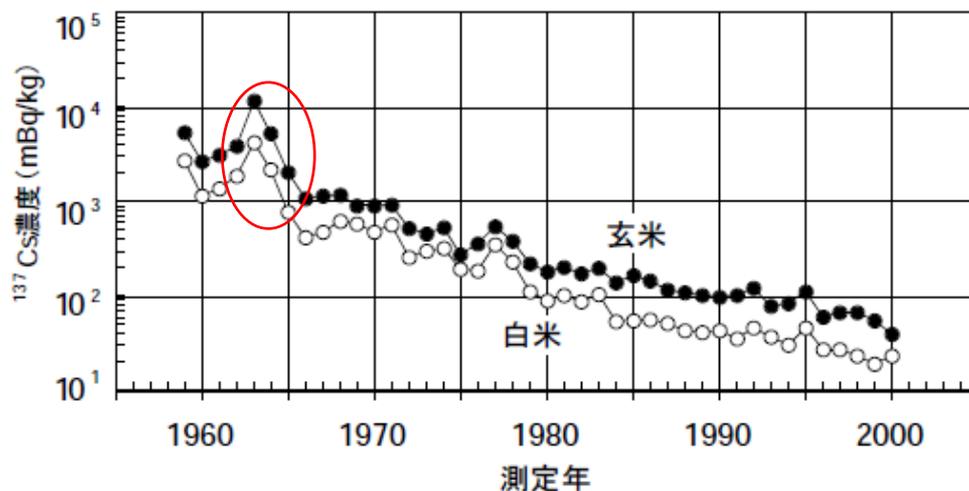


図3 玄米と白米における⁹⁰Srと¹³⁷Cs濃度の経年推移 (全国平均)

(駒村美佐子ら: 農技研報 24 (2007) より)

セシウムの特徴

➤半減期

セシウム134:2.065年、セシウム137:30.167年

➤水に溶解し一価の陽イオンとなる Cs^+

➤600°Cで気体

➤原発事故 気体として大気に放出し、
降雨により地上に降下

対象とする福島県内の土壌

伊達市：
2012年に汚染米が検出

南相馬市旧太田村
太田川流域

- 2013年に汚染米検出
- セシウム吸収抑制対策として
- 塩化カリ:50kg/10a
- ゼオライト:200kg/10a

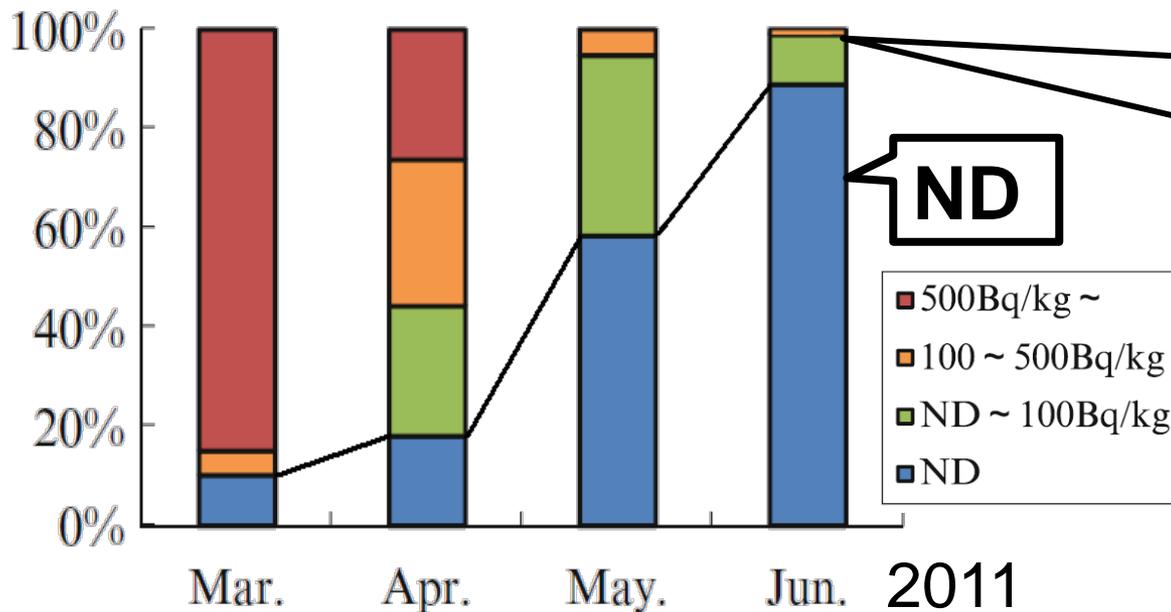
★ 福島第一原発

郡山市：
福島県農業試験場



事故後数ヶ月の間の農作物中の放射性Cs

- 多くの農作物においては、事故後数ヶ月の間に作物中の放射性Csの検出濃度は大きく減少



高濃度汚染
サンプル割合が
数ヶ月で大きく減少

数ヶ月の間にCsの
強い固定が進み、
作物に吸収され難く
なった

例：事故後のホウレンソウの放射性セシウム濃度の推移
(2011年、福島、Nihei 2013 改)

農作物の汚染状況

- 基準値超過割合の推移(%)

品目	2011年度	2012年度	2013年度	2014年度
米	2.2	0.0008	0.0003	0.00002
麦	4.8	0	0	0
豆類	2.3	1.1	0.4	0.1
野菜類	3.0	0.03	0	0
果実類	7.7	0.3	0	0

(農林水産省 2015改)

➤ 農業生産現場における取り組み(対策剤施用、除染)

➤ **放射性セシウムの土壌への固定の進行**

により基準値超過割合は年々減少傾向にある