

第六回放射能の農畜水産物等への影響についての研究報告会

# 土壌中の放射性セシウムの 振る舞いについて

東京大学大学院農学生命科学研究科  
生物・環境工学専攻環境地水学研究室  
西村 拓

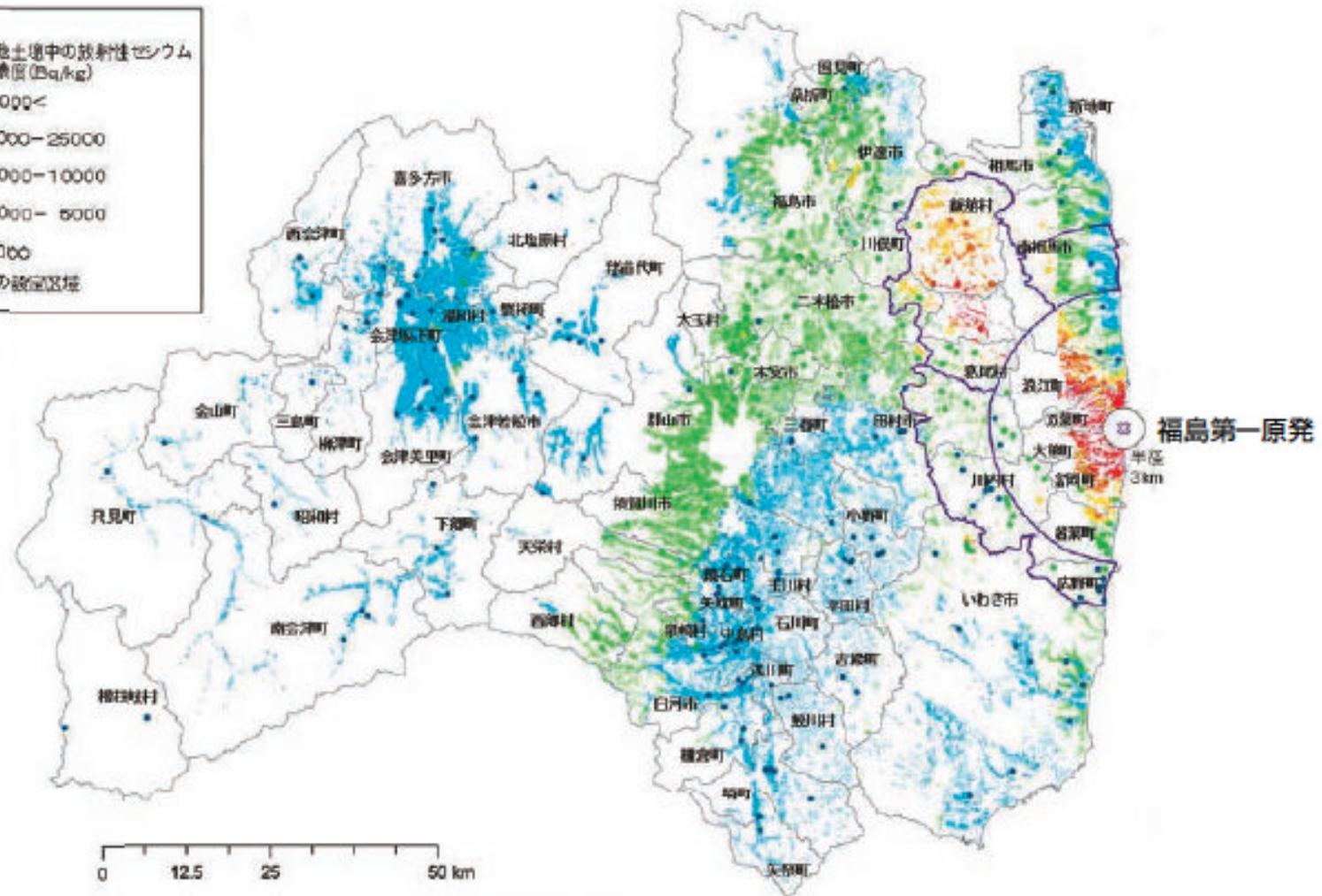
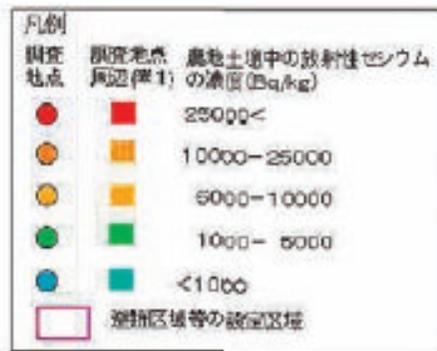
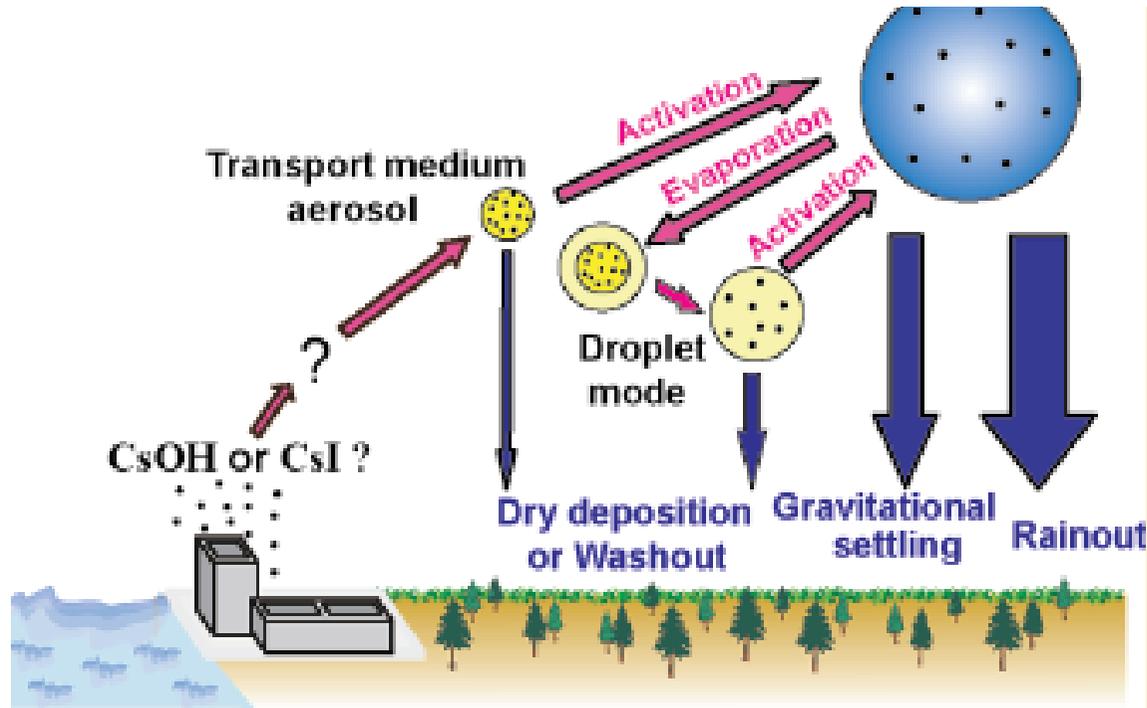


図3 福島県における農地土壌の放射性セシウム濃度分布推定図

<http://www.niaes.affrc.go.jp/sinfo/publish/niaesnews/093/093.html>

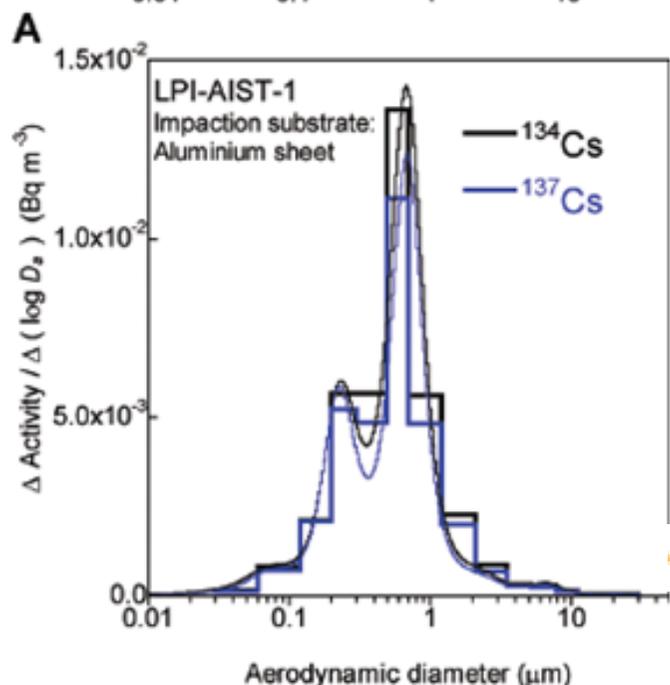
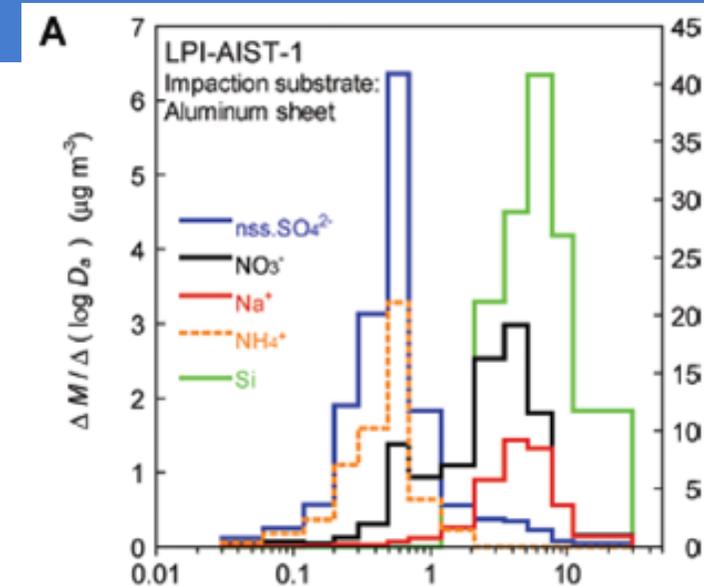
# どうやって土まで来た？

[dx.doi.org/10.1021/es204667h](https://doi.org/10.1021/es204667h) | Environ. Sci. Technol. 2012, 46, 5720–5726



- ✓ 0.1~2  $\mu\text{m}$  (特に0.49~0.7  $\mu\text{m}$ ) のエアロゾルに放射性Csが検出  
大気中のエアロゾルの粒径組成および化学組成から
- ✓ 海水起源ではない  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $(\text{NH}_4)\text{HSO}_4$  (ammonium bisulfate) が放射性Csの運搬役と推察される(類似の現象は $^{222}\text{Rn}$ では指摘されてる)。
- ✓ エアロゾルの大きさ: 0.5  $\mu\text{m}$ 程度が主、表面でなく核の部分にCsがあると考えられる
- ✓ 土粒子由来のエアロゾルによる運搬はそれほどない

# エアロゾルの粒径分布の例 (上: 化学物質別、下: 放射性Cs別)



粒子の形で土壌に入る  
降水に溶解して土壌に入る

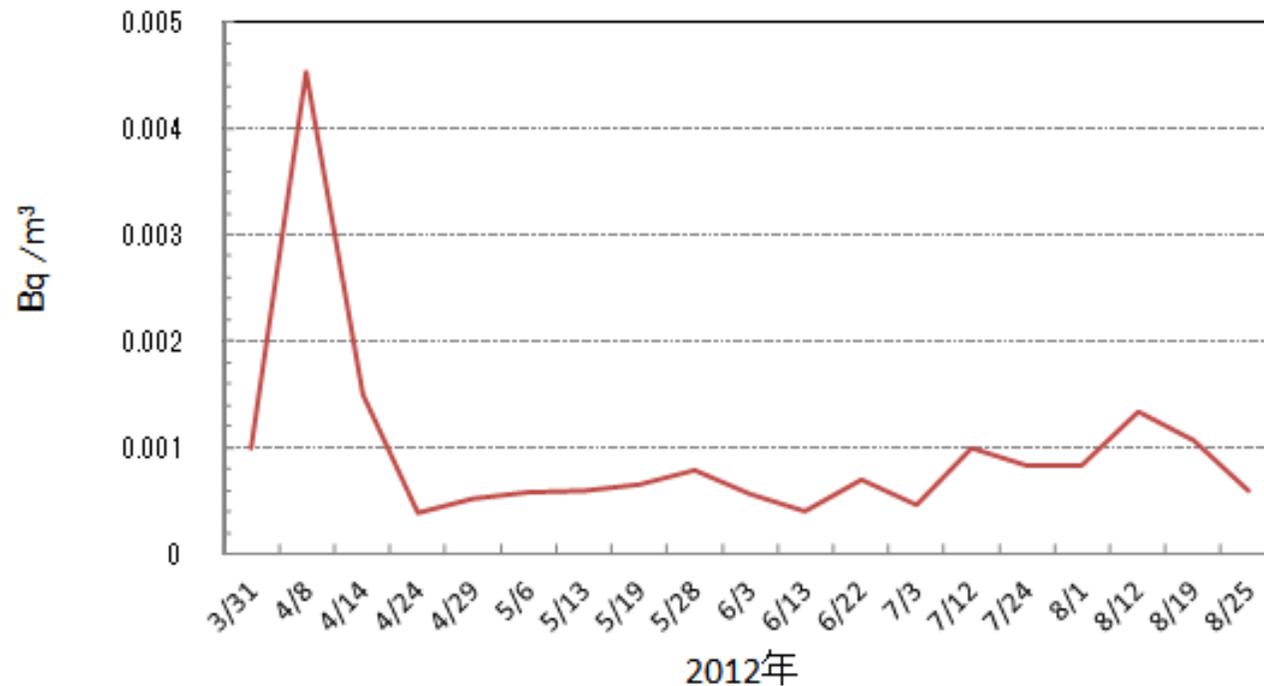
- 水溶してイオンのまま移動?
- 粒子のまま、水と一緒に移動?
- 粗大有機物に収着?
- 土壌に収着?

..... どうなる可能性が高い?

[dx.doi.org/10.1021/es204667h](https://doi.org/10.1021/es204667h) | *Environ. Sci. Technol.* 2012, 46, 5720–5726



飯舘村のエアロゾル  
空気一立方メートル当たりの放射性セシウム量



土器屋他 <http://www.fukushima-saisei.jp/report201210.html>

エアロゾル(が少ないから?)に伴った放射性Csは基本的に少ない  
地表面に沈着した放射性Csはどこへ? ①土中を移動? ②地表面を移動?  
②は少々難しいので本日は主として①を念頭に話を進める

農地土壌を耕うんすると混合される。(灰色低地土, 赤色土, クロボク土)  
 黒ボク土は, 耕うんの範囲を超えて移動している傾向が見られる。  
 1960年代の大気核実験で放出された核種の解析なので, 約30年間の移動

Cs-137の動態

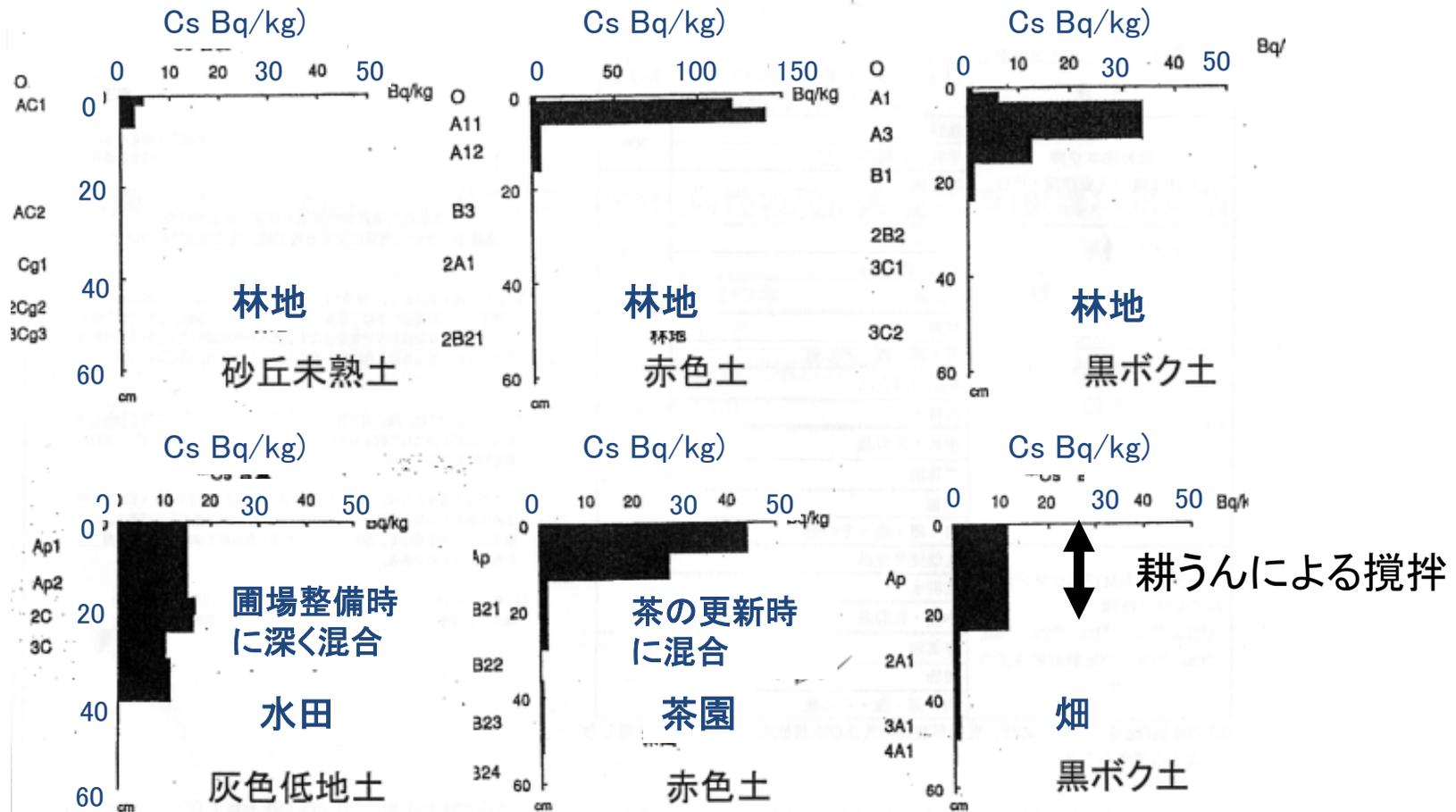
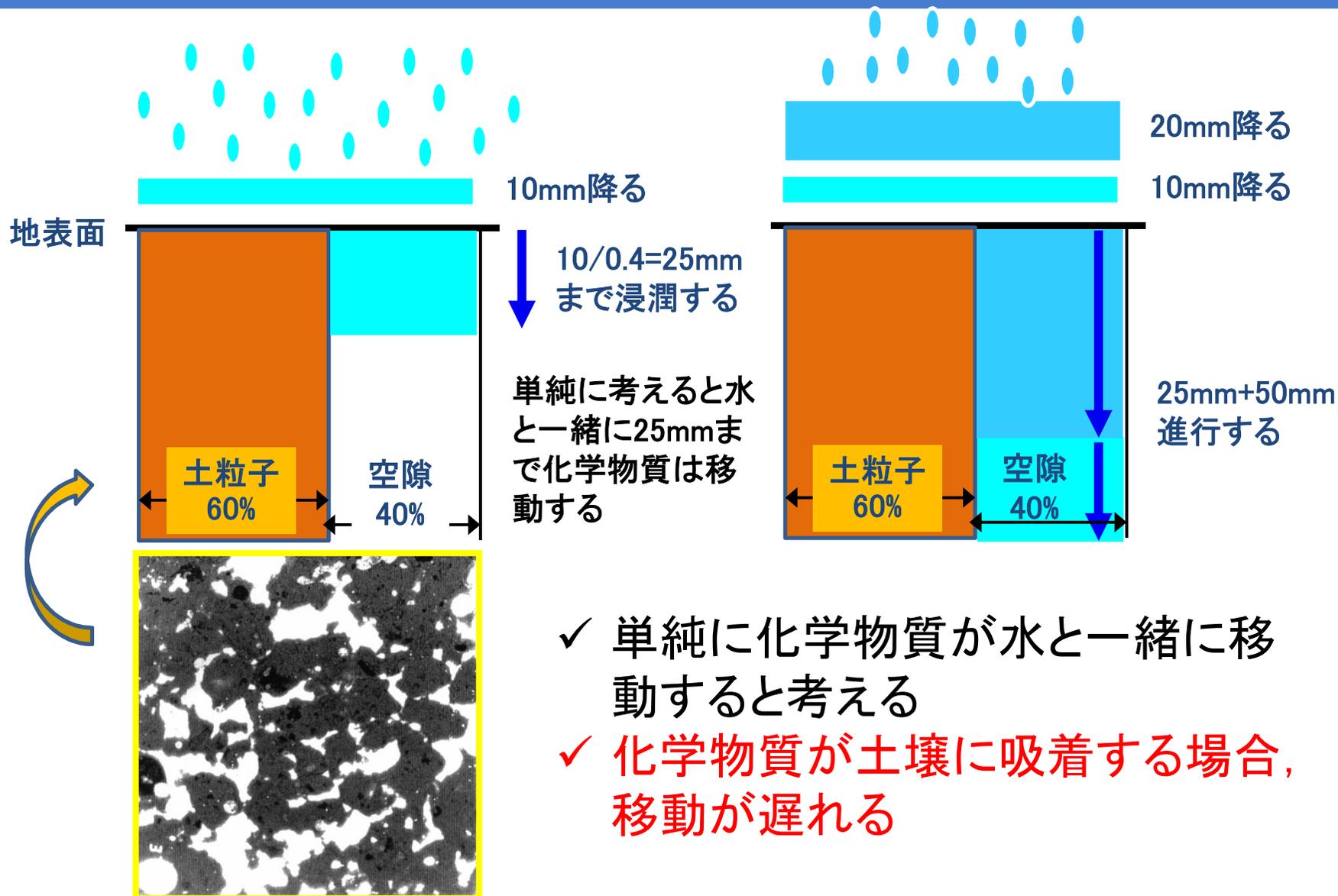


図 日本におけるCs-137の土層内分布(駒村ら, 1995) <sup>26</sup>

# 単純なピストン流型の移動



# 遅延係数 R

吸着量(mol/kg)= $K_d$  × 溶液中濃度(mol/L)

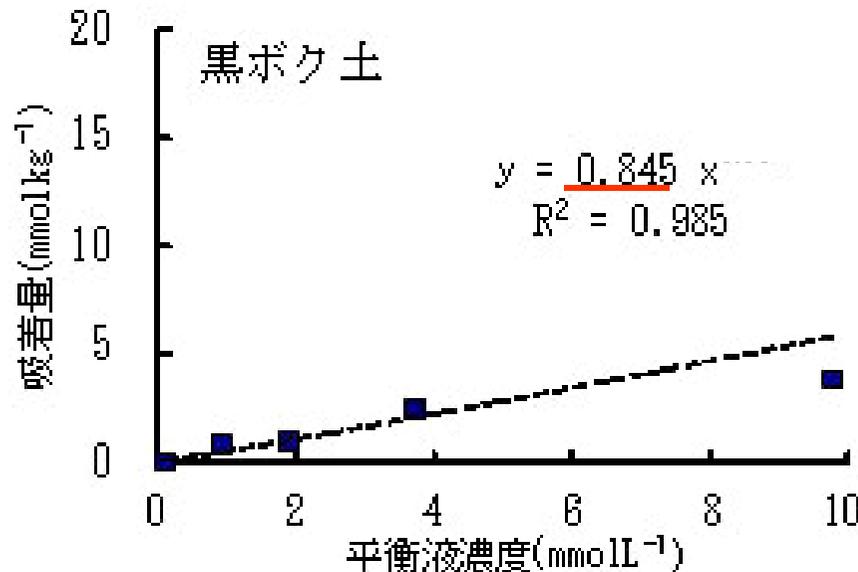
$$R = 1 + \frac{\rho_d}{\theta} K_d$$

R: 遅延係数

$\rho_d$ : 乾燥密度(g/cm<sup>3</sup>)

$\theta$ : 体積含水率

$K_d$ : 分配係数(L/kg)



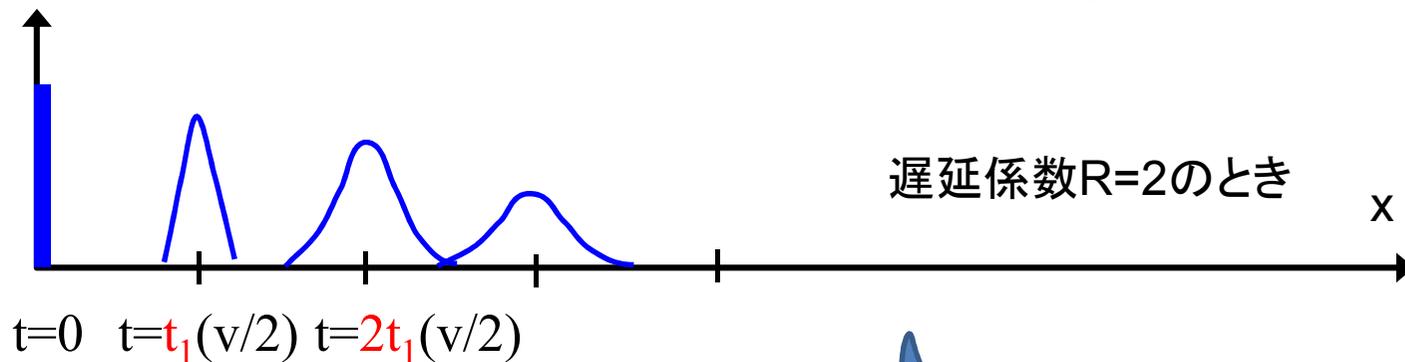
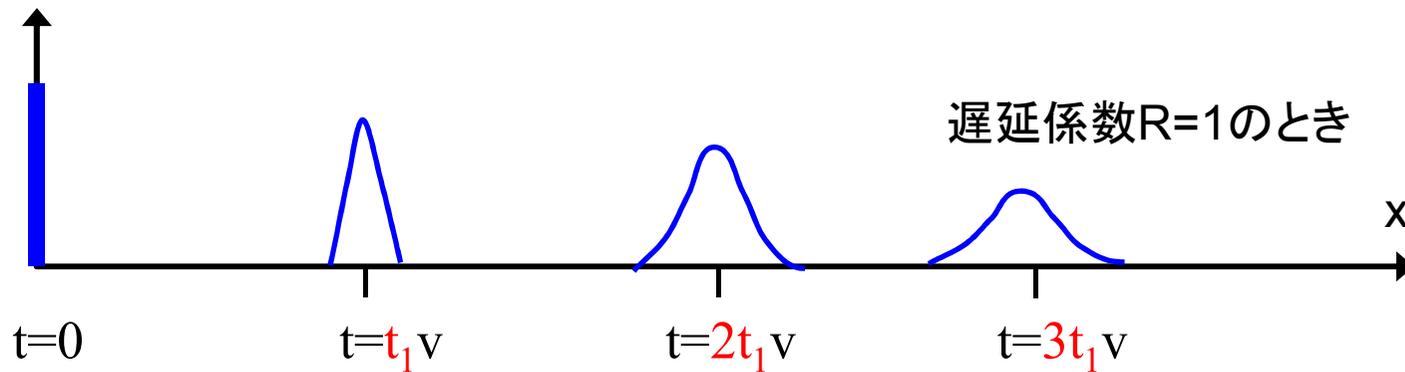
$\rho_d := 0.6 \text{ g cm}^{-3}$ ,  $K_d := 0.845 \text{ L kg}^{-1}$ とすると

飽和時  $R = 1 + 0.6/0.77 \times 0.845 = 1.66$

$\theta = 0.5$ の時  $R = 1 + 0.6/0.5 \times 0.845 = 2.01$

$K_d = 100$ だと  $R \doteq 120$

# 土壤中を平均間隙流速 $v$ で水が浸透しているときの溶質濃度分布の例



$$=vt_1$$

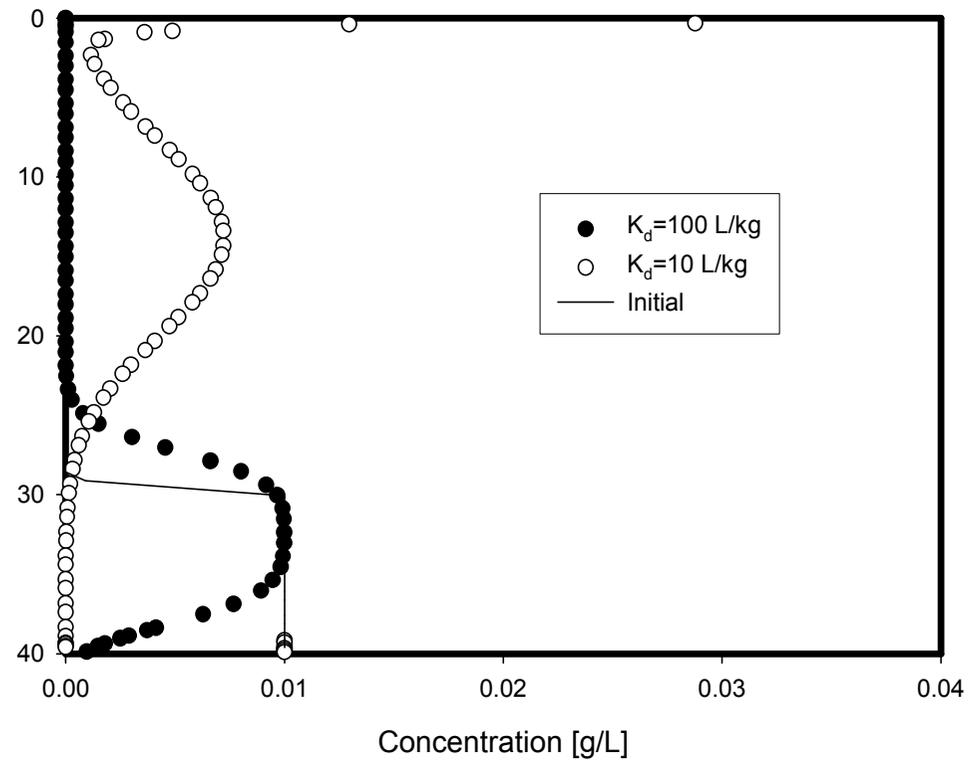
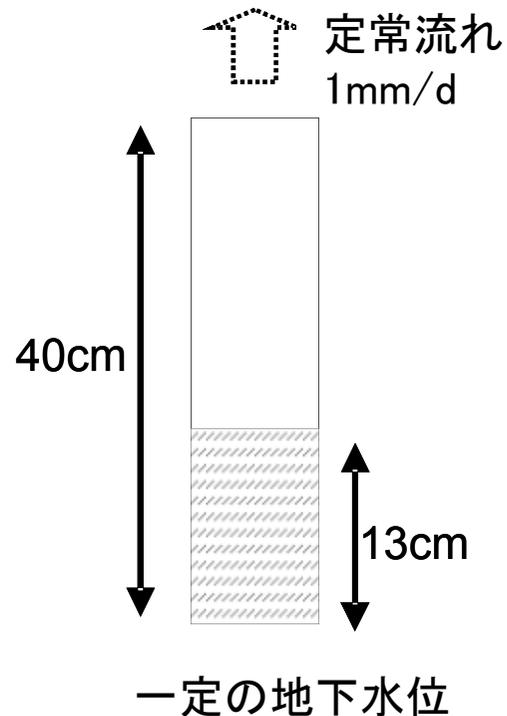
$$t=3t_1(v/2)$$

$$=1.5t_1 v$$

吸着の無い物質が距離 $L$ に達する時間を $t$ とすると、吸着のあるときには同じ $L$ 移動するのに $t_b = R \times t$ だけ時間を要する。

平均間隙流速 $v$

# 吸着がどの位効くか



1日1mm (36.5cm/年)の水の流れがを想定  
地下水中の吸着性物質の移動 (10年後)

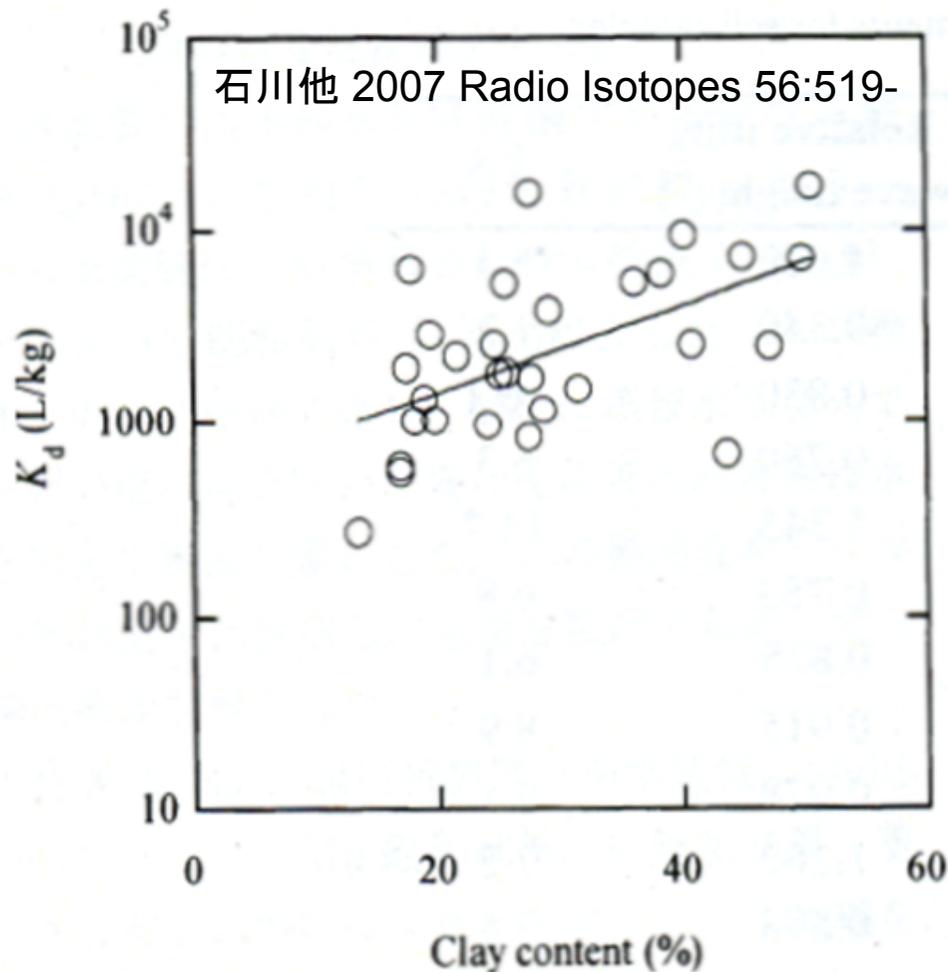


Fig. 2 Correlation between clay content and  $K_d$   
 ( $R_c = 0.55, p < 0.005$ ).

土壌に対する、Csの選択係数( $K_d$ )は非常に大きい  
 1000を超えることもある。

→Rは1000を超える

水溶性の(イオンになっている)Csを仮定するとほとんど動かないと考えられる

# 予想よりも大きく動いた

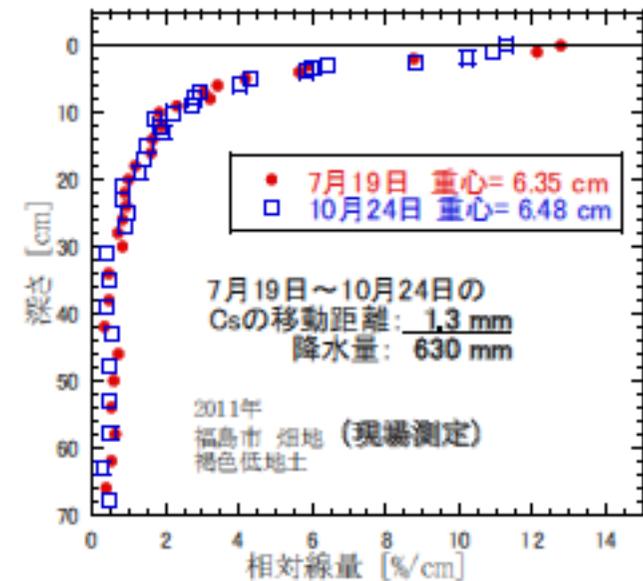
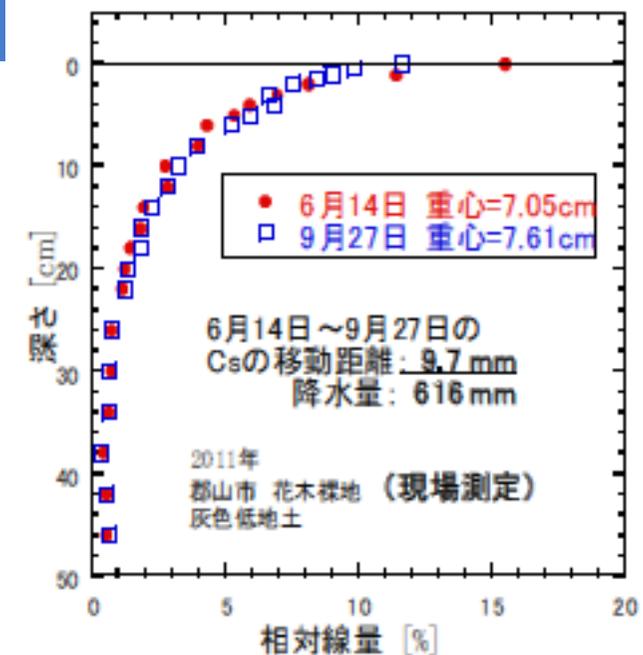
	農業総合センター花 木園裸地(郡山市)
期間1 2011年3月11日～ 重心移動距離 (土壌サンプリングによる) 期間降水量	～2011年6月14日 21.6 mm 189 mm
期間2 重心移動距離 期間降水量	～2011年9月29日 9.7 mm 616 mm
期間3 重心移動距離 期間降水量	～2012年3月28日 5.4 mm 340 mm

間隙率50%仮定

378mm

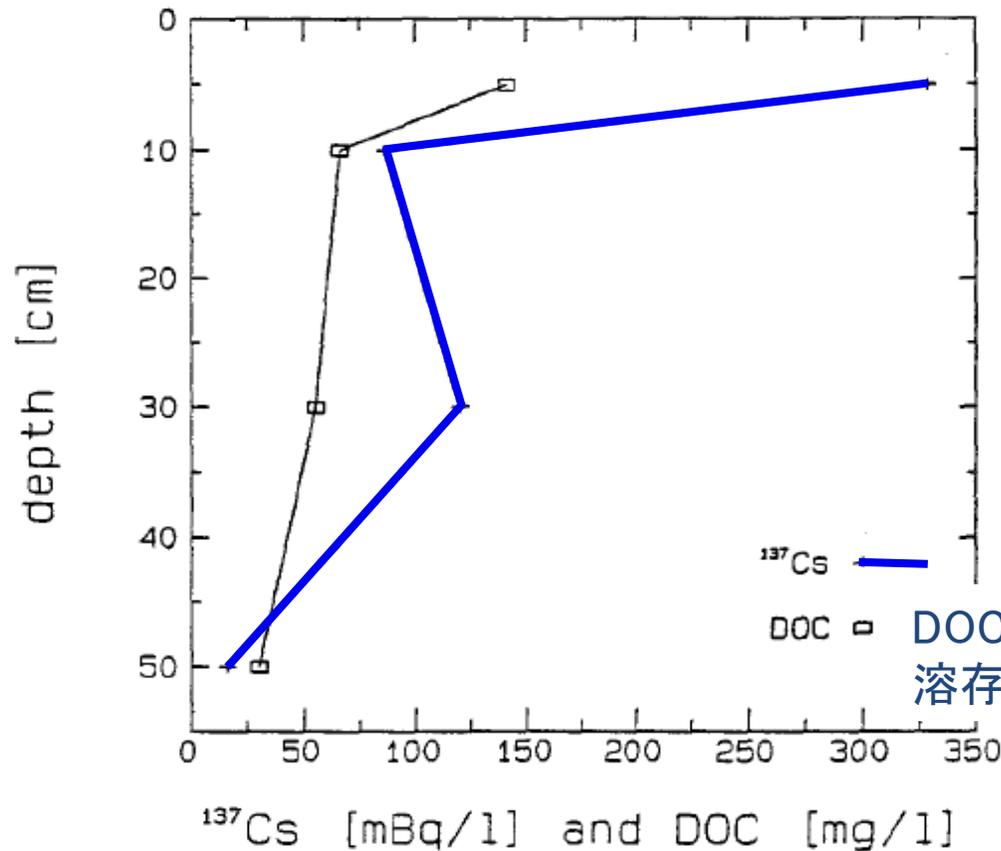
1232mm

680mm



塩沢ら 2012 農業農村工学会講演要旨集

# 現場の土壌から土壌水を採取して測定した例



採取後 $0.4\ \mu\text{m}$ のフィルター  
を通過した試料のCsを測定

遅延係数から見て動くことが  
不思議

これを溶存態と呼んでいる  
・・・必ずしも水溶(イオン化)  
しているわけではない。

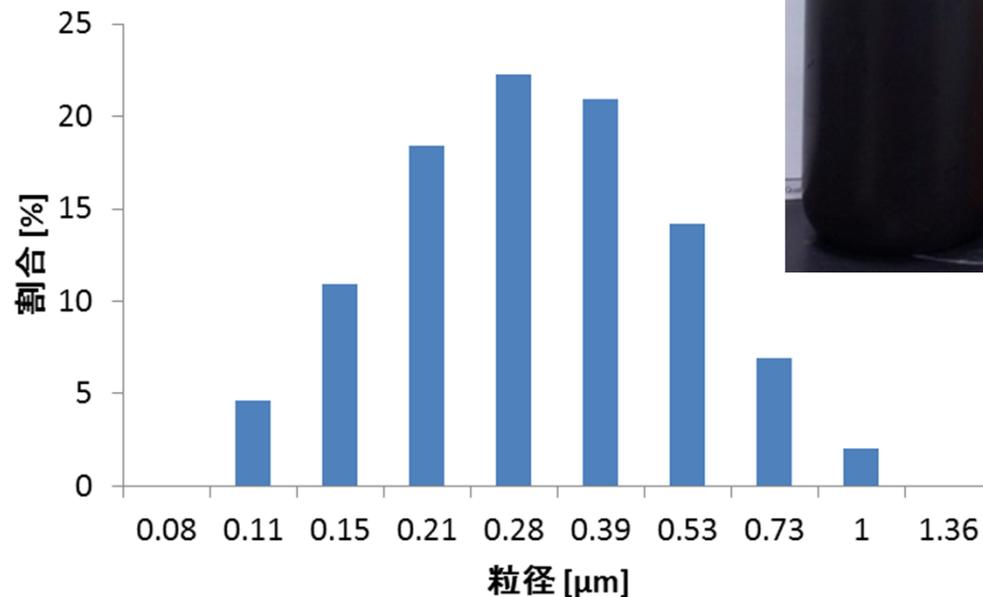
$^{137}\text{Cs}$  —  
DOC □ DOC: dissolved organic carbon  
溶存有機炭素

Tegen&Dorr(1996)  
Water, Air and Soil Pollution

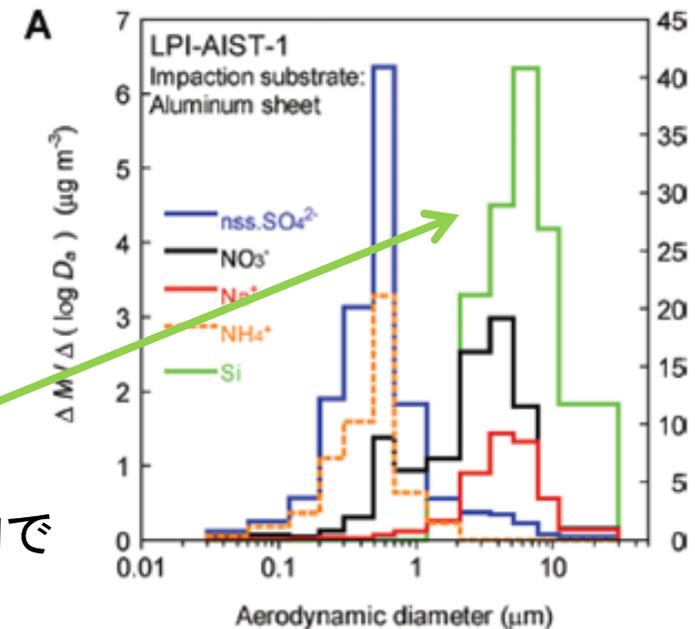
# 何が動きを生んだのか？

## ②0.45 $\mu\text{m}$ のフィルターを通過した試料中の粒子径分布

森林の落ち葉から水で抽出した懸濁液

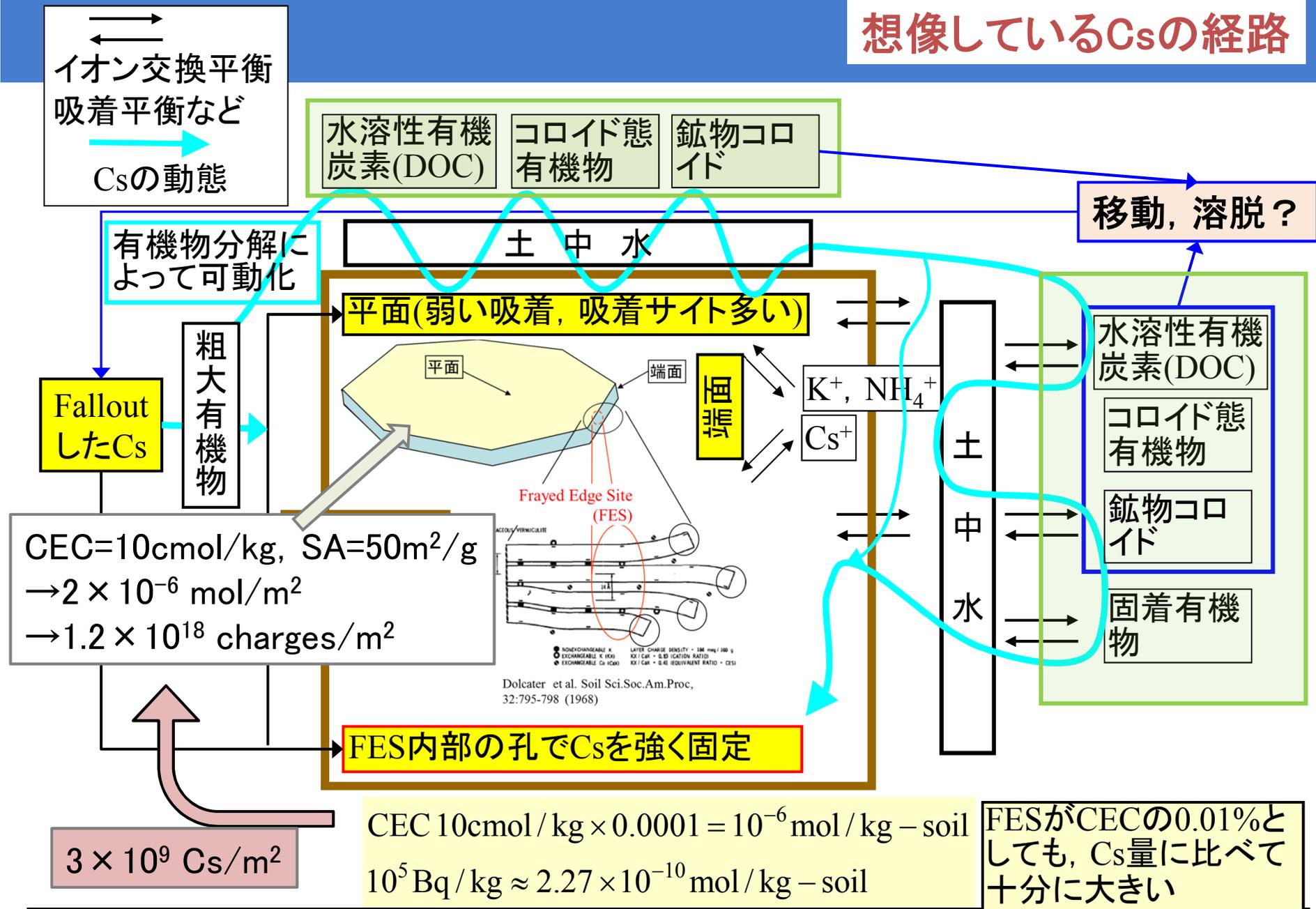


What is 溶存態？  
水溶(イオン化)したCs  
ではなく、何かに収着した形態で大きな移動？

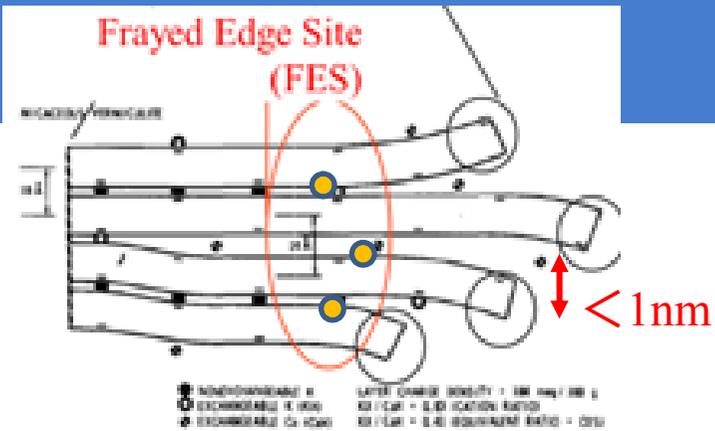


①土壌由来の粉じんは粒径が大きい(緑線)  
特殊な状況を除くとこの土壌はそれほど分散的ではない(これはあくまで状況証拠と仮定)

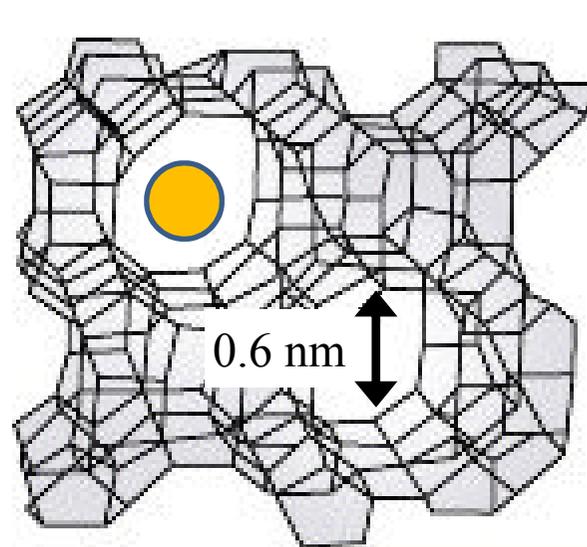
# 想像しているCsの経路



# イオン態と吸着態は大違い



Dolcater et al. Soil Sci.Soc.Am.Proc.  
32:795-798 (1968)

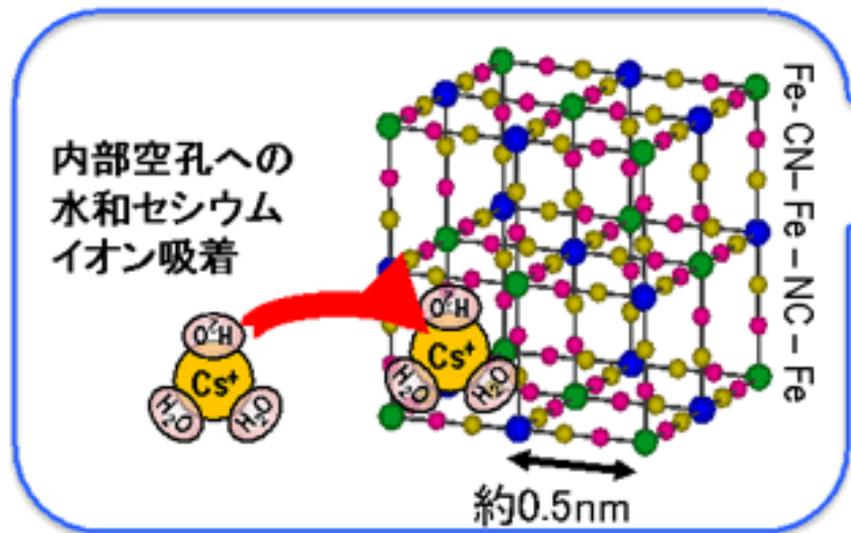


モルデナイト(ゼオライト)

<http://www9.canet.ne.jp/users/soken/zeolito.html>

クリノプチロライト(0.3nm)

先ほどの森林落ち葉から  
抽出したコロイド > 80nm



プルシアンブルー(フェロシアン化鉄(III)  $C_{18}Fe_7N_{18}$ )

地圏環境リスク研究グループ

[http://www.aist.go.jp/aist\\_j/new\\_research/nr20120905/nr20120905.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/new_research/nr20120905/nr20120905.html)

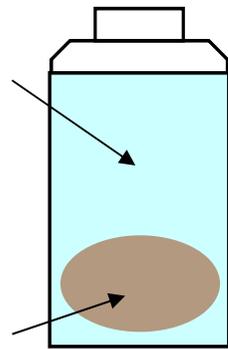
## 有機物コロイドが大量にある場合の検討例



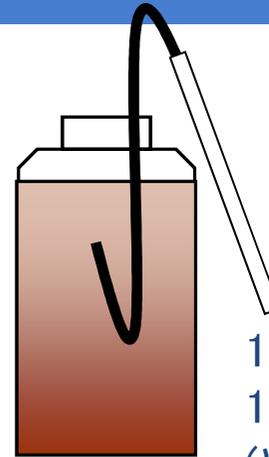
飯舘村内森林

# 実験に用いた懸濁液

脱イオン水  
: 約1000 mL



混合後篩分け  
< 53  $\mu\text{m}$



16時間静置してストークス径  
1  $\mu\text{m}$ 以下の上澄みを採取  
(粒子密度2.6g/cm<sup>3</sup>を仮定)

飯舘村内森林の落葉. : 約44 g  
(Cs:  $3.09 \times 10^5$  Bq/kg-dry)

懸濁液A



Cs: 1189 Bq/L

H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>を加えて加熱分解

懸濁液B



Cs: 1056 Bq/L

懸濁液A

全てコロイド結合態

	放射性Cs Bq/L	液中の粒子の粒径
懸濁液	1189	(1 $\mu$ m)
遠心分離 (1万rpm,1hr)	沈降物: 1189	—
遠心分離 (1万rpm,1hr)	上澄み: ND	0.2 $\mu$ m (0.08<d<1 $\mu$ m)
0.2 $\mu$ m filtered	ND	0.2 $\mu$ m (0.08<d<0.7 $\mu$ m)

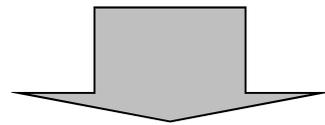
懸濁液B

一部が溶存態

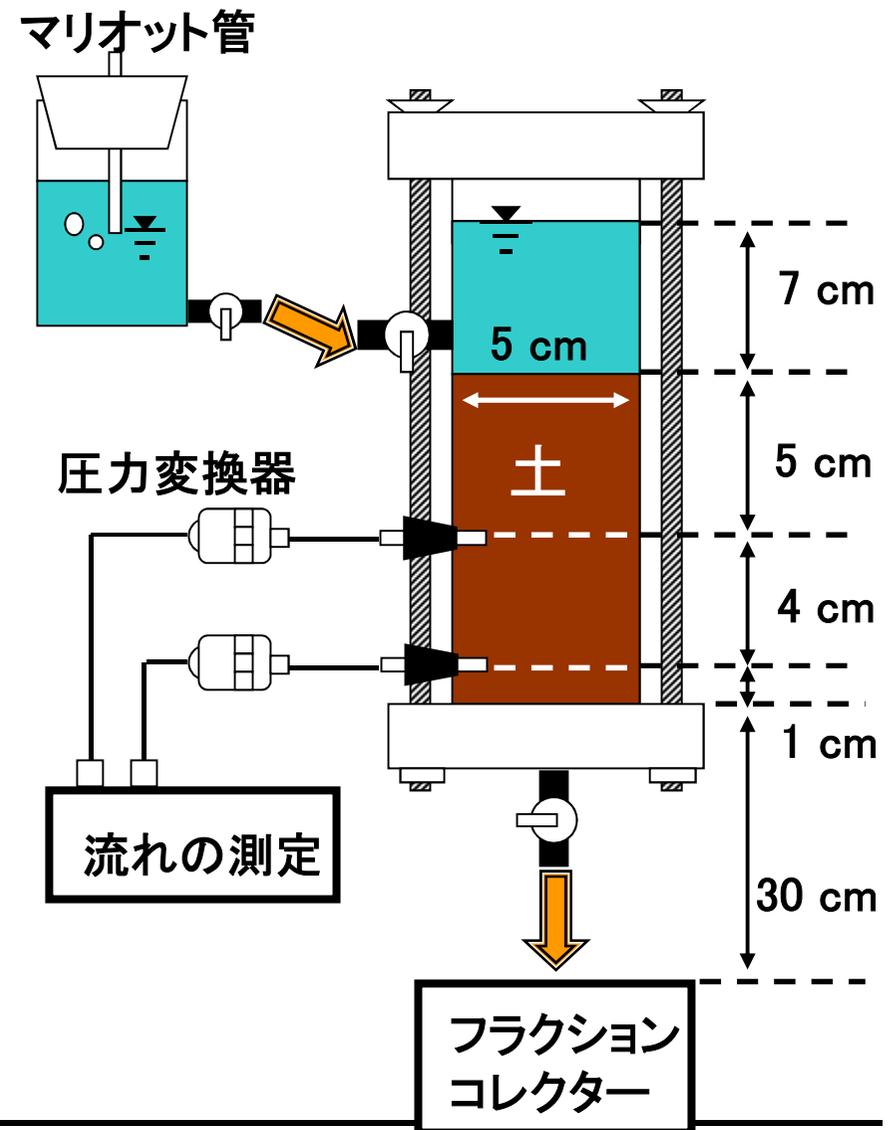
After (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> +Heat) treatment on Suspension A

	放射性Cs Bq/L	液中の粒子の粒径
懸濁液	1056	(1 $\mu$ m)
遠心分離 (1万rpm,1hr)	沈降物: 983	—
遠心分離 (1万rpm,1hr)	上澄み: 73	1.2 $\mu$ m (0.7<d<10 $\mu$ m)
0.2 $\mu$ m フィルター通過分	67	ND

- フラクションコレクターで排出液を採取.  
(100mLごとに採取)
- 圧力変換器で土中水圧の推移を測定

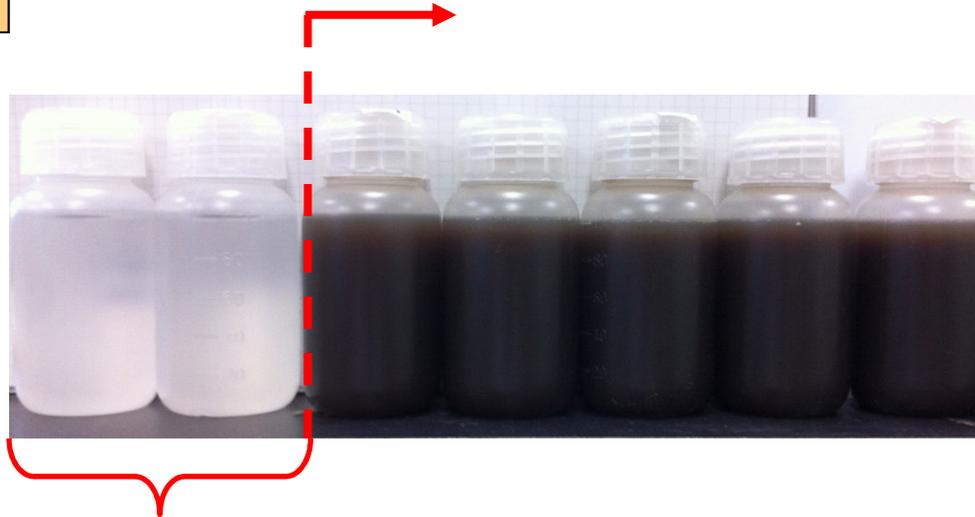


カラムの解体, 化学分析

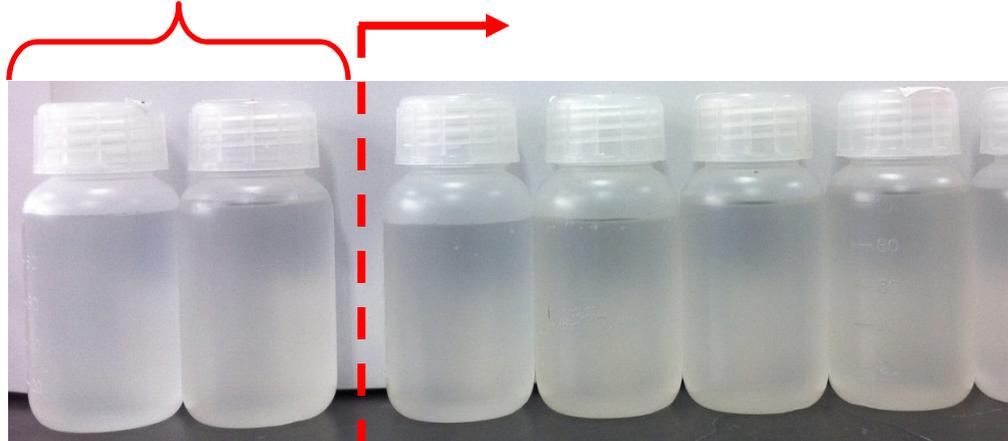


# 土壌カラム下端からの排出液の様子

懸濁液A

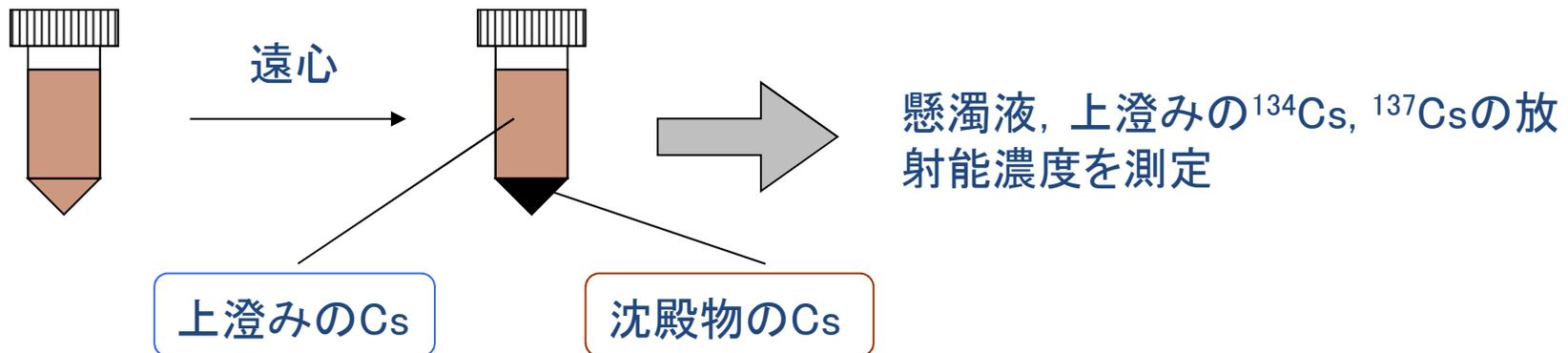


懸濁液B

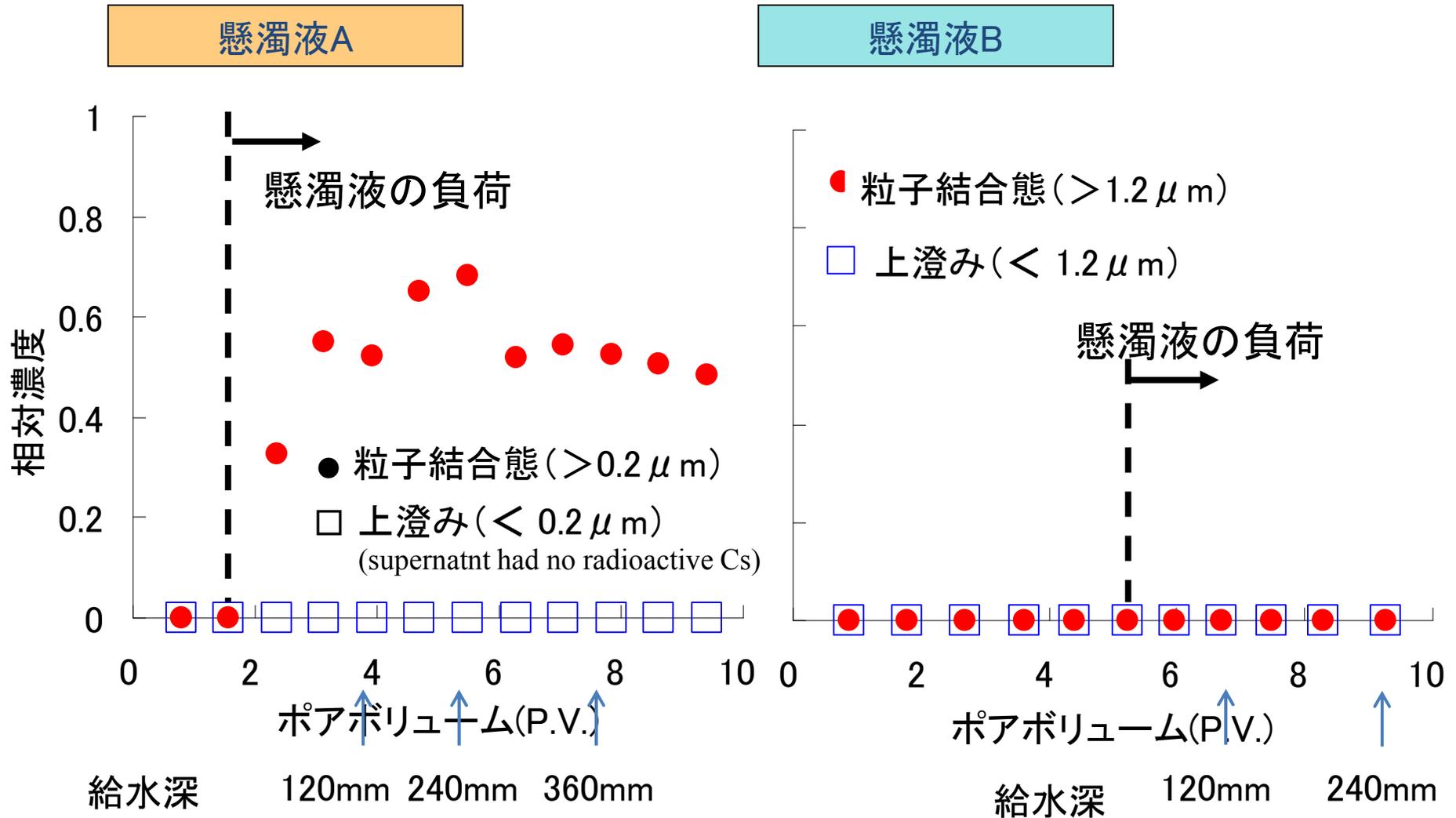


# 遠心分離

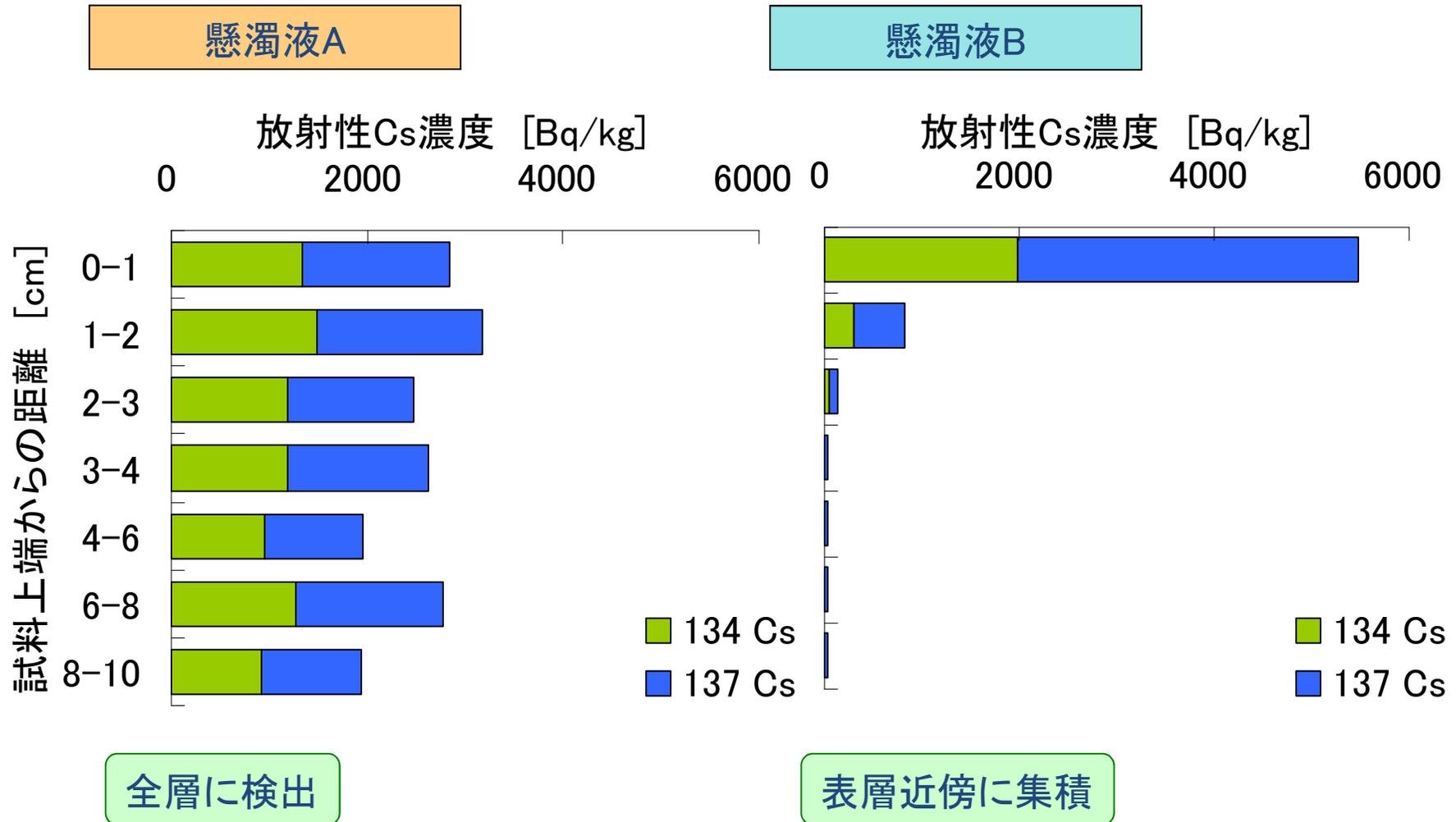
- カラム下端の排水は、遠心分離で上澄みと沈殿に分画  
(10000 rpmで10 min,  $<0.2\mu\text{m}$  if it was a mineral particle,  $0.11\mu\text{m}$ )



# 土壌カラム下端からの排出液中の放射性Cs



# 土壤中に捕捉された放射性Cs



既往の研究から、

- ✓ 水溶性(イオン化した)Csは、移動し難いと考えられる。
- ✓ イオン化したCsは、ゼオライトやフェロシアン化鉄でトラップ可
- ✓ 長い時間スパンを考えると、Csは徐々に移動し難い状態(FESに捕捉)に移行していくと考えられる。

速い移動は何故?・・・円筒カラム浸透実験

- ✓ 溶存態は、水溶してイオン化しているわけではない?
- ✓ ある種の有機物コロイドは土壤中を通り抜けやすい  
(実験で用いたような高濃度の有機物コロイドは自然界にはあまりないので、これがすぐに土中のCsの移動を促進するとは言えない、
- ✓ 速い動きを生む可能性の一つに過ぎない

○有機物コロイドが土壤中を抜けやすくなる条件は要検討

## 謝辞

生物・環境工学専攻修士の細川聡一郎、植松慎一郎両君、NPOふくしま再生の会、飯舘村菅野宗夫氏、東京大学救援・復興支援室、明治大学復興支援プロジェクトには、試料採取等に関して大変お世話になりました。

また、測定については、農学生命科学研究科放射性同位元素施設にお世話になりました。