

## 土壌-河川-海洋系でのセシウムの挙動解析：XAFS による化学素過程を中心に

東京大学 大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻 高橋 嘉夫

はじめに：我々の研究グループでは、福島第一原発由来の放射性核種の主に陸域での移行挙動について研究を進めている。特にこれらの移行を支配するミクロな化学的素過程を、X線吸収微細構造法（XAFS 法）を用いた化学種解明や熱力学的モデルの適用などにより明らかにすることで、我々が目にするマクロな放射性核種の挙動をより正確に把握できると考えている。講演では、放射性核種の土壌-河川-海洋系でのセシウムの挙動に関する我々の研究を紹介する。

放射性核種の沈着：福島第一原発の事故発生直後に採取されたエアロゾルフィルターから、セシウムを濃縮した微粒子の存在が明らかにされ多くの研究が進められている。これらについて、同位体比分析から、この微粒子が燃料メルト由来であることを示すと共に、鉄などの共存元素の安定同位体比分析から、気化を介したプロセスの寄与を考察している。一方で、これらフィルター全体に占める水溶性の放射性セシウムの割合は、放出時期により異なるが 50～90%であり、土壌に沈着した後で一旦放射性セシウムは水に溶解すると考えられる。

土壌粒子との反応性：溶解したセシウムは土壌粒子と反応する。我々は、選択的抽出法や分配係数（Kd）を用いた古典的な手法で福島原発由来の放射性セシウムの土壌粒子中のホスト相や吸着特性を調べると共に、同じ土壌粒子にセシウムを添加して得た XAFS から得たセシウムの原子レベルの局所構造から、マクロなホスト相や反応特性を理解できることを示した。その結果、層状ケイ酸塩などとの内圏錯体の生成割合が高い場合に、放射性セシウムの溶出率が低いことが分かった。また、土壌中の有機物濃度が増加した場合に、選択的抽出法でのイオン交換成分や放射性セシウムの外圏錯体の割合が増加することが分かり、有機物が放射性セシウムの層状ケイ酸への吸着を阻害することが分かった。なお、これらの吸着特性や有機物との反応性などにおいて、ストロンチウムやヨウ素が持つ特徴はセシウムとは異なり、この違いも XAFS 法による化学種解明により解釈可能であった。

河川による移行過程：上記のようなセシウムの土壌粒子への吸着性の高さは、河川中の放射性セシウムの 60%以上が懸濁態として存在し、盆地や河口域で放射性セシウムが懸濁粒子の堆積作用により二次的に増加することなどの現象と整合的である。このような吸着特性の理解のために、福島周辺の 31 の河川の浮遊砂に対する重回帰分析を行って、セシウムの吸着特性を示す放射性セシウム捕捉ポテンシャル（RIP）について、浮遊砂のイオン交換容量、平均粒径（比表面積）、鉱物組成（XRD による雲母と石英の比）、有機物濃度に対する関係を経験的に定式化した。その結果、RIP はイオン交換容量や比表面積に対して正の相関を示した。RIP は鉱物組成に対しても正の相関を示したが、その変動幅はイオン交換容量や比表面積に対する変動幅より小さかった。一方、RIP は有機物濃度に対して負の相関を示し、上記で得られた XAFS 法からの考察を支持した。またこのような有機物の効果は、泥炭地を主要な後背地とするチェルノブイリ周辺の河川中でセシウムの溶解性が高いことの原因であると考えられた。

海水への流入：日本の河川中で放射性セシウムを吸着している懸濁粒子は、河口域を経て海水中へ流入した場合、塩分濃度や安定セシウム濃度が高い水にさらされることになる。この場合のセシウムのイオン交換特性は、General Adsorption Model で予測できる。このモデルでは、実験的に得られた吸着等温線や XAFS 法などの知見に基づき、イオン交換容量やイオン交換選択係数が異なる 3 つのイオン交換サイトを仮定し最適化することで、Kd を予測できる。この Kd を典型的な河川水と海水について適用すると、放射性セシウムを吸着した懸濁粒子が海水中に流入し、イオン交換反応が平衡に達した場合、おおよそ 1/50 の放射性セシウムしか懸濁粒子に残らないことを示す。これは、海洋化学で得られているセシウムの海水中の鉛直分布が保存型を示すことと整合的であり、海水中では水質の変化により、放射性セシウムの吸着特性が著しく減少することを示している。