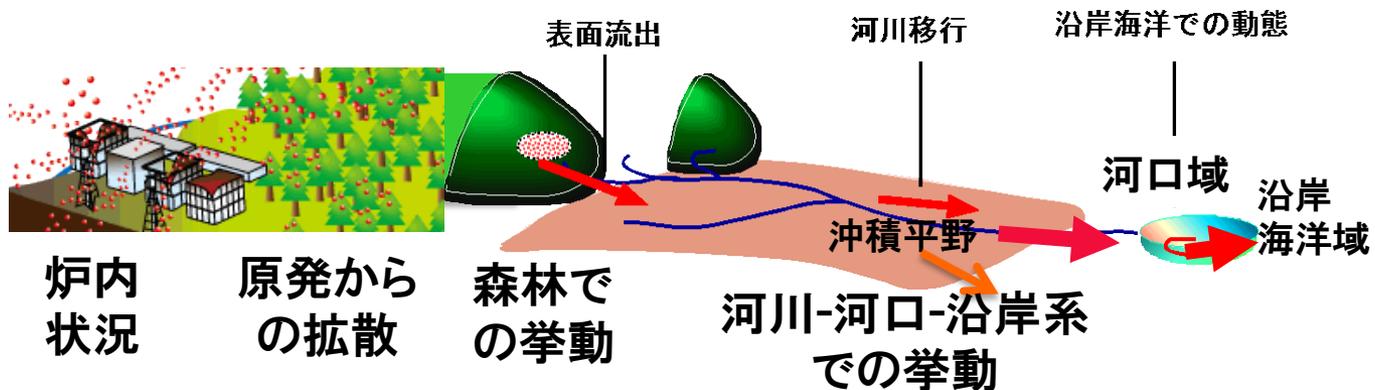
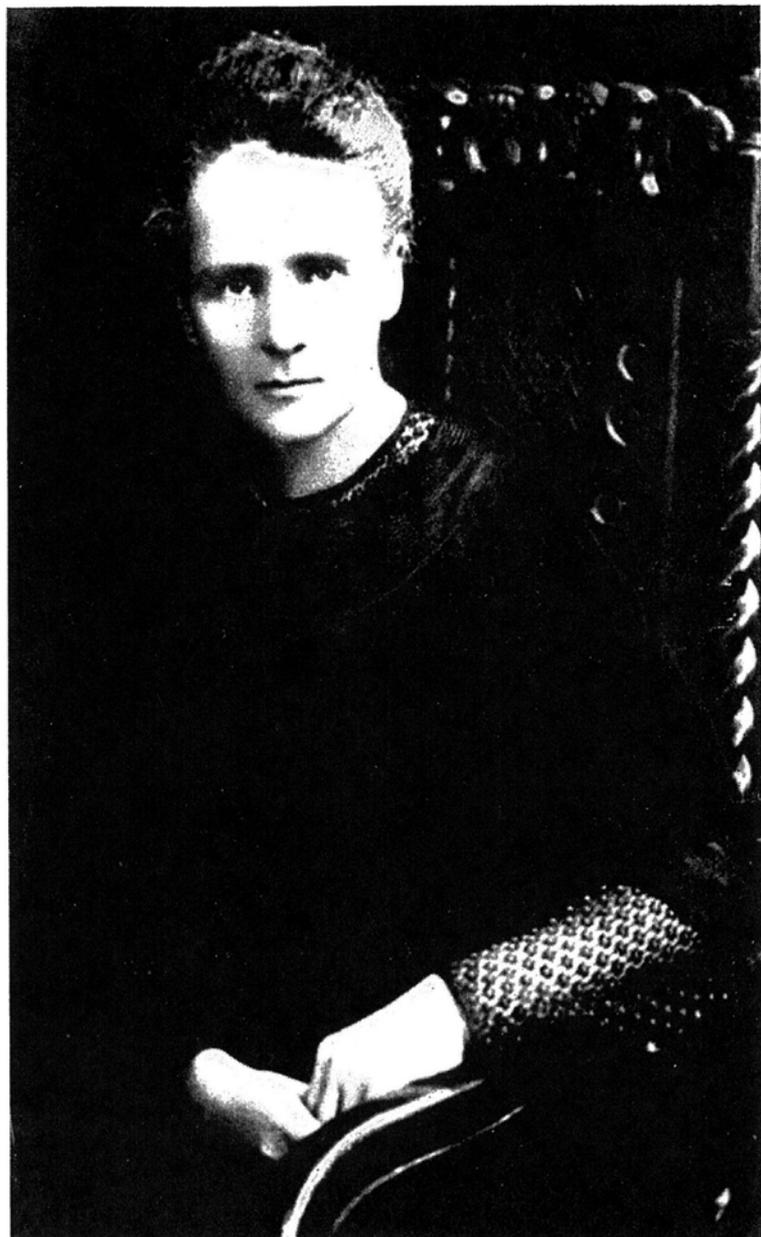


土壌-河川-海洋系でのセシウムの挙動解析

(東大・院理・地惑)

高橋 嘉夫





マリー・キュリー (1867～1934)

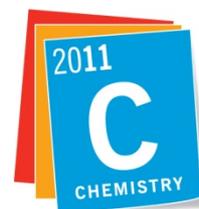
2011年は世界化学年だった

マリー・キュリー
ノーベル化学賞受賞(1911)
から100年

受賞理由：

ラジウムとポロニウムの発見と
ラジウムの性質及びその化合物の研究

(1トンの岩石(ピッチブレンド)中 0.1 gのラジウム)



International Year of
CHEMISTRY
2011

(1903年キュリー夫妻ノーベル物理学賞)

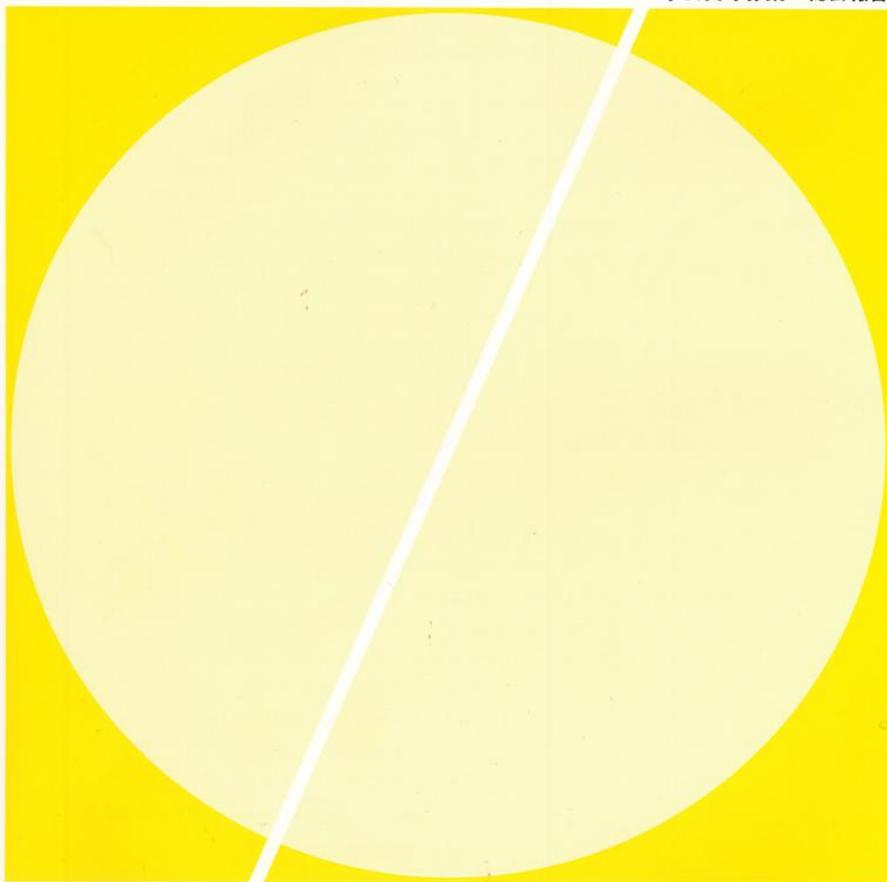
ISSN 0386-4073

地球化学

Vol. 44 No. 4

2010

学会賞等募集・総会報告

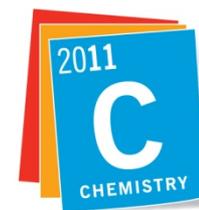


日本地球化学会

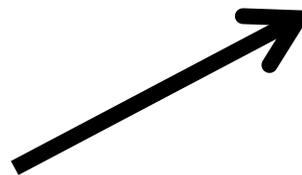
<http://www.geochem.jp/>

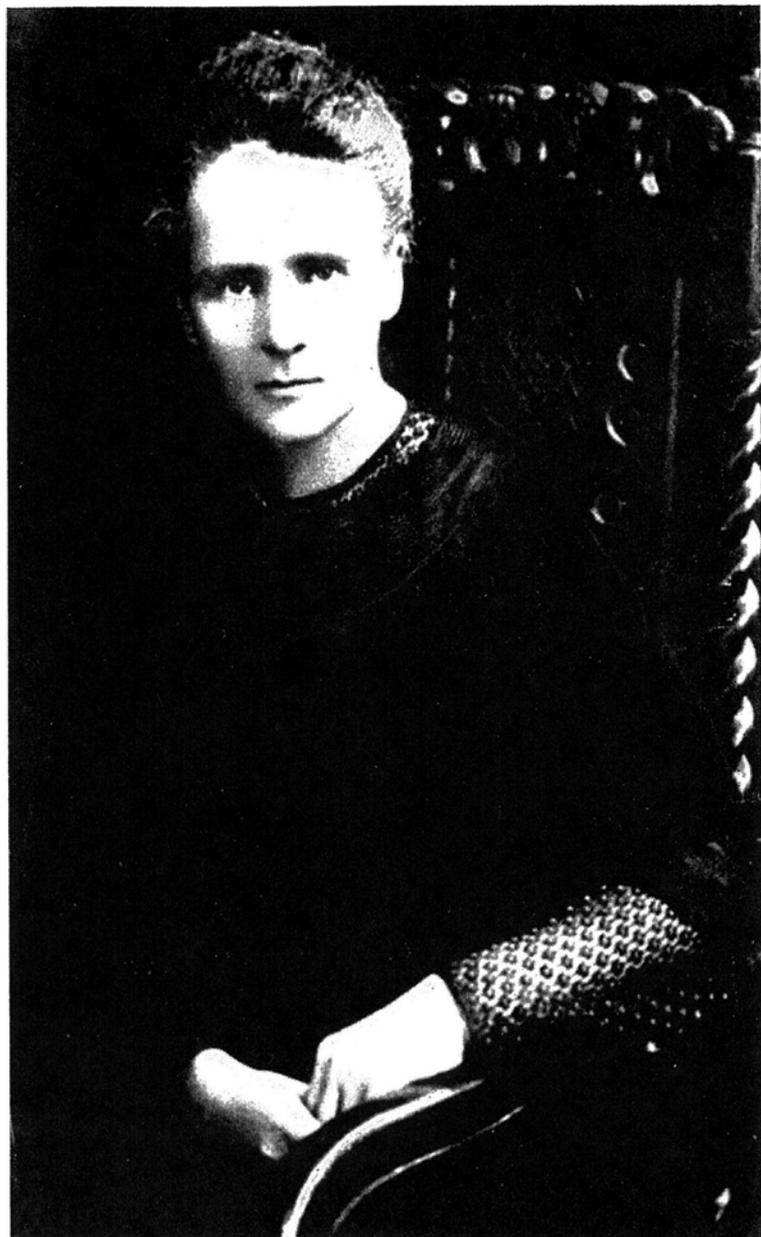


日本地球化学会
和文誌「地球化学」(現編集長)



International Year of
CHEMISTRY
2011





マリー・キュリー (1867～1934)

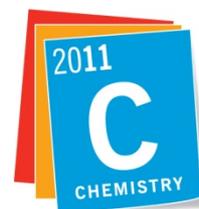
2011年は世界化学年だった

マリー・キュリー
ノーベル化学賞受賞(1911)
から100年

受賞理由：

ラジウムとポロニウムの発見と
ラジウムの性質及びその化合物の研究

(1トンの岩石(ピッチブレンド)中 0.1 gのラジウム)



International Year of
CHEMISTRY
2011

(1903年キュリー夫妻ノーベル物理学賞)

放射壊変に基づく年代測定の実理

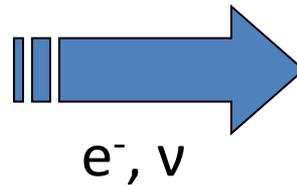
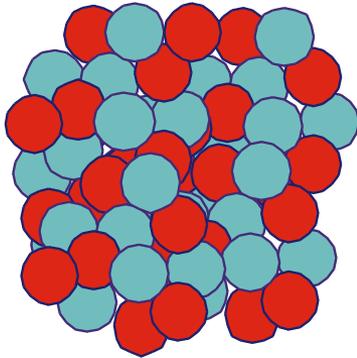


$$P = P_0 e^{-\lambda t}$$



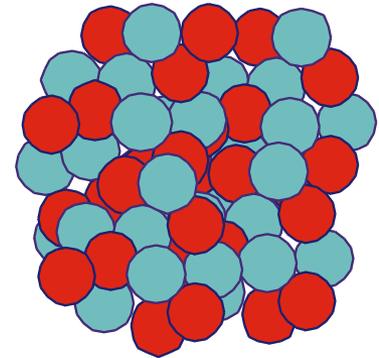
親核種

^{87}Rb

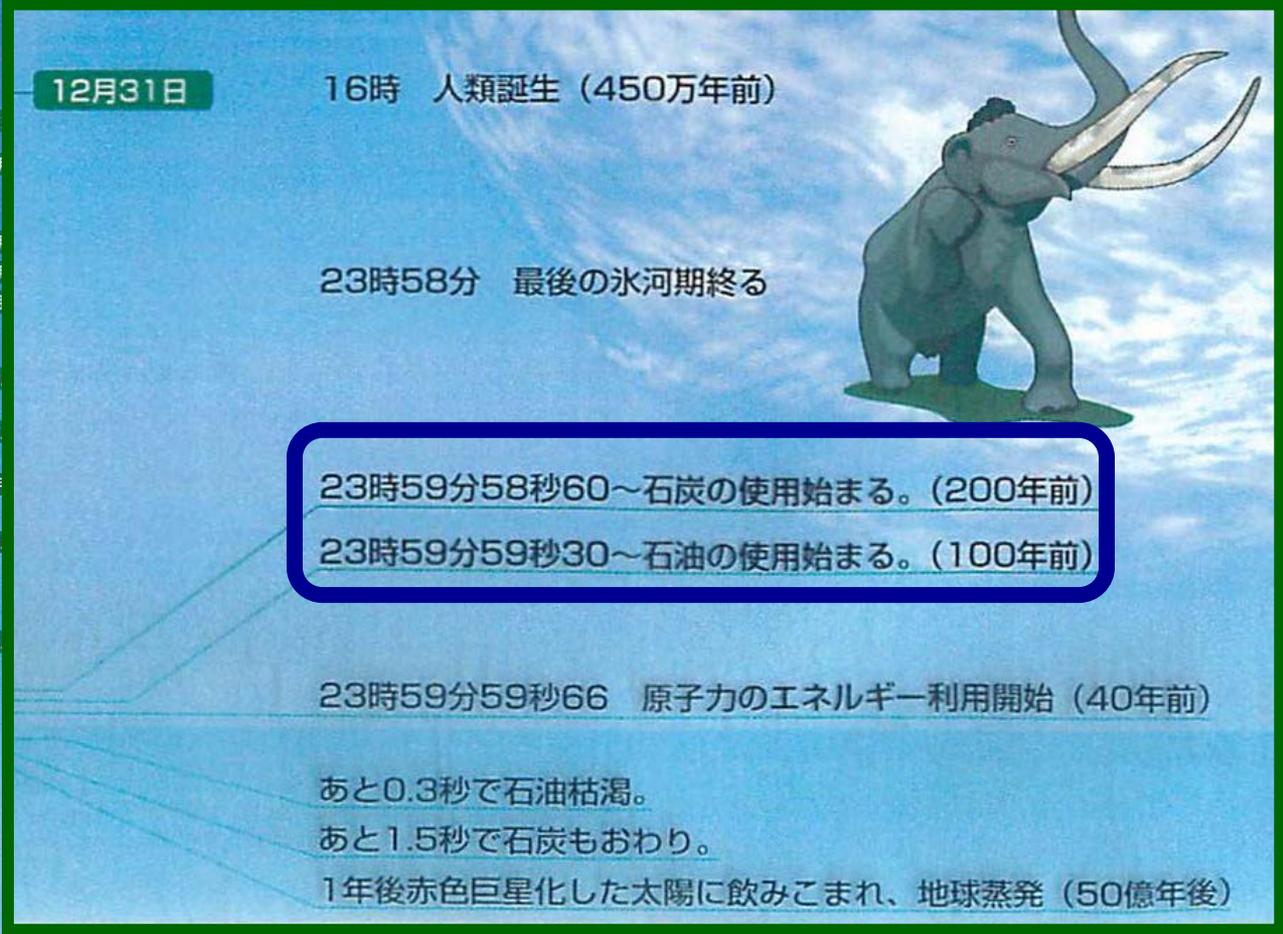


娘核種

^{87}Sr

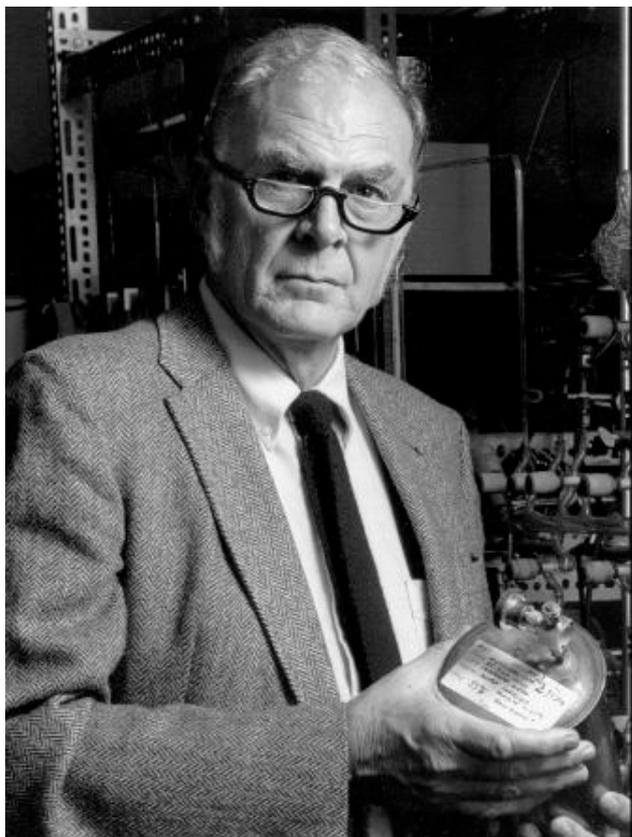


地球の歴史を探る：放射壊変という時計によってのみ可能
＊その時計というプレゼントで何が分かったか？



わずか1秒で地球を急激に作り変えた人間は、これからどこへ向かうのか？
 我々は、除夜の鐘の余韻を聞き終えることができるのか？
 (放射能発見後、110年で人類はここまで進歩した)
 人間の英知を結集し、持続可能な発展を目指したい。

環境地球化学初のノーベル賞受賞者



F. S. Rowland教授ご逝去 (2012.3.11)

- フロンによるオゾン層破壊予言
- 1995年ノーベル化学賞受賞

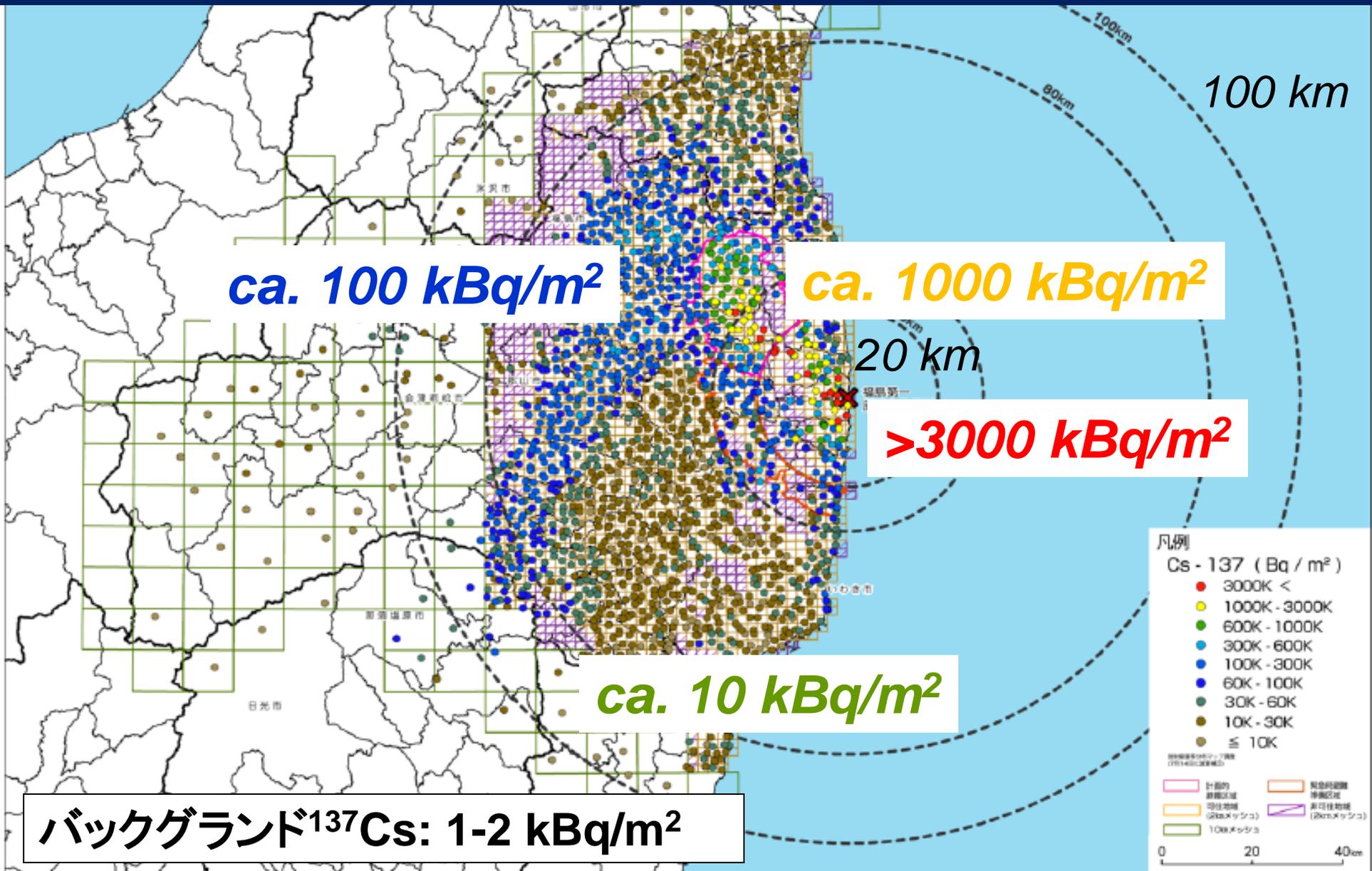
「Is it enough for a scientist simply to publish a paper? If you believe that you have found something that can affect the environment, isn't it your responsibility to do something about it. If not us, who? If not now, when?」

科学者として環境の問題に気付いたら、その解決に向けて、あなたが今行動しなければ、誰がする？

サステナブル社会に向け、エネルギー・放射能の問題は？
地球化学は何ができるのか？

放射性セシウム (^{137}Cs) の沈着マップ

(400人以上の研究者参加、11000個 (2200地点) の試料採取)

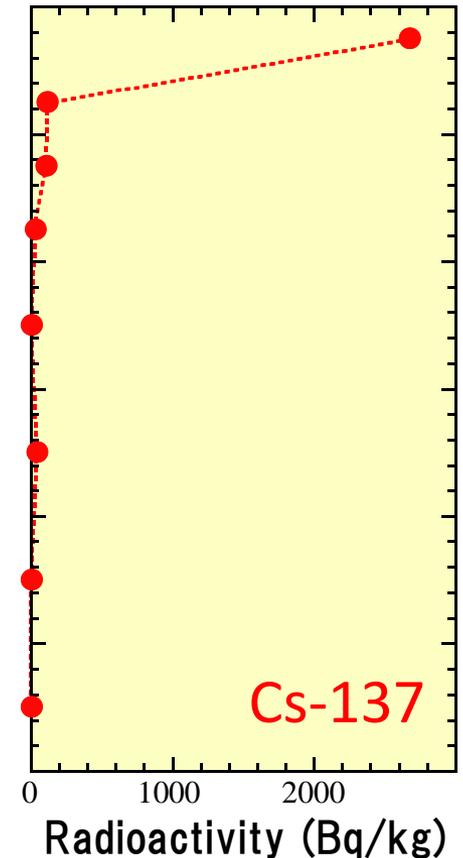
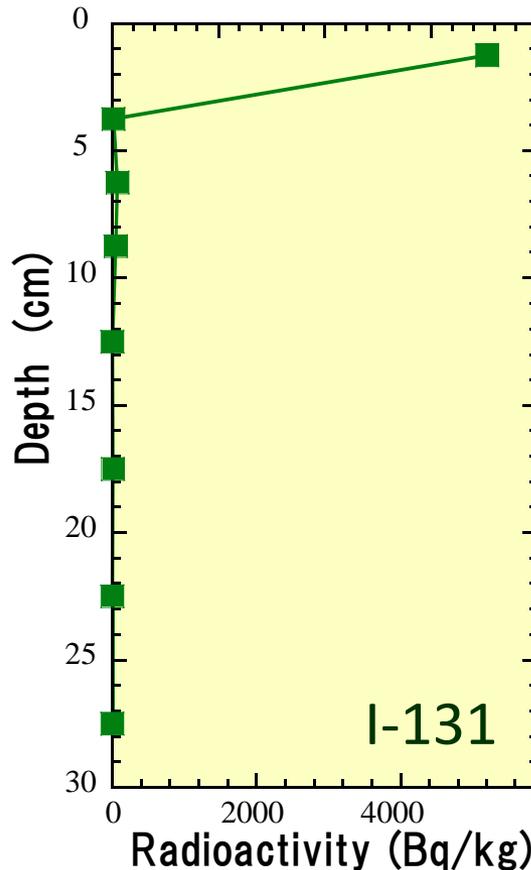
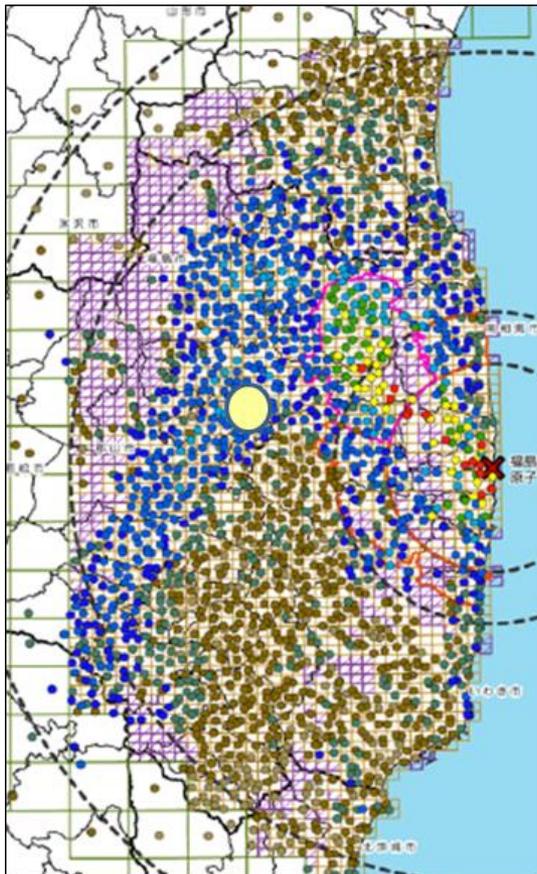


土壤中での
放射性セシウム・放射性ヨウ素

福島土壤コア試料サンプリング（4月13日）

90%以上の放射性セシウム・放射性ヨウ素は表層 5 cm以内に存在
(除染作業において重要な情報)

他のアルカリ金属イオンやハロゲンだったら、より深層に移行する
(もしナトリウムイオンや塩化物イオンなら、もっと深くに移行したはず)



放射性核種の放出

メルトダウン：
ジルコニウム合金（燃料被覆管）溶融
（ジルコニウムの融点：1855℃）

主要な生成元素の沸点

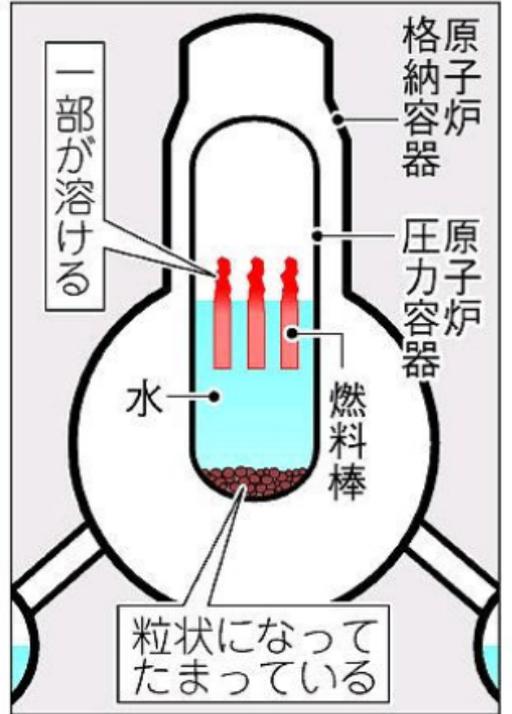
ヨウ素： 184℃
セシウム： 671℃

ストロンチウム： 1655℃

プルトニウム： 3228℃
ウラン： 4131℃



気化した元素が
エアロゾルや気体として拡散



原子炉内での放射性核種の生成

核分裂による生成

二次的な核反応による生成

Sr-90: 核分裂で生成、骨に濃集

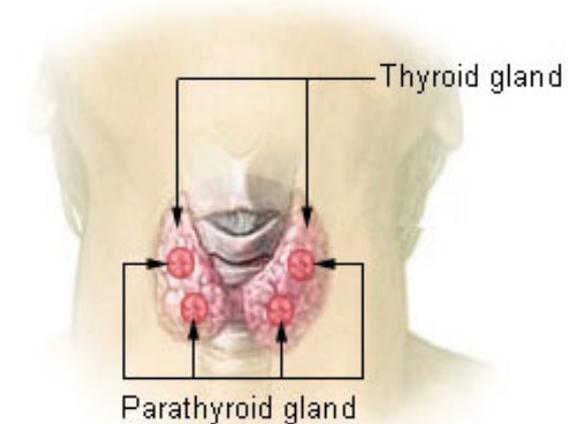
Cs-134: 原子炉内でキセノンから生成

Cs-137: 核分裂で生成

I-129: 核分裂で生成

I-131: 核分裂で生成（+宇宙線生成核種）

Thyroid and Parathyroid Glands



セシウム：カリウムと同じように挙動、筋肉など全身に分布。

*カリウムには放射性同位体 ^{40}K があり、その体内放射能は4000 Bq

*セシウムの体内半減期は約100日

ヨウ素：甲状腺に濃集する必須元素

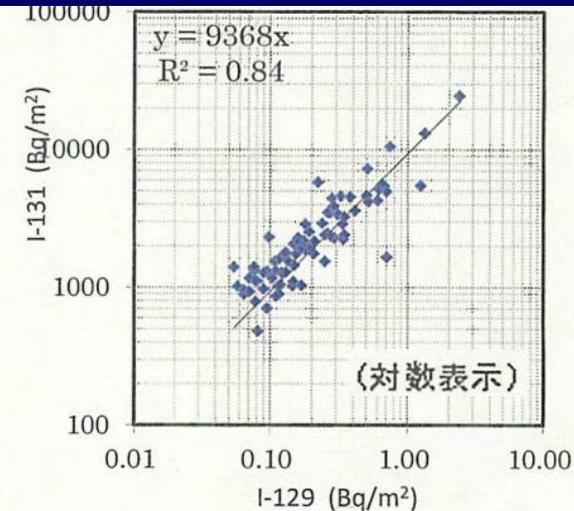
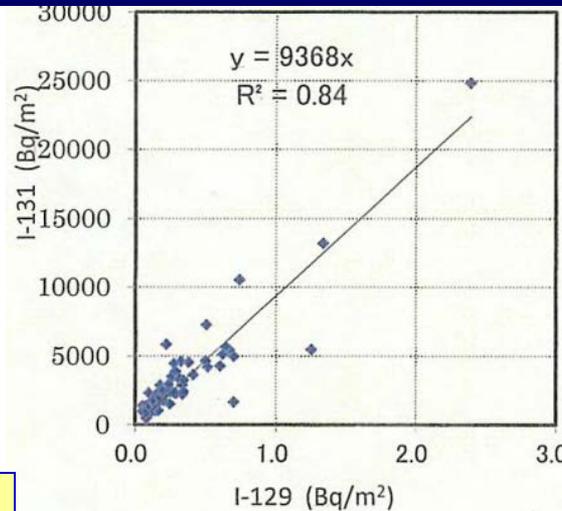
* 甲状腺は20 g程度、60 kgの人なら3000倍濃縮

土壤中でのヨウ素の有機化

I-129を用いたI-131の分布の推定

I-129: $T_{1/2} = 15.7 \text{ Myr}$

I-131: $T_{1/2} = 8.0 \text{ days}$



I-131は壊変しきっている



加速器質量分析計による
I-129の測定



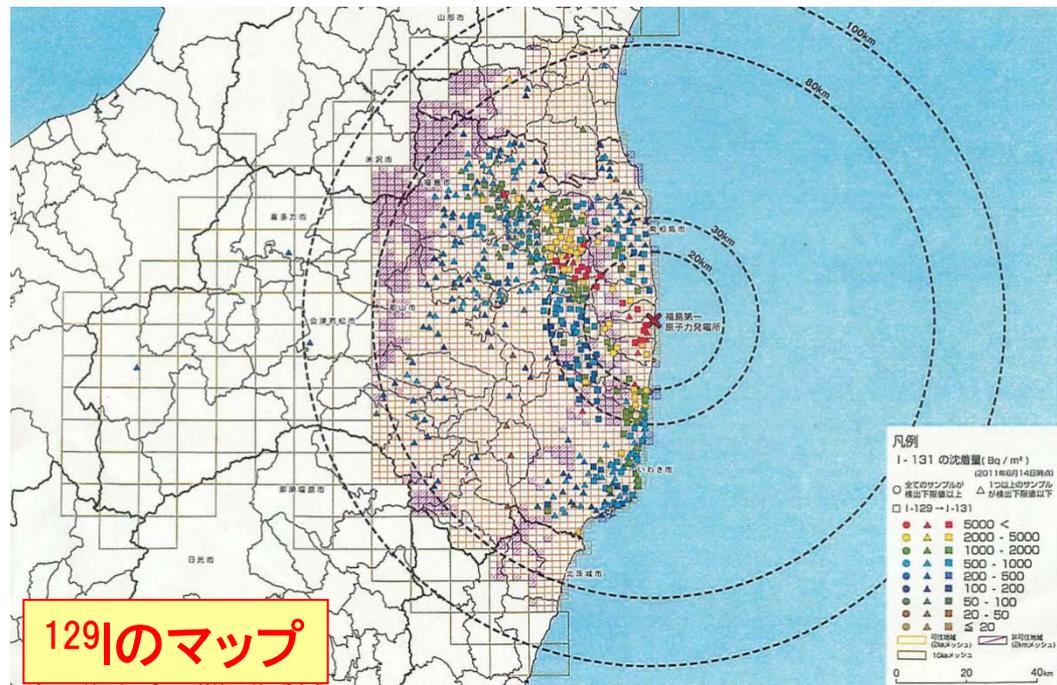
I-131の当初分布を推定



将来的な補償問題などに
必須(甲状腺ガンなど)

*** 村松先生のご研究**

129Iの分布は、131Iの分布と相関している

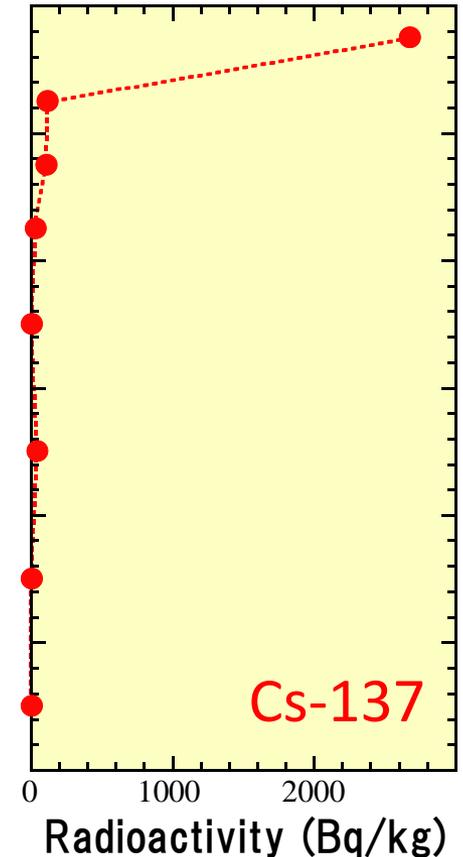
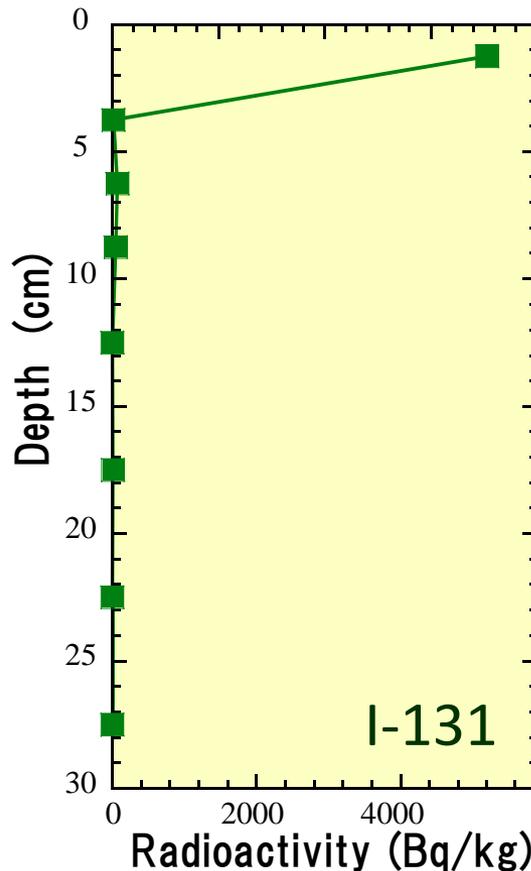
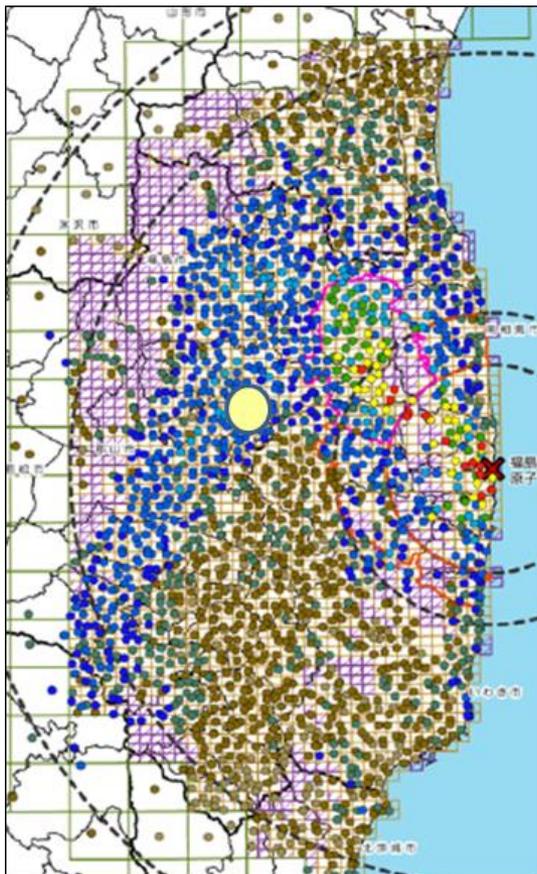


129Iのマップ

福島土壤コア試料サンプリング（4月13日）

90%以上の放射性セシウム・放射性ヨウ素は表層 5 cm以内に存在
(除染作業において重要な情報)

他のアルカリ金属イオンやハロゲンだったら、より深層に移行する
(もしナトリウムイオンや塩化物イオンなら、もっと深くに移行したはず)

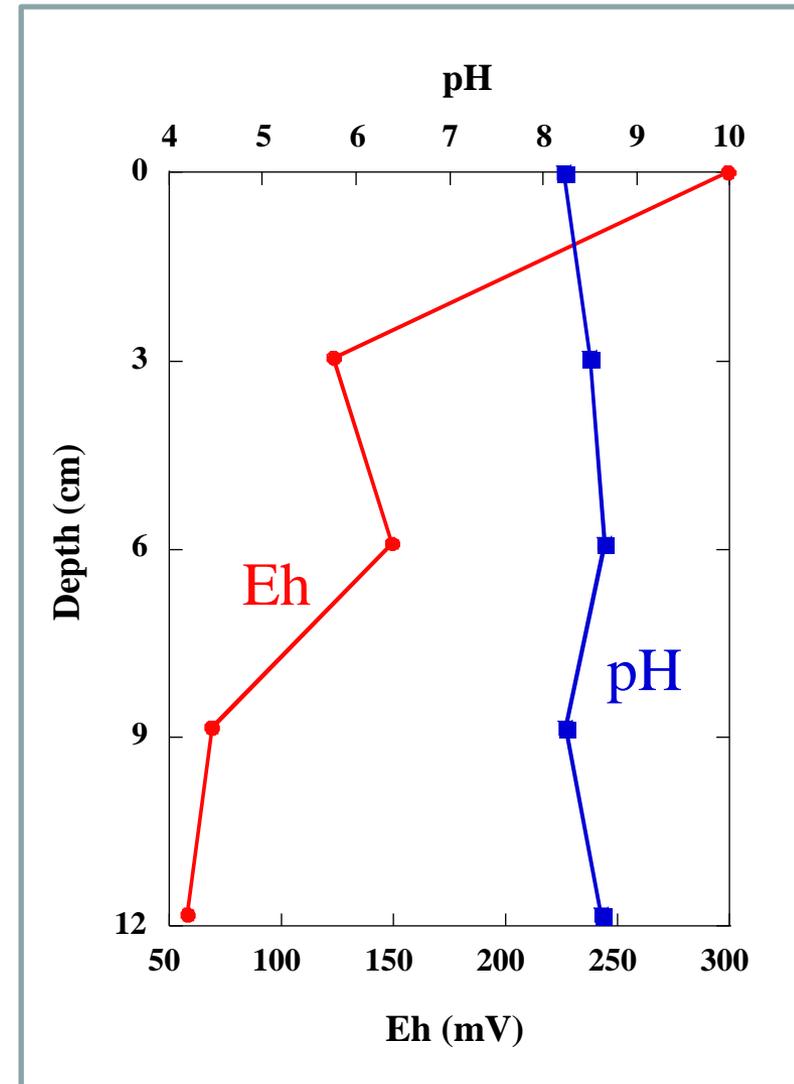


千葉県養老温泉の鹹水由来のヨウ素

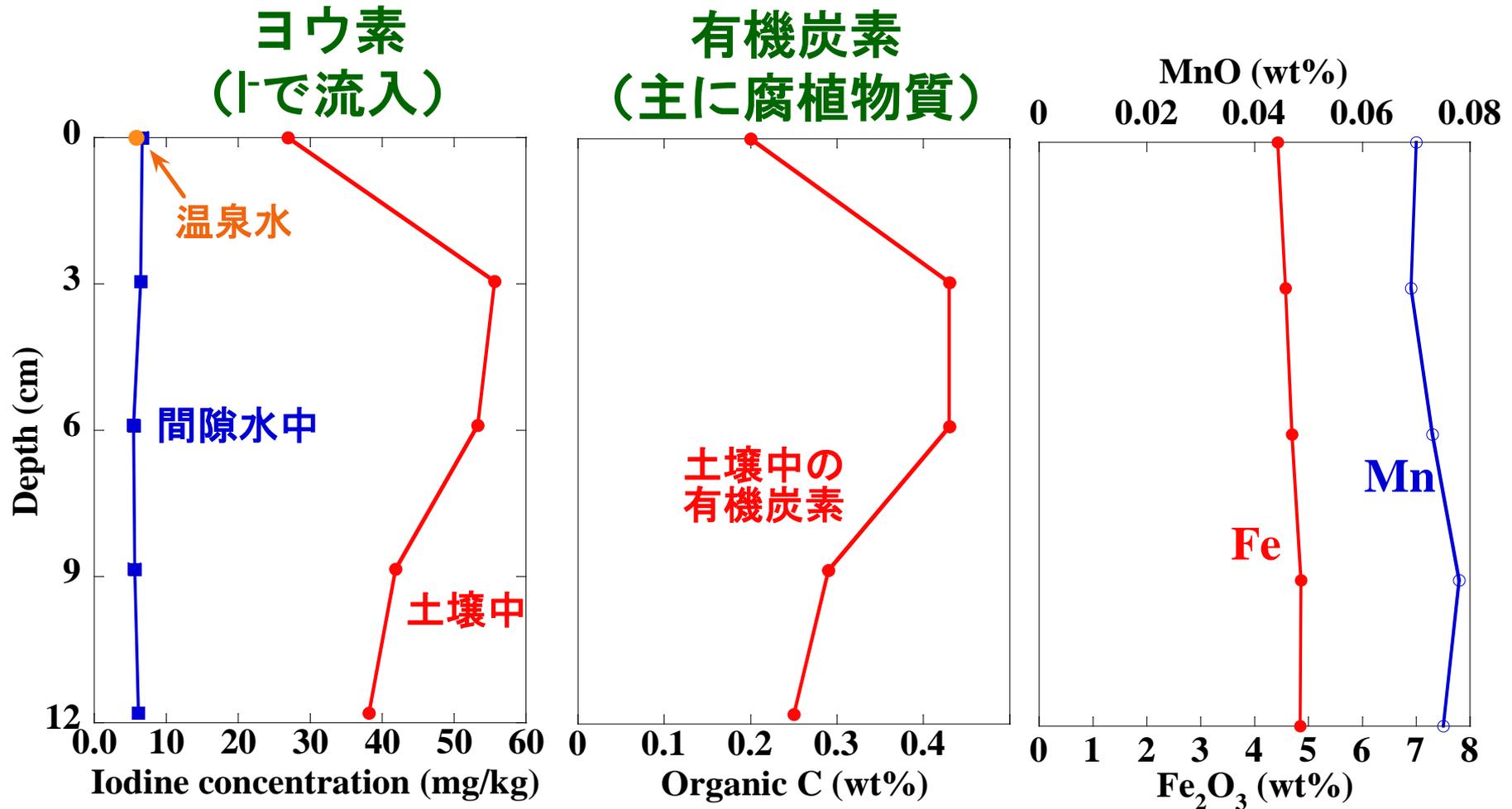
温泉の排水口に形成された水たまり
温泉水は上部から供給

温泉水のヨウ素濃度 5.8 mg/kg
ヨウ素の化学形態 I^-

* 溶存腐植物質を多く含む。
DOC 45 mg/L



間隙水および土壌中のヨウ素濃度など

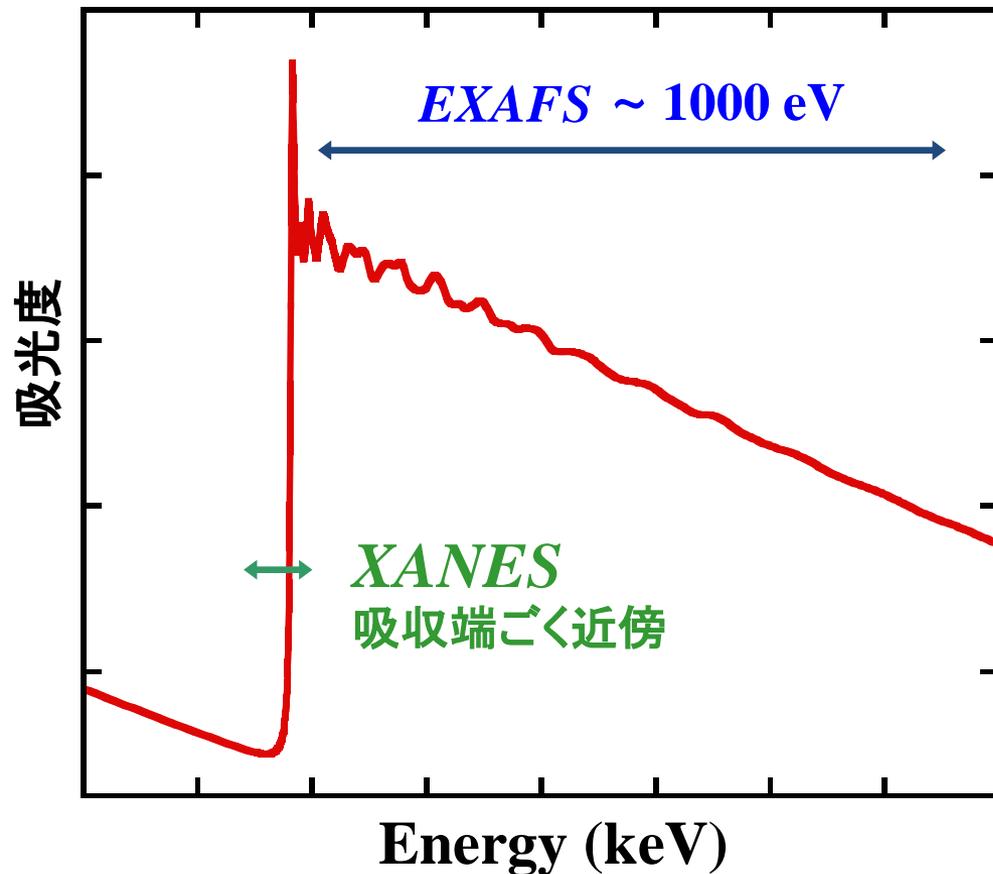


土壌中のヨウ素と有機炭素は強く相関する

固相中の微量元素の化学状態 (XAFS法)

XAFS (X-ray Absorption Fine Structure, X線吸収微細構造)

- XANES (X-ray Absorption Near-Edge St.; 吸収端近傍)
- EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine St.: 広域)



- 高い元素選択性
- どんな元素でも適用可
- XANES&EXAFSで多彩情報



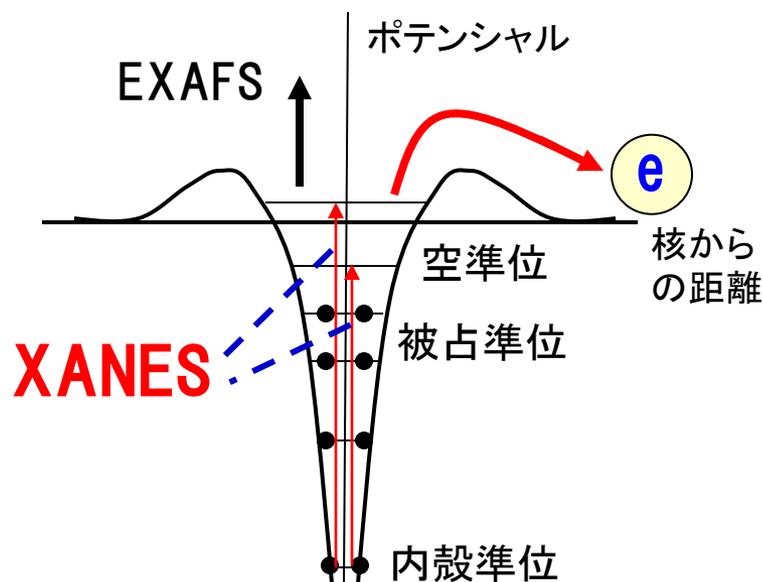
放射光の利用

- 高感度
- マイクロビームマッピング

XAFSから得られる情報

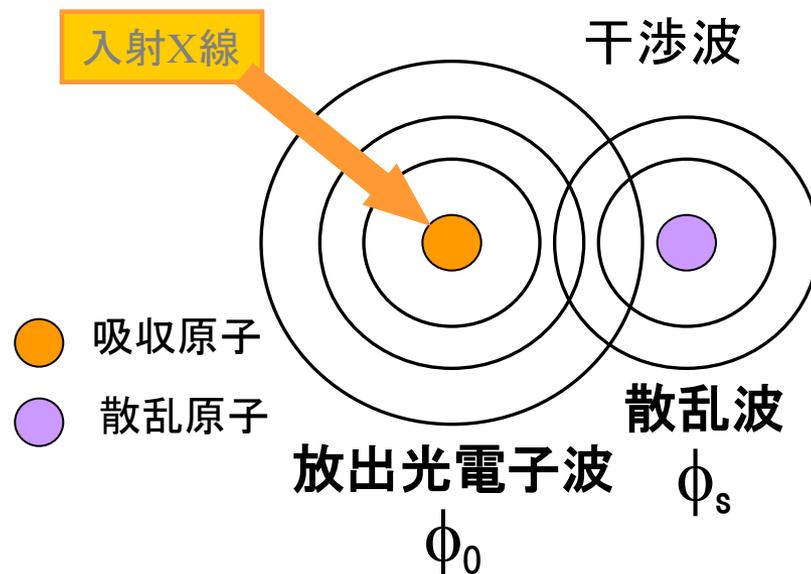
XANES

価数・対象性



EXAFS

隣接原子種・
距離・配位数



内殻から空準位への共鳴遷移

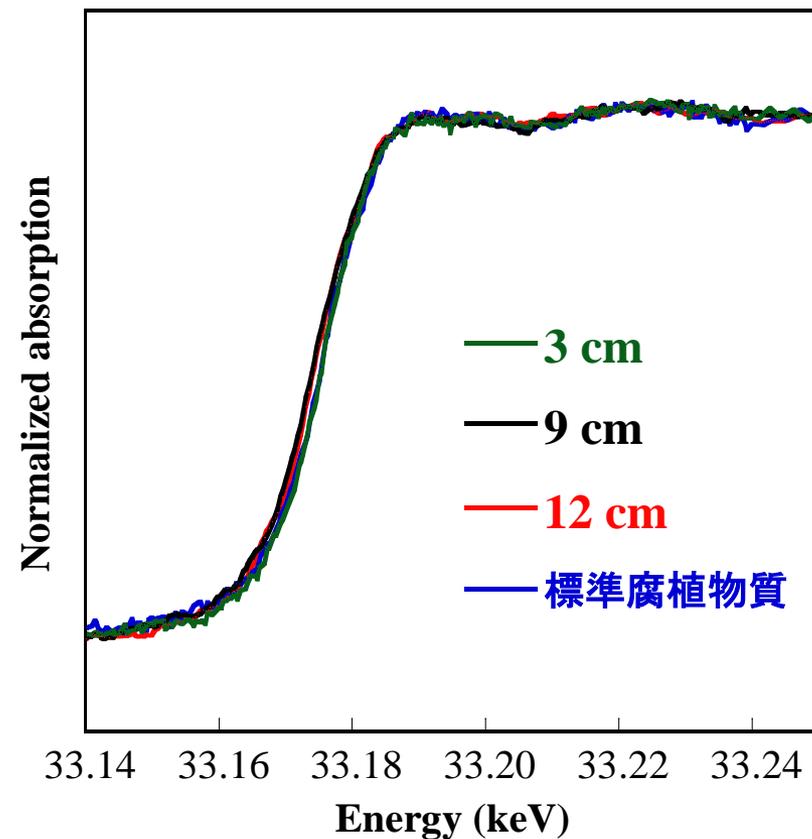
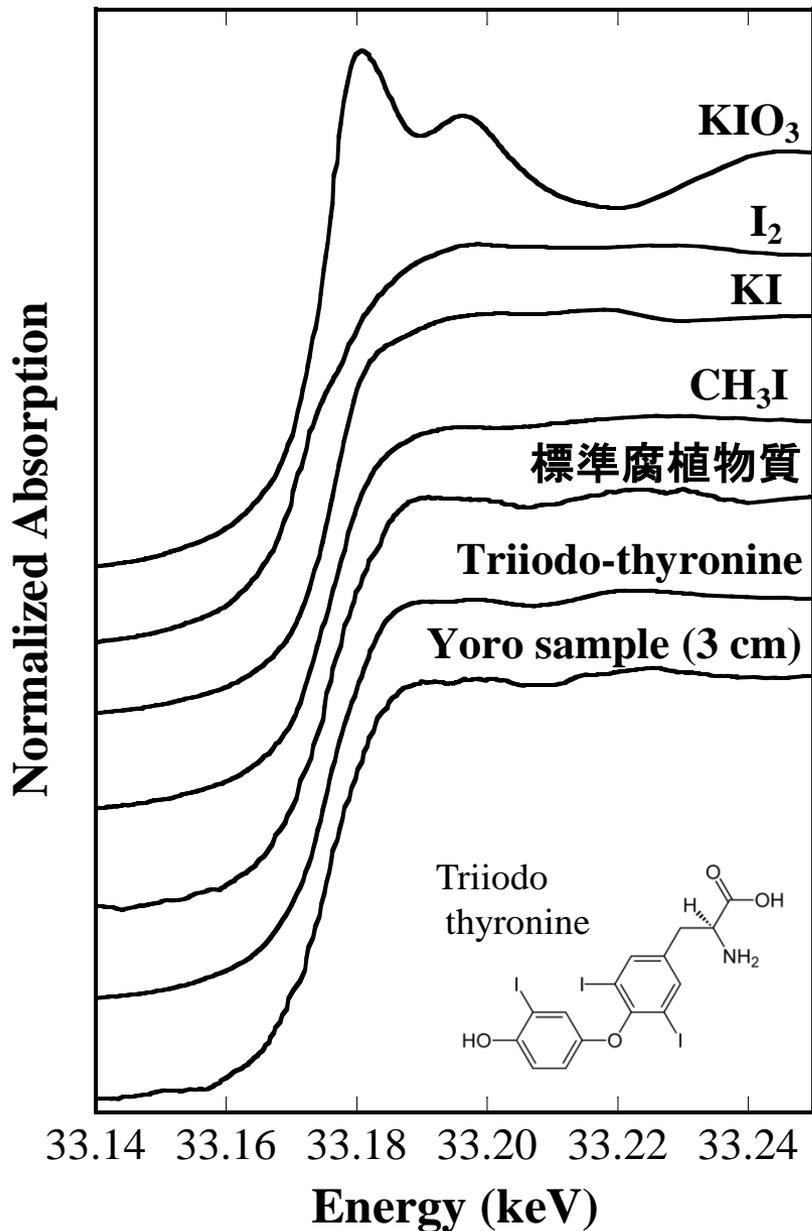
→ 内殻の安定化

空準位への隣接原子の影響
(分子軌道)

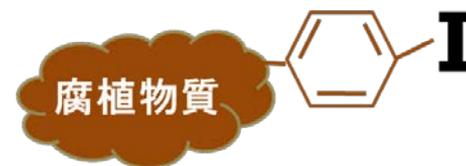
終状態に散乱波が影響

→ 吸収スペクトルに振動構造
散乱原子種、距離
散乱原子の数(→振幅)

土壤中のヨウ素の化学形態 XANES法



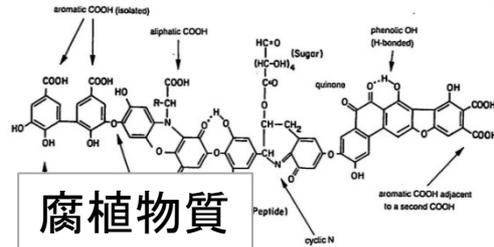
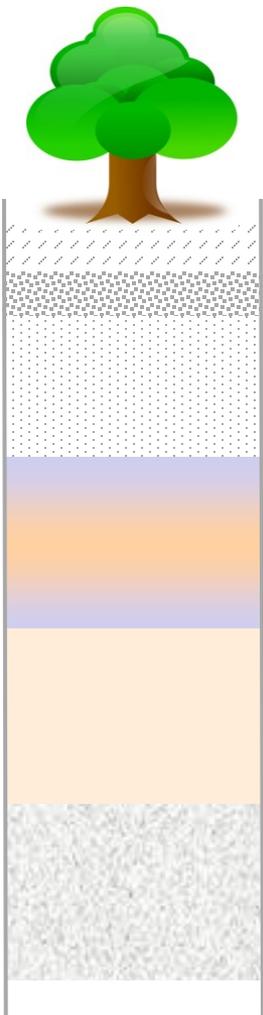
標準腐植物質:
Suwannee River
Humic Acid



土壤中ではいずれの深度でも腐植物質
などと結合した有機ヨウ素として存在。

粘土鉱物-腐植物質複合体の生成

土壌の構造

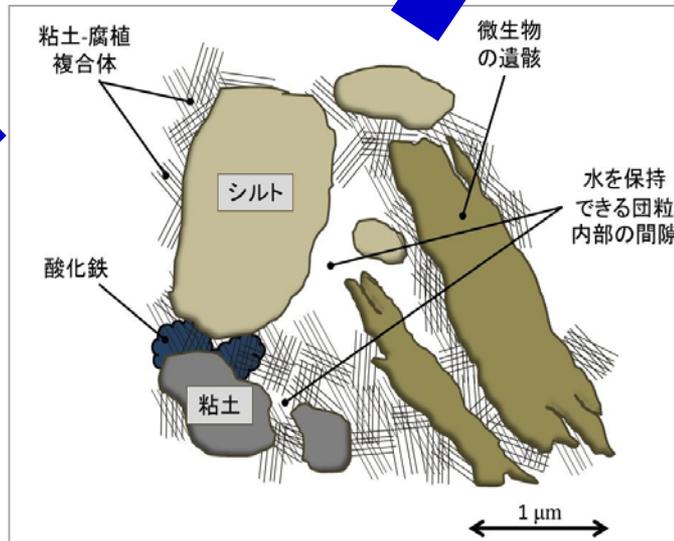
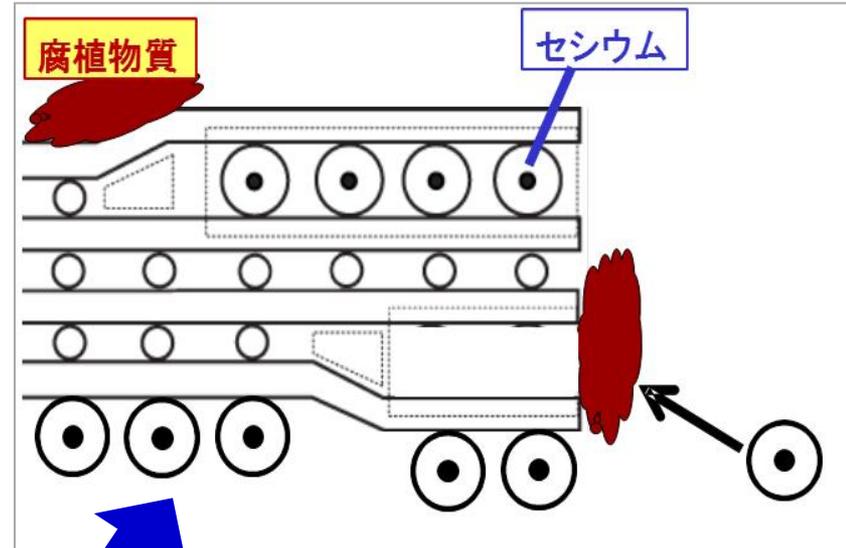


有機物層

岩石風化
と有機物の
付加

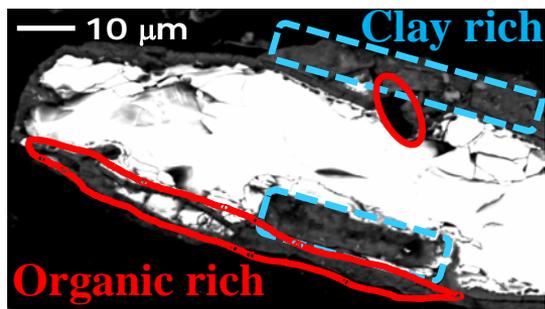
岩石層

粘土鉱物-腐植物質の複合体



腐植物質の吸着がセシウムの層間への侵入をブロック

土壌粒子のヨウ素のマッピング micro-XRF



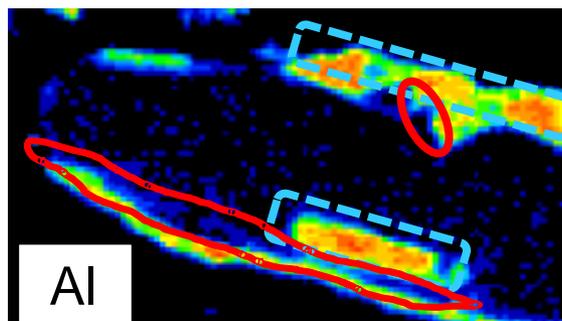
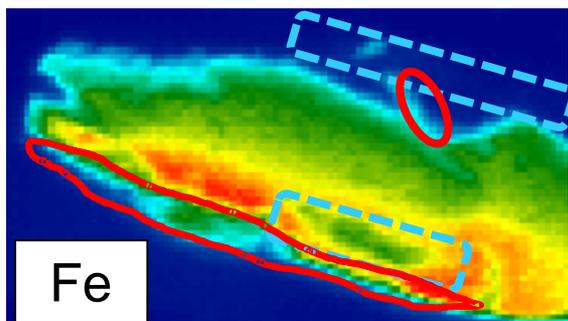
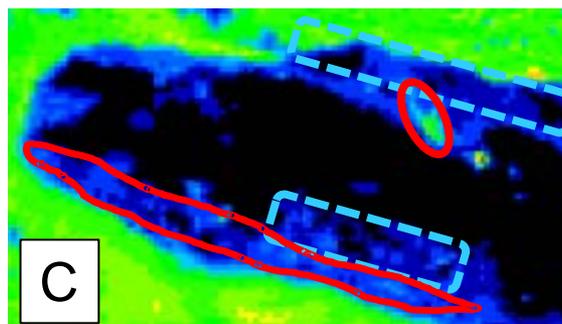
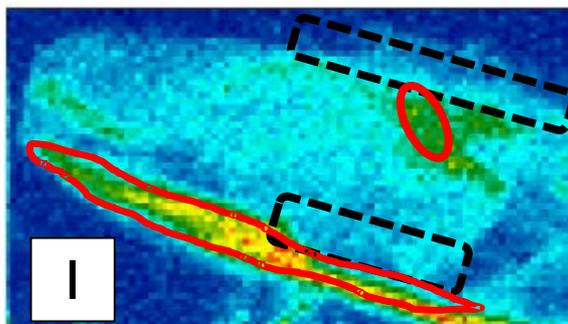
反射電子像 (BEI)



薄片顕微鏡写真 (透過)

土壌 (深さ3 cm) を樹脂に埋め込み, 厚さ50 μm程度の薄片を作成.

Low  High



μ-XRF (SPring-8 BL37XU)

EPMA

炭素とヨウ素の分布が相関



有機ヨウ素の存在を支持

ヨウ素の有機化メカニズム

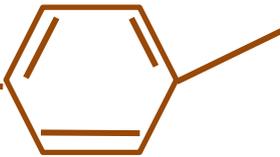
ラッカーゼ(酵素): I⁻を酸化する.

Xu (1996) 他

I₂ (aq), HIOは速やかに腐植物質と反応する.

Warner et al.(2000) 他

腐植物質

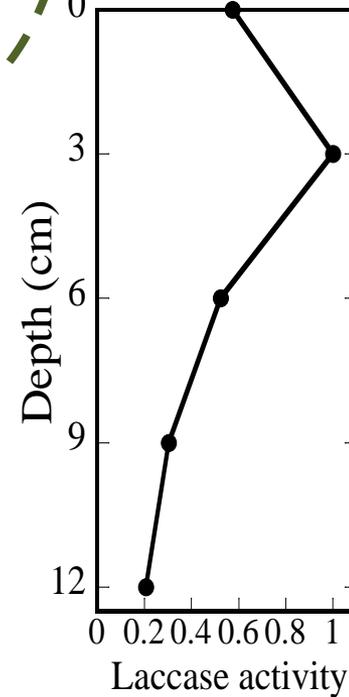


ヨウ素は腐植物質中のベンゼン環と共有結合している.

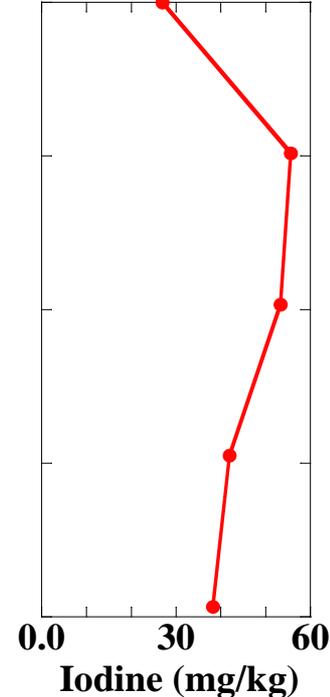
Schlegel et al. (2006)

微生物の活動

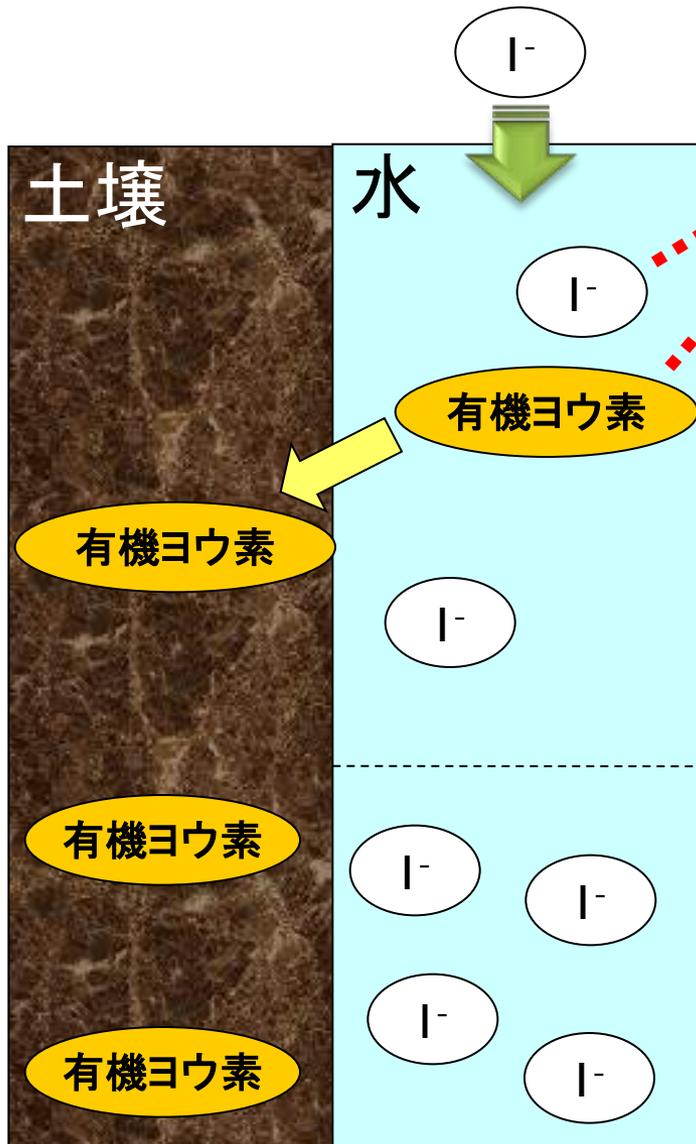
ラッカーゼ(酵素)



土壤中ヨウ素濃度



水-土壌系でのヨウ素の挙動

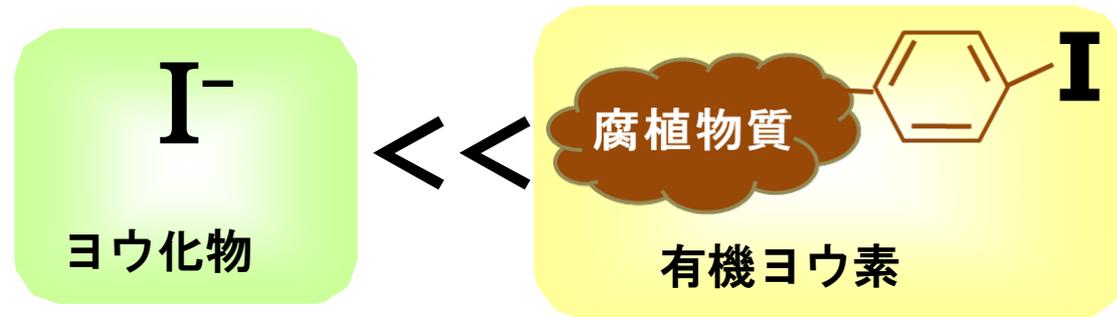


これを放射光で見分ける



→ ヨウ素の挙動が理解できる

水への溶けにくさ (動きにくさ)



水による溶出実験

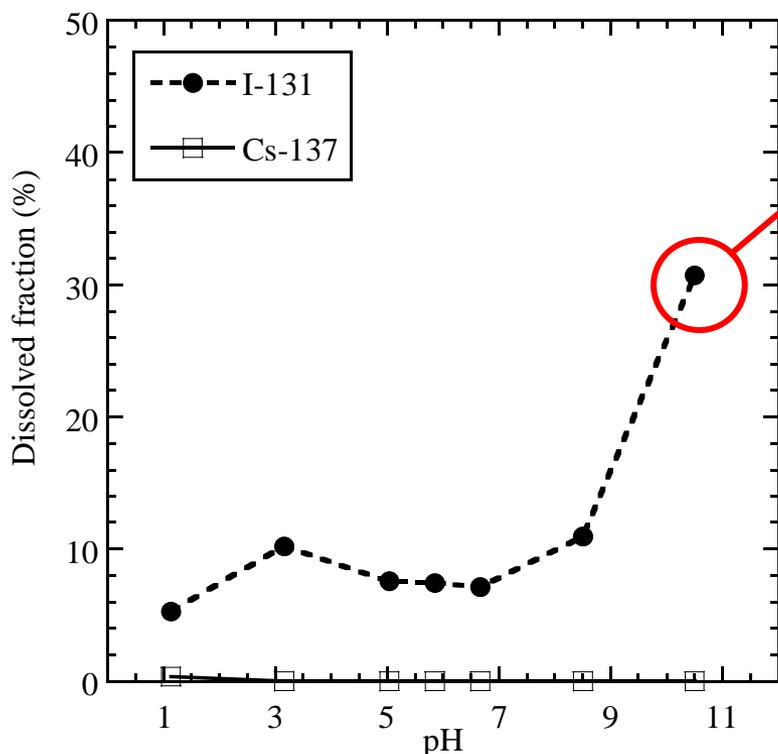
セシウム：水への溶出1%以下；2 M HClでも溶出率も1%以下！！

*極めて安定に土壤に吸着（粘土鉱物へ結合）

ヨウ素：水への溶出率10-30%、アルカリ側で溶出率大

フミン酸+フルボ酸成分が全体の70以上を占める

溶出のし易さ：ヨウ素 > セシウム



0.1 M NaOHで抽出

*フミン酸、フルボ酸溶出

*約30%のI-131溶出

pH 2へ酸性化

*フミン酸沈殿

*溶出ヨウ素の60%が沈殿

Ca-oxalateと共沈

*フルボ酸沈殿

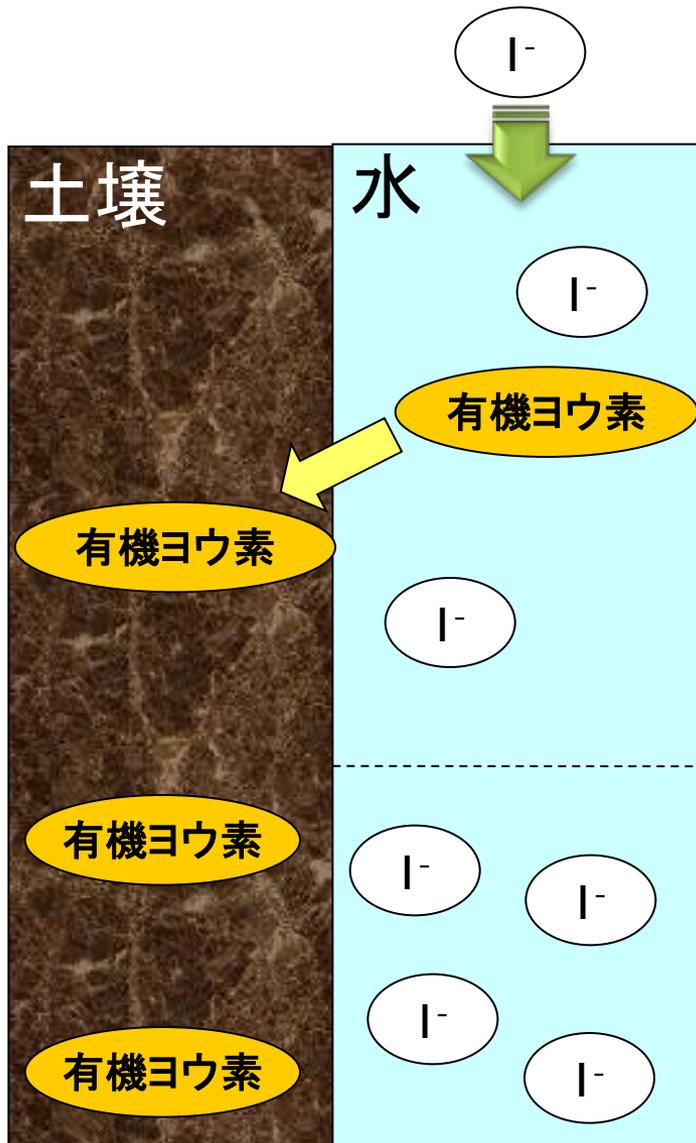
*さらに10%のヨウ素が除去

(60+10)%のヨウ素が有機化！！

水溶性：ヨウ素 > セシウム

ヨウ素の方がより深層に移行

水-土壌系でのヨウ素の挙動

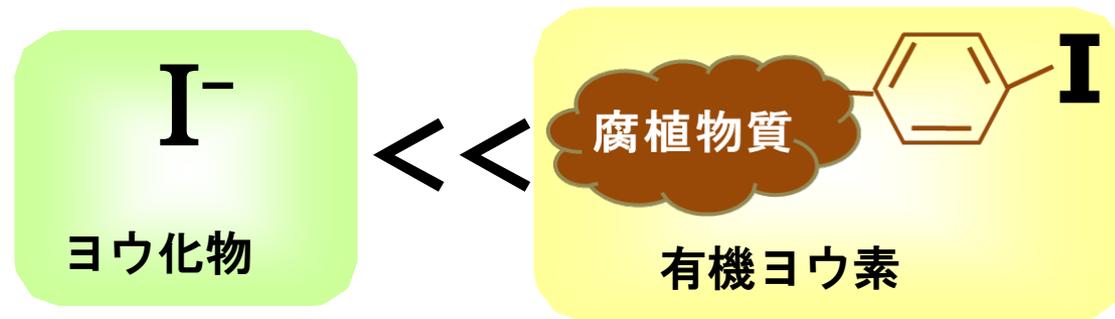


ヨウ素は様々な土壌で表面に固定
(¹³¹Iの検出+現在の¹²⁹Iの分布)



どれだけ速やかに有機化されるのか？
大気への再揮散はないのか
⇒ 内部被ばくを評価する上で重要

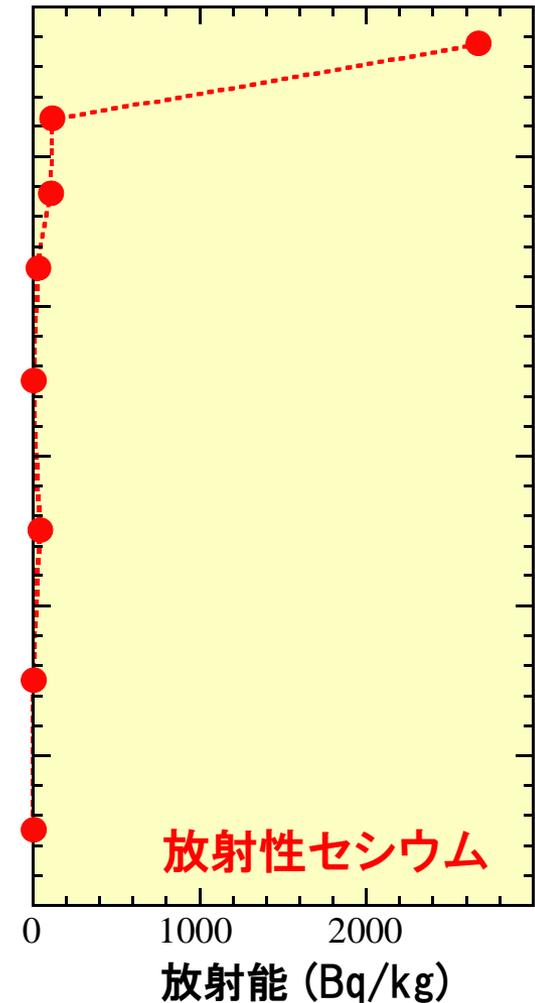
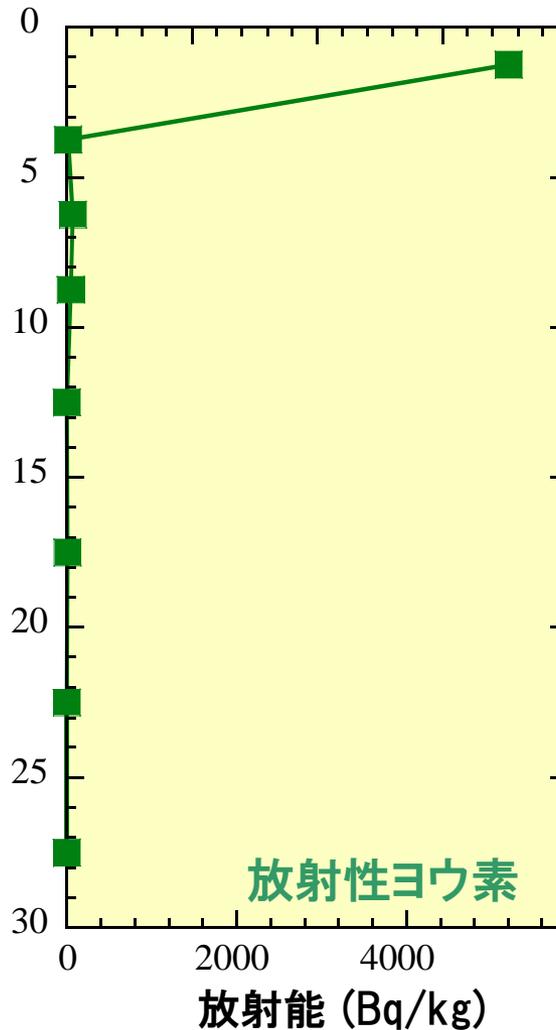
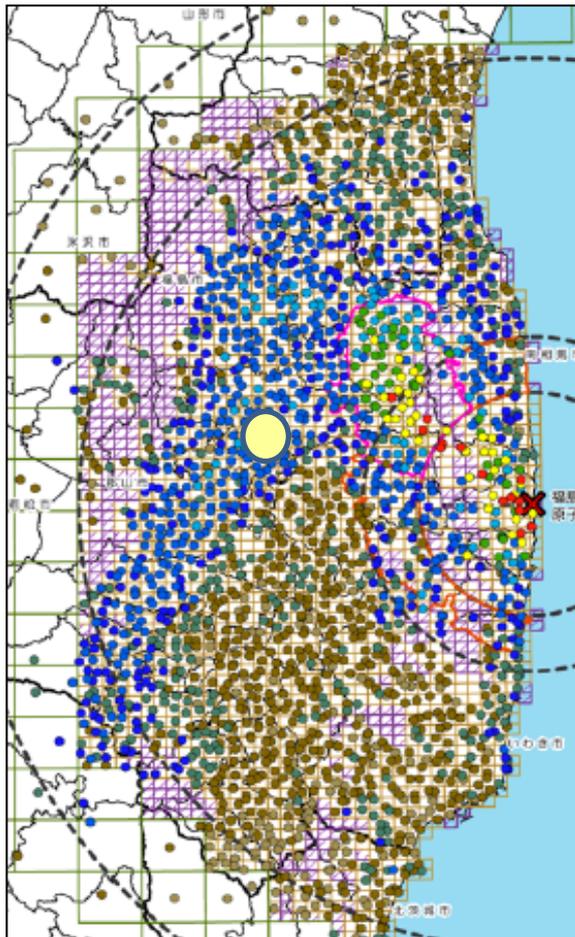
水への溶けにくさ (動きにくさ)



土壤中でのセシウムの 層状ケイ酸塩への固定

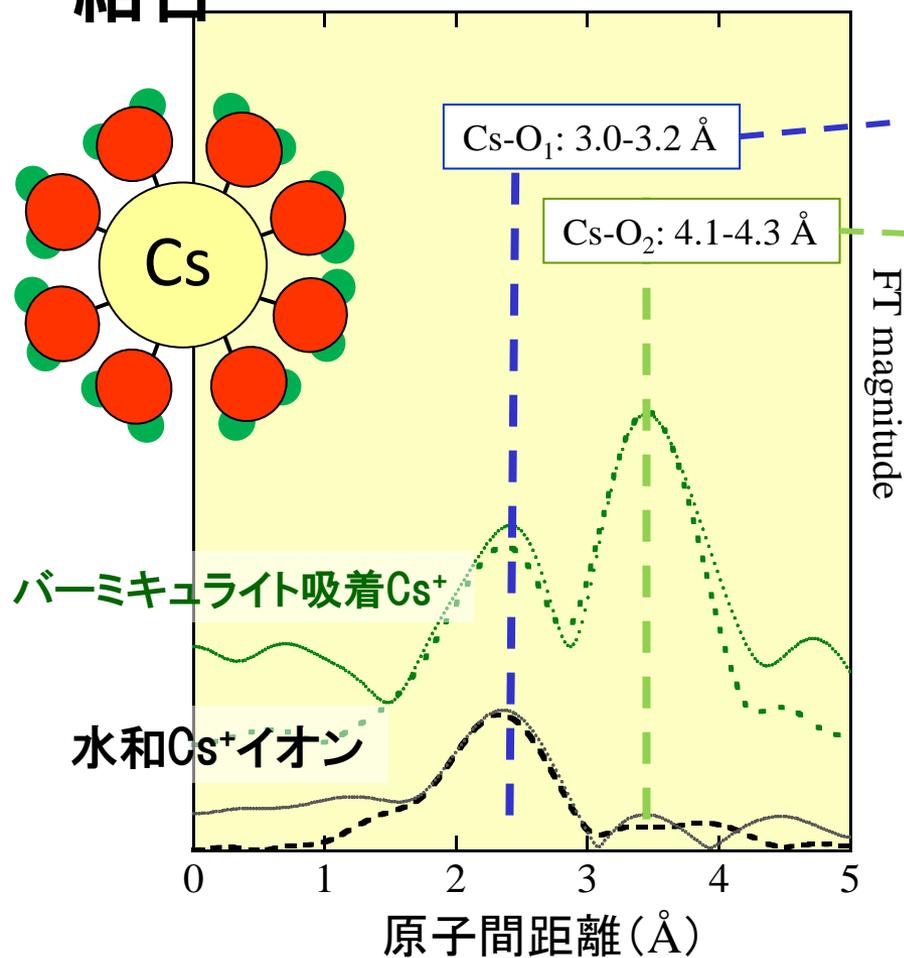
福島土壤コア試料サンプリング（4月13日）

セシウム・ヨウ素とも表層5 cm以内に90%以上
アルカリ金属・ハロゲン → 最も水に溶け易いのに？



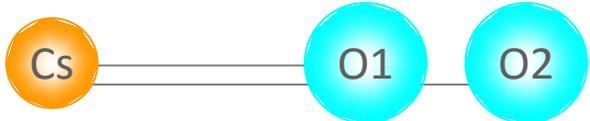
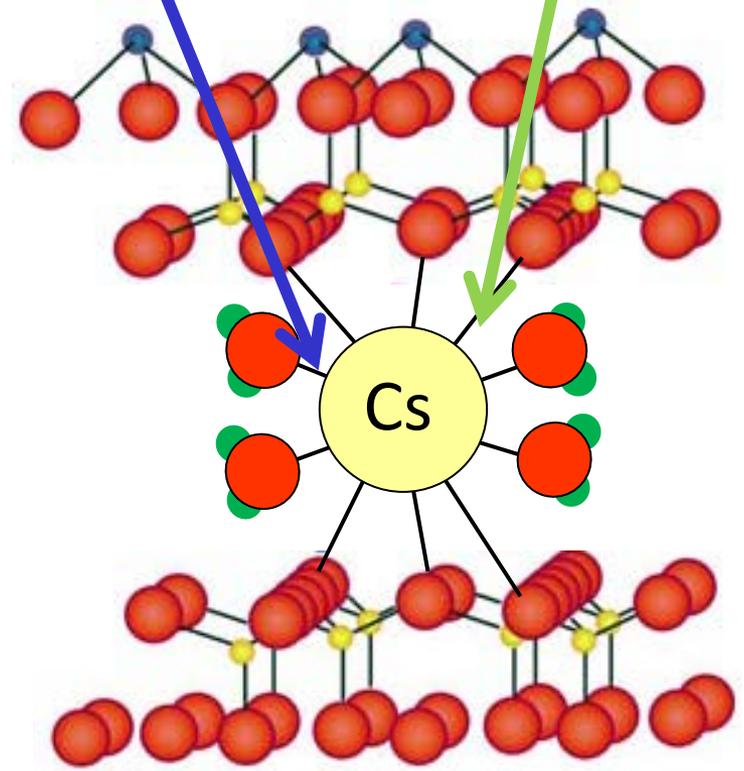
粘土鉱物へのCsの取り込み

バーミキュライト(粘土鉱物、土壤中に存在)とCs: 直接結合



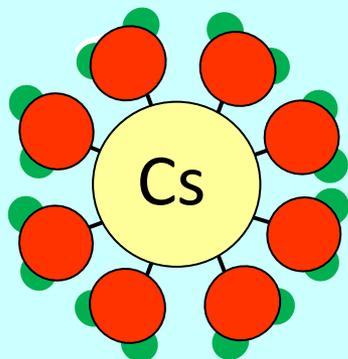
Cs-O₁ (Csと水和している水の酸素との距離)

Cs-O₂ (Csと粘土鉱物の底面の酸素との距離)



粘土鉱物へのCsの取り込み

バーミキュライト(粘土鉱物、土壤中に存在)とCs: 直接結合

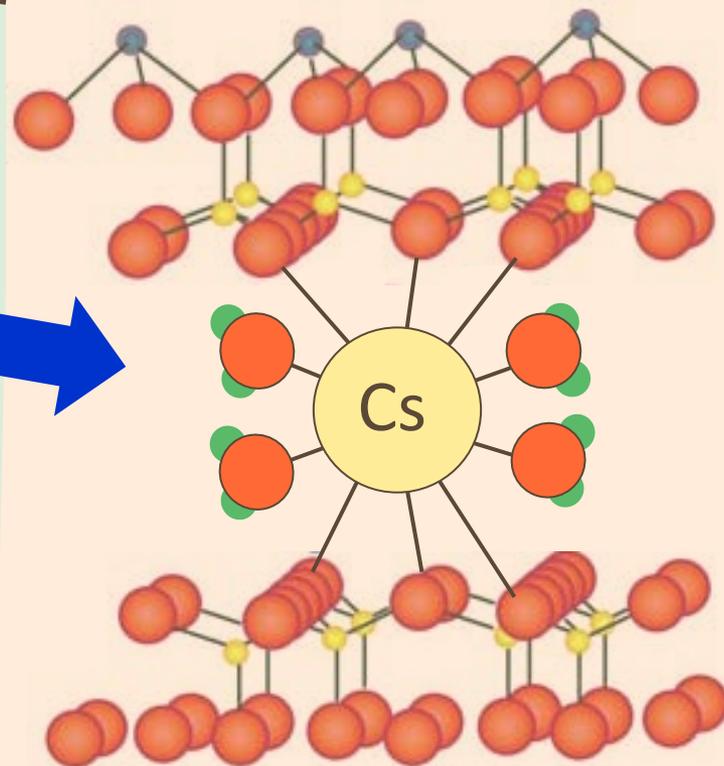


水に溶けた状態

水から土壌への吸着

水分子がとれて
粘土鉱物と結合を作る
→ 安定になる

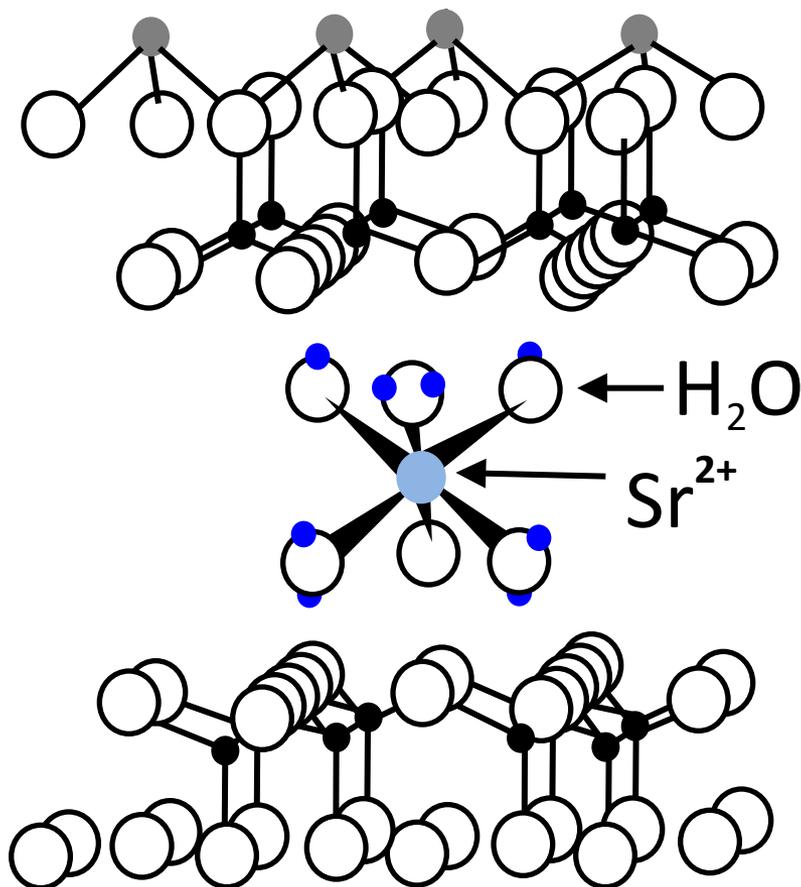
土壌中の粘土鉱物



セシウムとそれ以外の陽イオンの吸着形態の違い

Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Sr^{2+}

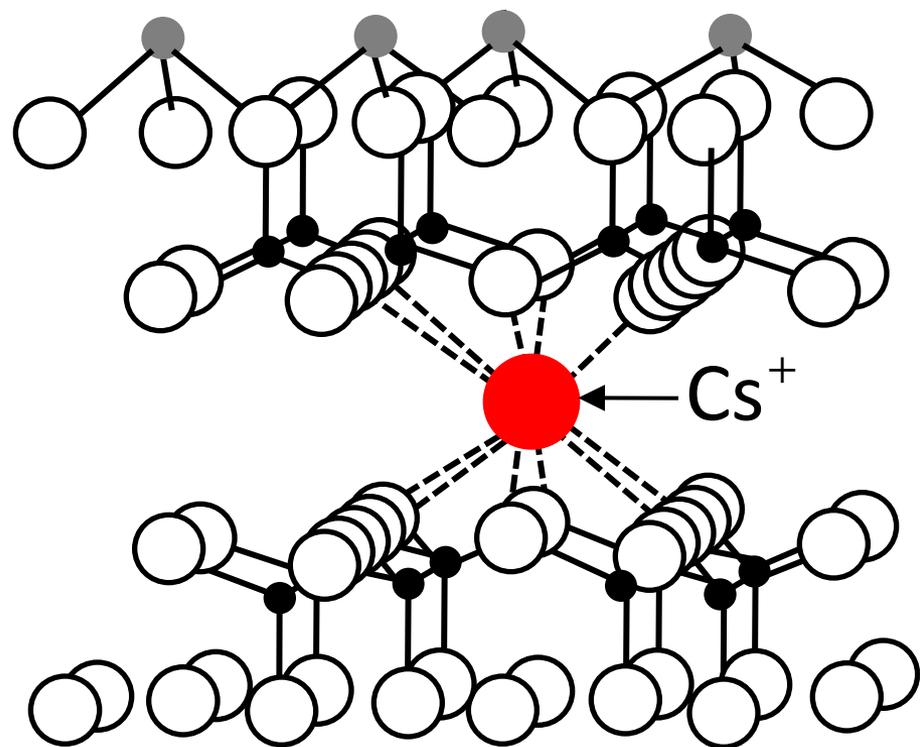
完全に水和した状態
→容易にイオン交換し、溶脱



外圏型表面錯体(外圏錯体)

Cs^+

一部の水和水が粘土の SiO_2 層
の酸素と結合
→安定に結合し、溶脱しない

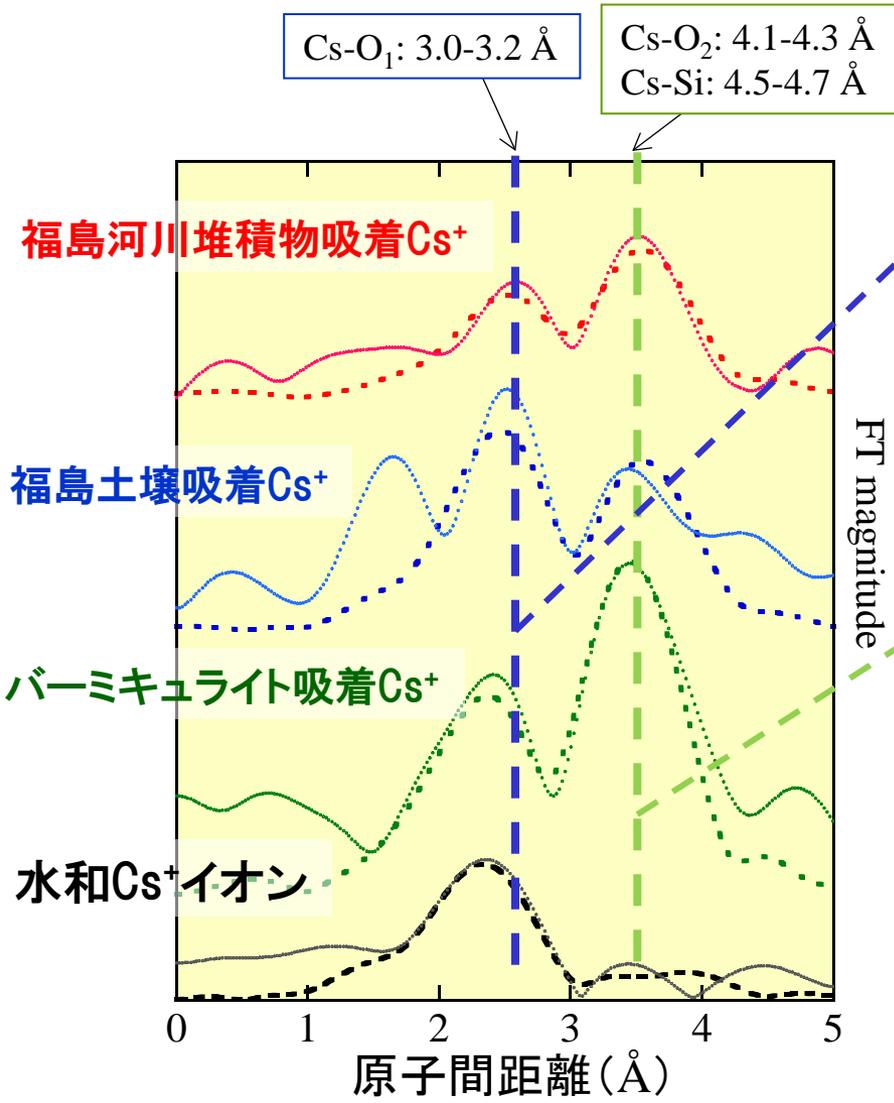


内圏型表面錯体(内圏錯体)

福島で採取した土壌・堆積物にCsを吸着させてEXAFS測定

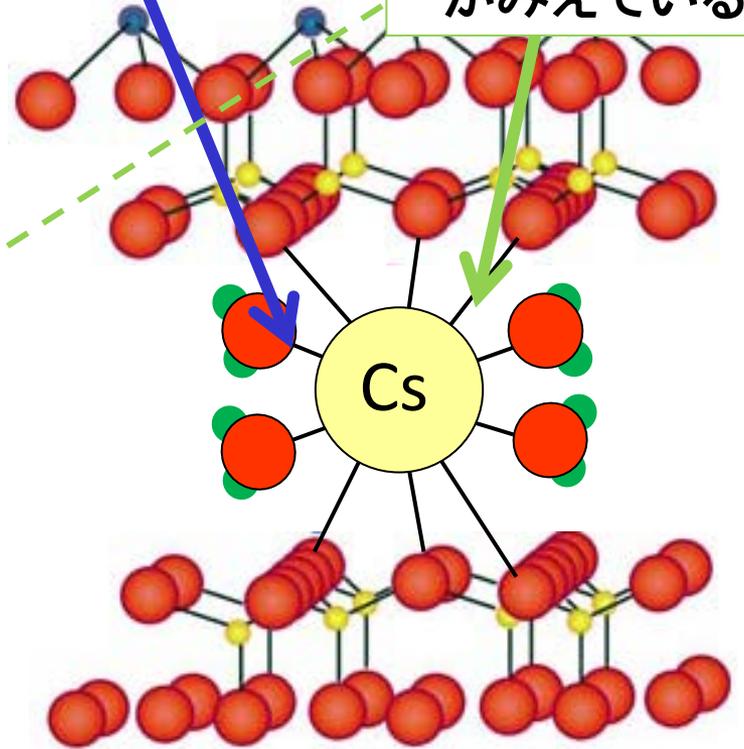
福島試料：粘土鉱物吸着Csと同様のスペクトル

Csは福島土壌/堆積物中の粘土鉱物に強く固定

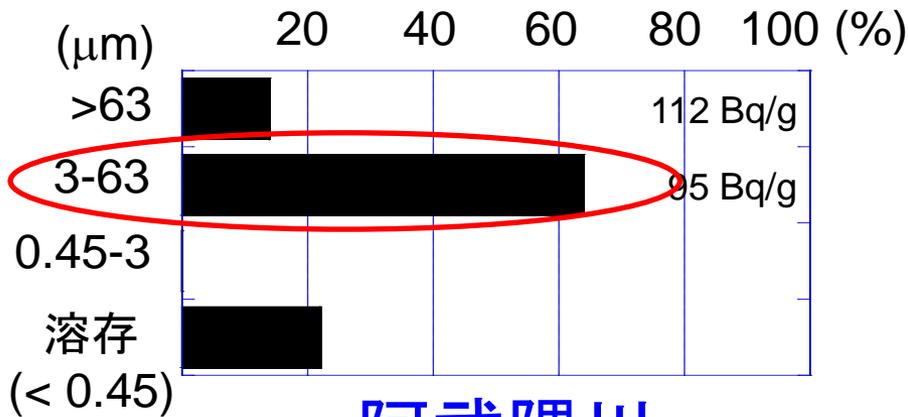
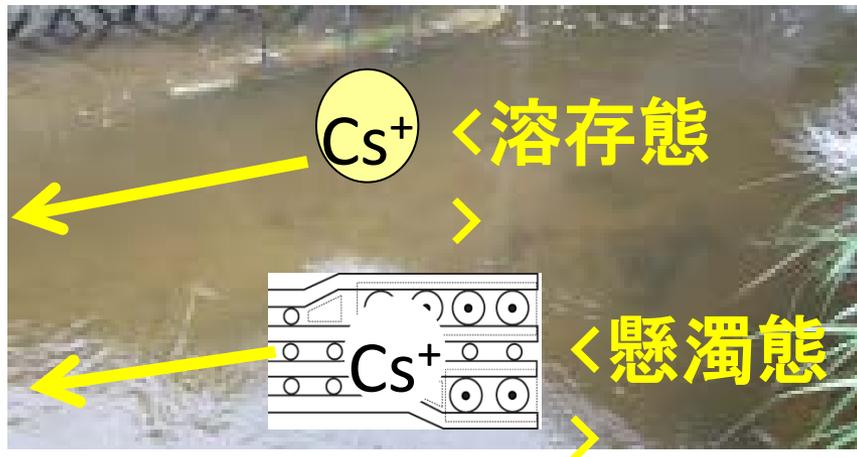


Cs-O₁ (Csと水和している水の酸素との距離)

Cs-O₂+Cs-Si (粘土の構造中の酸素やケイ素がみえている)

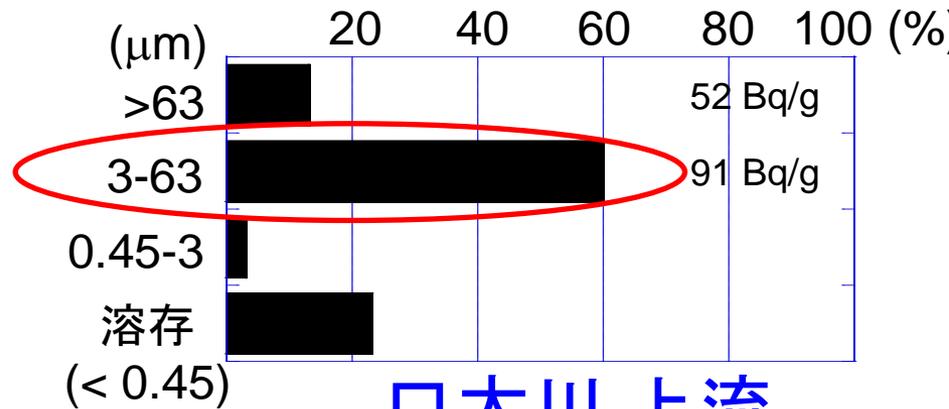


様々な粒径の粒子中のセシウムの相対比

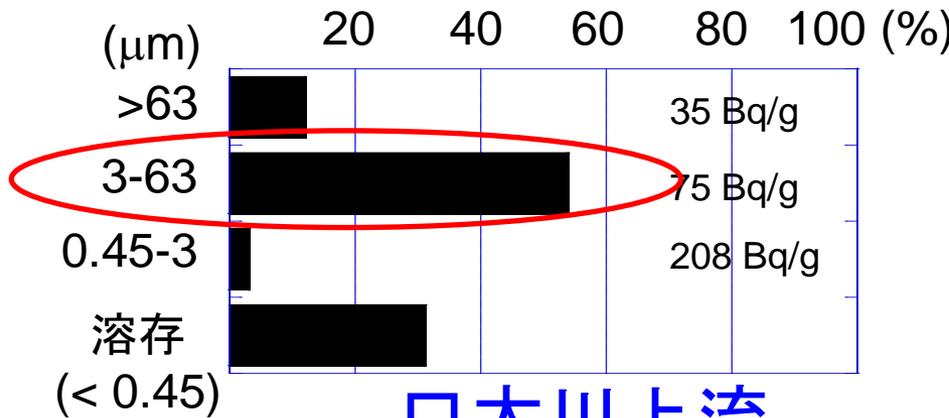


阿武隈川

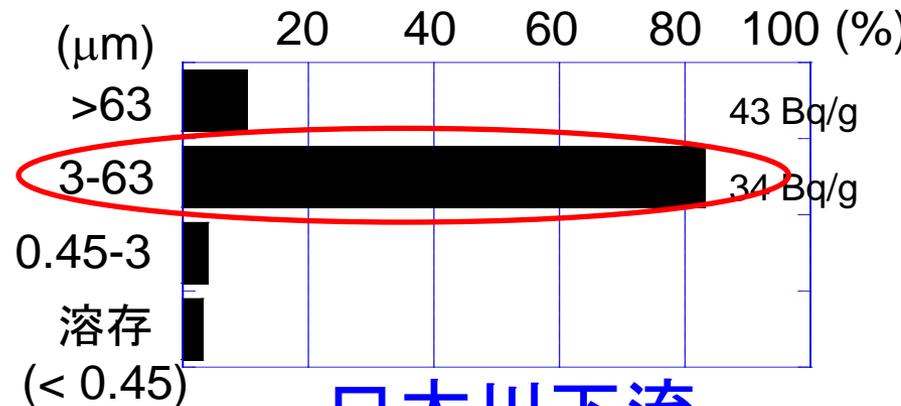
懸濁態: 河川中のCsのキャリア (溶けてるCsは30%以下)



口太川上流



口太川上流



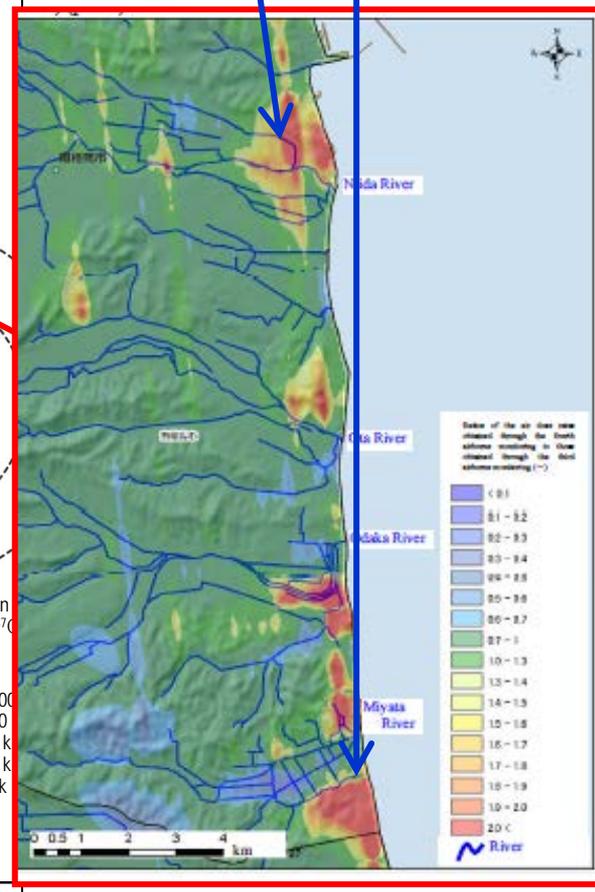
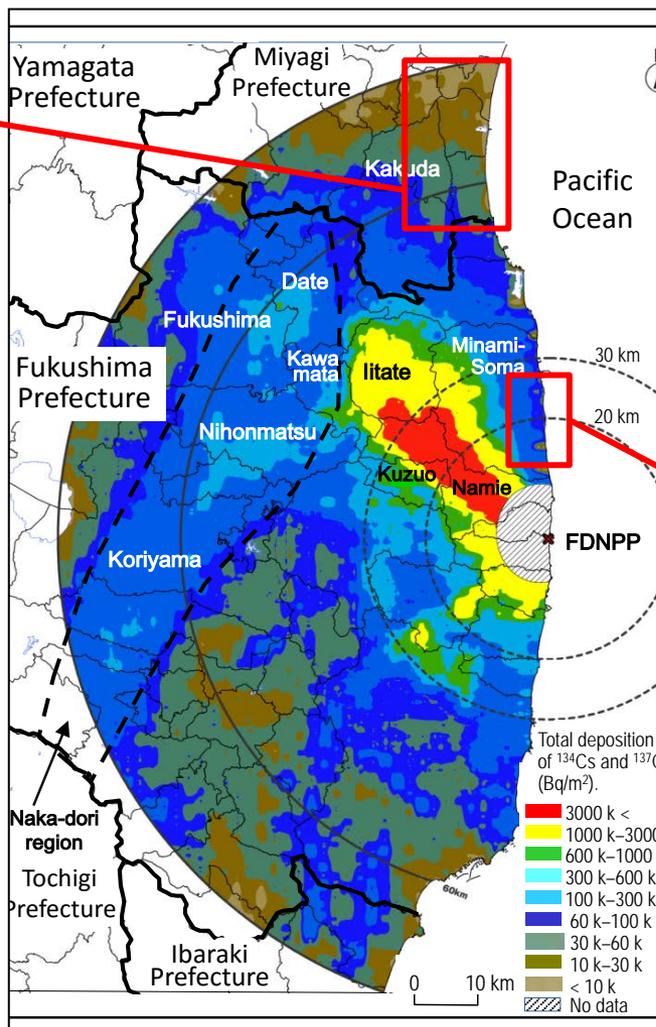
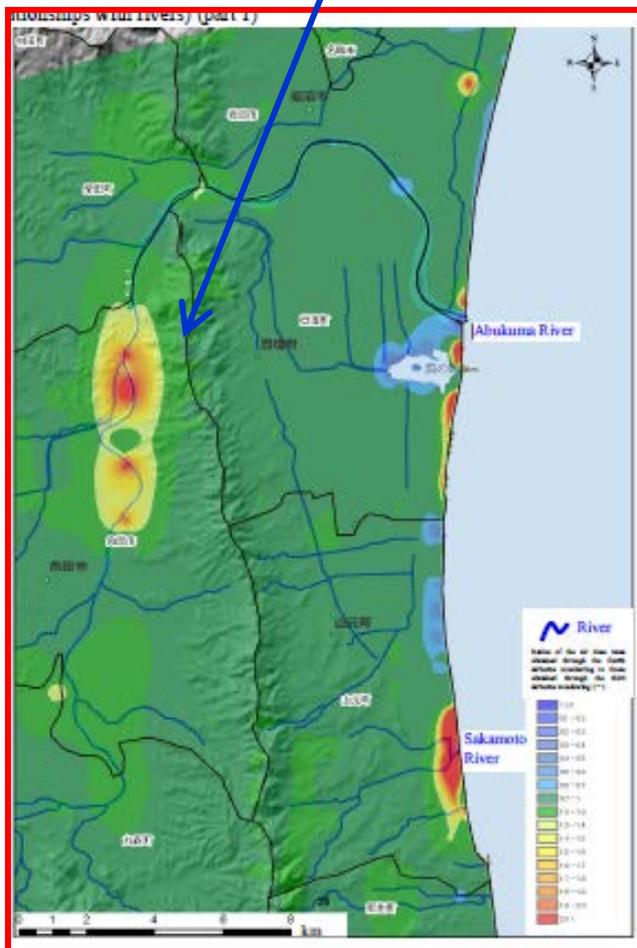
口太川下流

(第4回航空機観測-11月) / (第3回航空機観測-6月)

河川による運搬でCsが再分配される

阿武隈川中流
の分地(角田市)

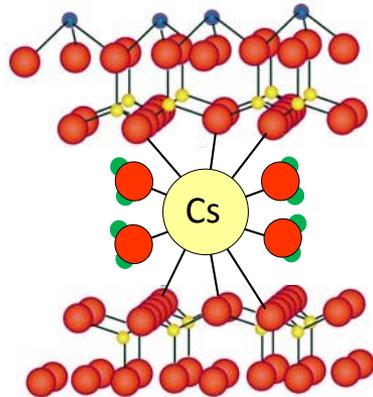
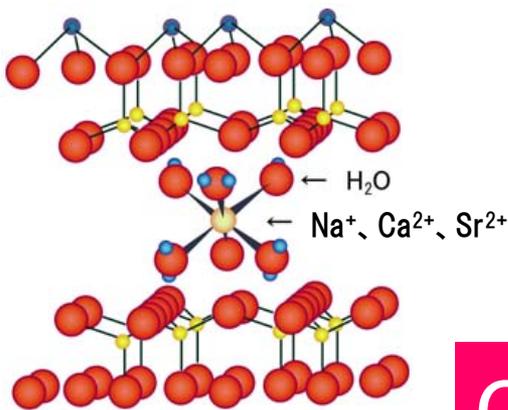
河川の河口域



分子地球化学的考察

分子レベルでの相互作用とマクロスケールで見られる現象とはリンクしている。

分子スケール

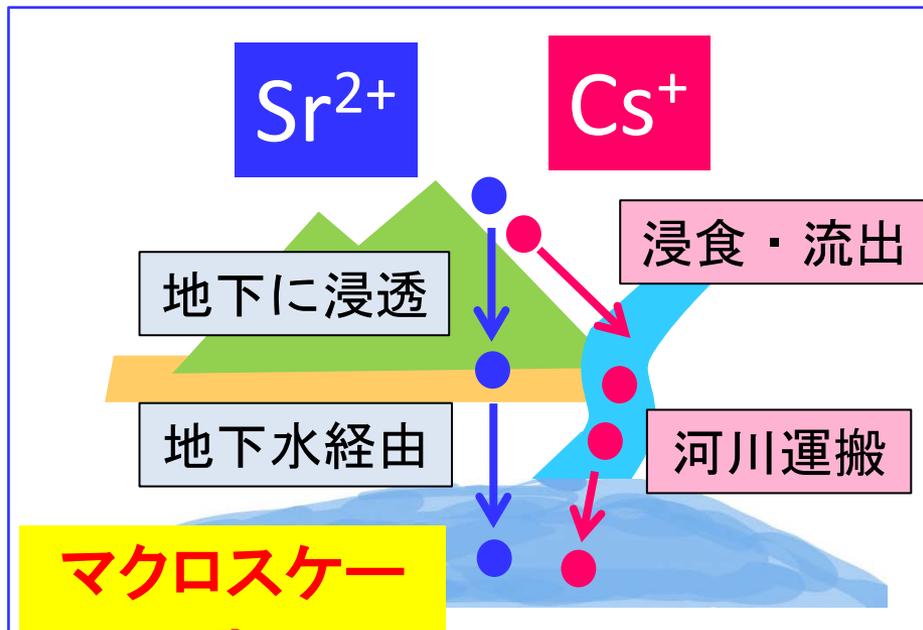


Cs⁺

吸着強
不溶性

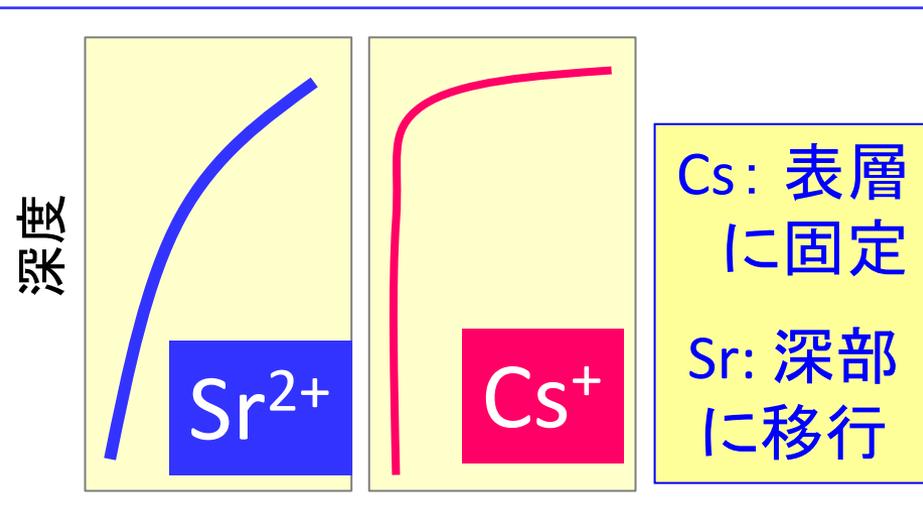
Sr²⁺

吸着弱、動き易い

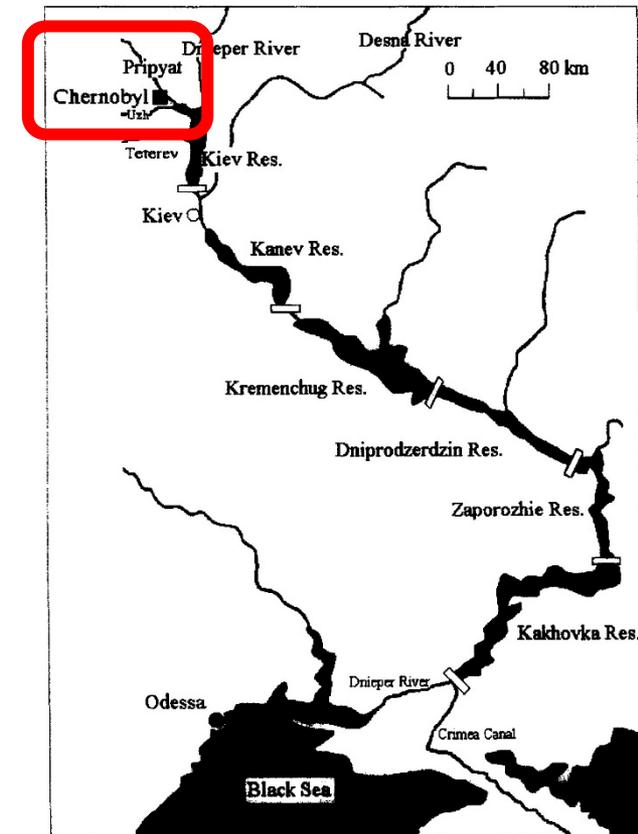
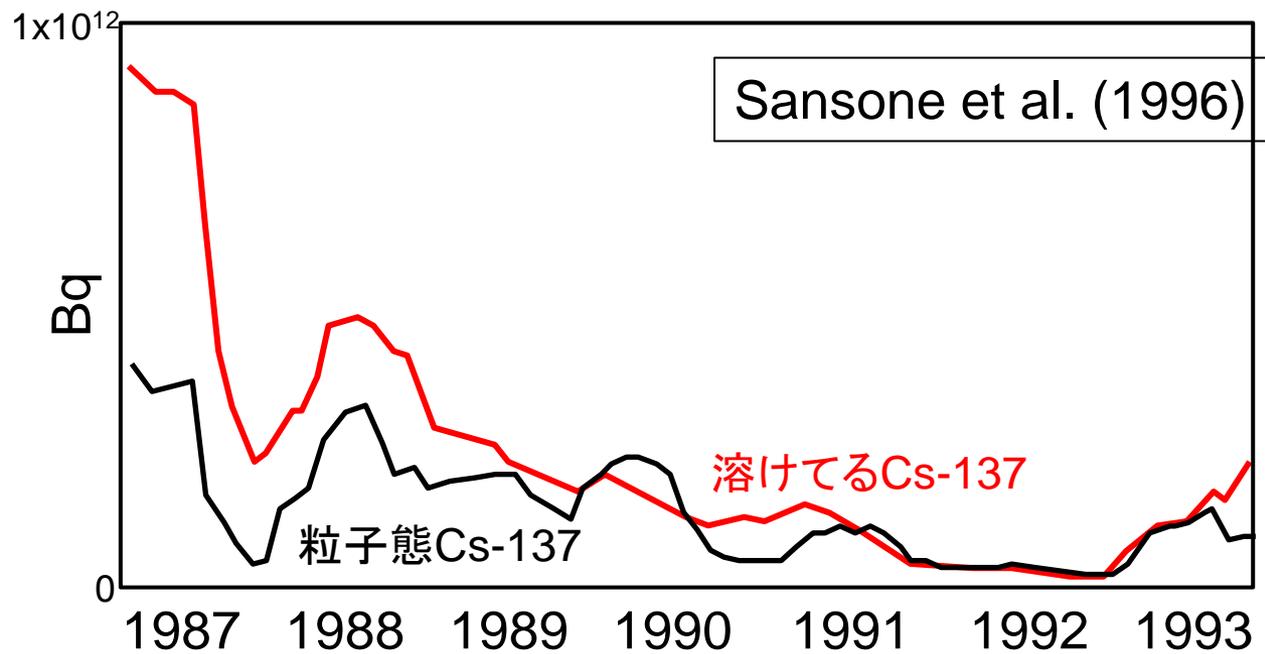


マクロスケール

リンク



チェルノブイリ原発事故後の河川データとの比較



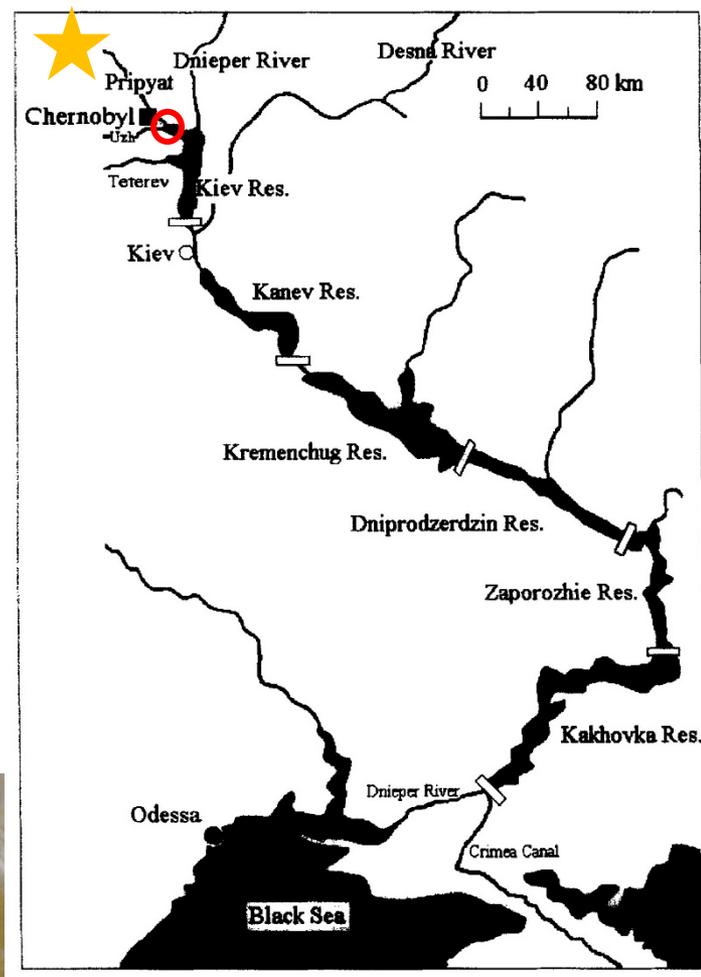
チェルノブイリ

- 溶存態Cs-137 > 懸濁態Cs-137 (少なくとも3年以内)
(懸濁態がメインの福島とは対照的な結果)

後背地から考えられる理由

- チェルノブイリ: 多量の有機物がある泥炭の湿地
- 福島: 粘土鉱物が多い風化花崗岩
- チェルノブイリでは有機物コーティングにより溶存態増加(?)

チェルノブイリ市Pripyat川調査 (2013年8月4日)



溶存有機物濃度

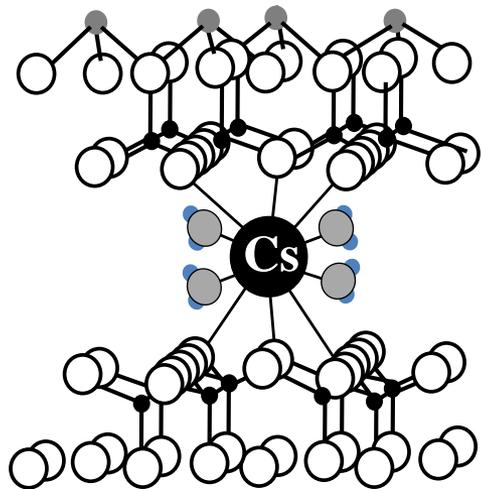
- 福島・阿武隈川: 1-2 mg/L
- Prip'yat川: 19 mg/L

* 予想通りPrip'yatでは有機物濃度大

* EXAFSで外圏錯体検出を予想。

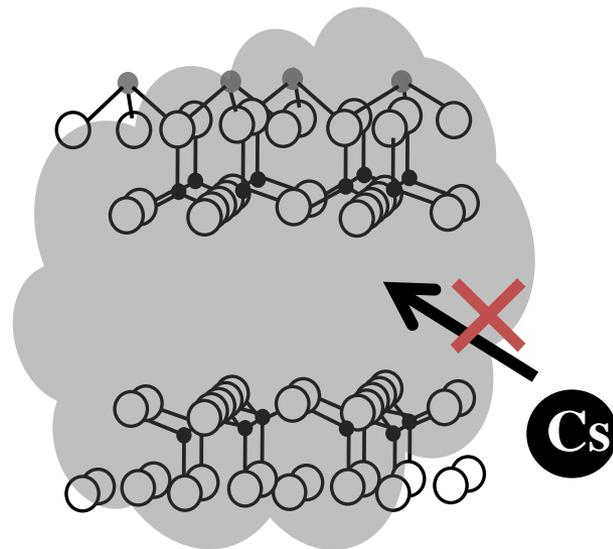
有機物のコーティングによるセシウム吸着の阻害

有機物なし ⇒ **内圏錯体**
⇒ 溶存Csが少ない

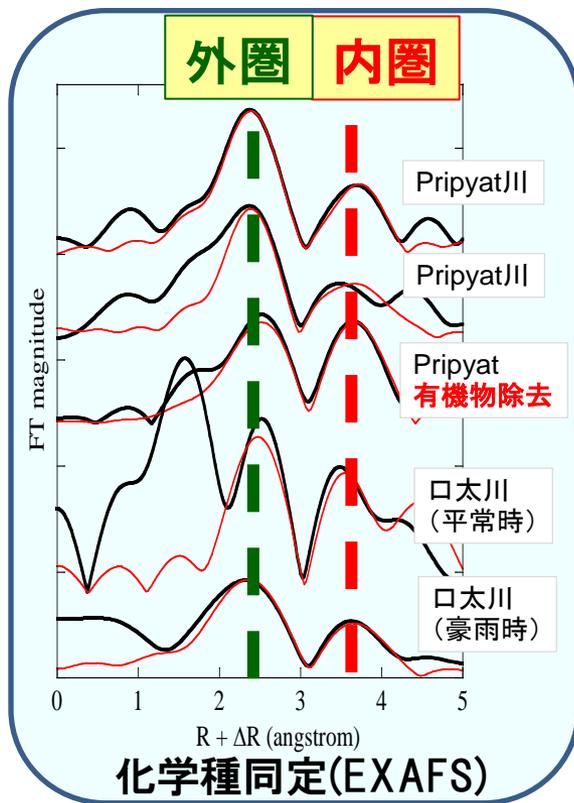


福島

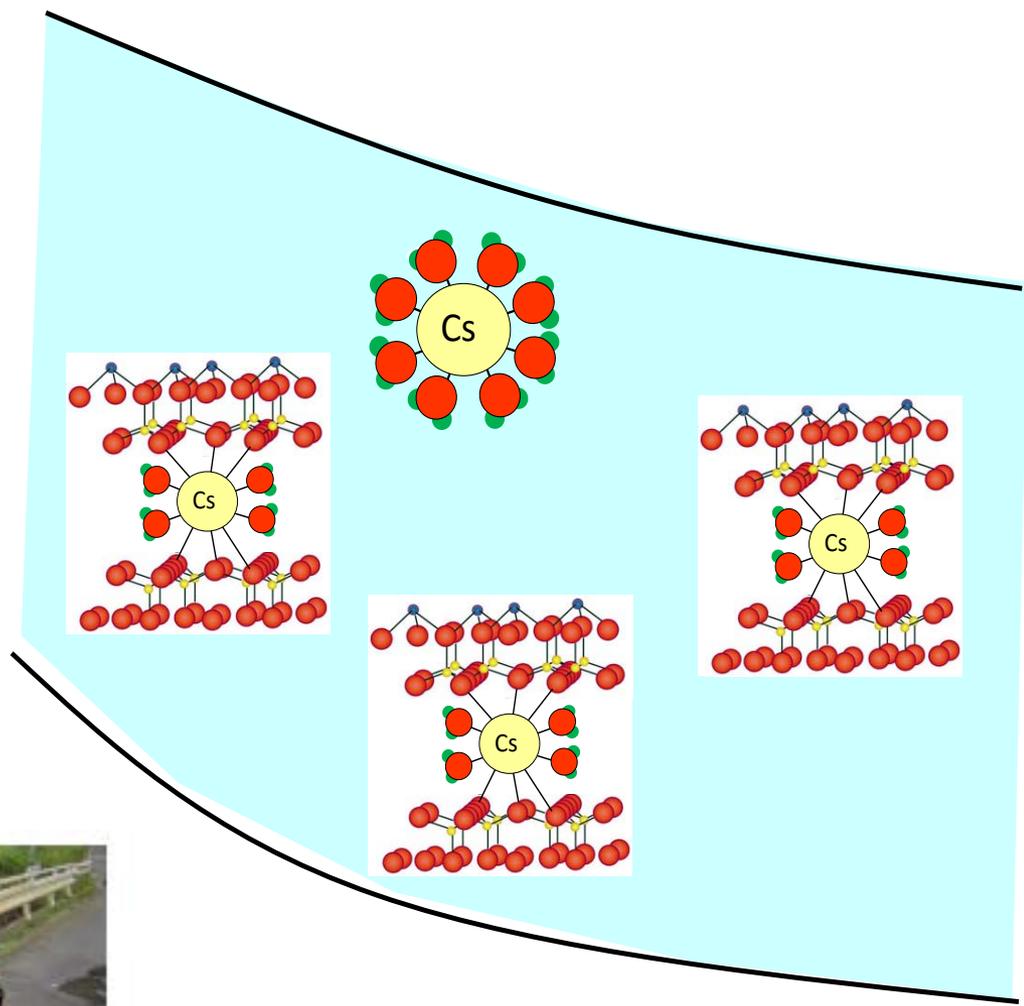
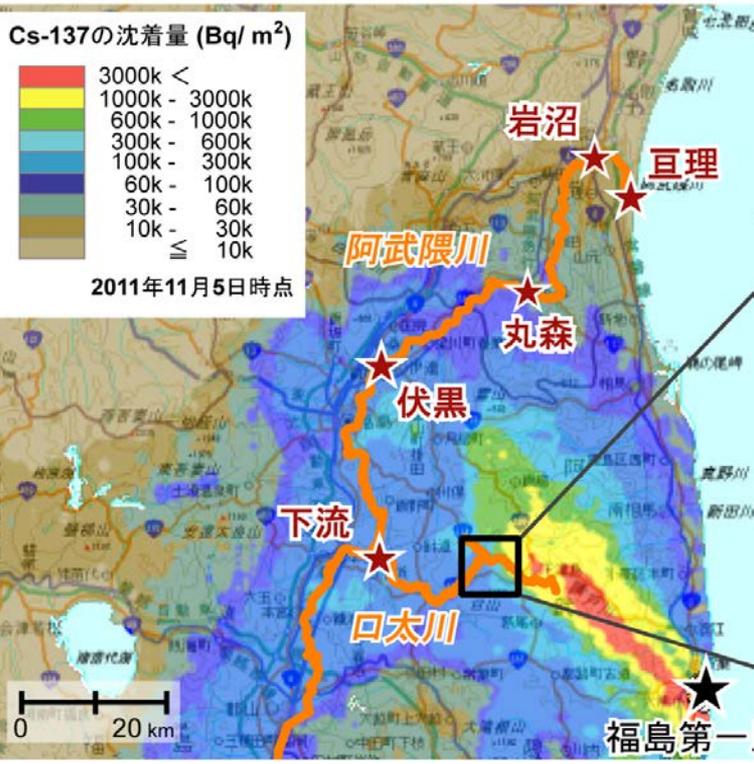
有機物あり ⇒ **外圏錯体**
⇒ 溶存Csが多い



チェルノブイリ



河川中のセシウムの化学状態：福島



福島の河川中では、セシウムは殆どが粘土へ吸着して運ばれる。

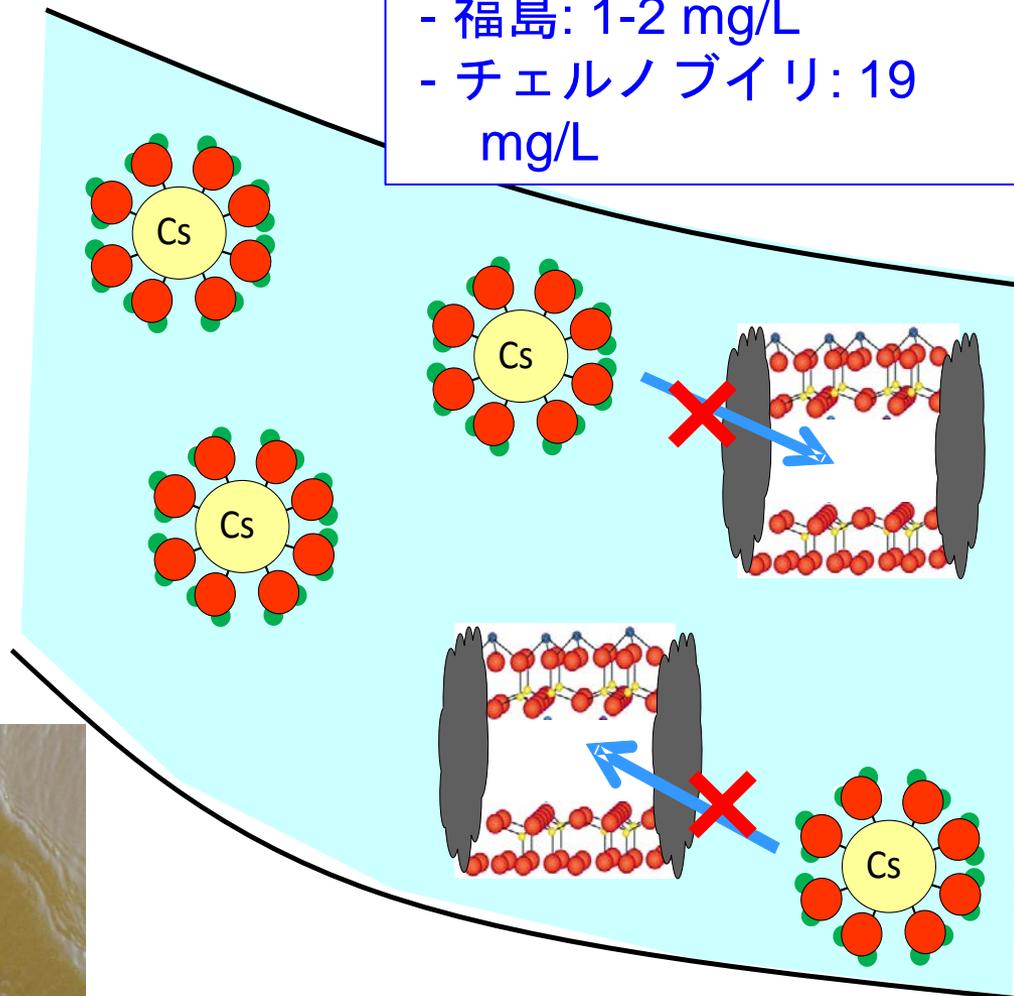
河川中のセシウムの化学状態：チェルノブイリ



溶存有機物濃度

- 福島: 1-2 mg/L

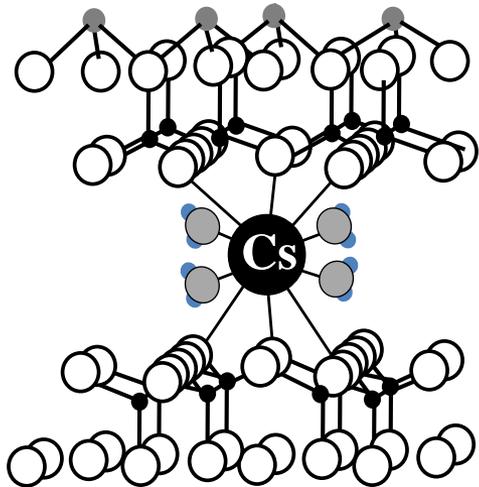
- チェルノブイリ: 19 mg/L



チェルノブイリでは、セシウムは溶けた状態で運ばれる。

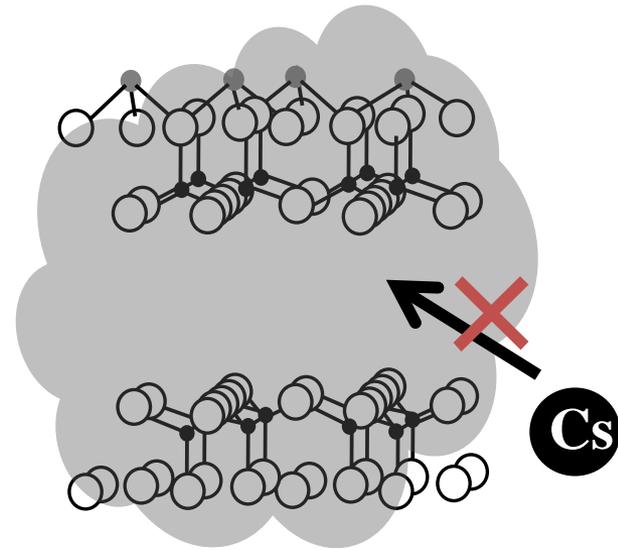
有機物のコーティングによるセシウム吸着の阻害

有機物なし ⇒ **内圏錯体**
⇒ 溶存Csが少ない

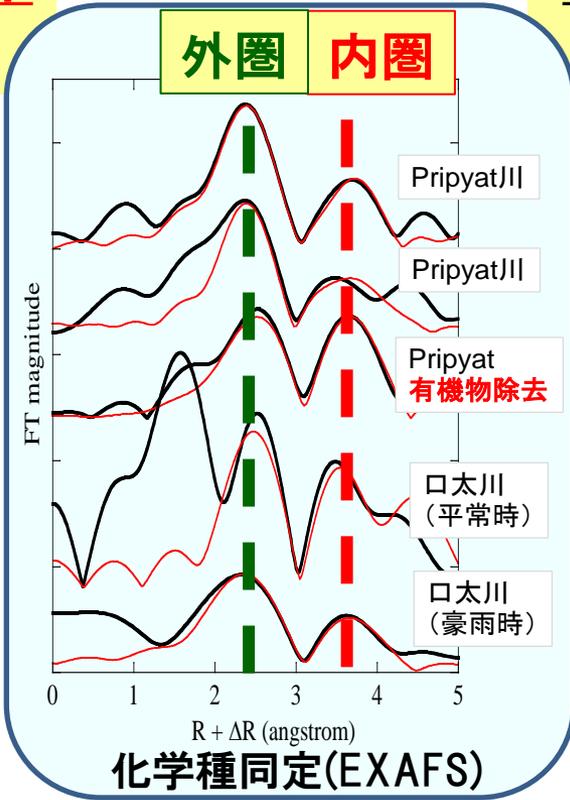


福島

有機物あり ⇒ **外圏錯体**
⇒ 溶存Csが多い

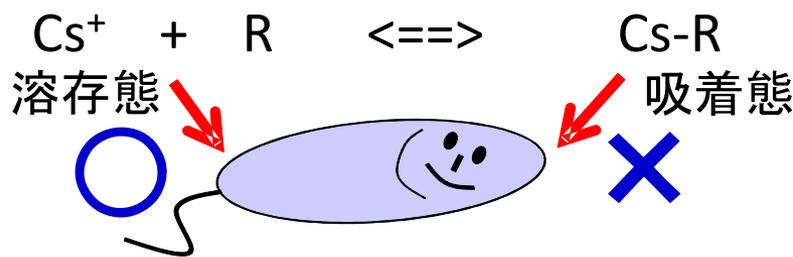


チェルノブイリ



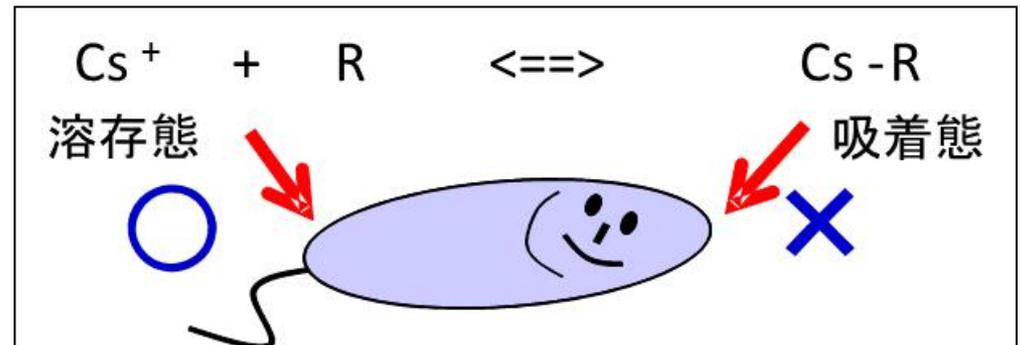
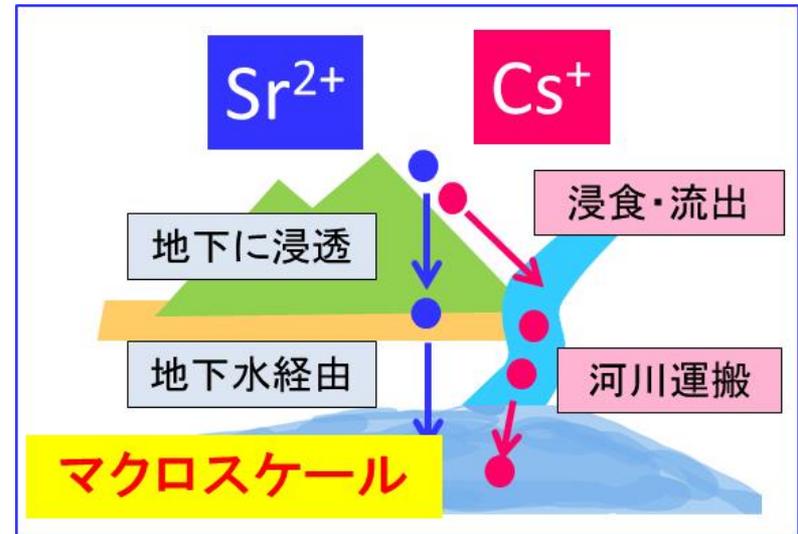
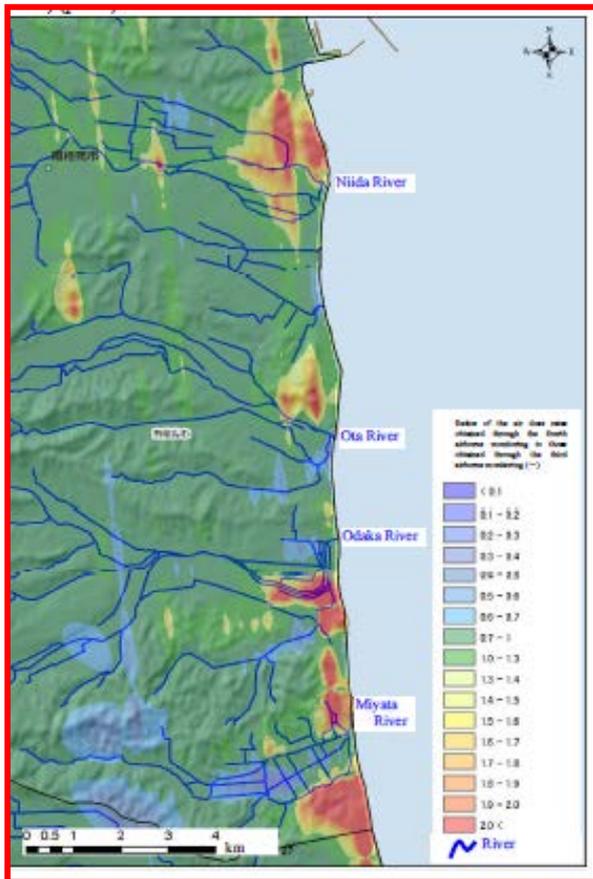
有機物濃度や鉱物組成が、セシウムの溶存態の割合に影響

溶存態の割合のモデル化は、生態系への移行解析で重要



セシウムの溶解性の理解

溶ける or 溶けない？ の理解が
Csの移行挙動や生態移行の理解の第一歩



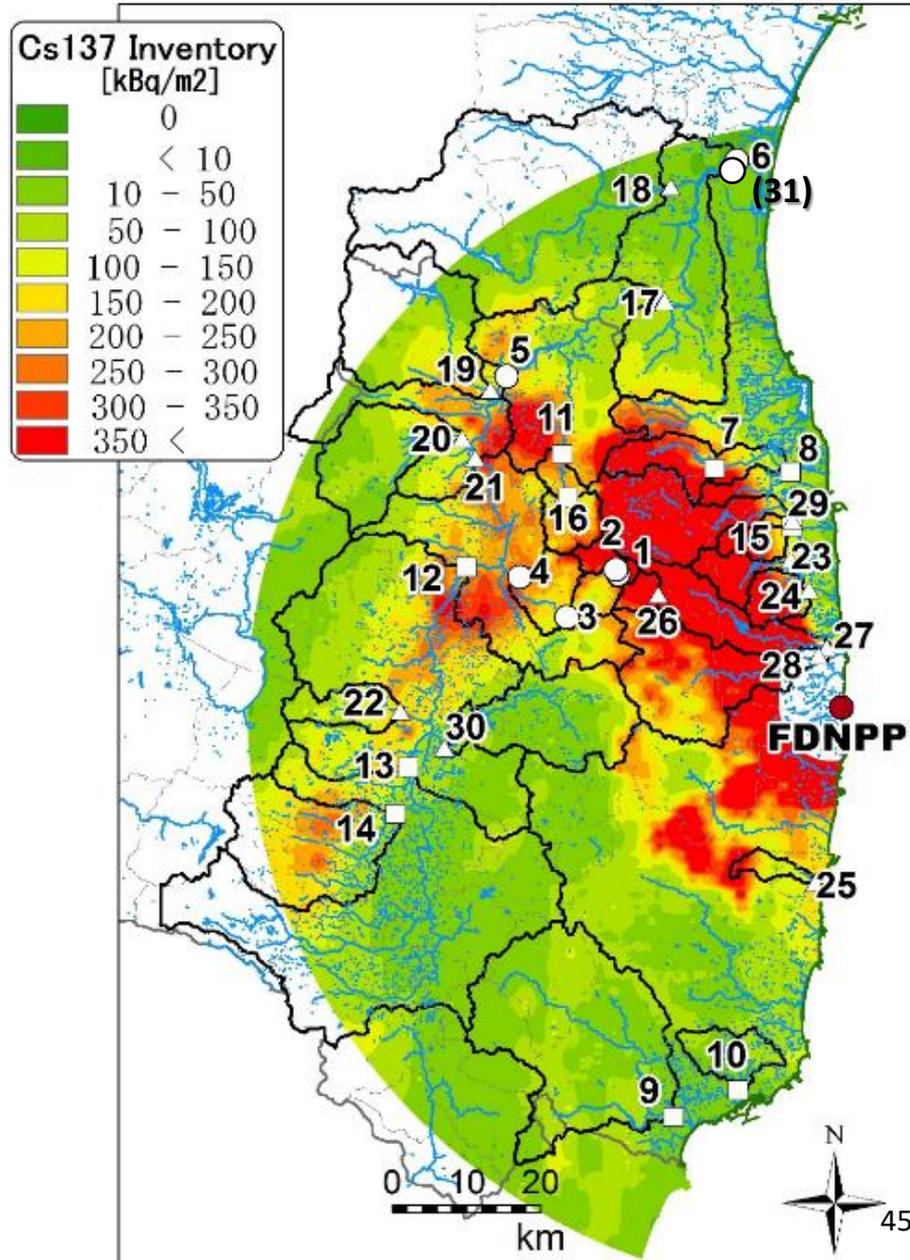
放射性セシウムの吸着特性(RIP)を 支配する因子の解明

河川浮遊砂試料

福島の主要河川31観測点

- ・2011年以降の継続調査
(筑波大・恩田研と連携)
- ・浮遊砂試料の継続採取
- ・水試料のろ過・限外ろ過

No.	地点名	No.	地点名	No.	地点名
1	水境川	11	月舘	21	黒岩
2	口太川上流	12	二本松	22	富田橋
3	口太川中流	13	御代田	23	太田
4	口太川下流	14	西川	24	小高
5	伏黒	15	北町	25	浅見
6	岩沼	16	川俣	26	津島
7	真野	17	丸森	27	請戸
8	小島田堰	18	船岡大橋	28	高瀬
9	松原	19	瀬ノ上	29	原町
10	小名浜	20	八木田	30	赤沼
				31	亘理



GAMによるセシウムの吸着のモデル化

General Adsorption Model (GAM)

(Bradbury and Baeyens, 2000;
Fan et al., in revision)



$$K_c = \frac{N_{\text{Cs}} a_{\text{K}}}{N_{\text{K}} a_{\text{Cs}}} = \frac{N_{\text{Cs}} \gamma_{\text{K}}(\text{K})}{N_{\text{K}} \gamma_{\text{Cs}}(\text{Cs})}$$

$$N_{\text{Cs(or K)}} = \frac{\Gamma_{\text{Cs(or K)}}}{Q}$$

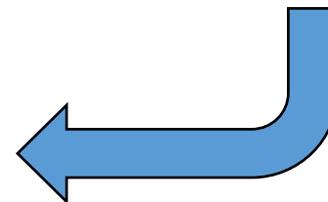
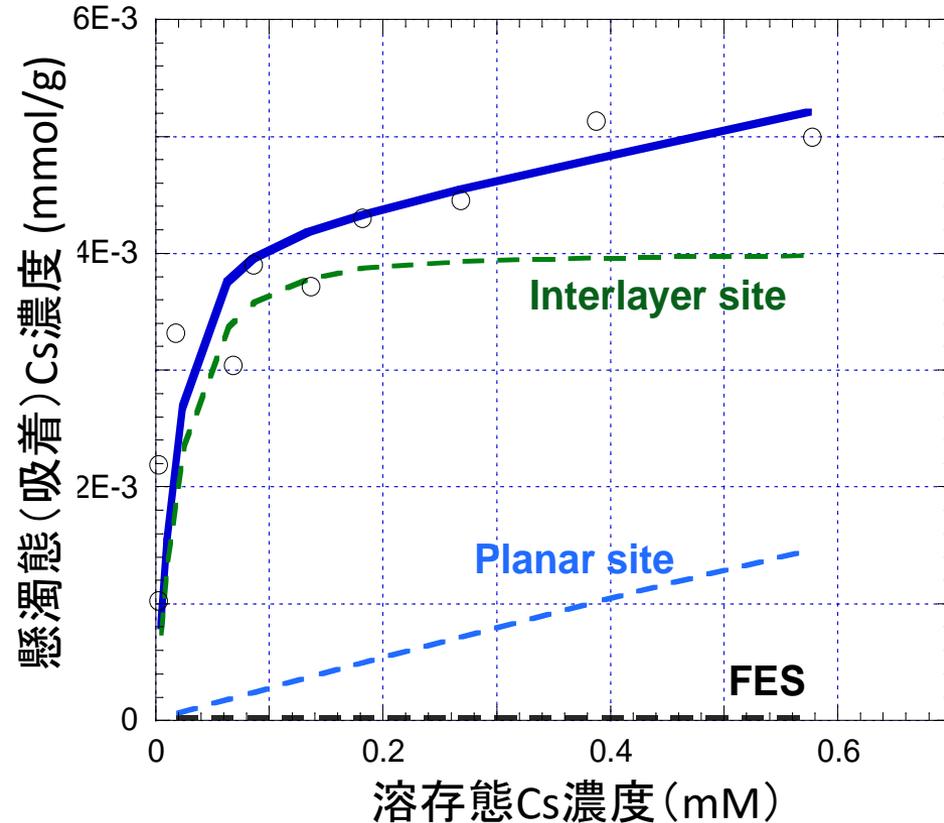
$$K_c = K_d(\text{K}) \frac{1}{Q}$$

表2. Generalized adsorption model で得られたパラメータ.

サイトタイプ	サイト容量 (mmol/kg)	イオン交換平衡定数K		
		$\log_{Na} K$	$\log_K K$	$\log_{Ca} K$
Frayed edge site	0.28×10^{-3}	7.0	4.6	-
Interlayer site	4.0×10^{-3}	3.8	1.7	4.0
Planar site	72×10^{-3}	1.6	0.5	-0.2

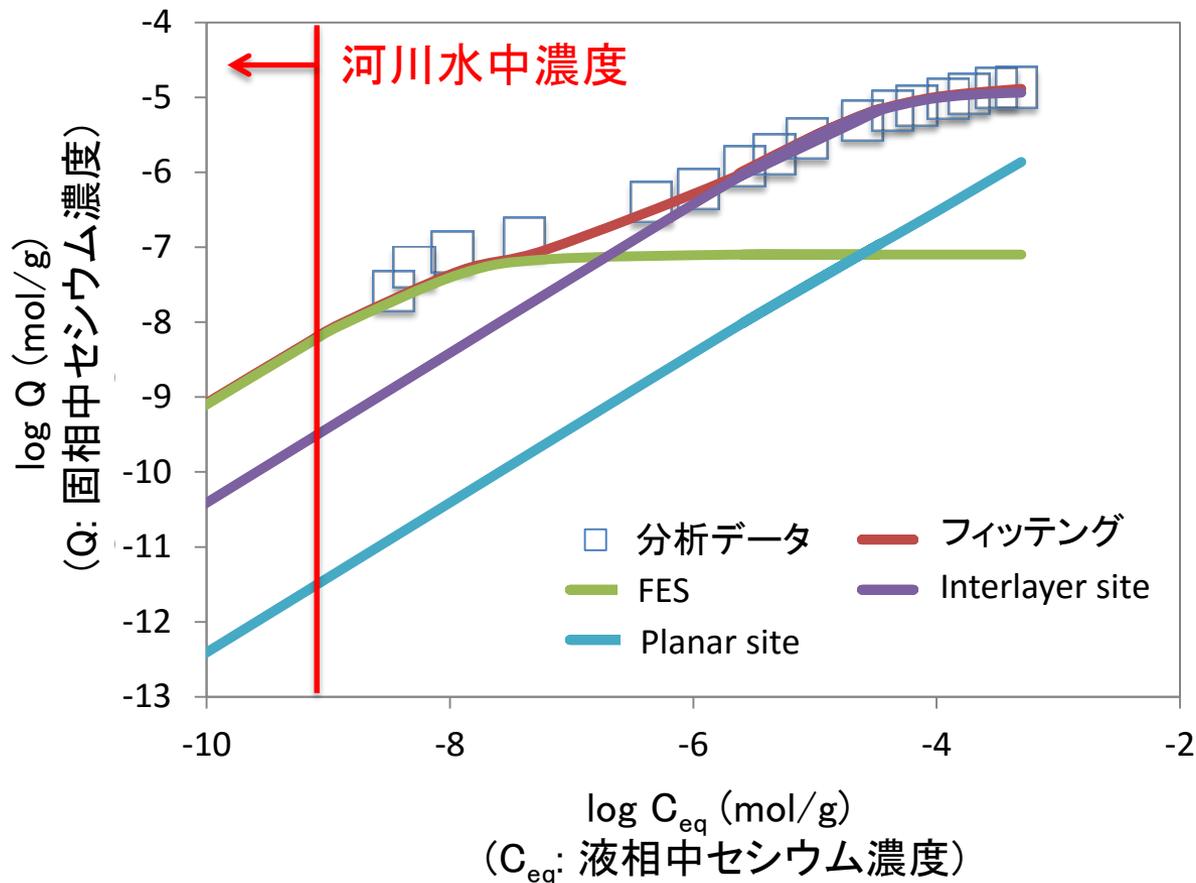
堆積物に対するCsの等温吸着線

- (i) Generalized adsorption modelによるfit
- (ii) 各吸着サイトの寄与と K_d が得られる



河川浮遊砂への吸着の General Adsorption Modelによる解析

FESサイトがCs吸着に寄与：**Csの吸着はRIPで評価可能**

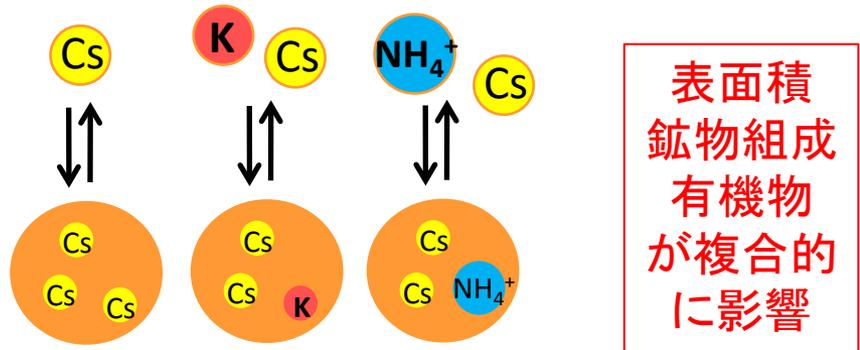


放射性セシウム濃度が高い場合(1 Bq/L程度)でも、この範囲に入る

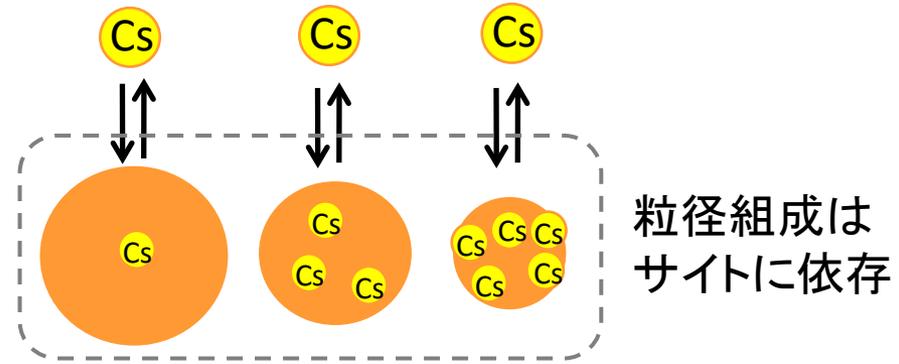
多くの因子を考慮したCs吸着モデルの構築

セシウム吸着のモデル化に必要なこと
⇒ 現場分析と室内実験からの化学的特性評価が必須

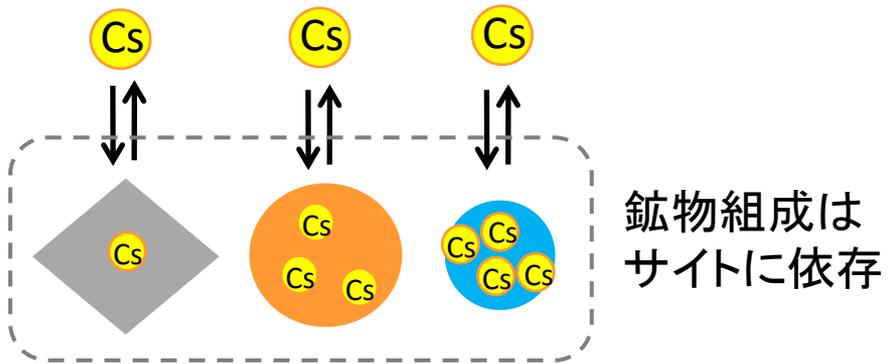
1. 陽イオン交換容量



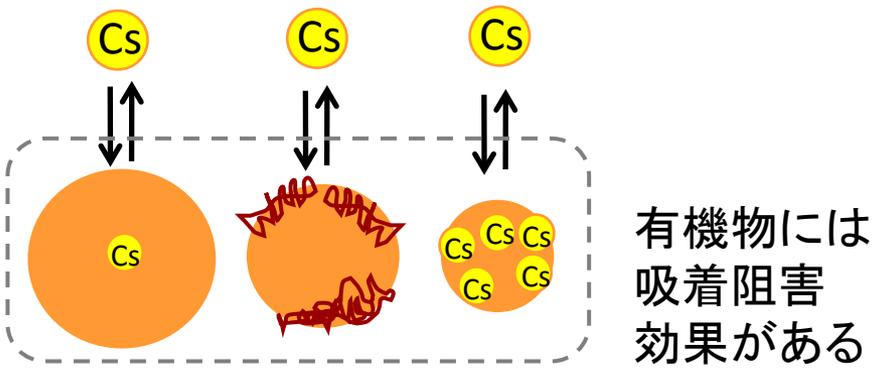
2. 粒径効果（比表面積）



3. 鉱物組成



4. 有機物の影響



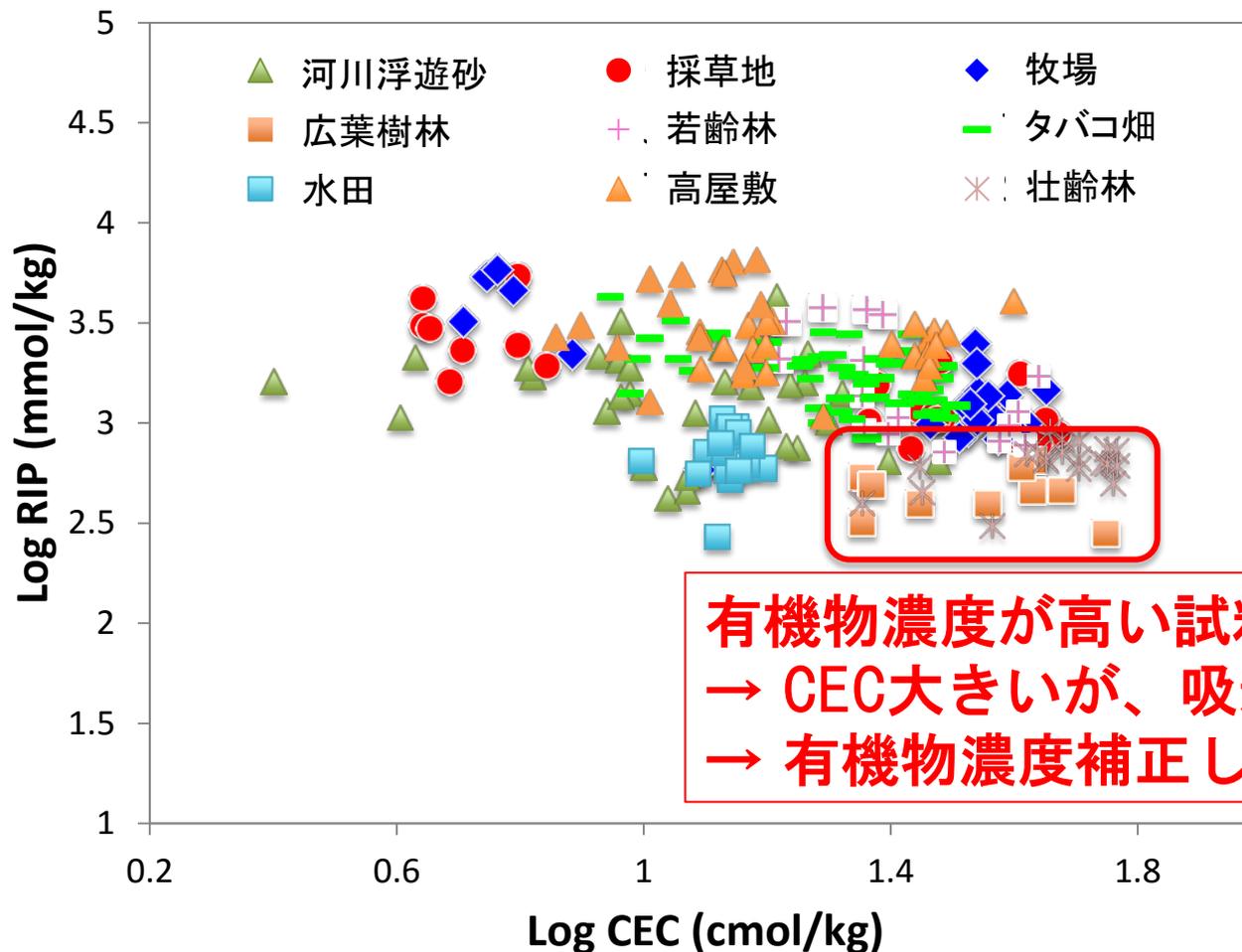
* リターや生物粒子は異なる効果を持つ

浮遊砂および土壌試料のRIPとCECの関係

RIPは陽イオン交換容量(CEC)の相関

* 正相関が期待される

* 高CEC領域のRIP低下は有機物の影響

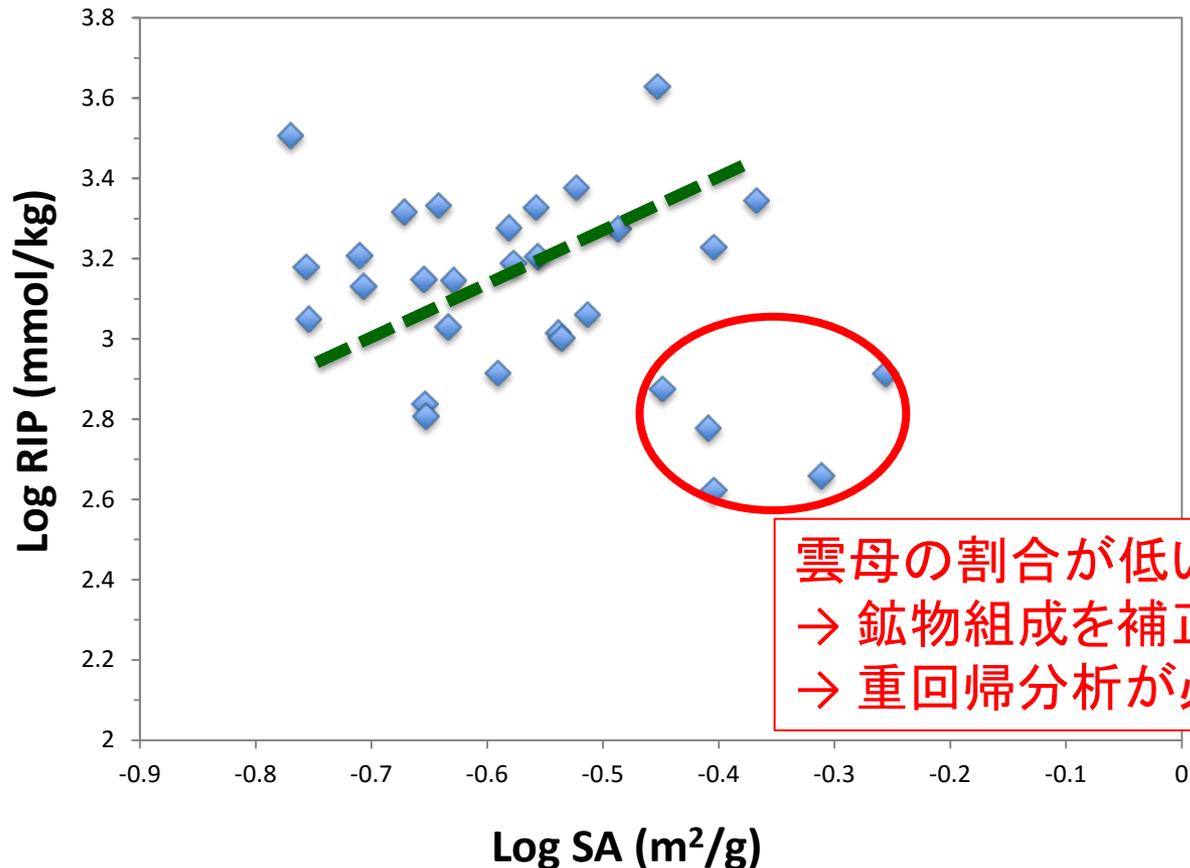


有機物濃度が高い試料
→ CEC大きいが、吸着弱い
→ 有機物濃度補正した解析必要

比表面積 (SA) とRIPの関係

RIPは、比表面積と正相関が期待される

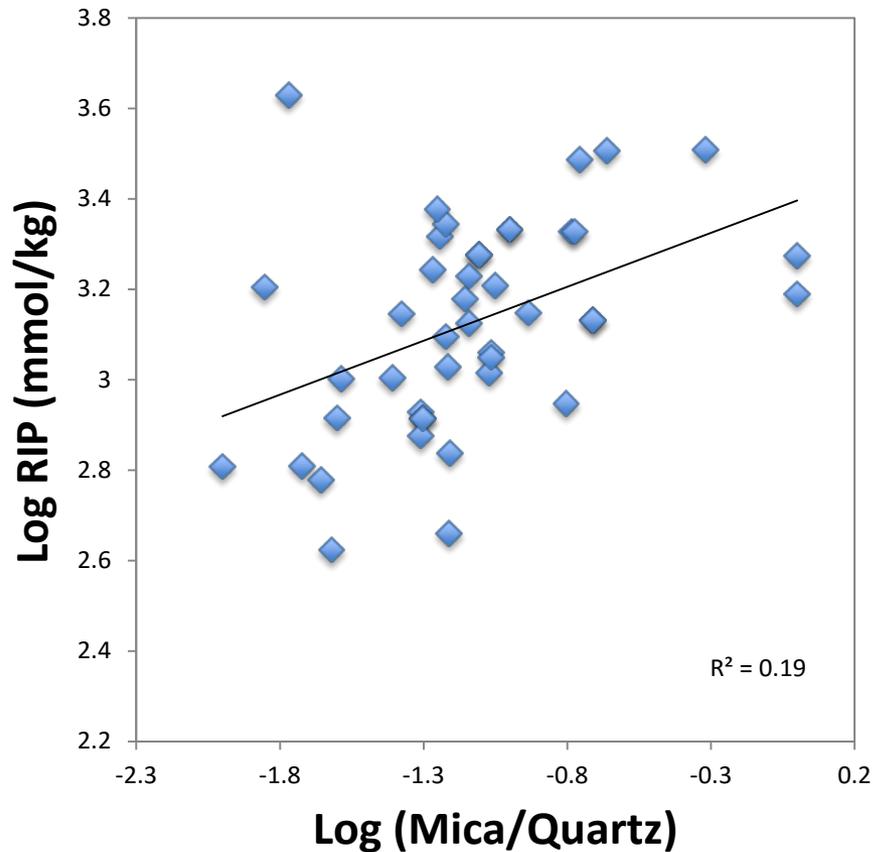
- * 浮遊砂の平均粒径から比表面積を計算
- * 粒径とは負の相関
- * 表面積が大きな領域でRIPの低下 → 鉱物組成影響



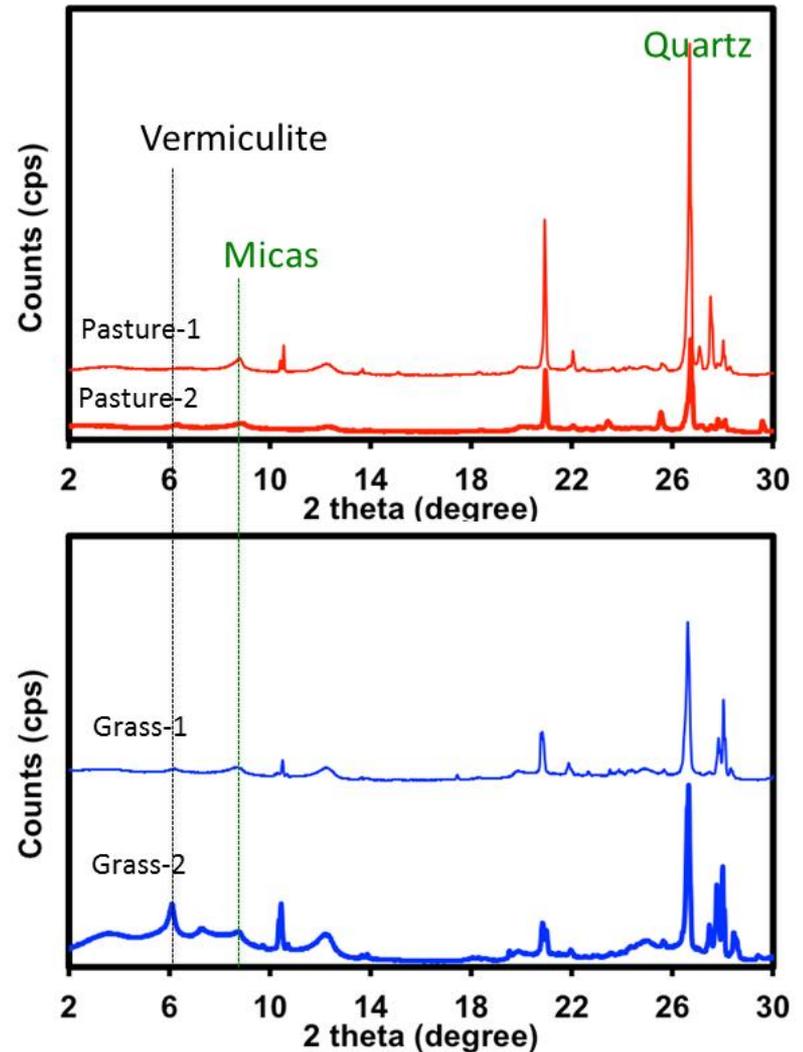
雲母の割合が低い試料
→ 鉱物組成を補正する必要有
→ 重回帰分析が必要

鉱物組成(mica/quartz)とRIPの関係

RIPとM/Q比の関係
* 弱い正の相関



石英 (Quartz) のピークで
雲母 (Mica) のピークを規格化

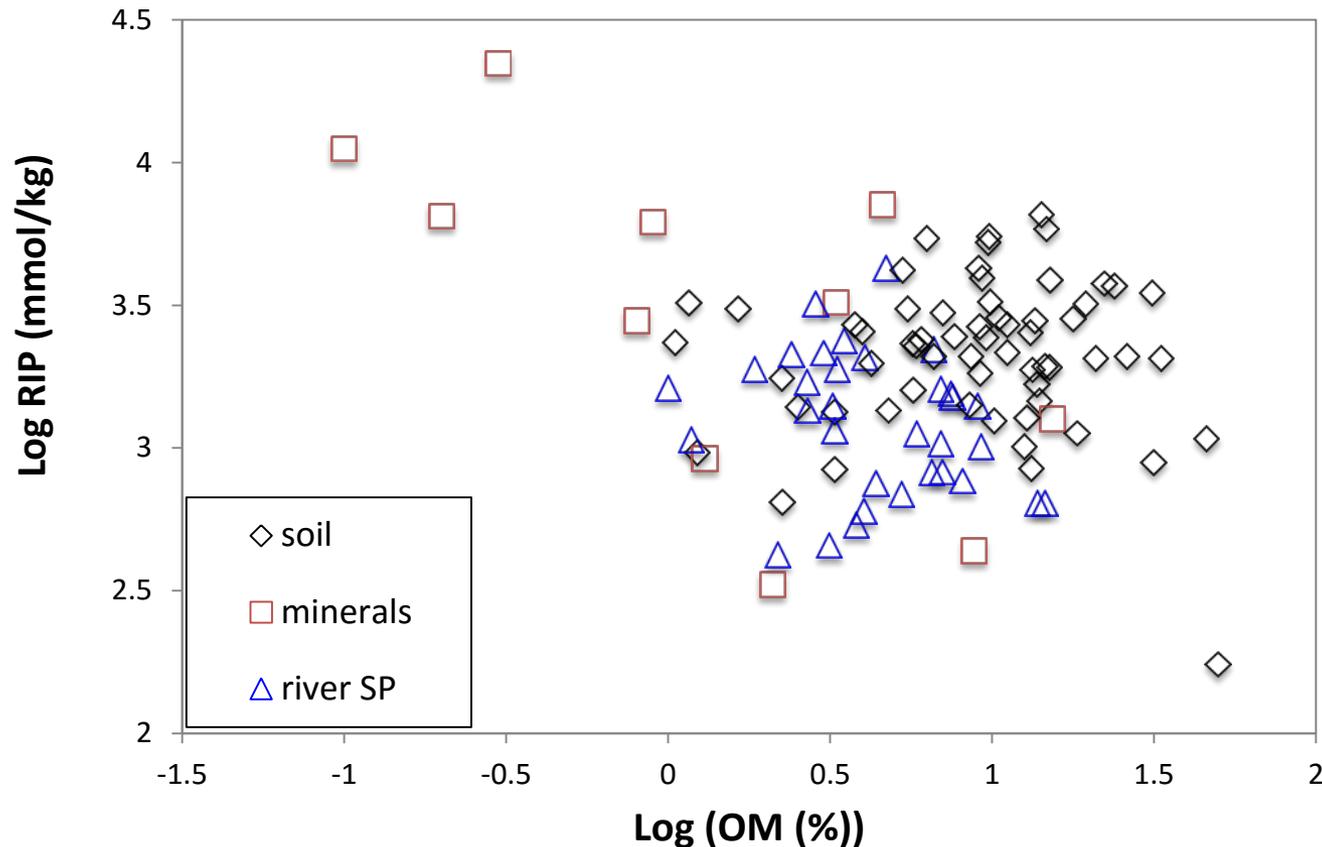


分析試料のRIPとOM(有機物濃度)の関係

RIPは有機物濃度に対して負の相関

* 一部相関がみえにくい

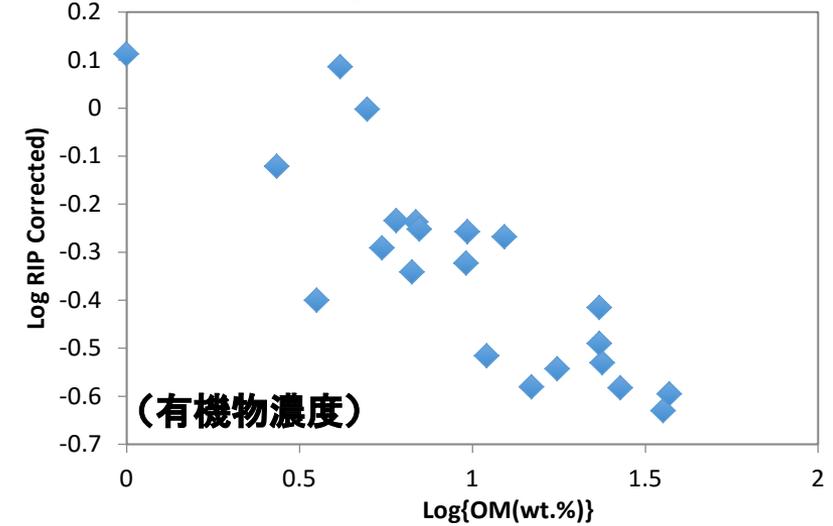
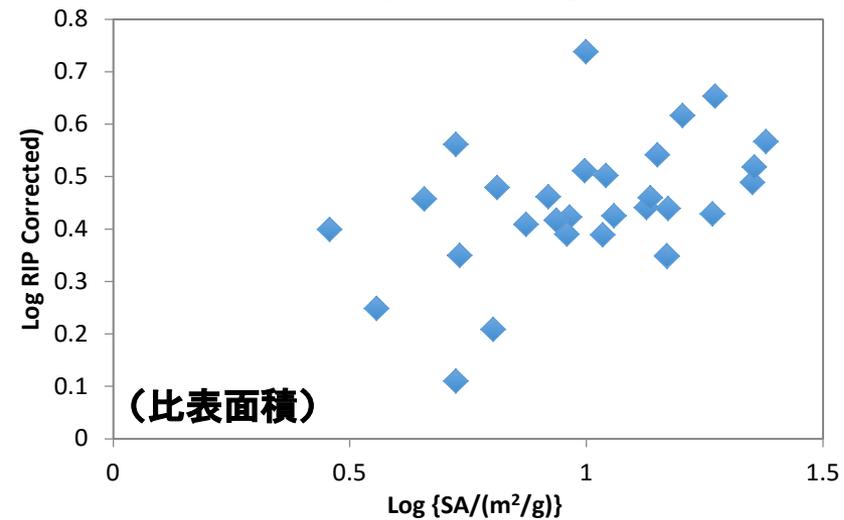
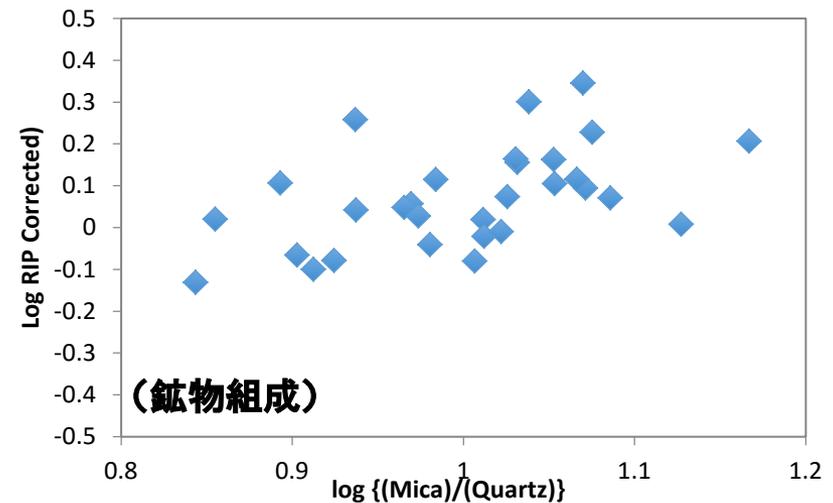
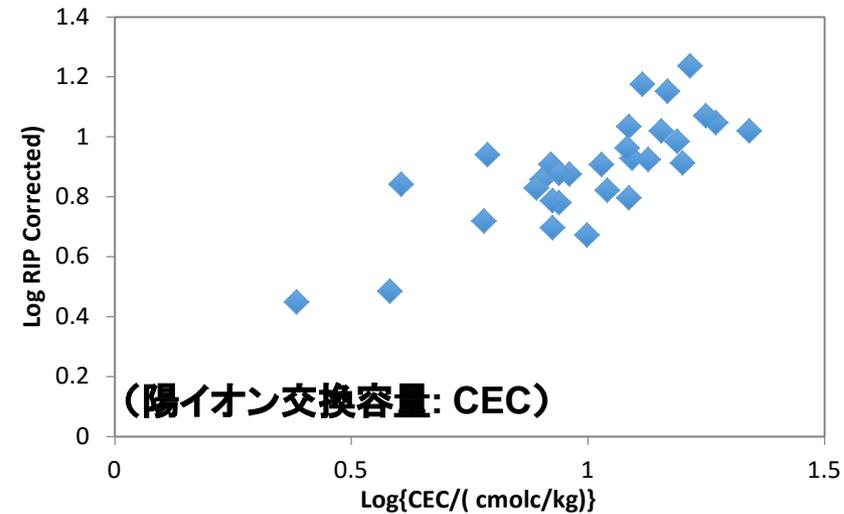
* 重回帰分析により負の相関が明確になる可能性



4つの因子を考慮した RIP の定式化

$$\text{Log RIP (mmol/kg)} = 0.86 * \log \{ \text{CEC-norm} \} - 0.34 * \log \{ \text{OM-norm} \} + 0.027 * \log \{ (\text{M/Q})\text{-norm} \} + 0.46 * \log \{ \text{SA-norm} \}$$

CEC > 表面積 > 有機物濃度が RIP に影響 (cf. 鉱物比の変動小)



これからの(科学的な)課題

セシウムの挙動に関する今後の課題

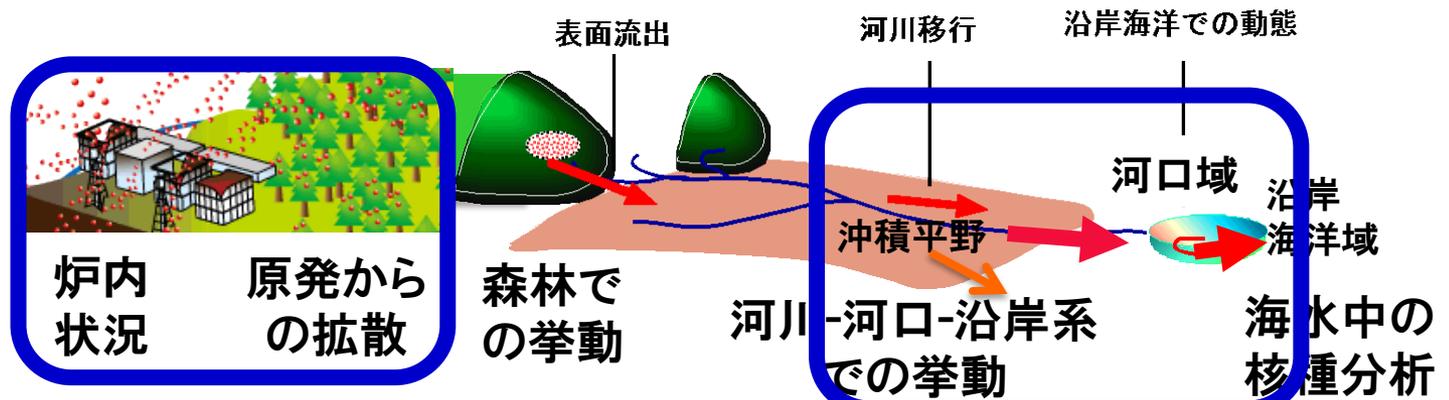
セシウムおよびその他の放射性核種の放出過程の解明

- 陸域の土壌、落葉、黒い物質の超ウラン元素の濃度
- 事故初期の大気中 ^{137}Cs 、 ^{131}I 時空間的な濃度変化の把握
- セシウムボール中の安定同位体比(Fe、Zn、U)分析の試み

河川-河口-海水系でのセシウムの挙動の素過程とモデル化

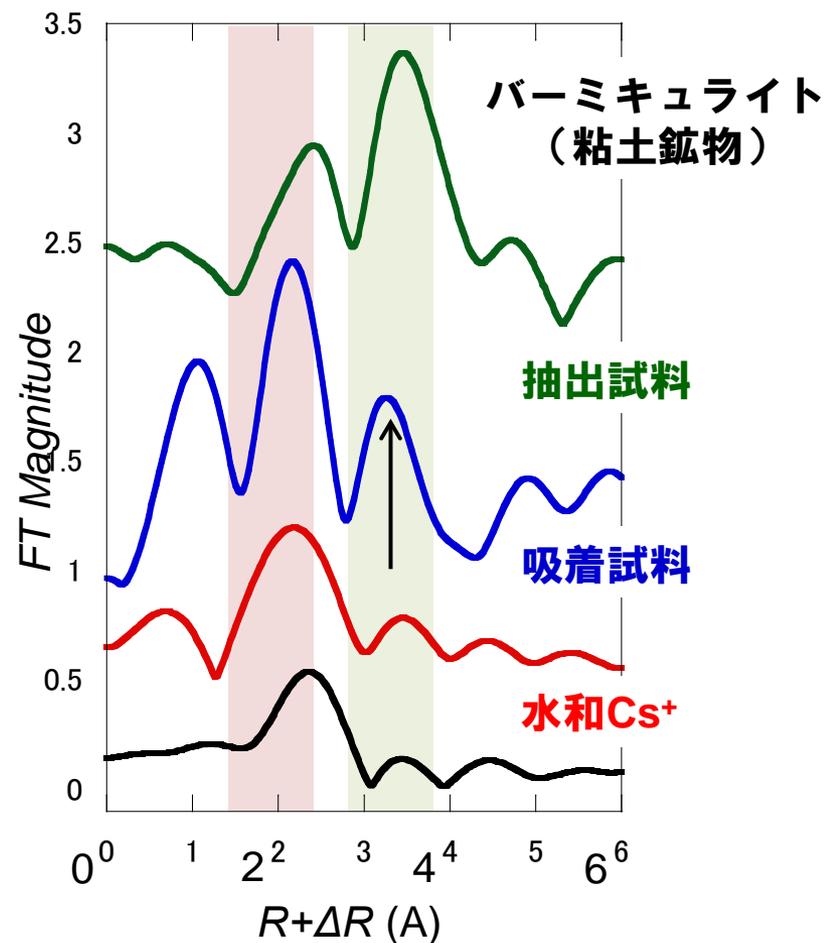
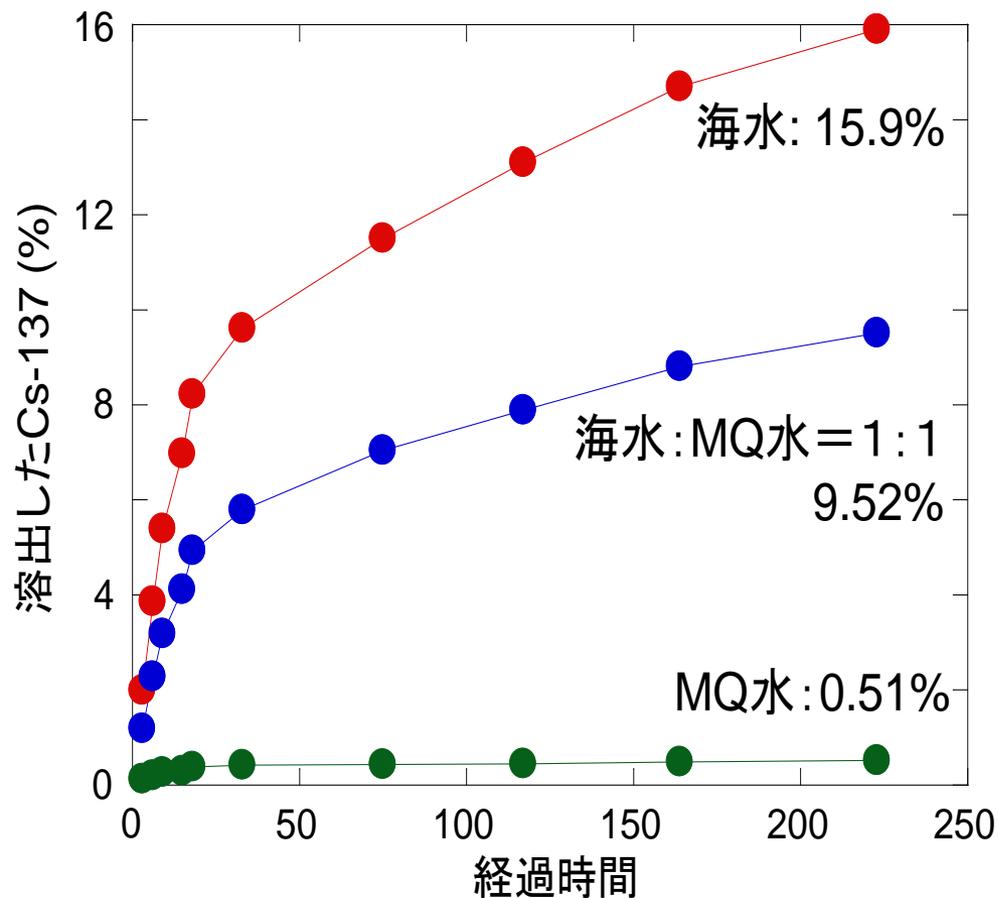
- 表層懸濁粒子・沈降粒子と海水間のCsの分配
 - *Csの吸着・脱着挙動、有機物の影響
- General Adsorption Model(GAM)によるKdの評価
 - *主要イオン組成、安定Cs濃度の影響のモデル化

核種分析・
化学状態分析
から
素過程を探る



土壤に吸着させたCsの海水との混合による脱着

海水との混合により、20%のセシウムが脱着



海水との混合によりCsは脱着し、内圏錯体の割合が増加する

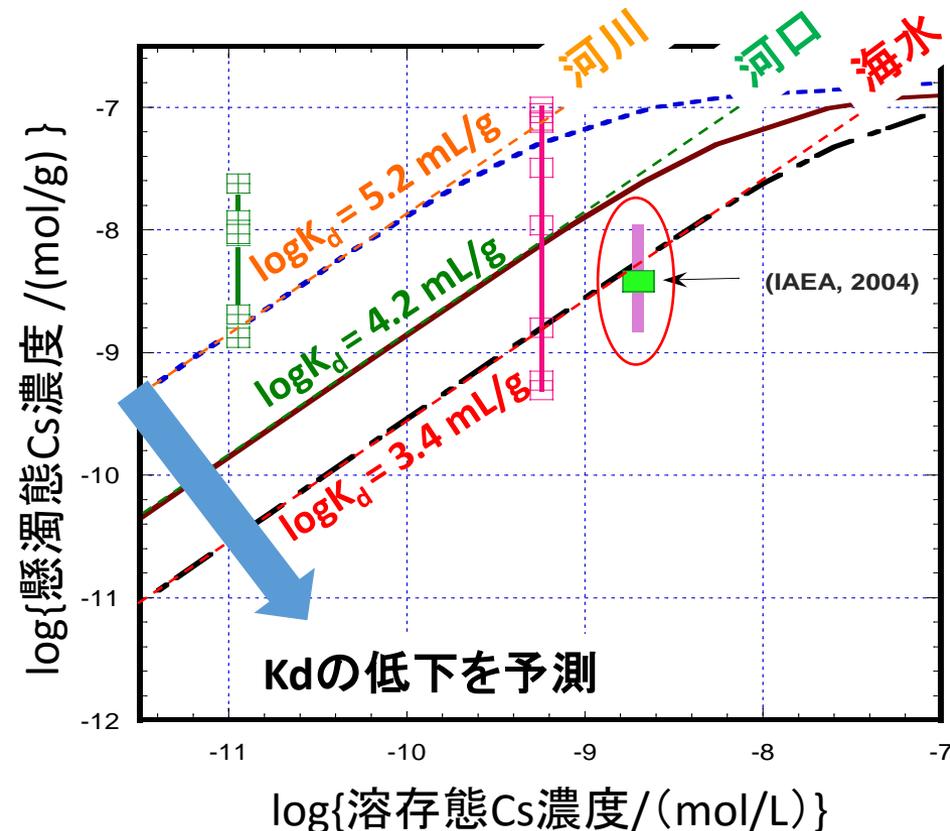
GAM モデル

GAM (General Adsorption Model):
粘土鉱物や懸濁粒子と Cs の吸脱着反応に関するイオン交換モデル

この曲線の左右の位置が K_d の変動

分配係数

$$K_d = [Cs(\text{固相})]/[Cs(\text{液相})]$$



河川に比べて海水中では安定 Cs を含む
高い濃度の陽イオンが存在する

- (i) 他の陽イオンが固相の Cs と交換し液相に Cs が溶出しやすくなる
- (ii) 安定 Cs の量が多量であるため FES サイトが飽和し K_d が低下する

海水では河川に対して K_d は低下 (予測)



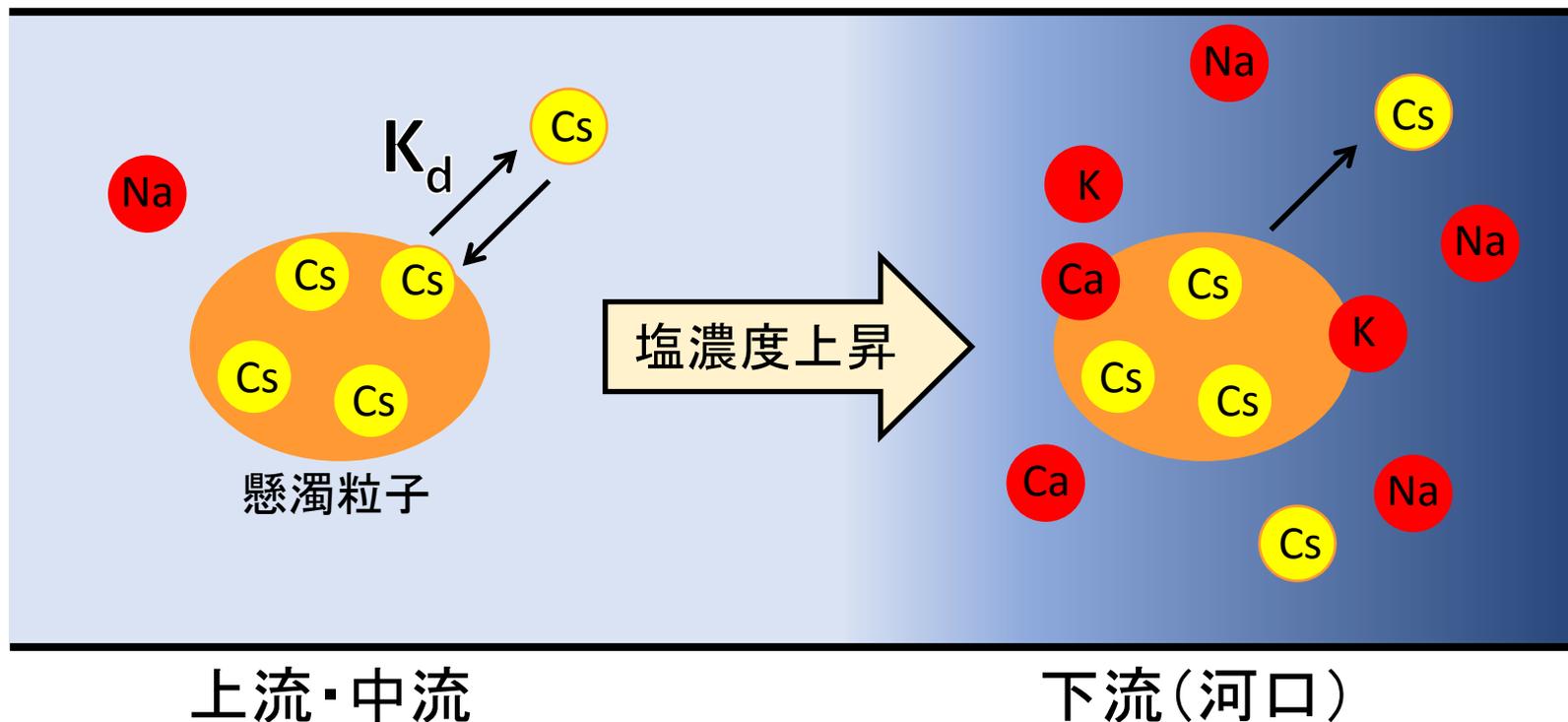
海洋沈降粒子に対する人工海水での抽出
実験 (分配係数 K_d の算出)

- GAMから計算された海水中の $\log K_d$ 値とほぼ一致 (河川と海水とで **2桁の違い**)
- 概算より、海洋に持ち込まれた懸濁粒子から **99% の Cs が海水へと溶け出す**ことになる

本研究の成果：溶存Cs濃度の予測モデルの構築（図14）

Generalized adsorption modelによる K_d のモデル化に成功
⇒ 河口域などでの溶存態の ^{137}Cs の割合を予測可能

※ K_d に影響を与える因子：鉱物組成、有機物濃度



セシウムの挙動に関する今後の課題

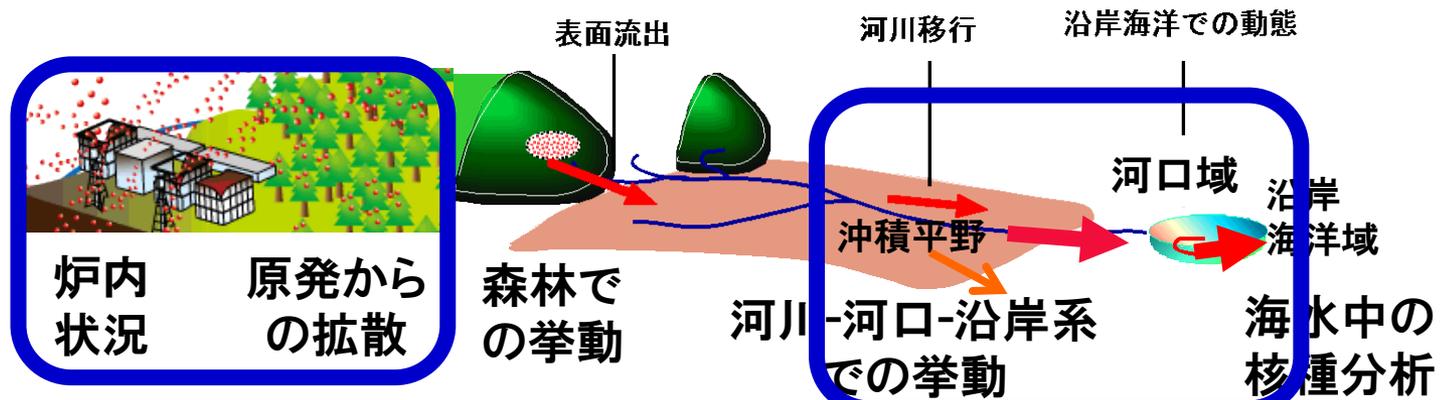
セシウムおよびその他の放射性核種の放出過程の解明

- 陸域の土壌、落葉、黒い物質の超ウラン元素の濃度
- 事故初期の大気中 ^{137}Cs 、 ^{131}I 時空間的な濃度変化の把握
- セシウムボール中の安定同位体比(Fe、Zn、U)分析の試み

河川-河口-海水系でのセシウムの挙動の素過程とモデル化

- 表層懸濁粒子・沈降粒子と海水間のCsの分配
 - *Csの吸着・脱着挙動、有機物の影響
- General Adsorption Model(GAM)によるKdの評価
 - *主要イオン組成、安定Cs濃度の影響のモデル化

核種分析・
化学状態分析
から
素過程を探る



高強度放射能粒子の正体 (Adachi et al., 2013)

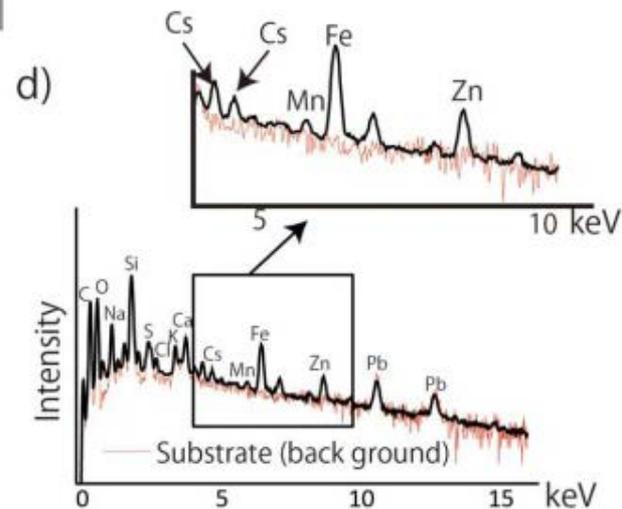
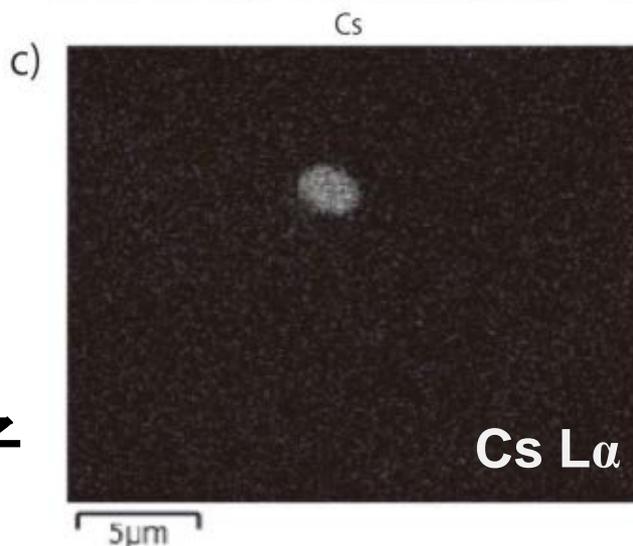
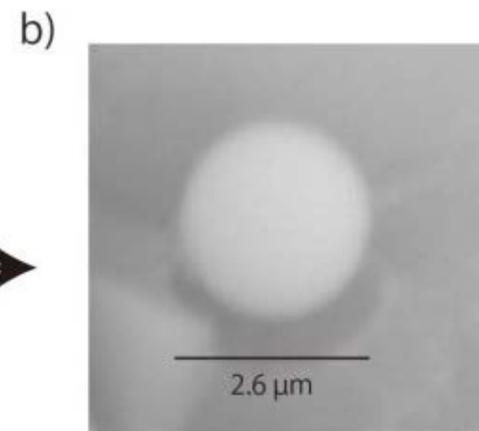
Adachi et al. (2013)

Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident, Sci. Rep. 3, Art. No. 2554.

1. ^{137}Cs -のみでSEM
により検出されるほ
どの高濃度Cs粒子

2. 水に溶けない

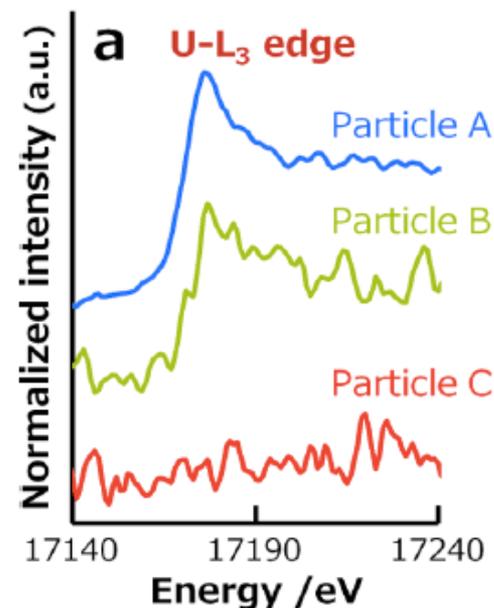
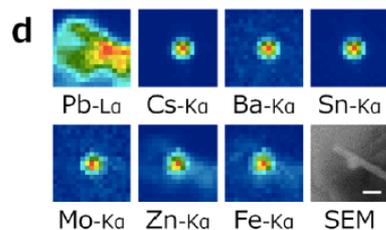
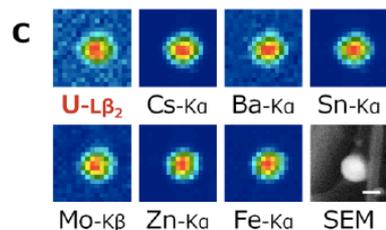
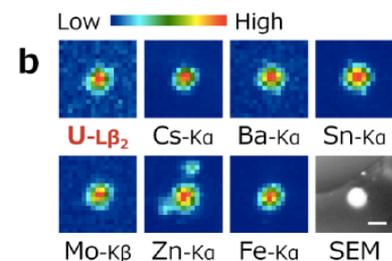
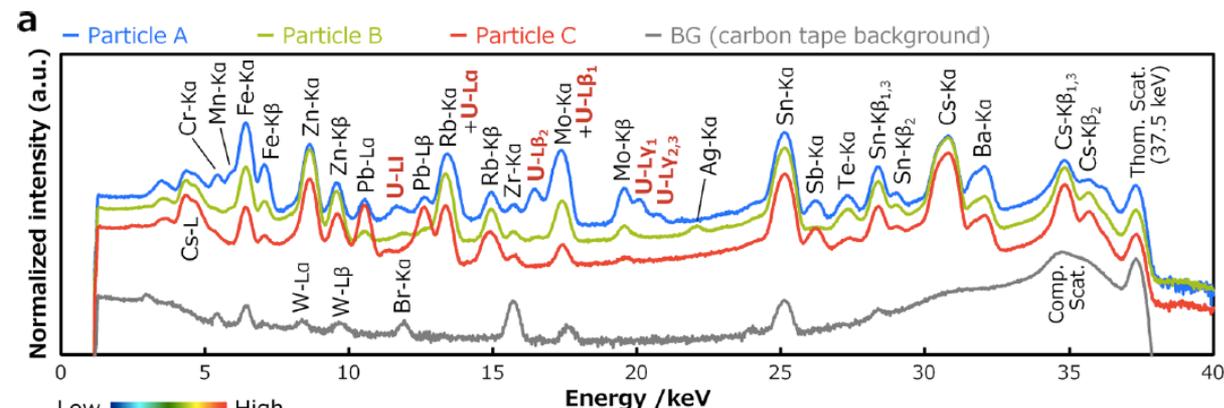
^{137}Cs 高濃度粒子



放射性セシウムを多く含んだ粒子(大気粉塵)

Detection of Uranium and Chemical State Analysis of Individual Radioactive Microparticles Emitted from the Fukushima Nuclear Accident Using Multiple Synchrotron Radiation X-ray Analyses

Yoshinari Abe,^{*,†} Yushin Iizawa,[†] Yasuko Terada,[‡] Kouji Adachi,[§] Yasuhito Igarashi,[§] and Izumi Nakai^{*,†}



放射性セシウムを多く含んだ粒子(不織布・杉)

SCIENTIFIC REPORTS

OPEN

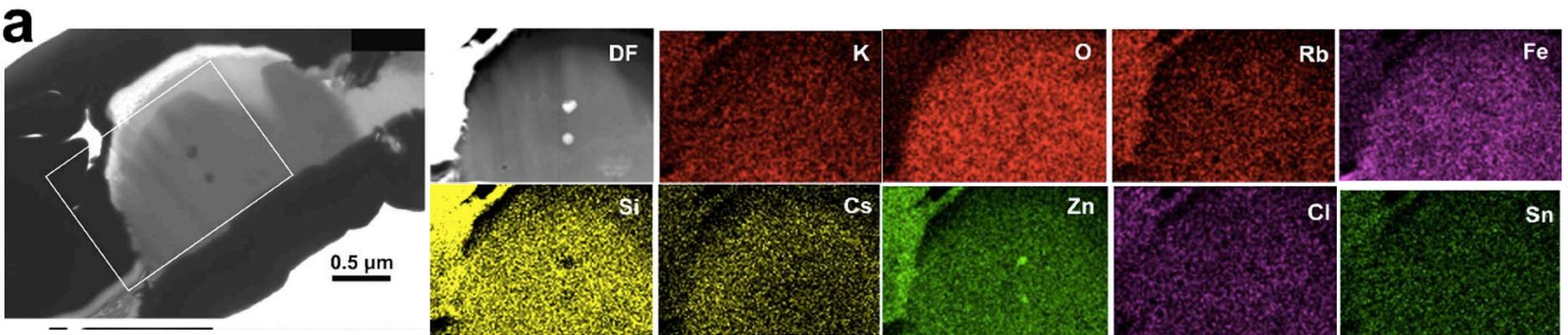
Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant

Received: 03 June 2015

Accepted: 06 January 2016

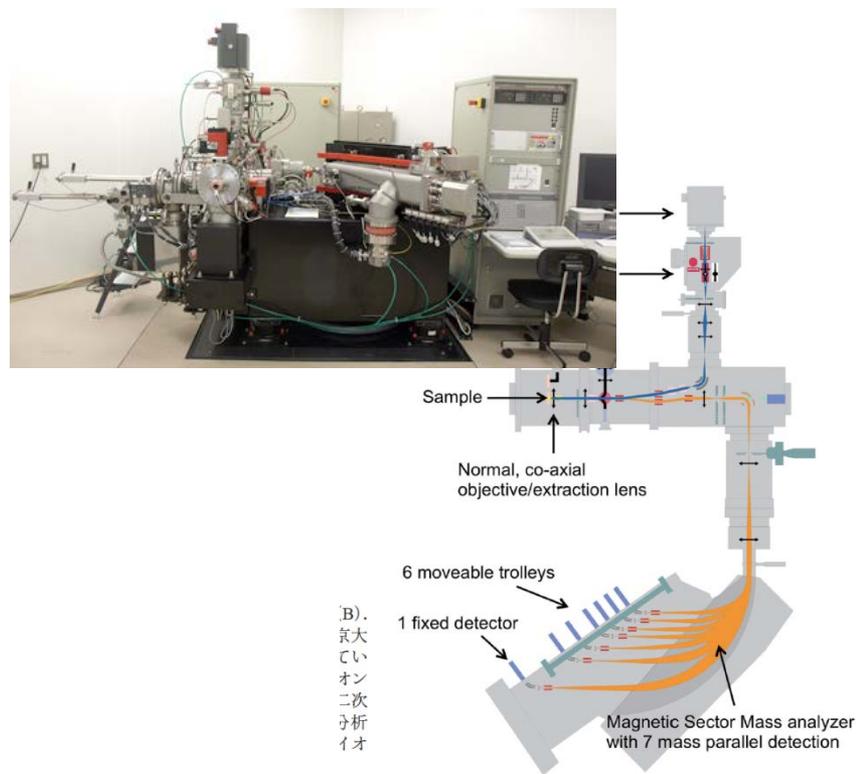
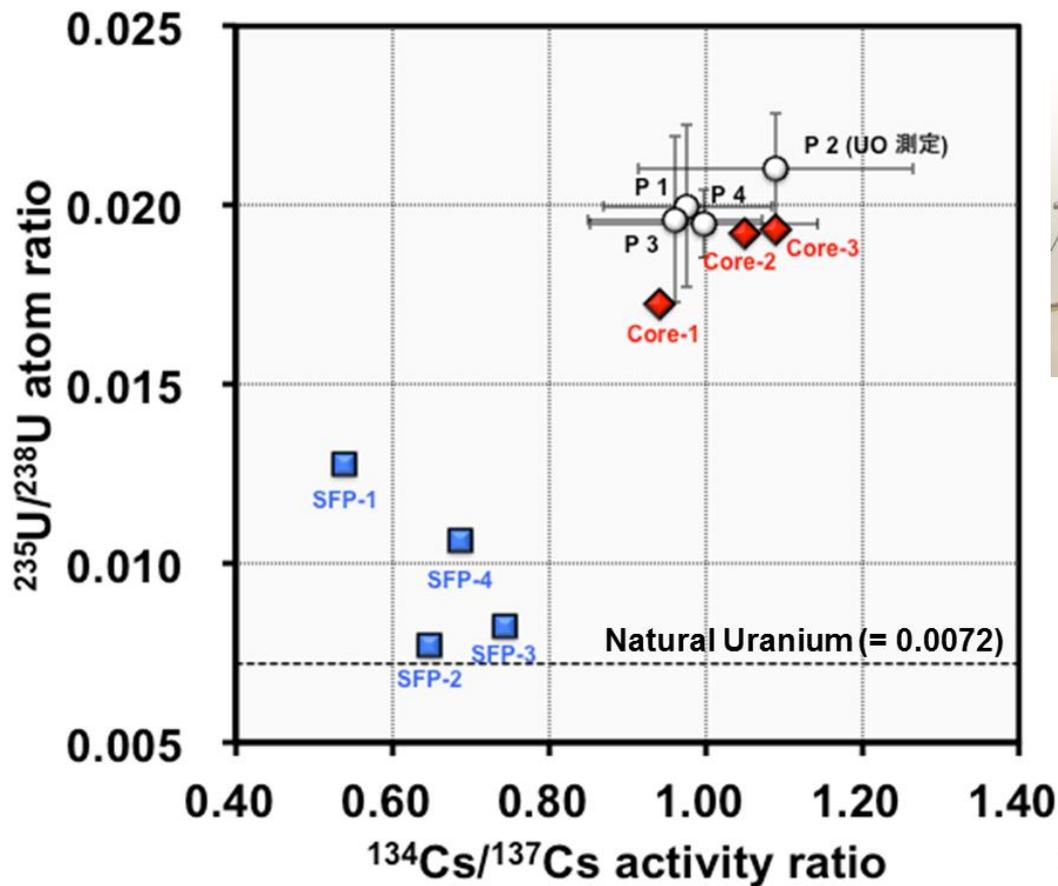
Published: 03 February 2016

Noriko Yamaguchi^{1,*}, Masanori Mitome², Akiyama-Hasegawa Kotone², Maki Asano^{1,3}, Kouji Adachi⁴ & Toshihiro Kogure^{5,*}



セシウム濃集粒子中のウランの $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比

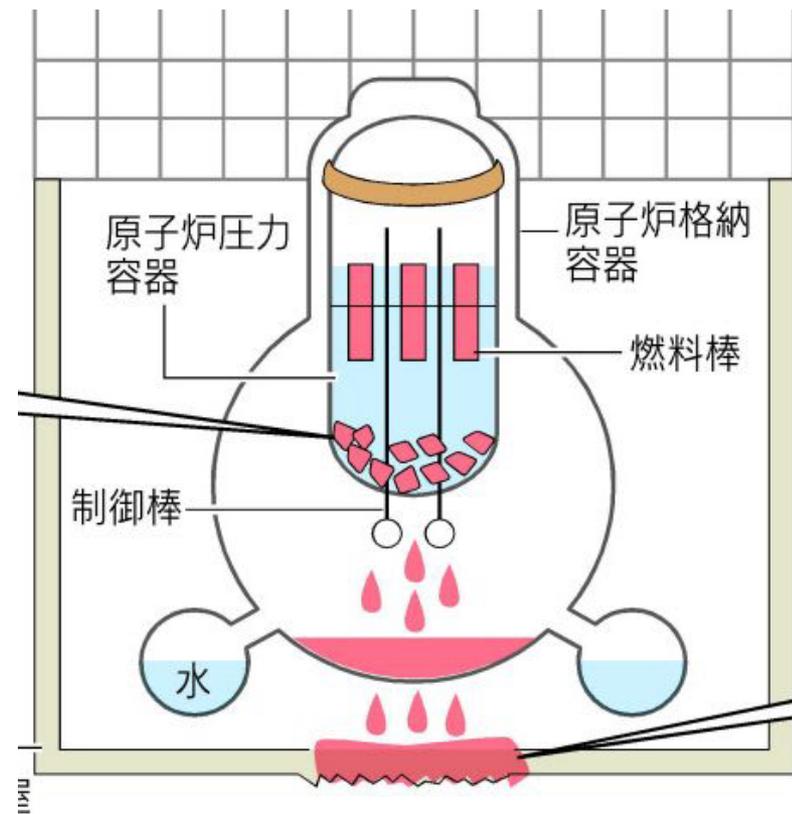
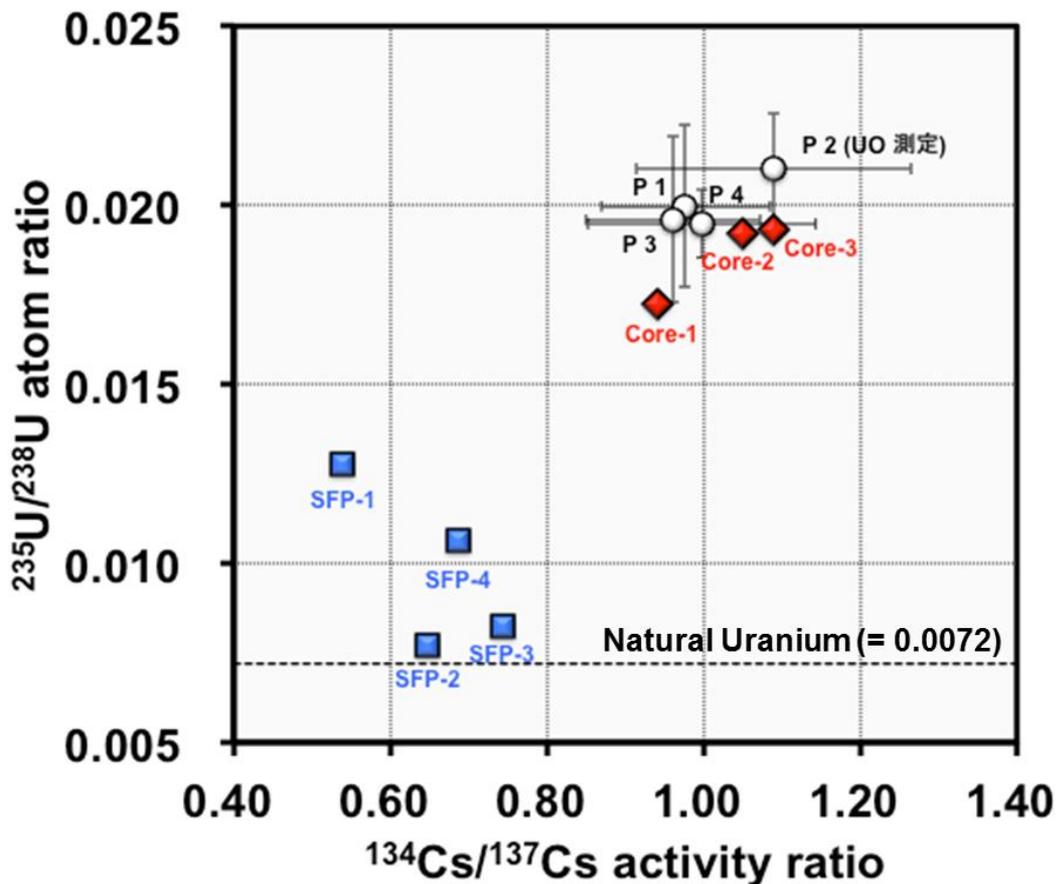
NanoSIMS@大気海洋研究所



Cores & SFPs: 西原ら (2012)

(セシウム濃集粒子中の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比) = 0.0193-0.0210の範囲
 → FDNPP 2・3号機の核燃料棒 (0.0193、0.0192) とほぼ一致
 FDNPP 原子炉中の核燃料ウランが放出源

セシウム濃集粒子中のウランの $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比

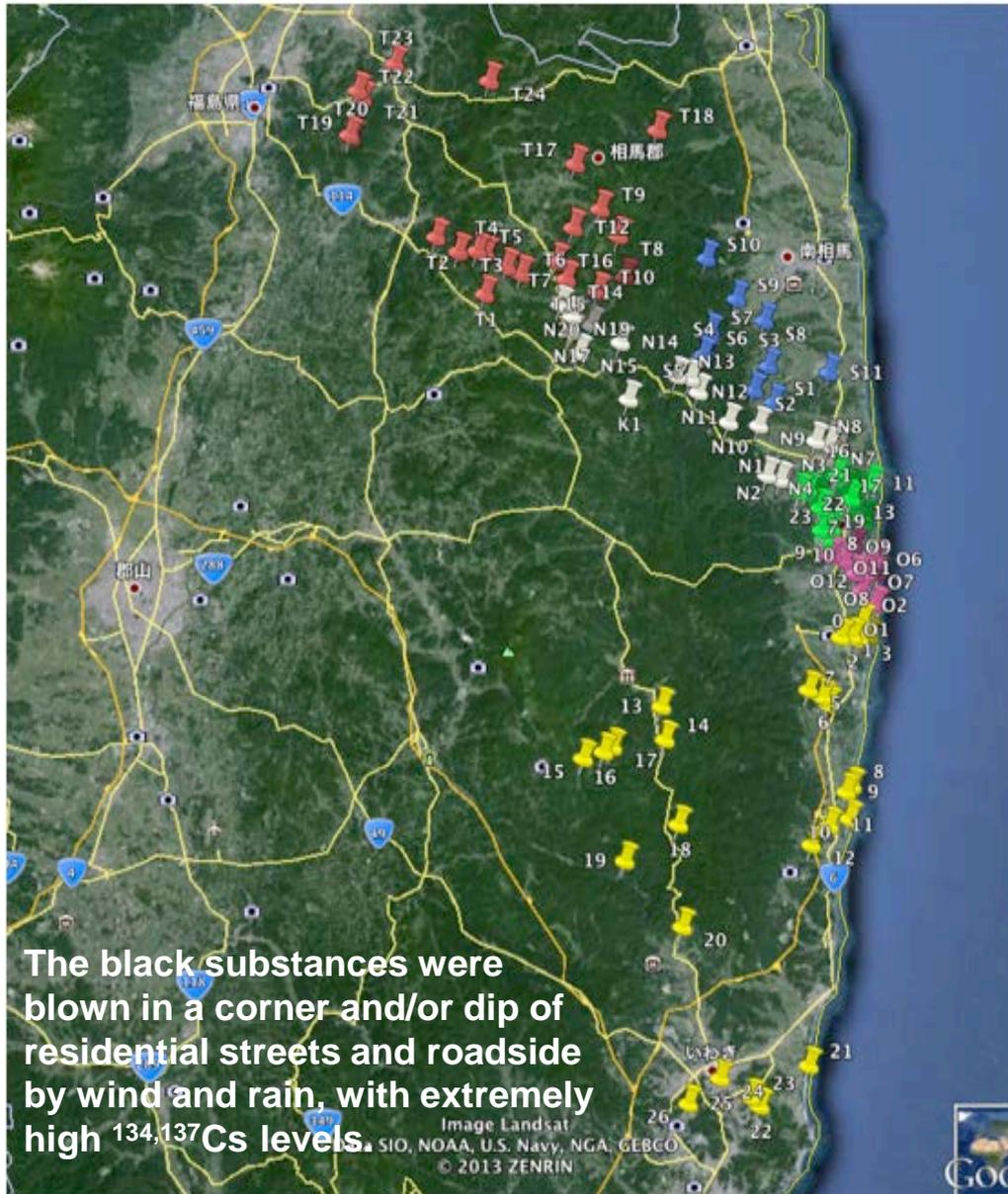


Cores & SFPs: 西原ら (2012)

(セシウム濃集粒子中の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比) = 0.0193-0.0210の範囲
 → FDNPP 2・3号機の核燃料棒 (0.0193、0.0192) とほぼ一致
 FDNPP 原子炉中の核燃料ウランが放出源

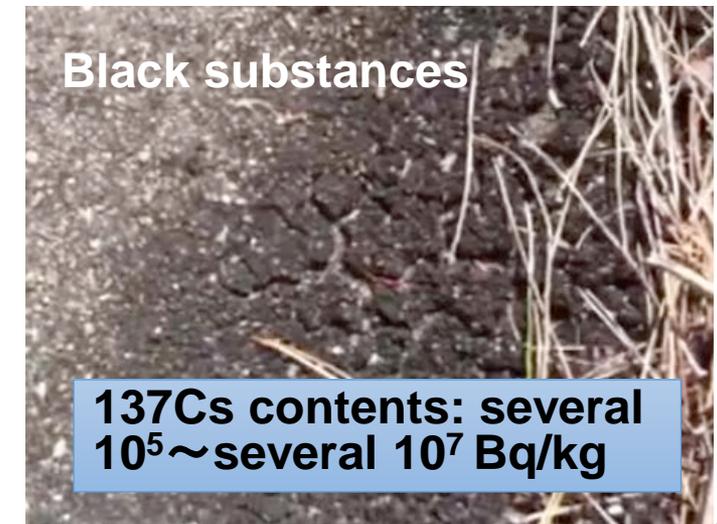
試料の採取地点（黒い物質、落葉、土壌コアのペアで採取）

[2011/10~2013/7(殆どは2012/9~11)にかけて]



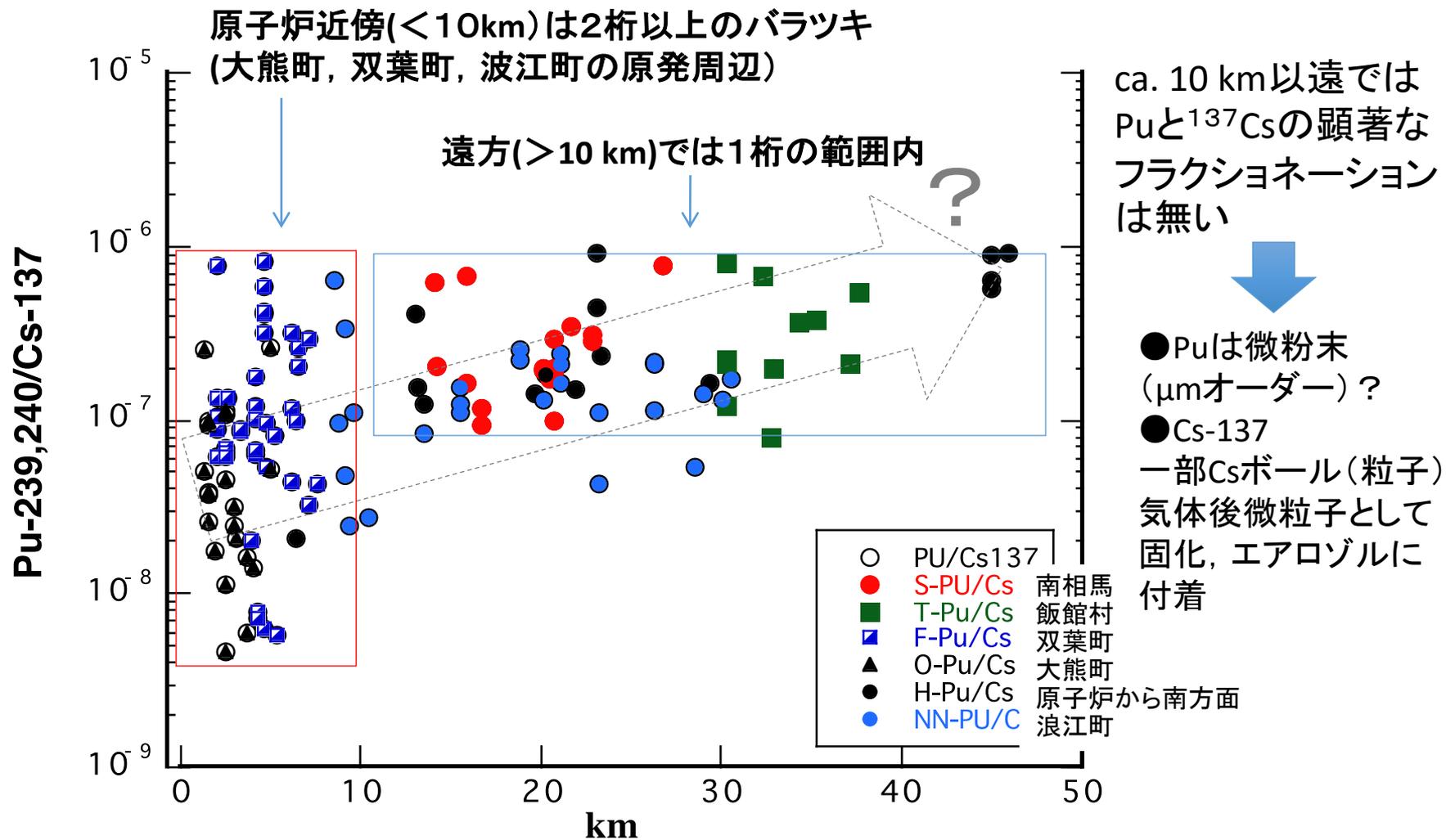
150地点以上から

道路脇のダスト、落葉、
水田土壌などを採取



再検討：Pu(非揮発性) と¹³⁷Cs (揮発性) のフラクショネーション

原発からの距離と^{239,240}Pu/¹³⁷Cs 比との関係

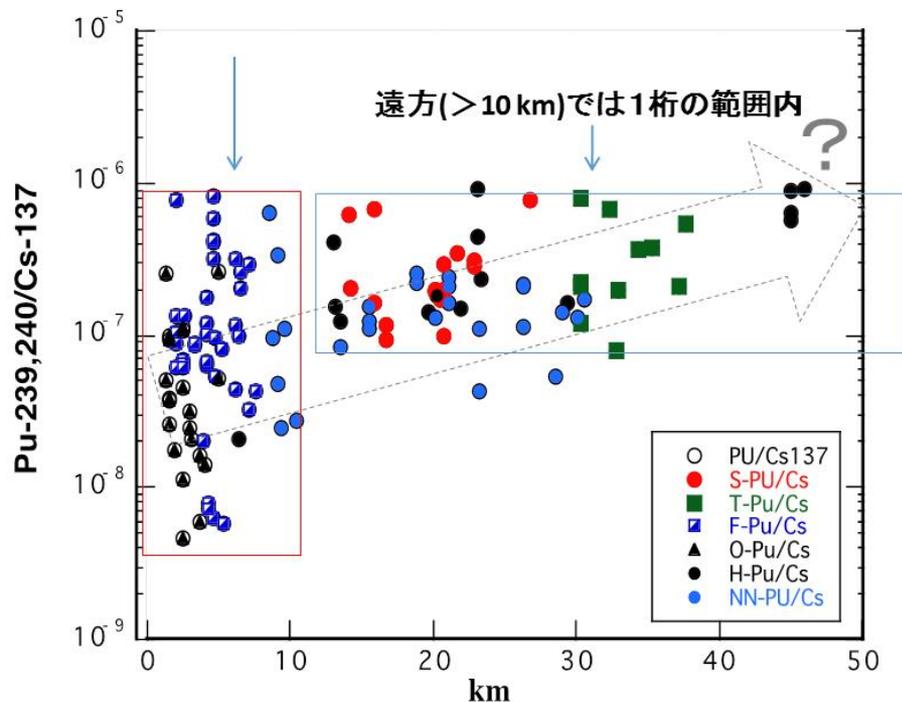


Core inventory の放射能比=(7.54-9.96)×10⁻³

原発からの距離と元素・核種濃度の不均質性

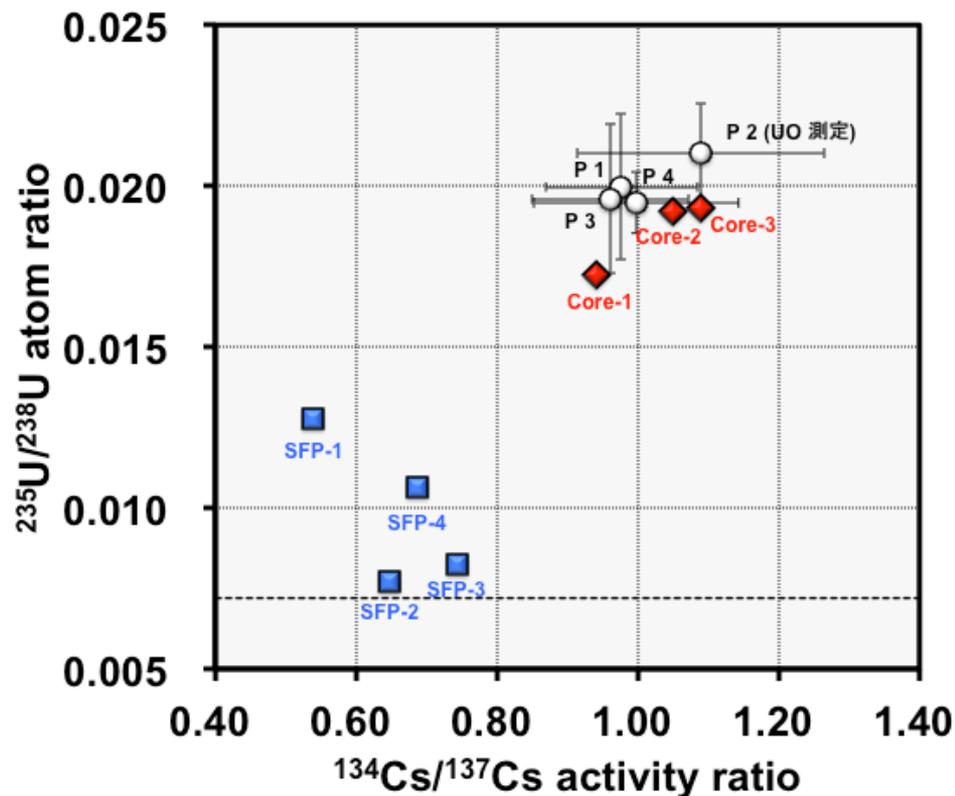
黒い物質の分析

原発からの距離 vs. $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比
 → 10 km圏内と圏外で
 飛散時の形態が違う？



セシウムボール（二本松）中のU同位体比

SIMS（大海研：佐野・高畑）
 U同位体比のばらつきは小さい
 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は2.0%



セシウムボール：均一化したメルトの同位体比を反映

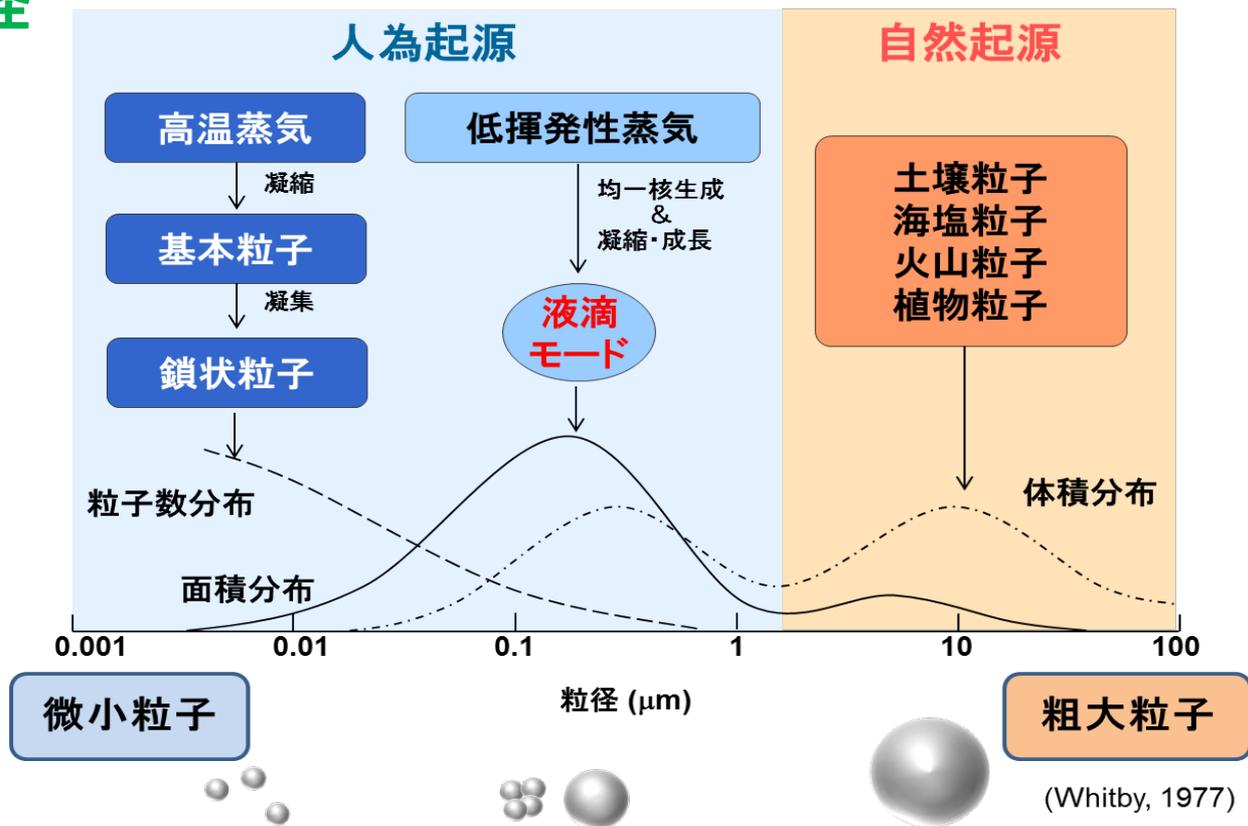
黒い物質：遠方に飛散したものは、メルトの同位体比反映（微小エアロゾル）
 近傍には、不均質性を保持した形態（粒子）で飛散・沈着？

燃料メルトからの放射性核種の放出は

気化を経たか？

エアロゾル

☆起源・粒径



人為起源
工場・エンジンの燃焼過程、バイオマス燃焼

自然起源
火山、土壌、海洋、**黄砂**

エアロゾルの粒径:  **人為起源 < 自然起源** 

結果 鉄安定同位体比

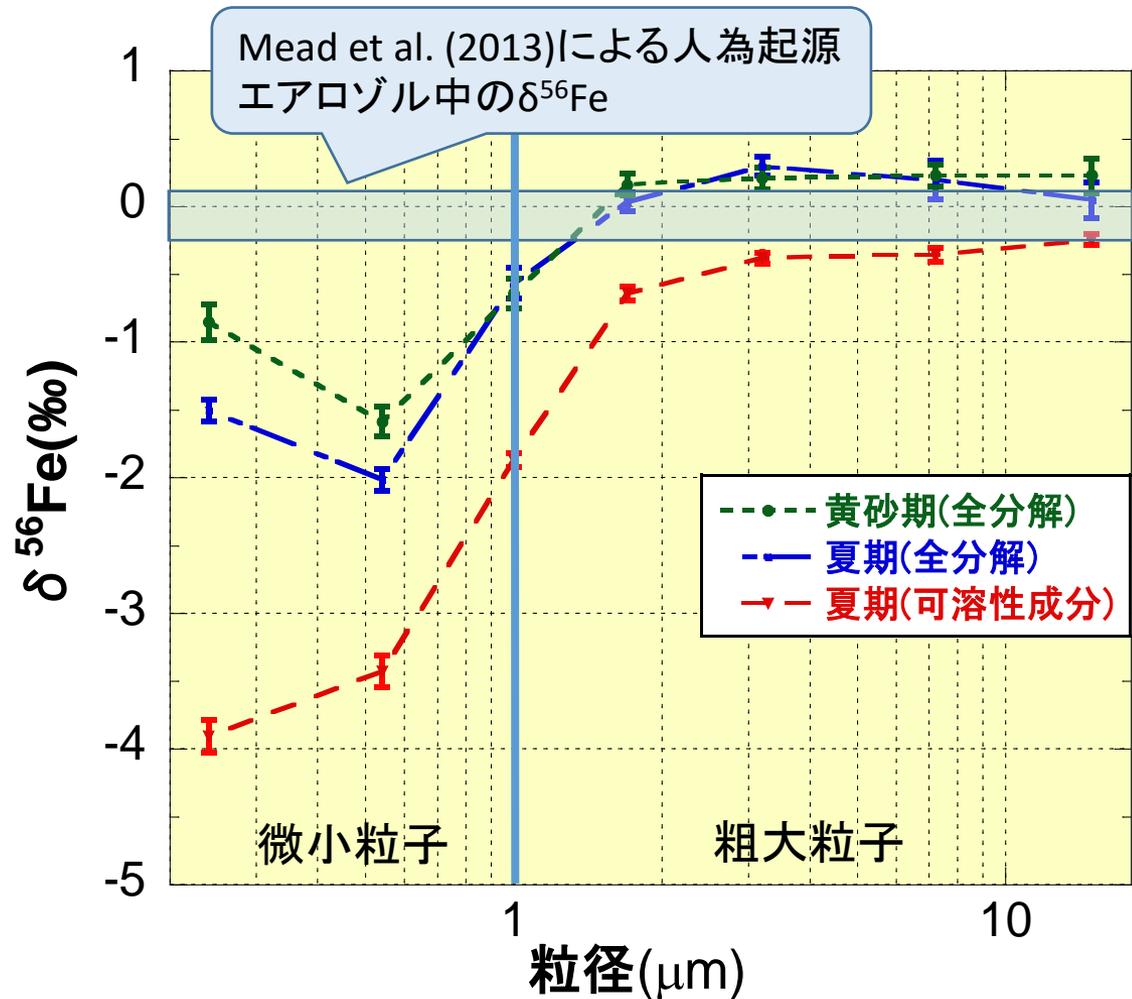
☆バルクと溶解性エアロゾルの鉄安定同位体比

$\delta^{56}\text{Fe}$

- ・微小粒子 < 粗大粒子
- ・夏期 < 黄砂期
- ・可溶性成分 < バルク試料

・最小値:

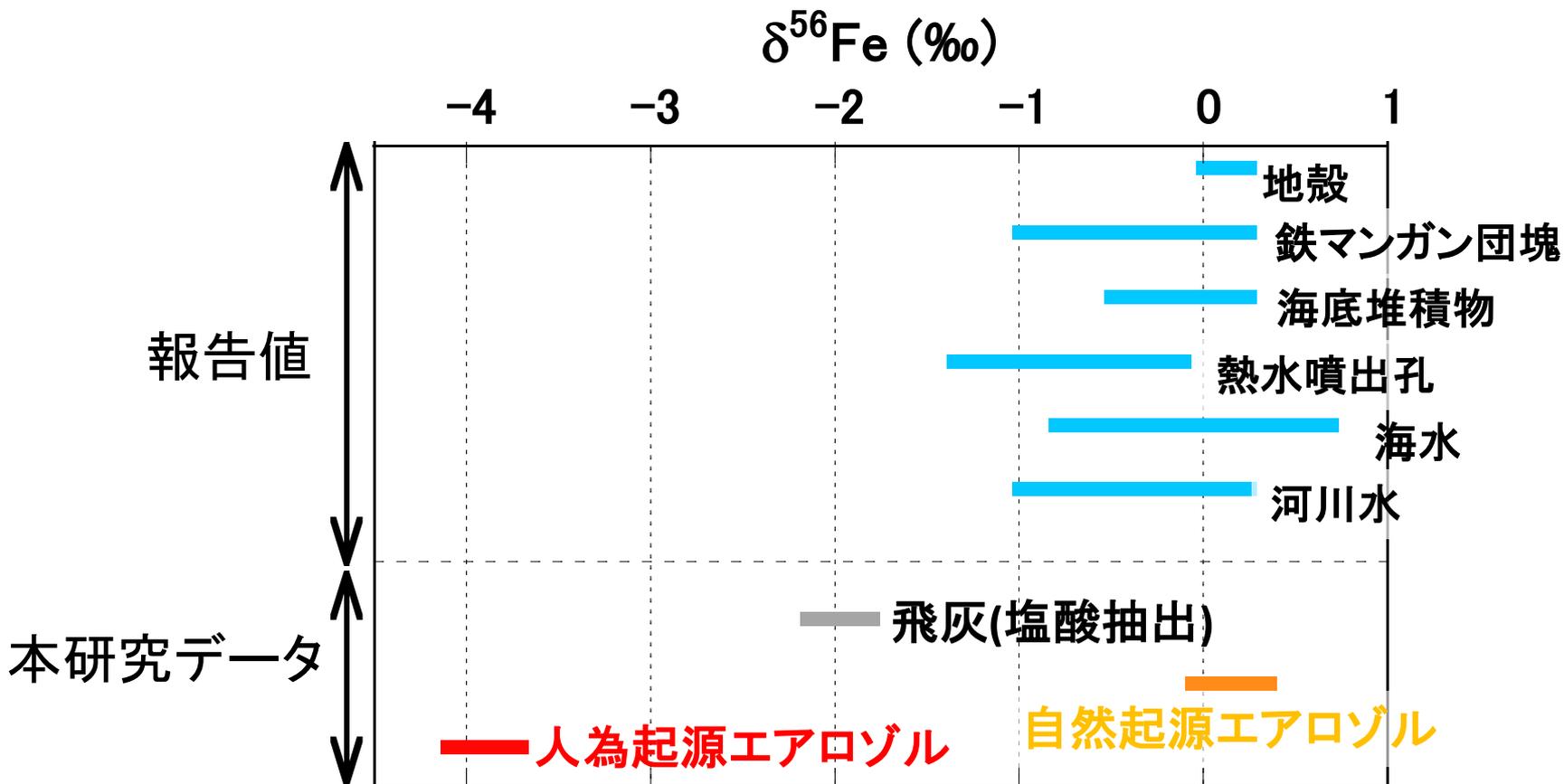
$-3.90\% \pm 0.12$



粒径7分画で、人為起源エアロゾル中の鉄安定同位体比の決定に成功

結果 天然の鉄安定同位体比との比較

(Dauphas and Rouxel, 2005)



これまで報告された中で最も低い $\delta^{56}\text{Fe}$

考察 人為起源エアロゾル中鉄の同位体分別

著しく低い
鉄安定同位体比

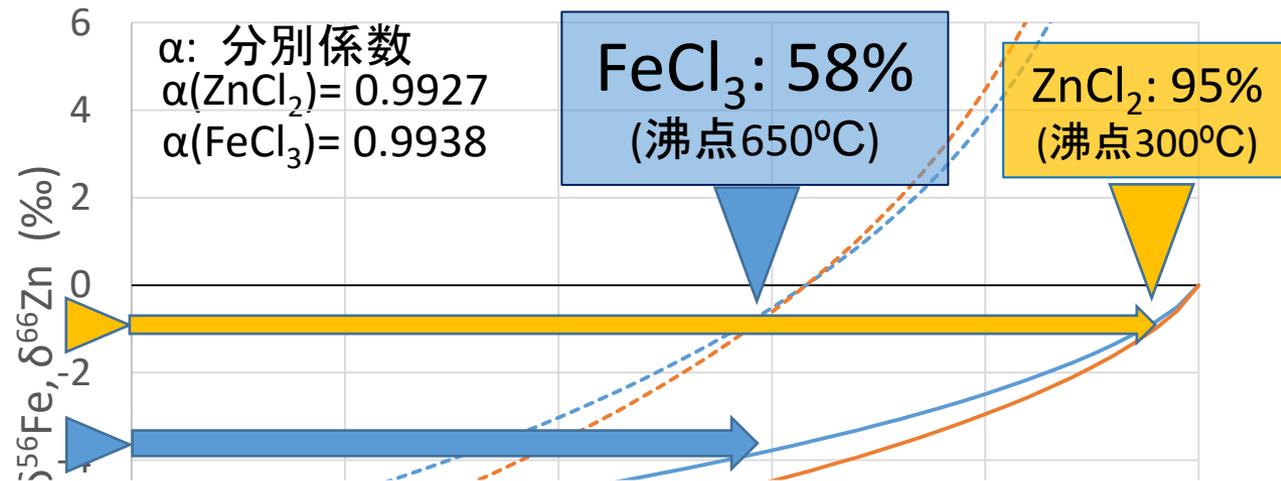
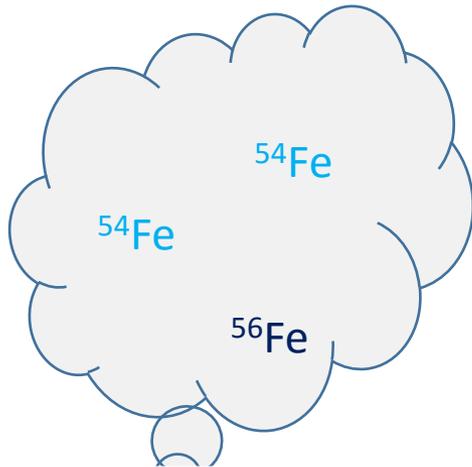


動的同位体効果

人為起源エアロゾル中の安定同位体比

$\delta^{66}\text{Zn} = -1.15\text{‰}$ (Takahashi et al., in prep.)

$\delta^{56}\text{Fe} = -3.90\text{‰}$ (This study)



FeおよびZnの同位体分別から、揮発プロセスの有無や揮発した温度を推定できる可能性

まとめ

1. セシウムやヨウ素の水溶解性や移行は、XAFS法などによる化学種の特定期により合理的に理解可能。
2. その理解に基づく吸着反応のモデル化などにより、セシウムの脱吸着挙動を予想することができる。
3. 河口-海水系では、塩分濃度や安定セシウム濃度の増加により、セシウムが溶解する可能性が高い。
4. 今後の課題として、放射性物質の大気への放出および拡散の化学的描像や、懸濁粒子が河口から海洋に移行した場合の脱離挙動が挙げられる。

