

2013年12月20日、第68会期国際連合総会で次の2つのことが宣言されました。


1. 12月5日を世界土壌デーとする。
2. 2015年を国際土壌年とする。



2015

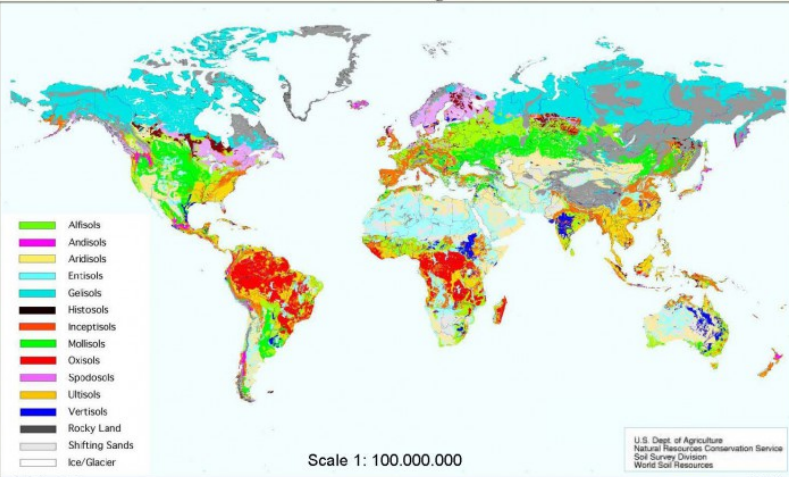
International
Year of Soils





tal pudy mulla
Boden ভূমি sol beheko
talaj মাটি grond

maa
botten
नमीत
приземен
tokës
Kásáa
ground
почва
Днище
مैदान
soil
मिट्टी
земля



Scale 1: 100.000.000

U.S. Dept. of Agriculture
Natural Resources Conservation Service
Soil Survey Division
World Soil Resources

Udongo
augsnes 土壤
भूमि
terra
பூமி
maaperän
suelo
dhumka ah
έδαφος
solului
mặt bằng
Zem
mark
toprak
خاک
التربة
zemlja
tepen
solo yokutshuna
धरती
gleba அரிசி மண்ணெட்டி



有機物が多い土壌における セシウムの再分布

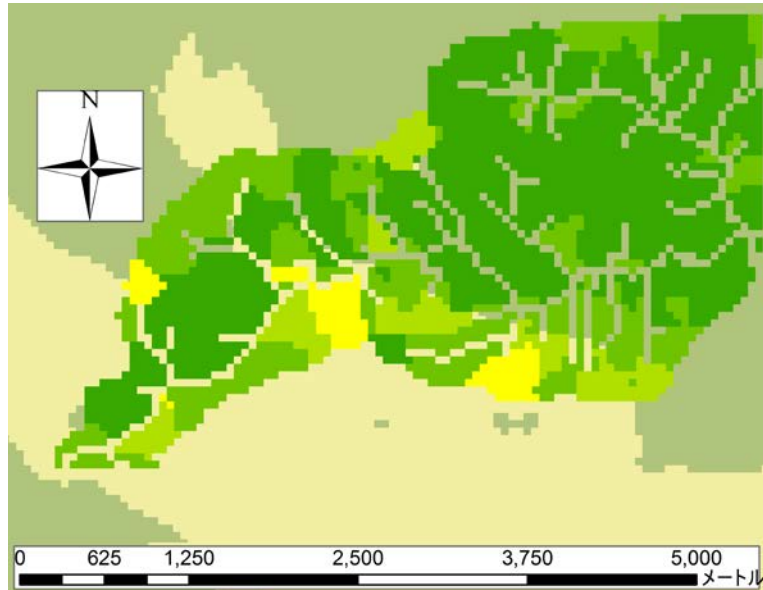
西村 拓

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

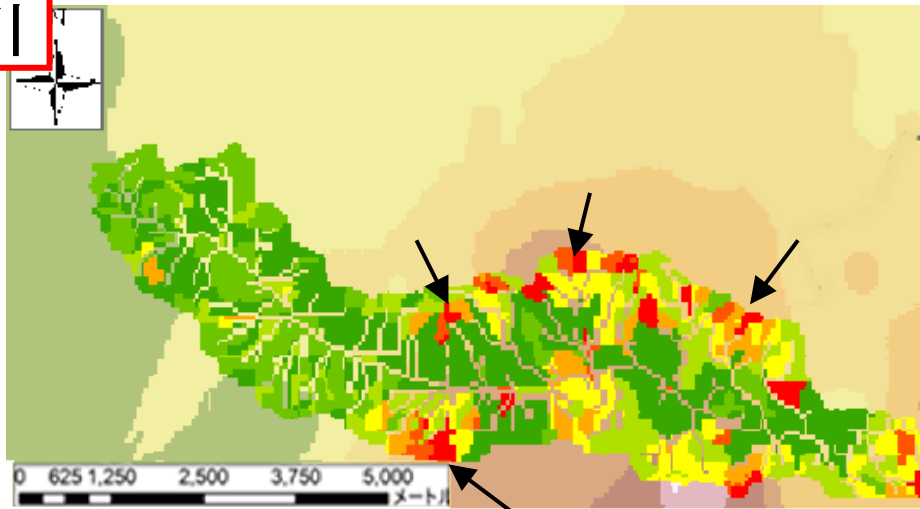
協力： Dang Quoc Thuyet博士、辰野宇大氏、古川純氏(筑波大)
東京大学大学院農学生命科学研究科放射性同位元素施設、
福島さいせいの会、環境地水学研究室一同

放射性Cs流出量の分布(飯舘村の例)

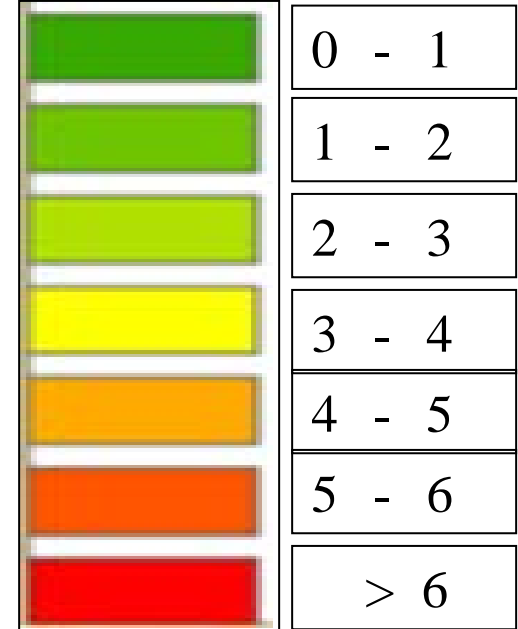
真野川



比曽川



放射性Cs流出量
($\text{kBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{y}^{-1}$)



真野川、比曽川のモニタリング
とWEPP(侵食予測)プログラム
による推定結果
辰野他(2014) 農業農村工学会
大会講演会

土壌侵食による放射性Cs流出の可能性

辰野他(2014) 農業農村工学会大会講演会

	放射性Cs 沈着量 (kBq/m ² /y)	放射性Cs流出 量 (kBq/m ² /y)	放射性Cs 年間流出率 (%)	放射性Cs 流亡年数 (%)
真野川	458.3	0.90	0.20	509
比叢川	1026.5	1.98	0.19	518

- ・環境省の試算結果に近い(0.13%, 福島県川俣町疣石山流域) (参照:「森林除染に係る知見の整理」平成25年8月27日環境回復検討会議資料)

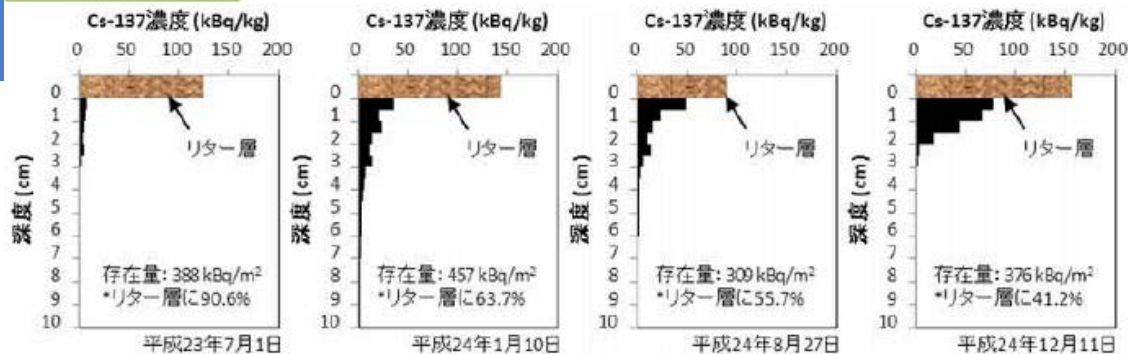
放射性Csは森林周辺に留まっている→そこでどう振舞うか？

以前の報告会では、大手先生、三浦先生が話題提供

目 次

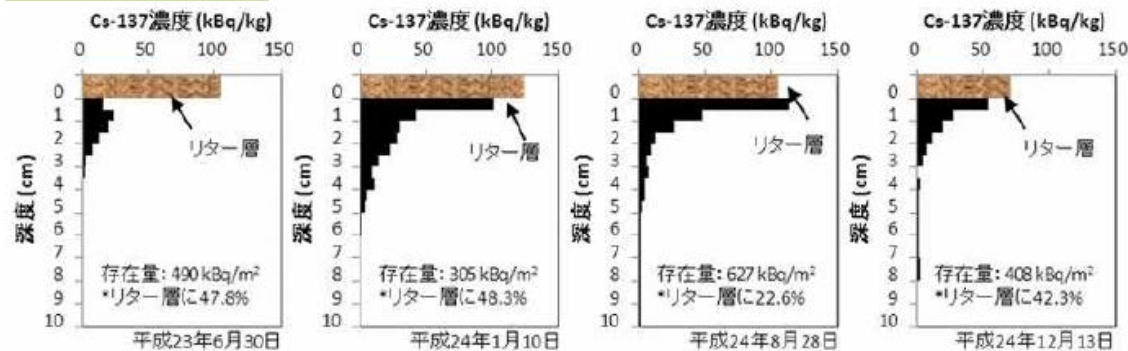
1. 放棄林地土壌における2013-2015のCs分布の変化
 2. 溶存有機物とCsの土壌への吸着特性
 3. 溶存有機物の有無・タイプとCsの移動性
- ✓ まず、実態把握
 - ✓ 評価ではなく、現地の対策に有効になれば・・・
 - ✓ 本日は、放棄林地を対象にしているが、汚染有機物を埋め込んだ農地や仮置き場に蓄積されている汚染有機物など、潜在的な対象は少なくない。

広葉樹混合林



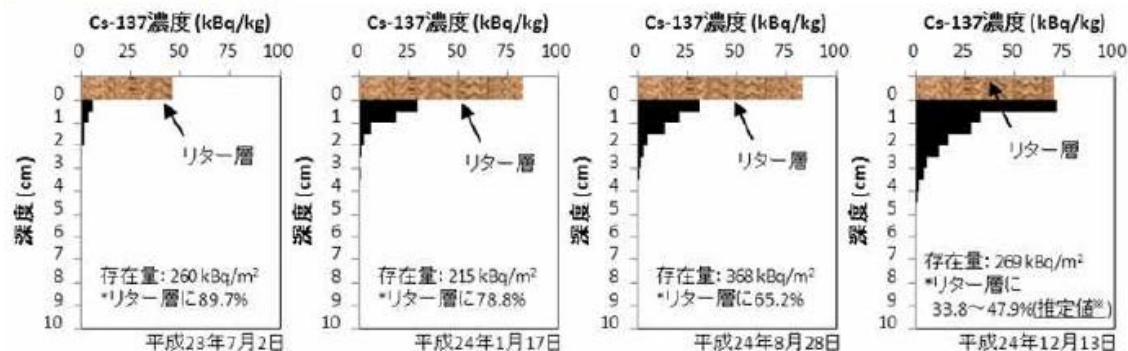
Csが地表近傍に集中
 → 分布の変化から、侵食量を推定できる。

スギ林 (壮齢林)



大気圏内核実験後に同様の研究はいくつも行われている。国内では、佐久間(北大)、恩田(筑波大)等

スギ林 (若齢林)



(出典) JAEA (文部科学省): 平成24年度放射能測定調査委託事業「福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の長期的影響把握手法の確立」成果報告書

H23年6~7月

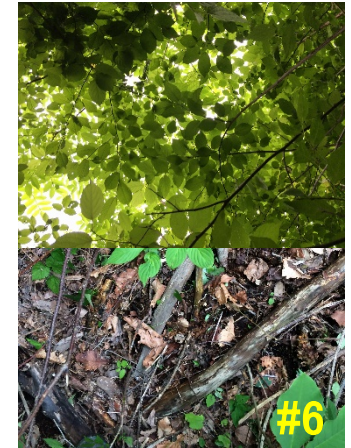
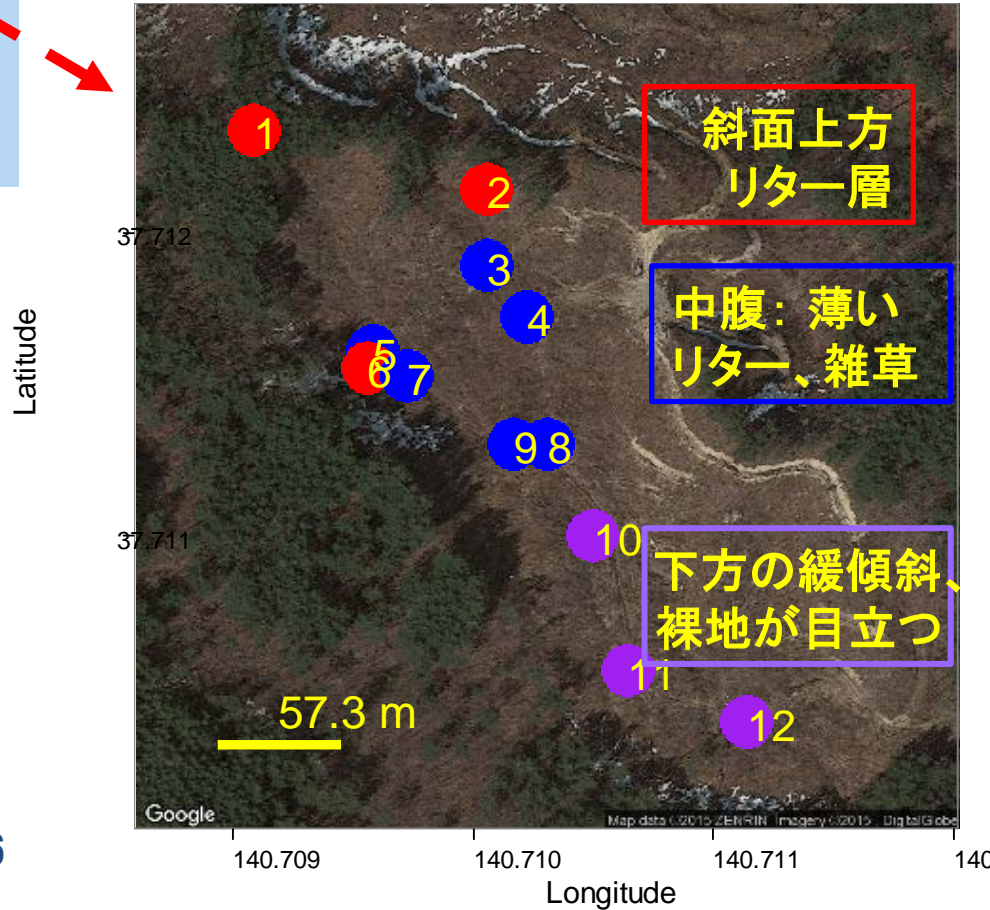
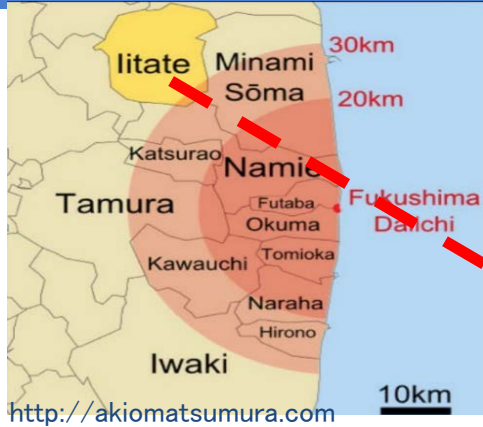
H24年1月

H24年8月

H24年12月

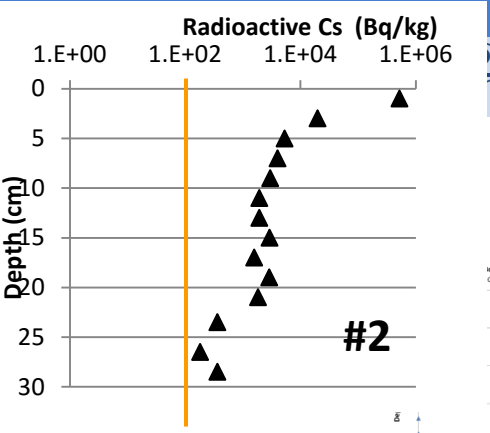
現地調査

当初は、地表面の状態が異なる斜面からの侵食とCs再分布の関連を対象に考えていた

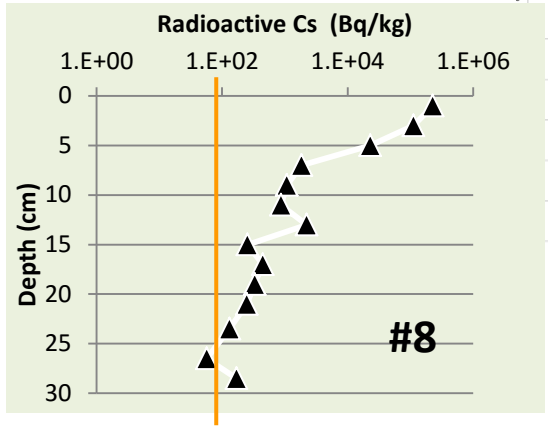


Sampling

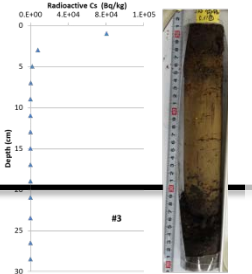
0-30 cm surface soil
12 plots, 2013 → 2015
Litter samples at No.6



⑧ 226000
111000



site Number
top 0-2cm [Bq/kg]
middle 2-4cm [Bq/kg]
Green 4-6cm



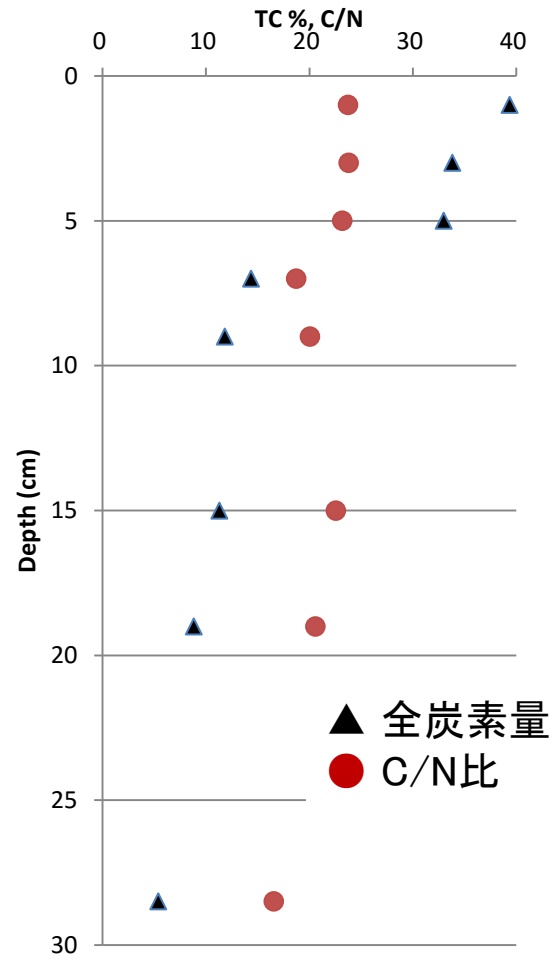
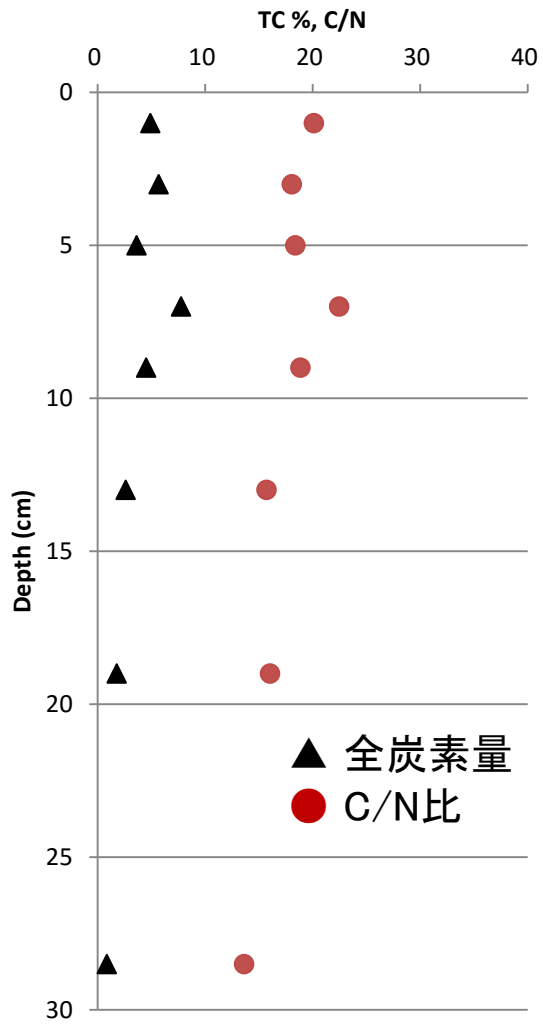
③ 800
7700



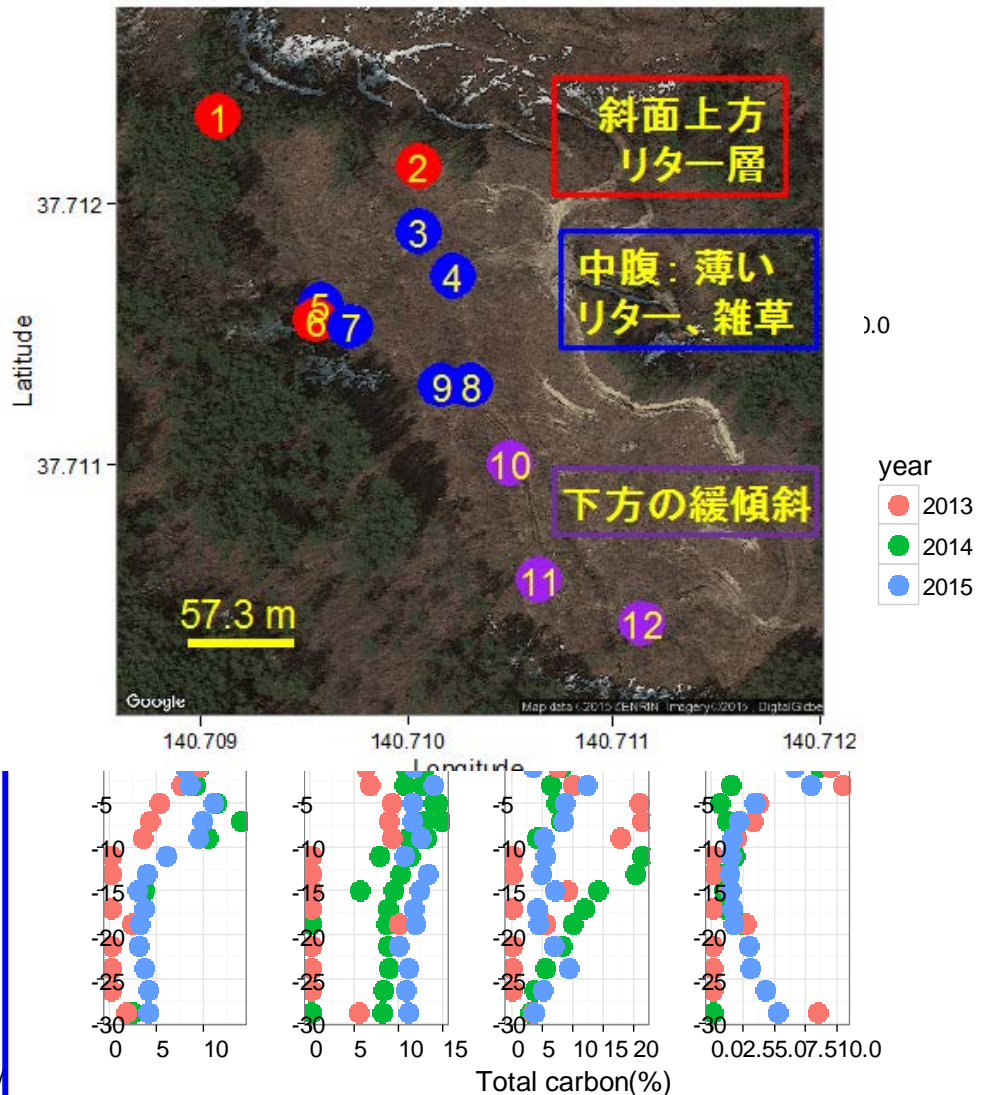
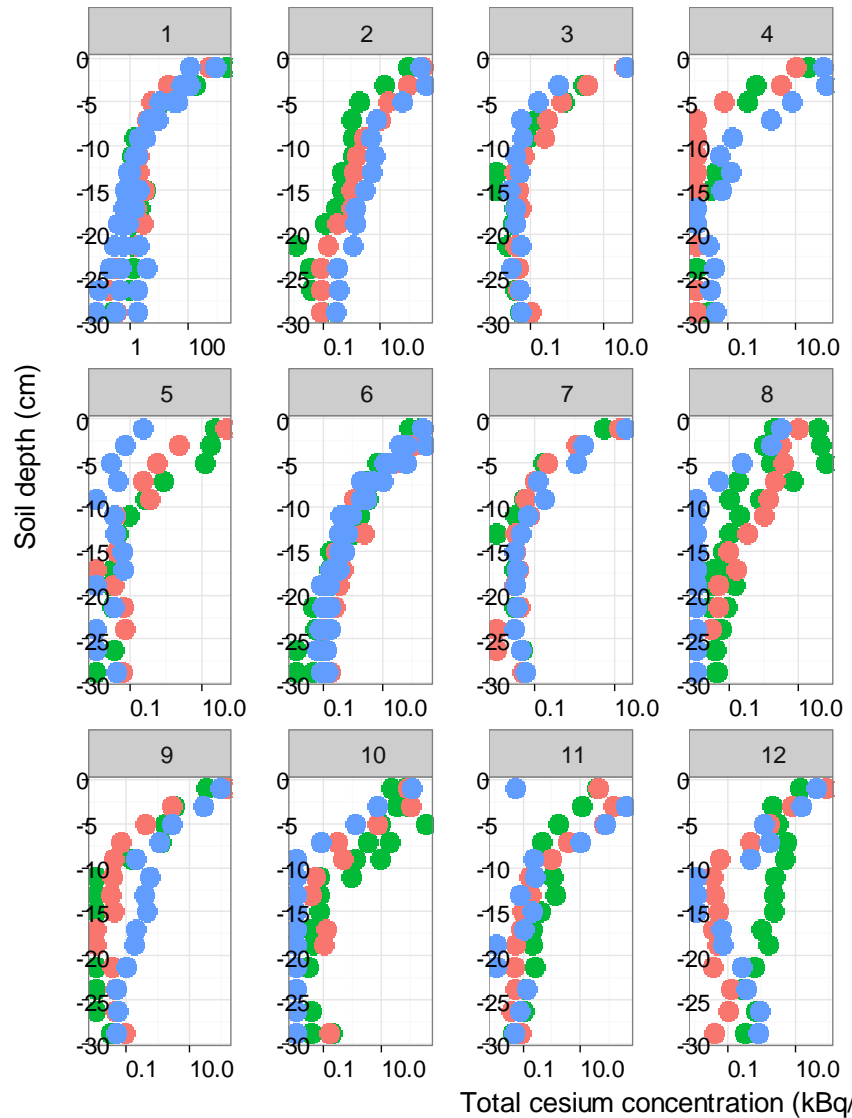
New plot numbers

Year: 2013



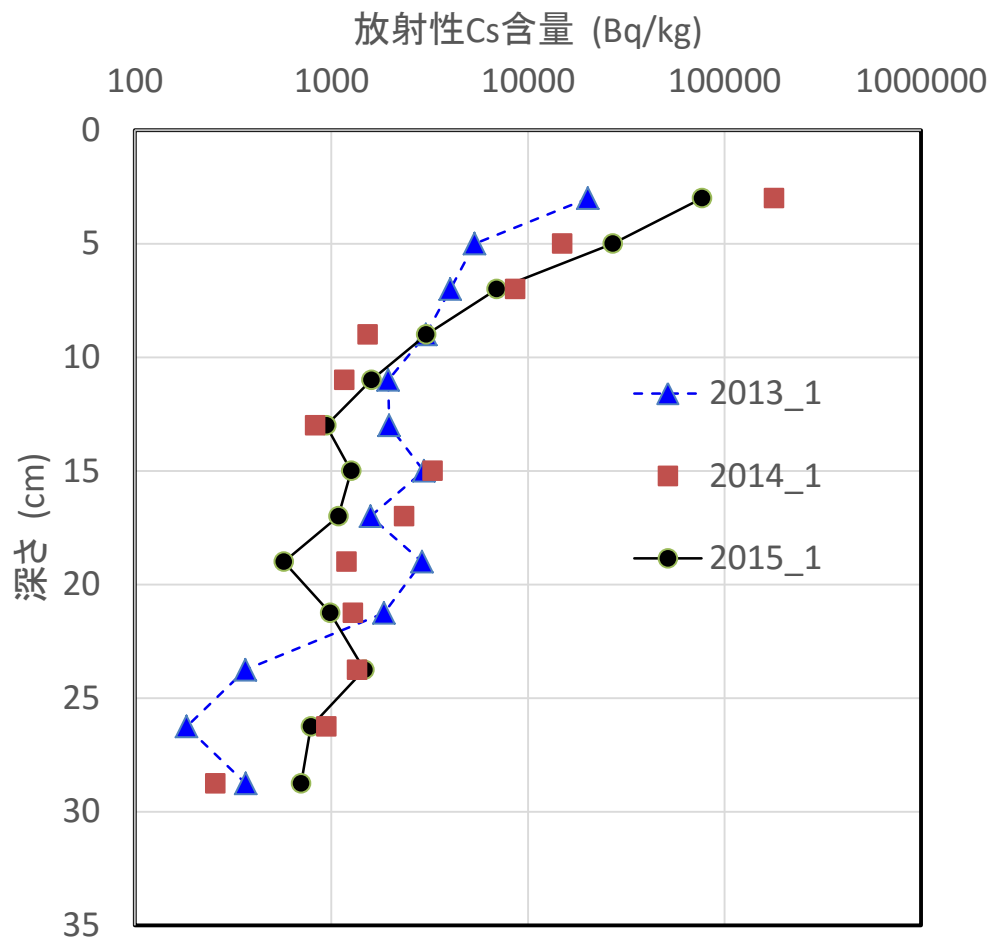


放射性Csと全炭素量分布 2013 - 2015

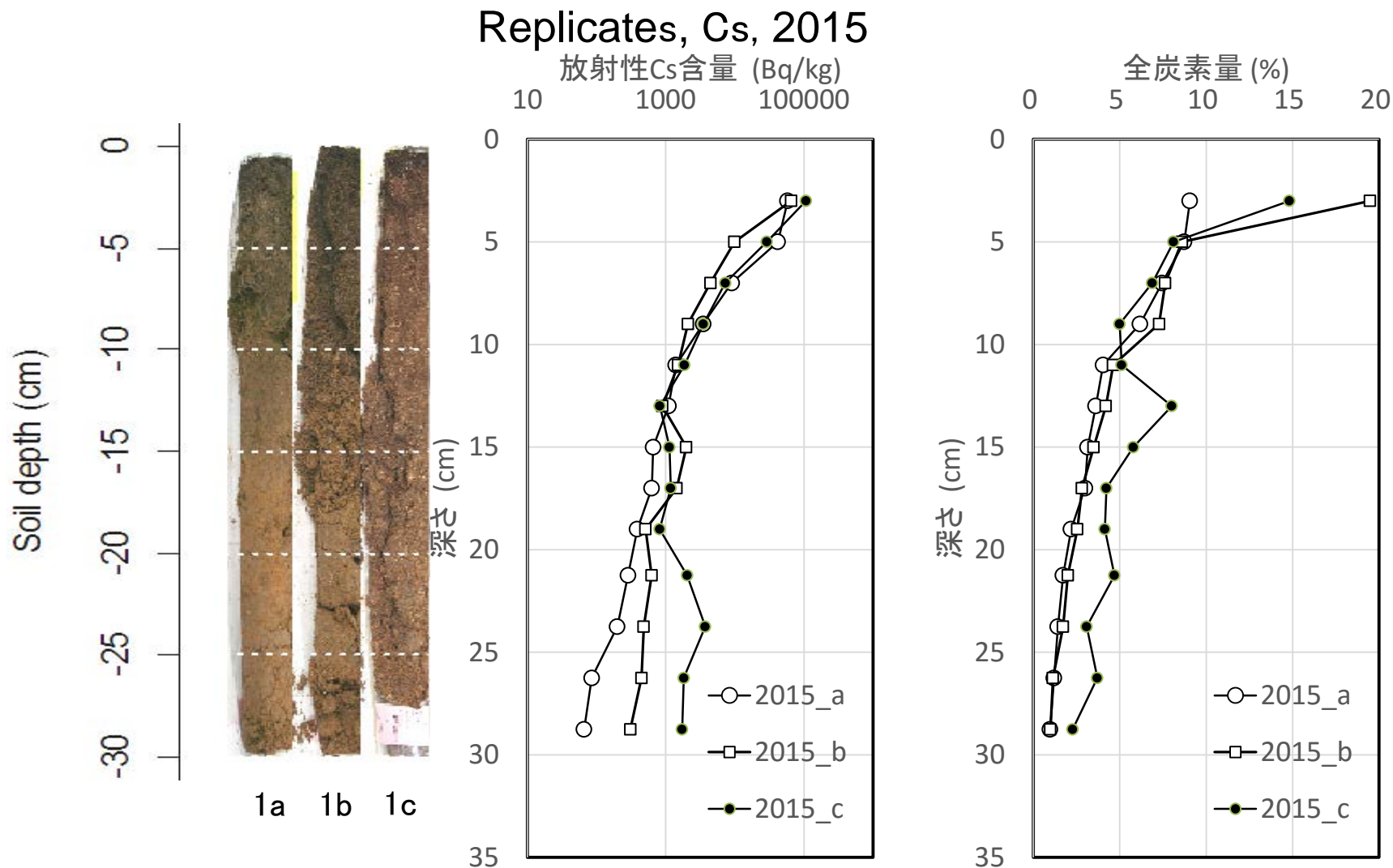


Plot #1・・・下方へ移動している？

斜面上方で、透水性がよく、侵食は少ないと考えられる

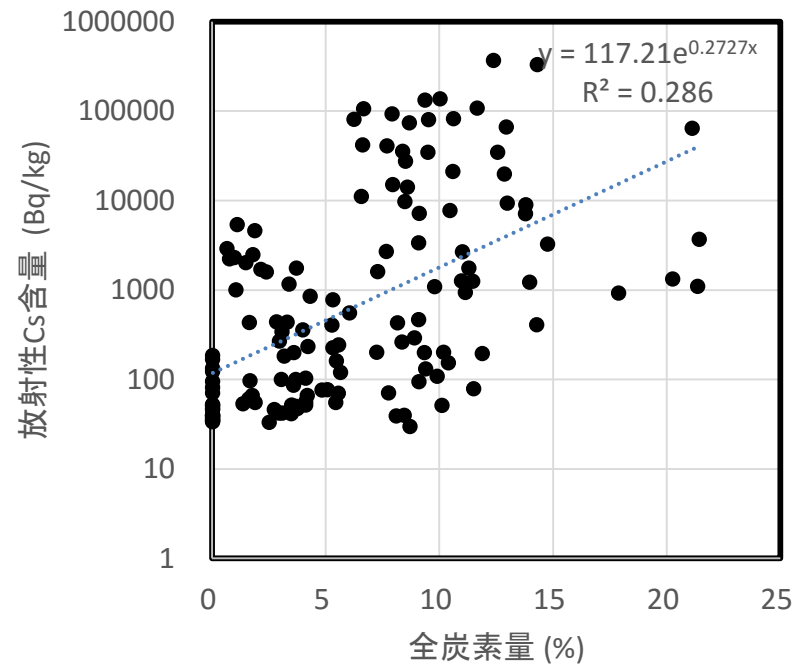


ばらつきの例(Plot #1: 上方のリター被覆地点)

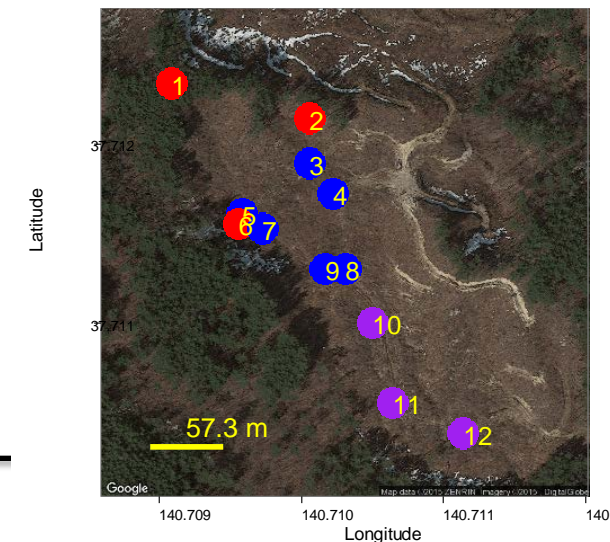
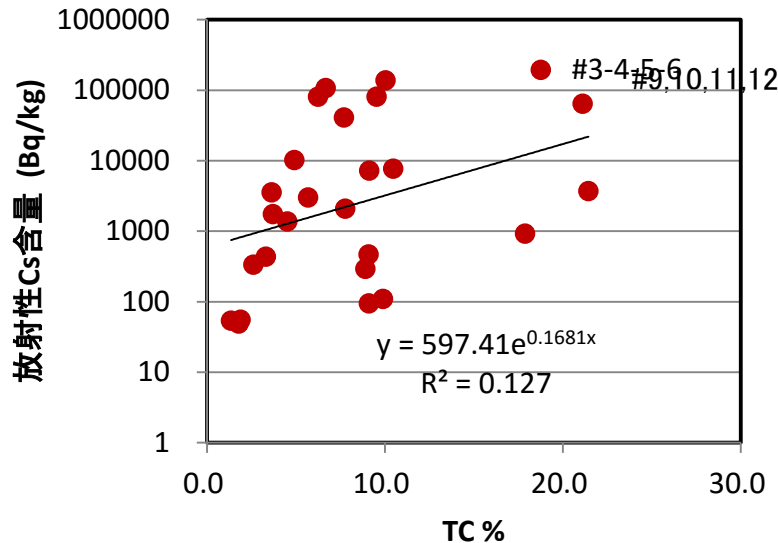


侵食・堆積のある地点の放射性Cs含量と全炭素量

Year: 2013-2015



Year: 2013



Plots: #1,#2,#6 : 侵食や堆積の少ないサイト

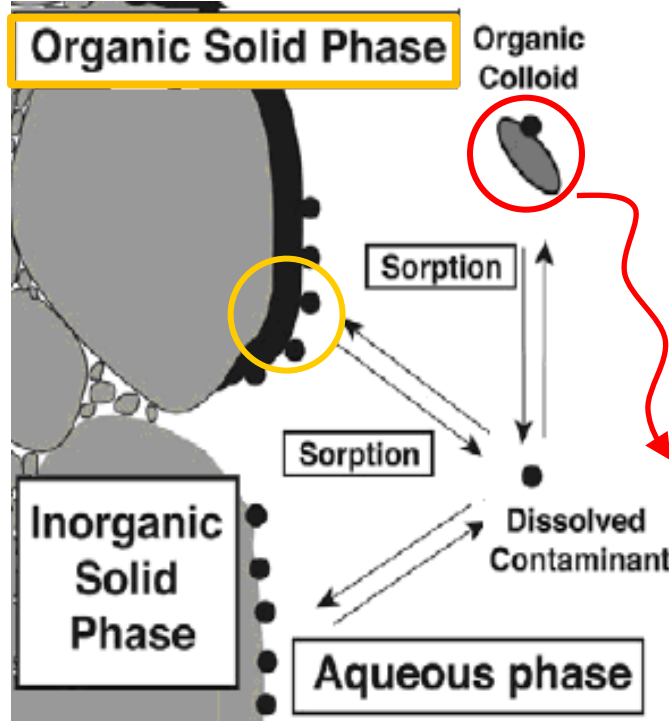
2



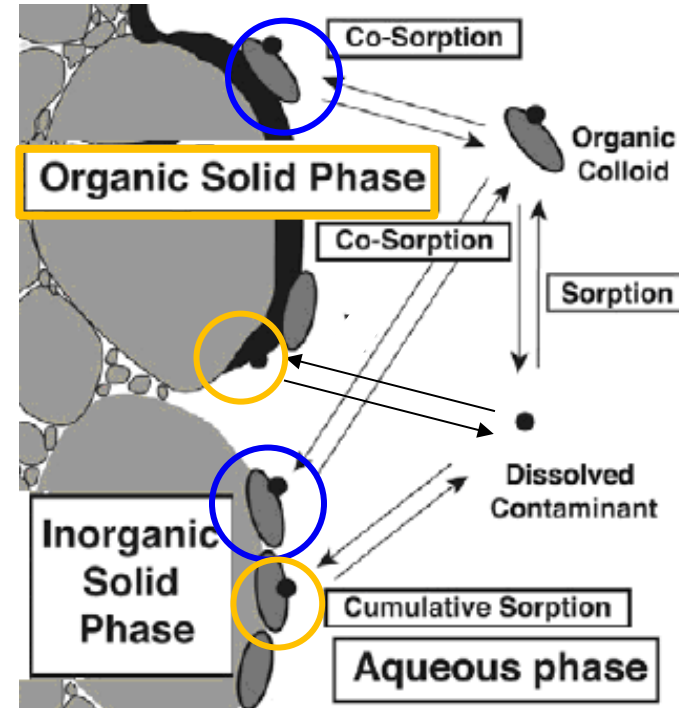
条
1)
2)
3)

溶存有機物(DOM)が溶質移動に与える影響

移動促進



遅延:吸着促進



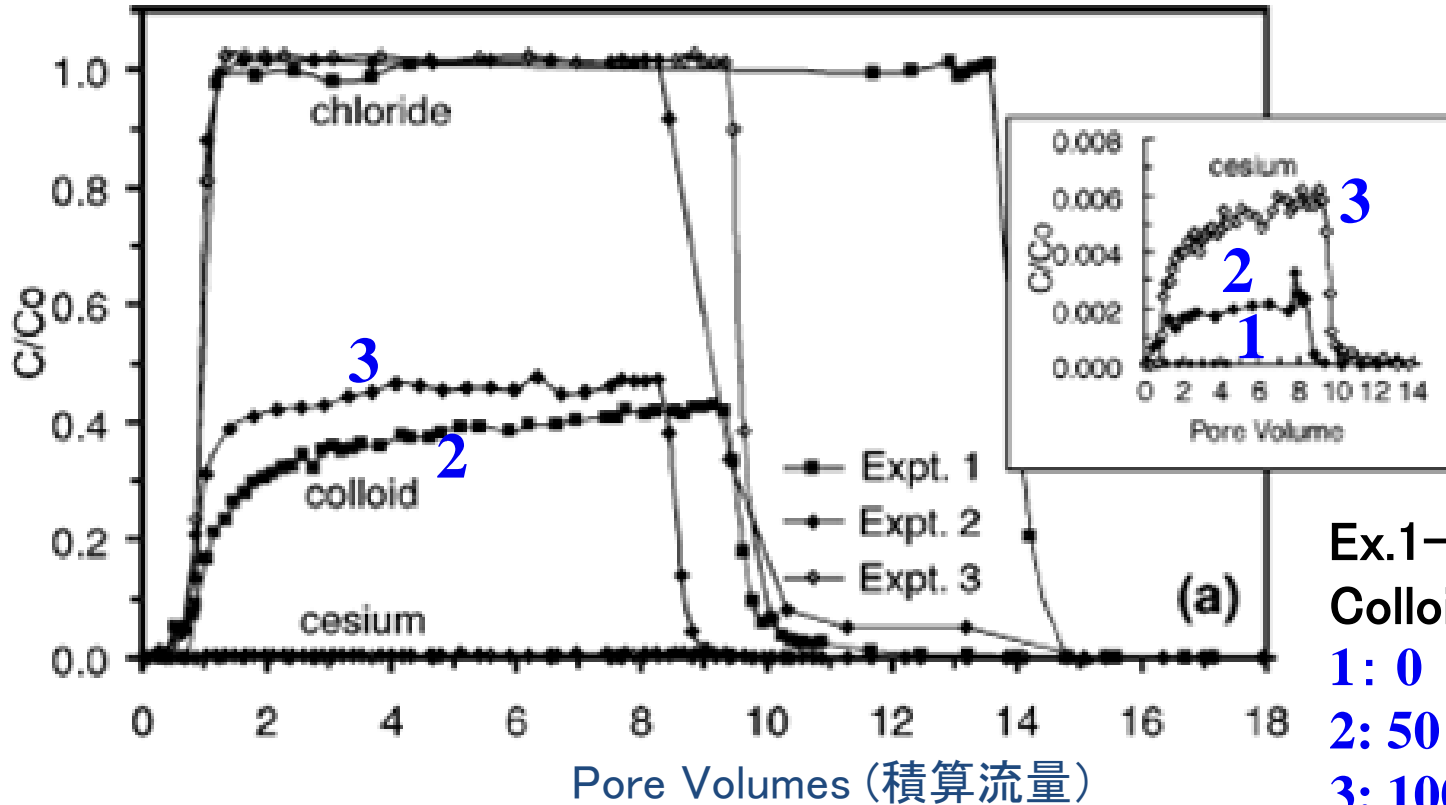
有機物コロイドの溶質移動への影響 (Flury et al., 2008)

土 ← Cs (イオン)

土 ← (有機物 + Cs) ... (土 + 有機物) ← (有機物 + Cs)

(土 + 有機物) ← Cs (イオン)

コロイド粒子に吸着したCs移動の例



Hanford sedimentを用いた時のブレイクスルーカーブ (Zhuang et al., 2003) (Yucca Mountain, Nevada)

水田代かき除染の実験など今までの検討から土壌中の粘土粒子の移動はそれほど大きくないと思われる。

有機物に由来するコロイド類の検討

- ✓ DOM(溶存有機物): 水中の $0.45 \mu\text{m}$ 以下の大きさの有機物
- ✓ 腐植酸(Humic Acid:HA): アルカリ可溶→酸沈殿($<0.45 \mu\text{m}$)
- ✓ フルボ酸(Fulvic Acid: FA) : アルカリ可溶→酸可溶($<0.45 \mu\text{m}$)

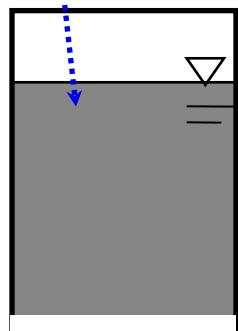
1. 土壌(マサ土)への吸着
2. 有機物との混合とマサ土中の C_s の移動
3. (未)有機物がある土層への C_s 負荷後の分布

HA & FAの抽出の概略



事故前に採取したリター
(埼玉県産) + 純水

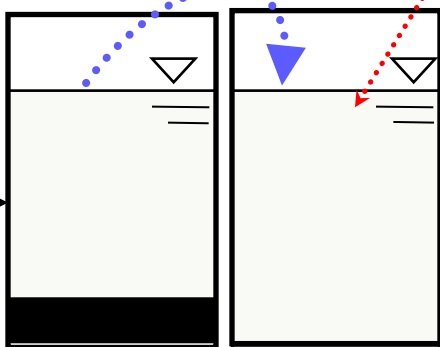
NaOH



pH > 7

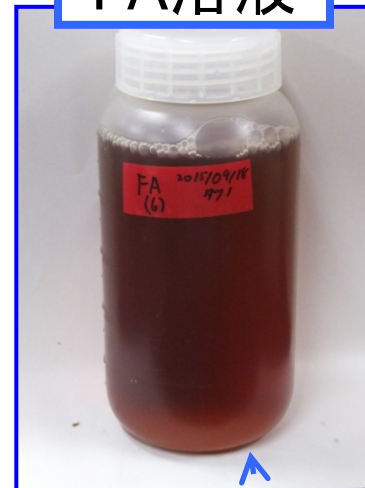
- ・4時間振とう
- ・一晩静置
- ・遠心分離

上澄 (FA+HA) HCl

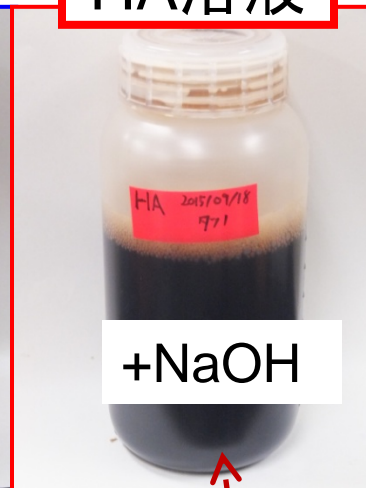


pH ≒ 1~2

FA溶液



HA溶液



上澄 (FA)

沈澱 (HA)

- ・12~16時間
静置
- ・遠心分離

Cs試料

1.Cs溶液

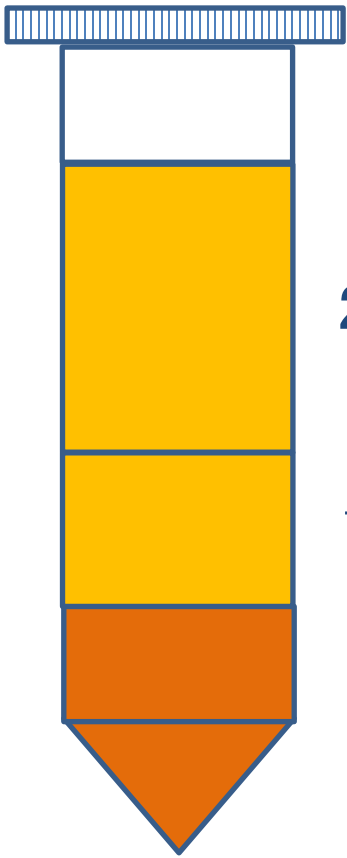
CsCl試薬(関東化学株式会社)を使用

2. 有機物混合態Cs溶液(コロイド分散系Cs溶液)

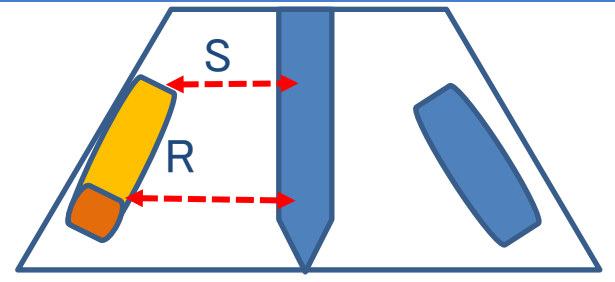
Cs溶液に有機物溶液(DOM溶液, HA溶液, FA溶液: $0.45 \mu\text{m}$ フィルター通過分)を混合し, 2時間振とうさせたもの

	粒径 (nm) pH≒2	粒径 (nm) pH≒5	Zeta potential (mV) pH≒2	Zeta potential (mV) pH≒5
FA	995 (430-650)	365 (284-439)	-5.3~-7.2	-7.2~-8.2
HA	1950 (1000-1500)	305 (187-433)	-16.9~-17.5	-27.3~-27.5

遠心分離とレーザー散乱を用いたDOM粒径推定



$$\rho_s = \frac{18\eta \ln \frac{R}{S}}{\left(\frac{2\pi}{60} rpm\right)^2 d^2 t} + \rho_l$$



Gravitational fractionation

$$\rho_s = \rho_l + \frac{18\eta h}{gtd^2}$$

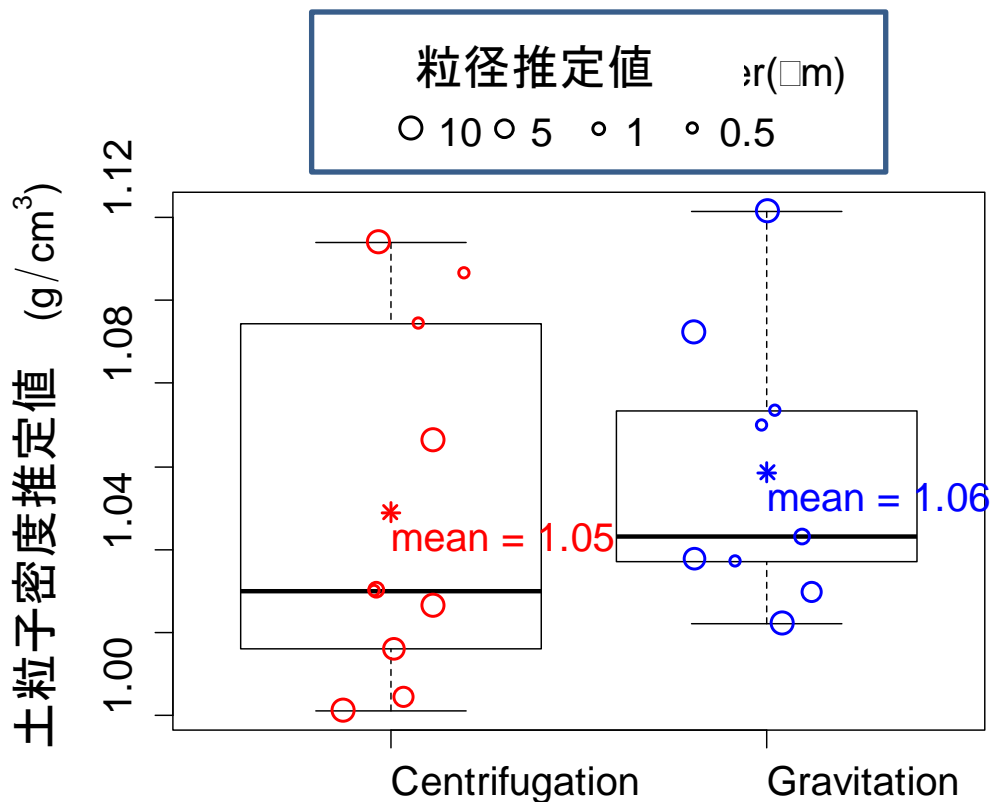
20 ml t: time of centrifugation (s)
 10 ml d: particle diameter
 10 ml

Parameters	Unit
------------	------

g	980cm s ⁻¹	acceleration due to gravity
η	0.0101g cm ⁻¹ s ⁻¹	water viscosity at T°C
ρ _s	1.049g cm ⁻³	particle density
ρ _l	0.997g cm ⁻³	water density



コロイドの粒子密度



$$\rho_{\text{colloid}} = 1.1 \text{ g/cm}^3$$

$$< \rho_{\text{有機物}} = 1.4 \text{ g/cm}^3$$

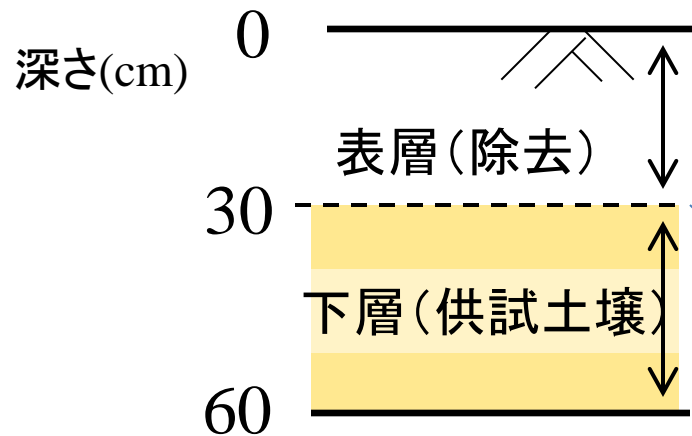
(Mayer et al. 2004, Wagai et al. 2009).

粒径: 0.1 - 12 μm

スポンジ?

$\rho_{\text{colloid}} = 1.1 \text{ g/cm}^3 \rightarrow$ 低密度の有機物に由来するコロイド?

供試土壌: マサ土 放棄林地の下層土.



土性: Loam (L)

炭素量 : 9165mg/kg

窒素量 : 649mg/kg



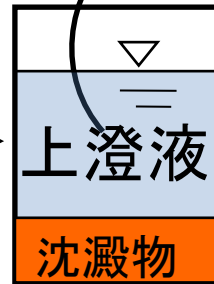
吸着特性の検討(バッチ試験)の方法

土:水比=1:50

溶液(初期濃度: C_i)

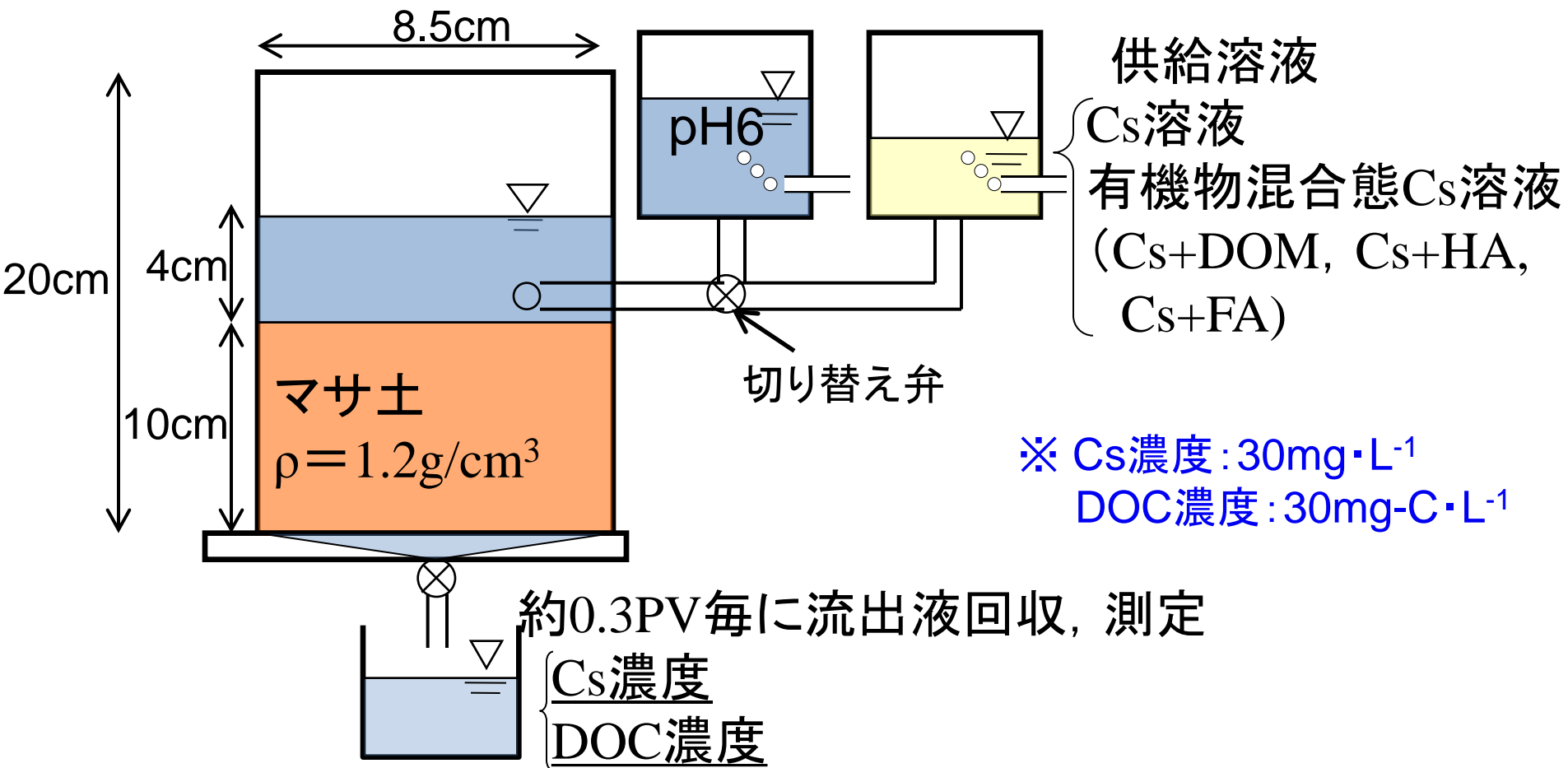
上澄液(反応前後の濃度差(ΔC)から吸着量を算出)

- ・振とう
- ・遠心分離
(1h~24h)



- ・Cs濃度の測定(原子吸光光度計)
- ・DOC濃度の測定(溶存炭素(TOC)測定器)

カラム実験の概要



通水: pH6.0溶液2PV → 供給溶液10PV → pH6.0溶液3PV

通水後の処理, 逐次抽出

1. カラム内土壌を2cmごとに切り分けた後, 乾燥させ, 含水比, 乾燥密度を算出を測定.

2. 逐次抽出

交換態
Cs

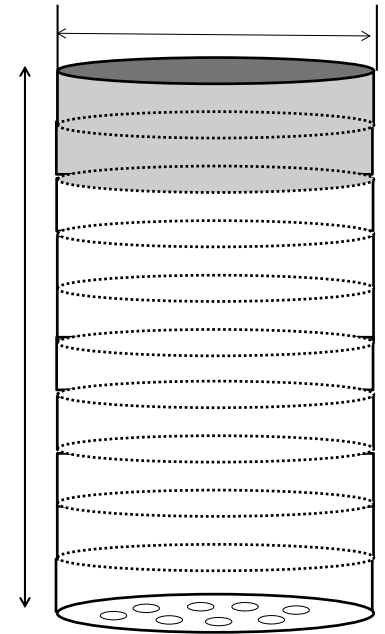
2-1. 乾燥質量1g相当の試料と1M NH_4NO_3 (硝酸アンモニウム) で抽出

2-2. 残渣に1M $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ (酢酸アンモニウム) を加え抽出.

2-3. 残渣に0.1M $\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$ (ピロリン酸Na) を加え抽出

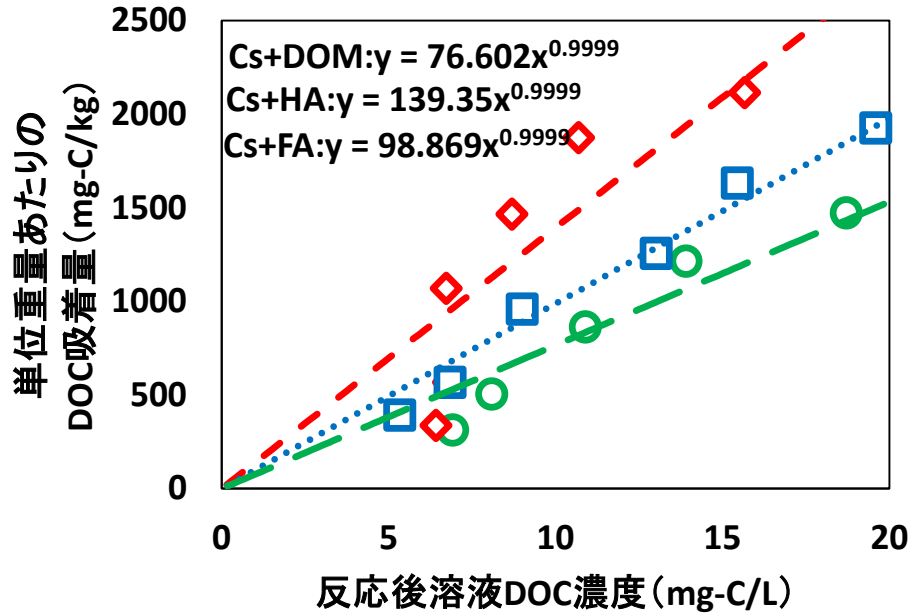
有機物結
合態Cs

いずれも, $0.45\mu\text{m}$ フィルターで濾過してから定量



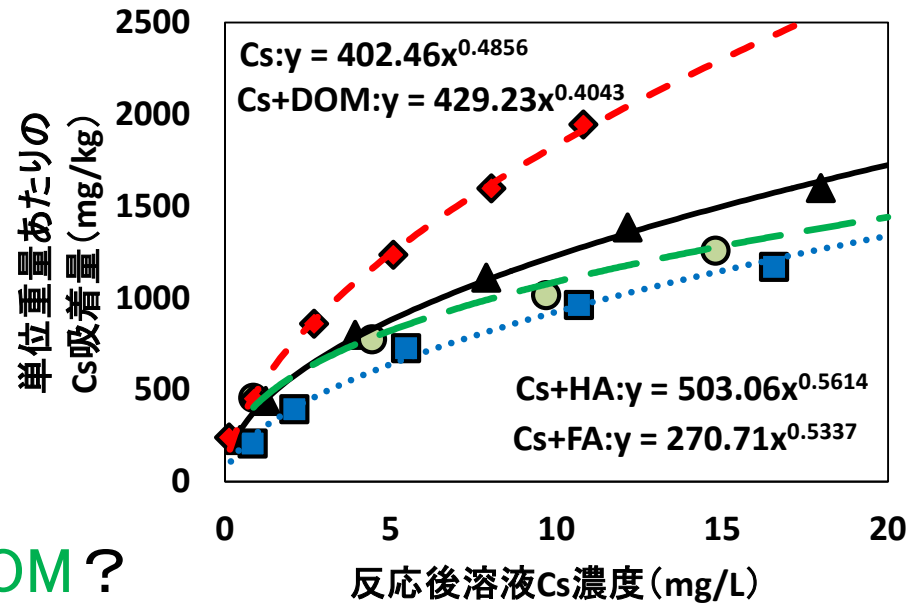
有機物とCsの吸着特性

DOC吸着等温線: 12hr



▲ : Cs, ○ : Cs+DOM,
 ◇ : Cs+HA, □ : Cs+FA

Cs吸着等温線: 12hr



土 ← (有機物+Cs): HA

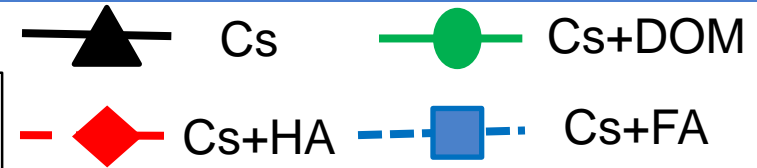
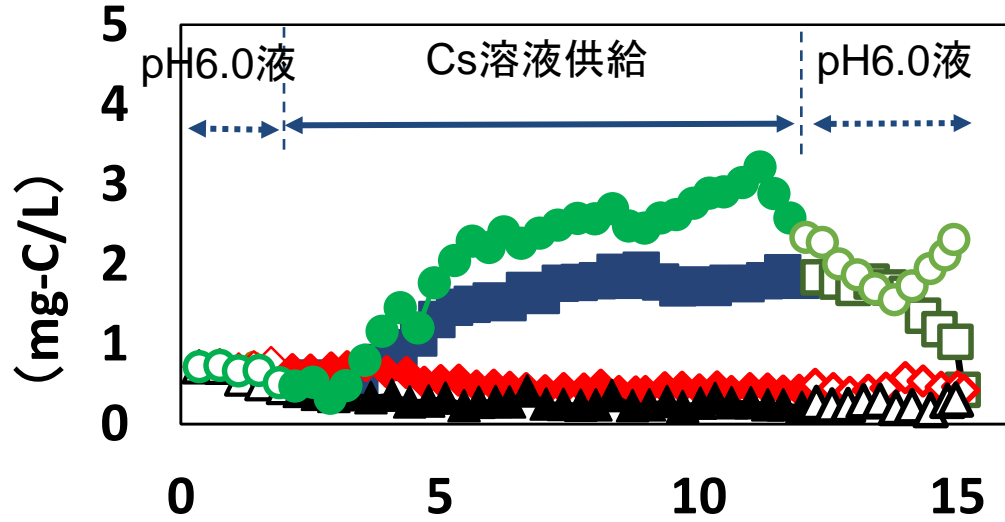
土 ← Cs (イオン)

(土 + 有機物) ← Cs (イオン): FA、DOM?

カラムからのCs, DOCの流出

DOC

流出液のDOC濃度
(mg-C/L)

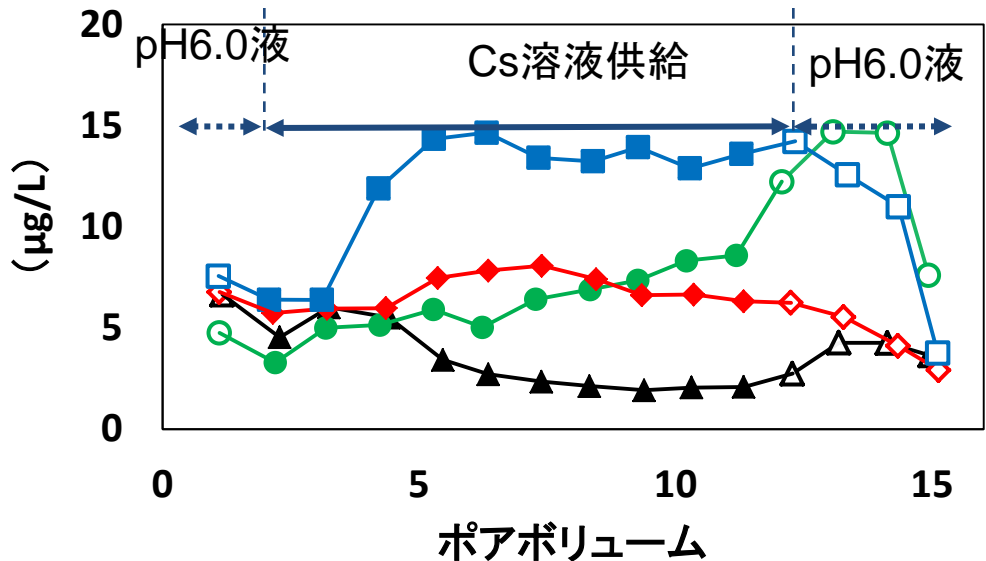


1) DOC流出
HAの流出DOC濃度が低い
⇔HAはマサ土に吸着され易い。

2) Cs流出濃度: ICP-MS
(筑波大 古川先生)

Cs

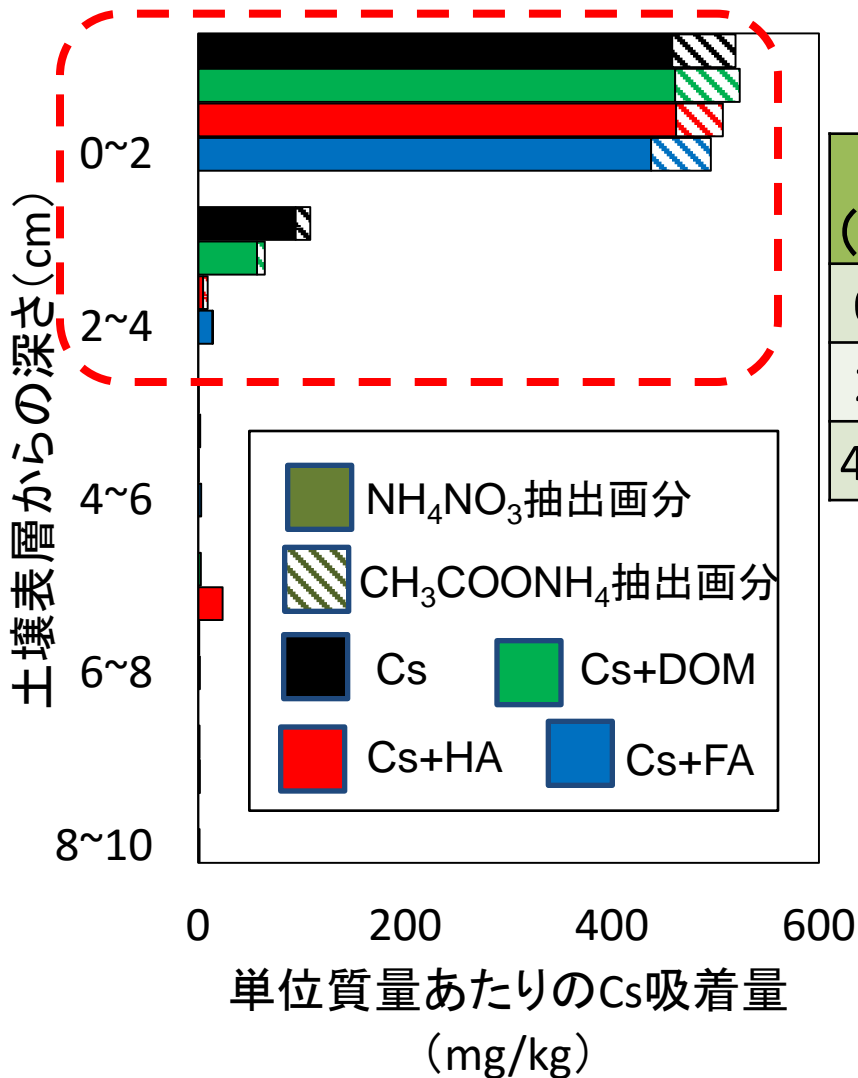
流出液のCs濃度
($\mu\text{g/L}$)



✓流出液のCs濃度が低い
✓Cs+FAの流出Cs濃度高
⇔Cs+FAでCsの吸着抑制
✓Cs+HAはバッチ試験でHAによるCs吸着促進が見られたが、カラム実験では、Csのみよりも流出濃度が高かった。
✓HAは土壤に吸着しているが、Csは、必ずしも一緒に付いているわけではないようである。

結果:カラム内土壌の交換態Cs吸着量

$$\text{Cs吸着率(\%)} = \text{Cs吸着量(mg)} / \text{溶液のCs供給総量(mg)} \times 100$$

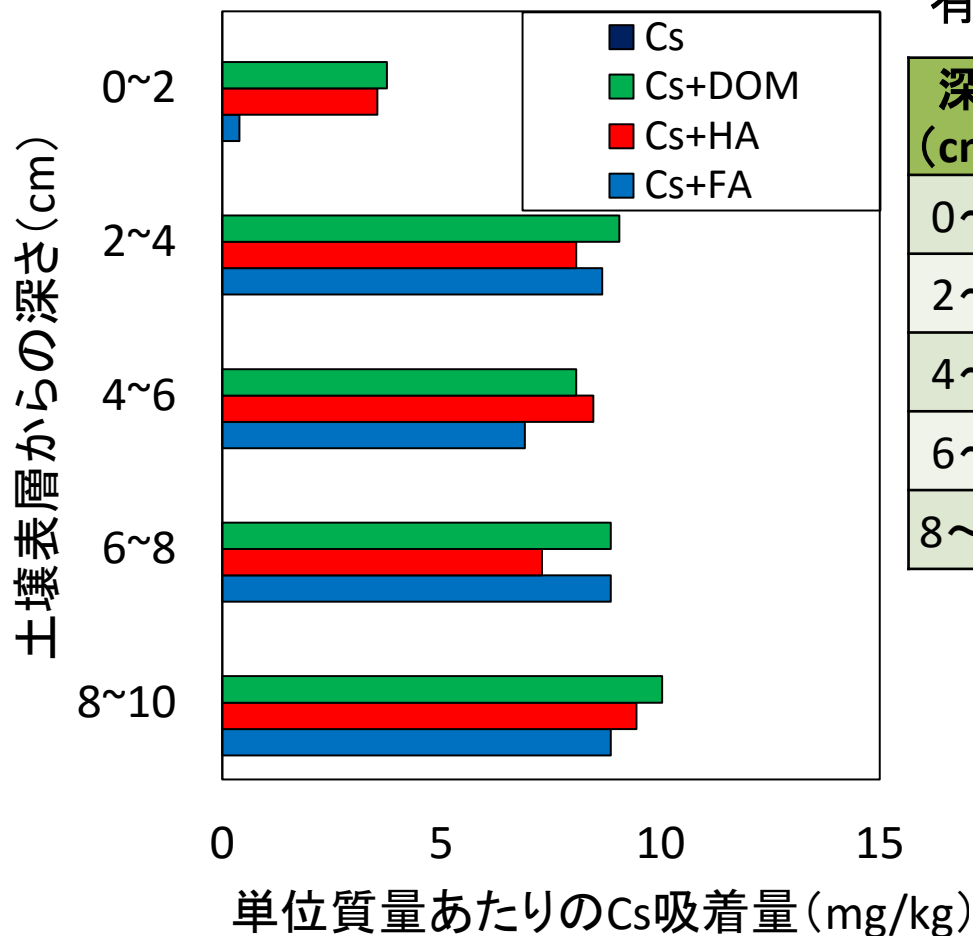


交換態Csの吸着率(%)

深さ (cm)	Csのみ	Cs+DOM	Cs+HA	Cs+FA
0~2	81.1	76.7	83.1	80.9
2~4	17.4	15.6	7.2	9.1
4~10	0.74	0.2	3.6	0.50

- ✓ 表層0~4cmに供給液中のCsの90%が交換態として吸着
- ✓ 有機物混合によるCs吸着量の差はなかった。
- ✓ 溶存有機物に収着しているCsのうち、交換性のものの割合は？

カラム土壌の有機物結合態Cs吸着量



有機物-金属錯形成態Csの吸着率(%)

深さ (cm)	Cs	Cs+DOM	Cs+HA	Cs+FA
0~2	0.0	0.51	0.48	0.05
2~4	0.0	1.21	1.11	1.29
4~6	0.0	1.09	1.11	1.11
6~8	0.0	1.21	0.99	1.17
8~10	0.0	1.32	1.29	1.20

- ✓ 有機物混合Cs溶液を供給した場合、土壌下方10cmに有機物-金属錯形成態Csが到達。
- ✓ 下端からの流出濃度の低いCs+HA、Cs+DOMもCs+FAと同程度のCs吸着量であった。

まとめ

1. 局所的には表層近傍の土層に留まらない放射性Csがある。
 - ・ばらつきは大きい
2. 対象地では、土壌有機物含量の多い地点で下方への大きな移動が見られた。
 - ・土壌炭素含量と放射性Cs含量の間に高い相関
3. 土壌有機物の少ないマサ土を使った実験では、土壌有機物のタイプ(HA、FA)によって、Csの土壌への吸着や土壌中の移動が異なった。
4. 土壌カラム実験において、交換性Csは地表近傍(0-2cm)に集中したが、有機物結合態のCsは、2~10cmの層に低濃度ながら満遍なく検出された。
5. 有機物を多く含む土壌へのCs負荷(未実施)ならびに低濃度のCsの場合について検討を進めたい。