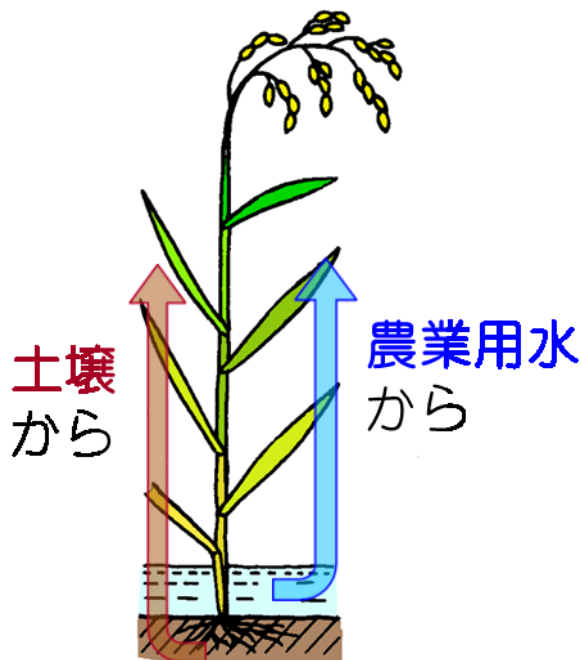


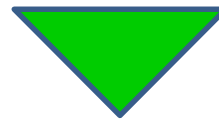
放射性セシウムの存在形態と陸域環境におけるふるまい

Physicochemical fraction of radiocaesium and its behavior in the terrestrial environment



なぜ放射性核種の存在形態 に関する知見が必要？

Why is research on fractions?



存在形態によって環境中での 移動、植物や動物への移行 が異なる！

Mobility depends on the fractions!

土壌から作物への放射性セシウムの移行

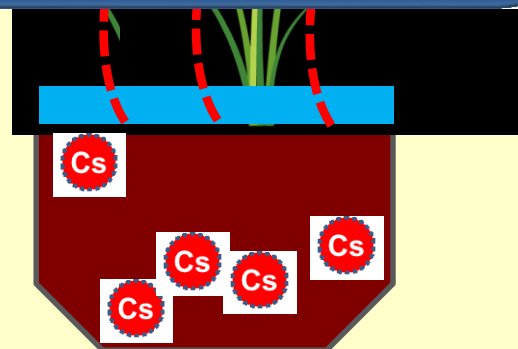
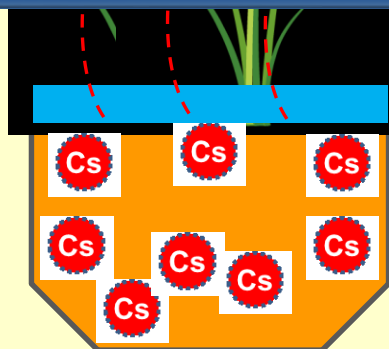
土壌の種類



土壌の種類によっても植物に移行する放射性セシウムの割合は異なる。

なぜ？

イネへの
移行率

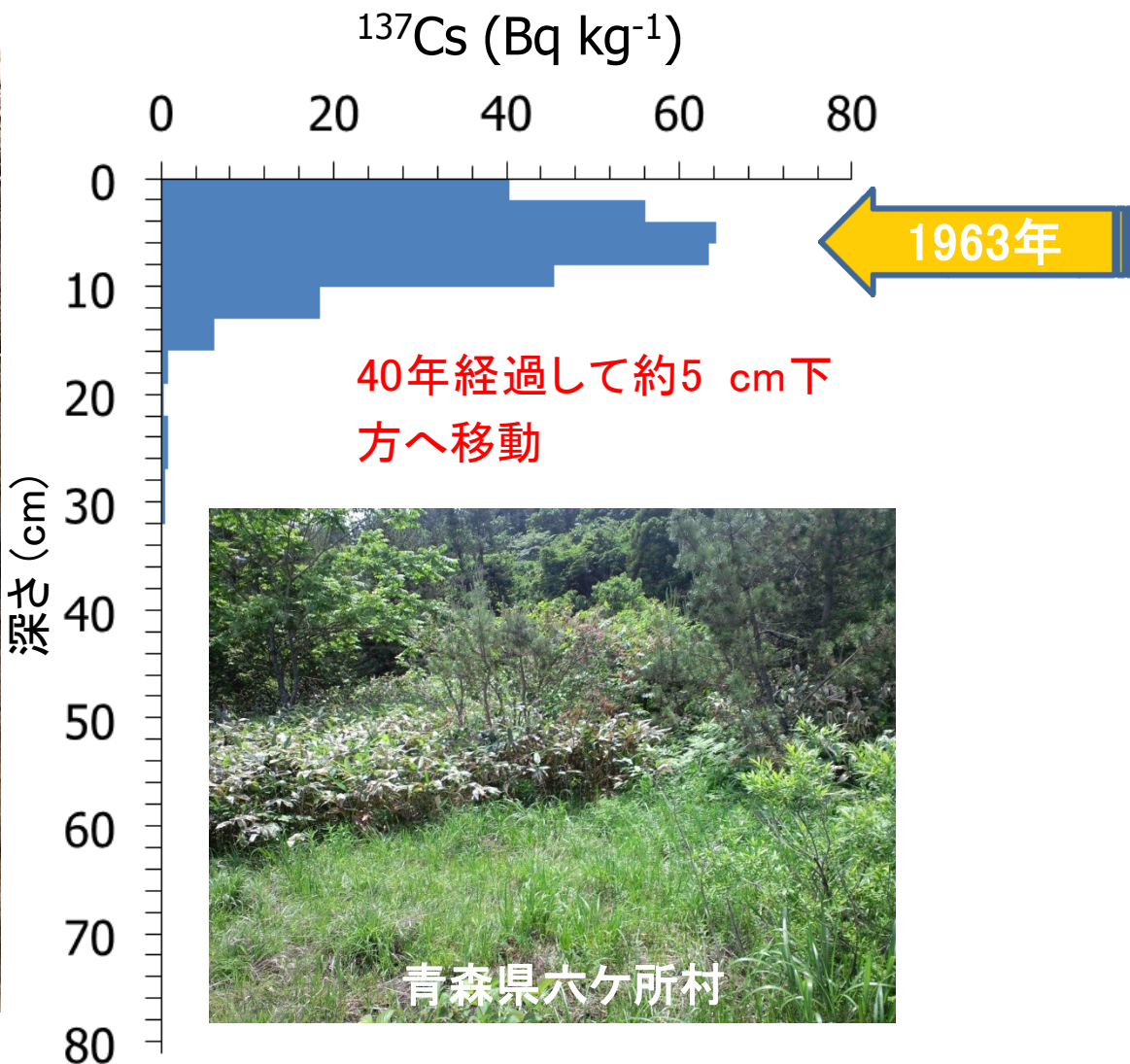
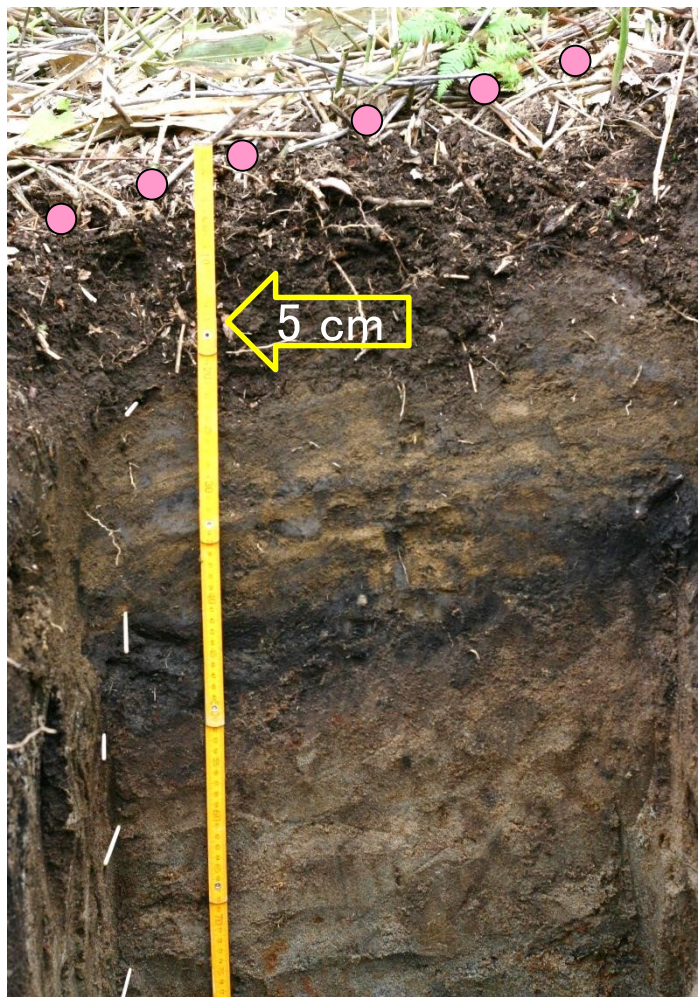


セシウムは土壌中でどのように存在しているのか？

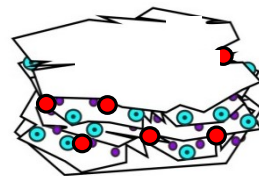
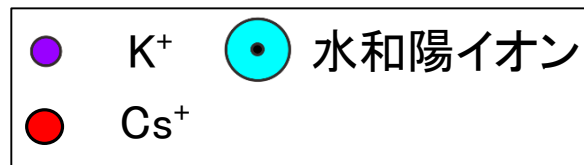
2)

主に1950年代～1960年代に行われた大気圏核実験により日本に降ってきた放射性セシウム

未攪乱土壌における大気圏核実験由来の ^{137}Cs の深度分布 (2003年採取)



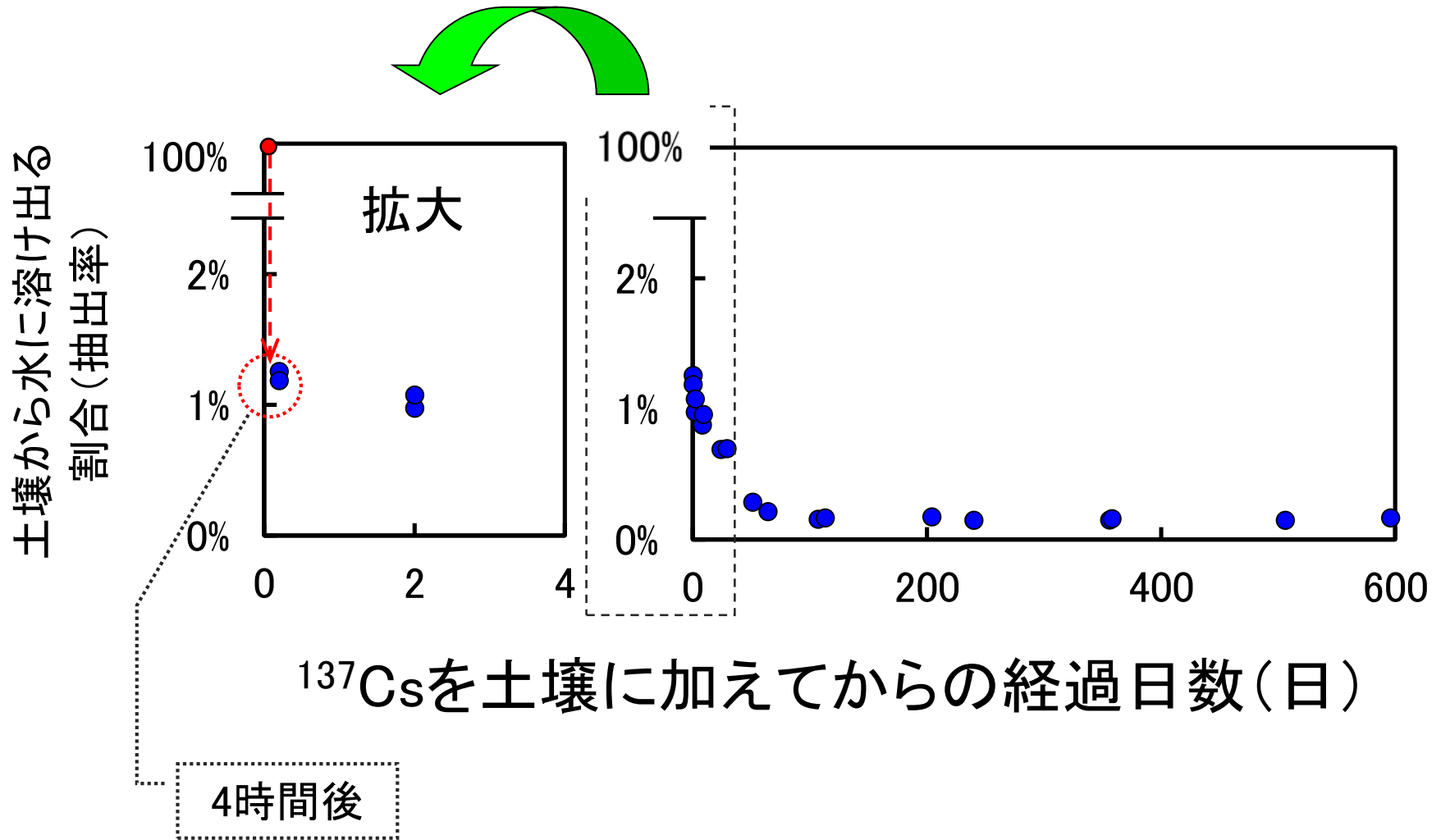
なぜ土壌の粒子中に ^{137}Cs は強く結合するか



層間のクサビ
フレイド・エッジ(FES)
にセシウム吸着

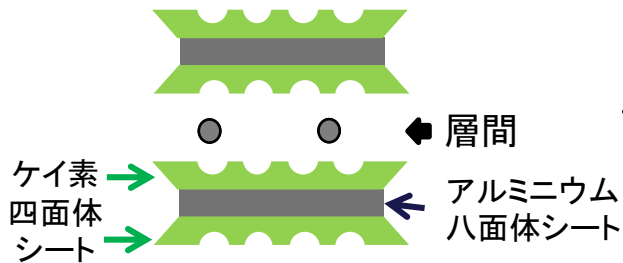
0.002 mm以下の
小さな土壌粒子

土壤から水に溶け出る ^{137}Cs の割合(実験データ)



土壌粒子におけるセシウムの存在

土壌粒子拡大図 (2:1型層状ケイ酸塩鉱物)



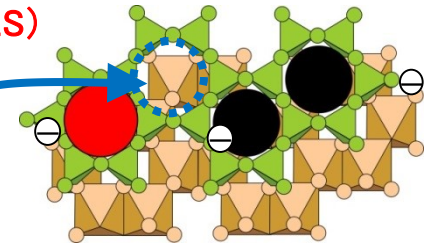
- ⊖ 負電荷
- セシウムイオン ● カリウムイオン
- 陽イオン(カルシウムイオンなど)
- 水和水

ケイ素四面体シートのケイ素、あるいはアルミニウム八面体シートのアルミニウムの一部が、正電荷量の少ない別の元素に置き換わると、シートで正電荷が不足⇒**負電荷**が発現⇒層間に**陽イオン**を保持

層内部を平面に対して垂直方向から見た図

フレイド・エッジ・サイト(FES)

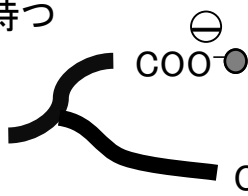
カリウム・セシウムイオンとほぼ同じ大きさの穴(六員環)が開いている



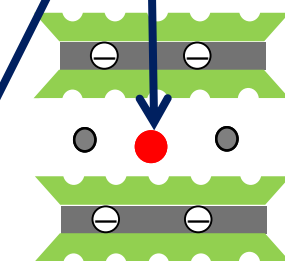
交換態

固定態

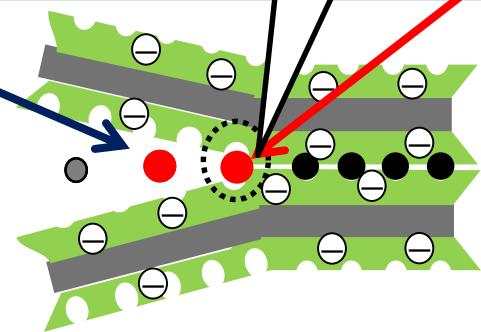
有機物の持つ負電荷



粘土鉱物構造末端等の持つ負電荷



スメクタイト



風化雲母
バーミキュライト
イライト

セシウム保持力
時間の経過

弱い

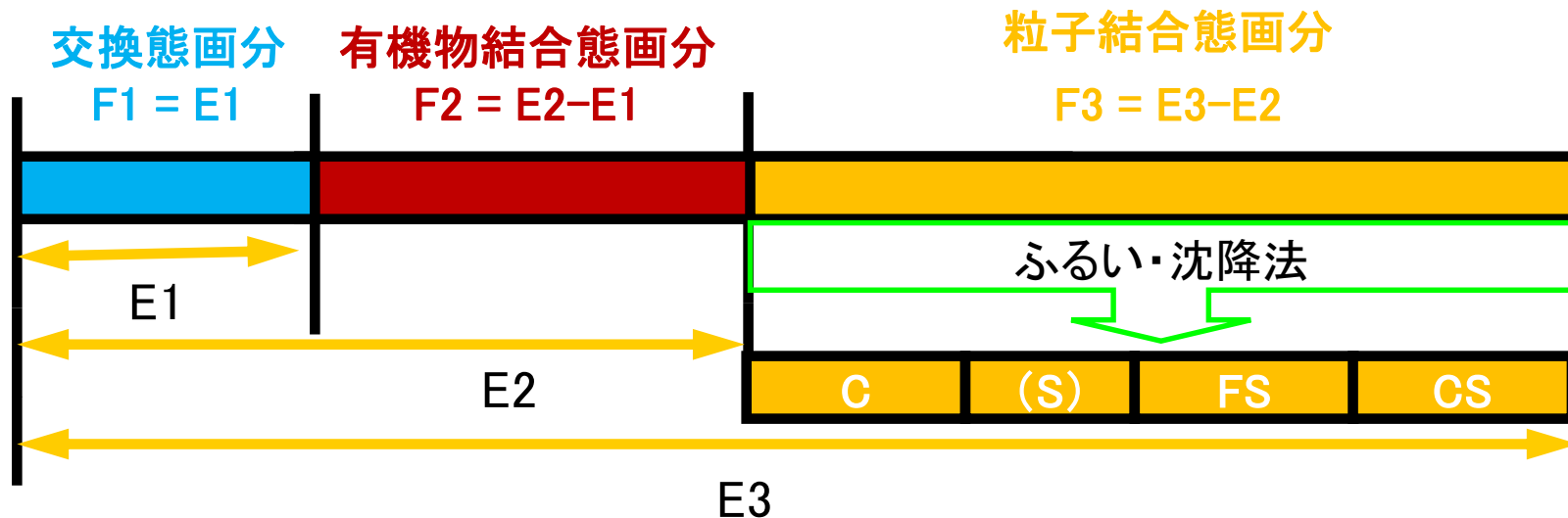
中間

強い



2:1型層状ケイ酸塩鉱物

土壤における放射性 ^{137}Cs および ^{90}Sr の存在画分の分析



抽出形態画分

- E1: 1M酢酸アンモニウム
- E2: 過酸化水素+硝酸+酢酸アンモニウム
- E3: 全濃度

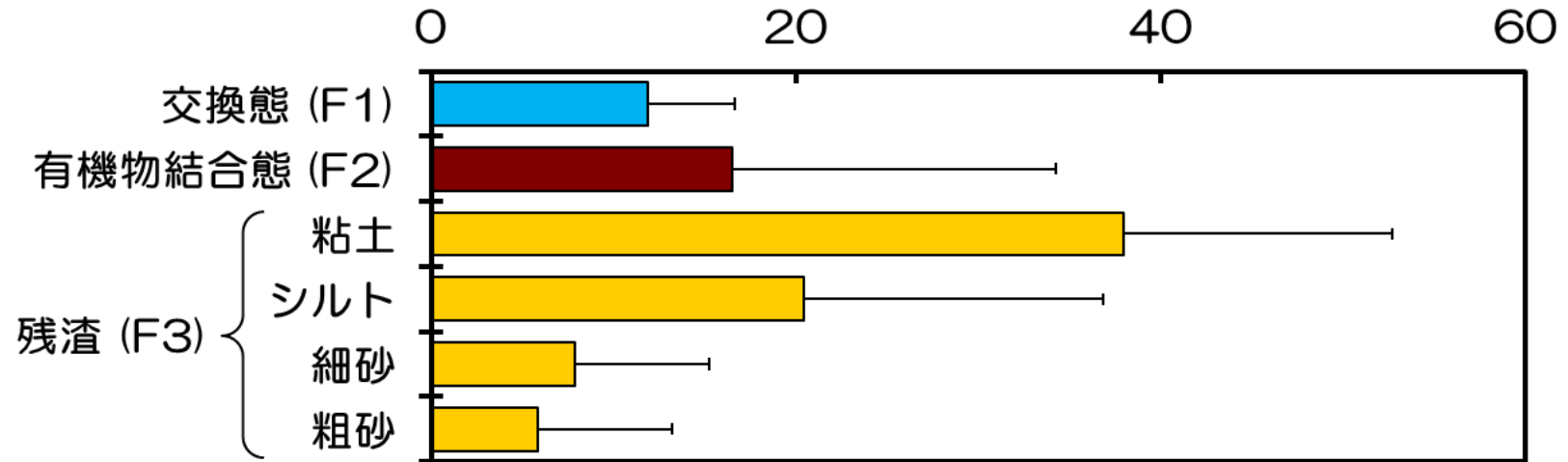
粒径分布

- C: 粘土 (<0.002 mm)
- S: シルト (0.002~0.02 mm)
- FS: 細砂 (0.02~0.2 mm)
- CS: 粗砂 (0.2~2 mm)

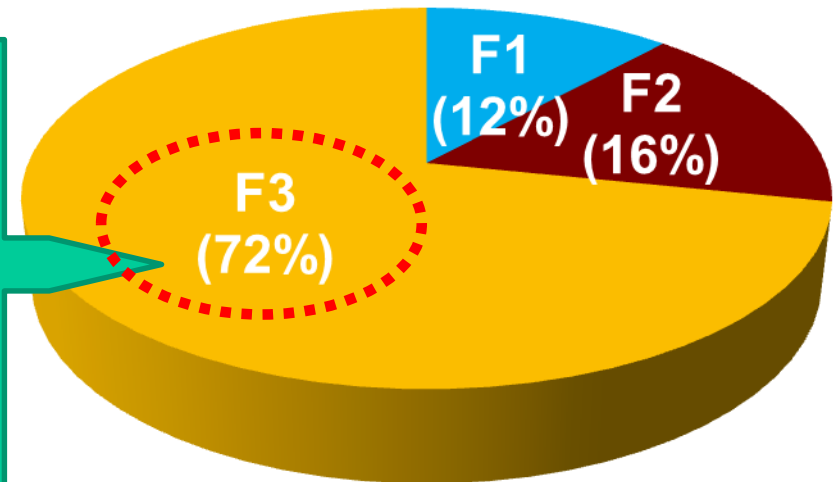
土壤中フォールアウト ^{137}Cs の存在形態

分析土壌：11試料

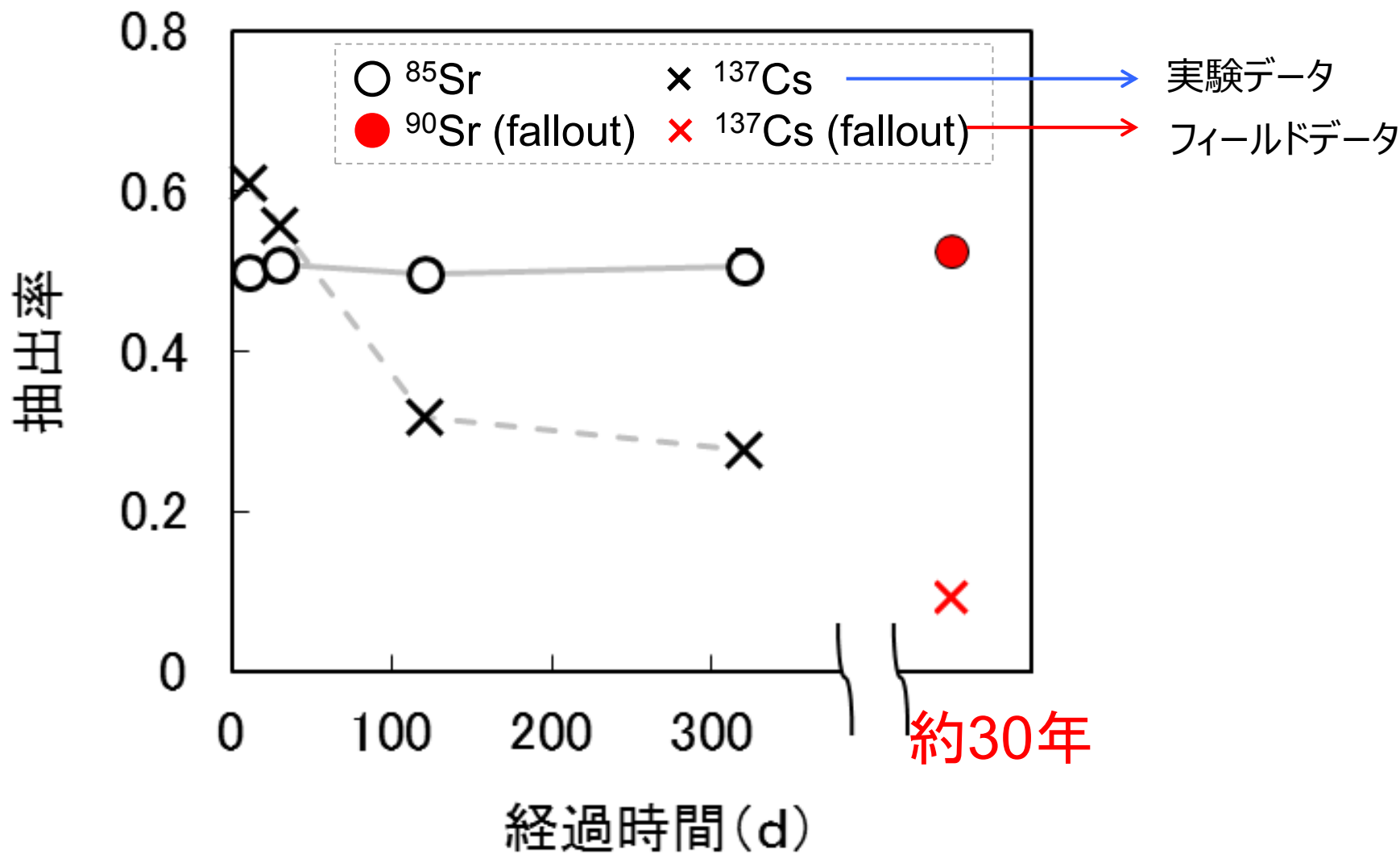
土壤中 ^{137}Cs の存在割合 (%)



残渣画分中に存在する放射性セシウムは、強固に結合しており、水への溶出は難しく、植物への移行も困難である。

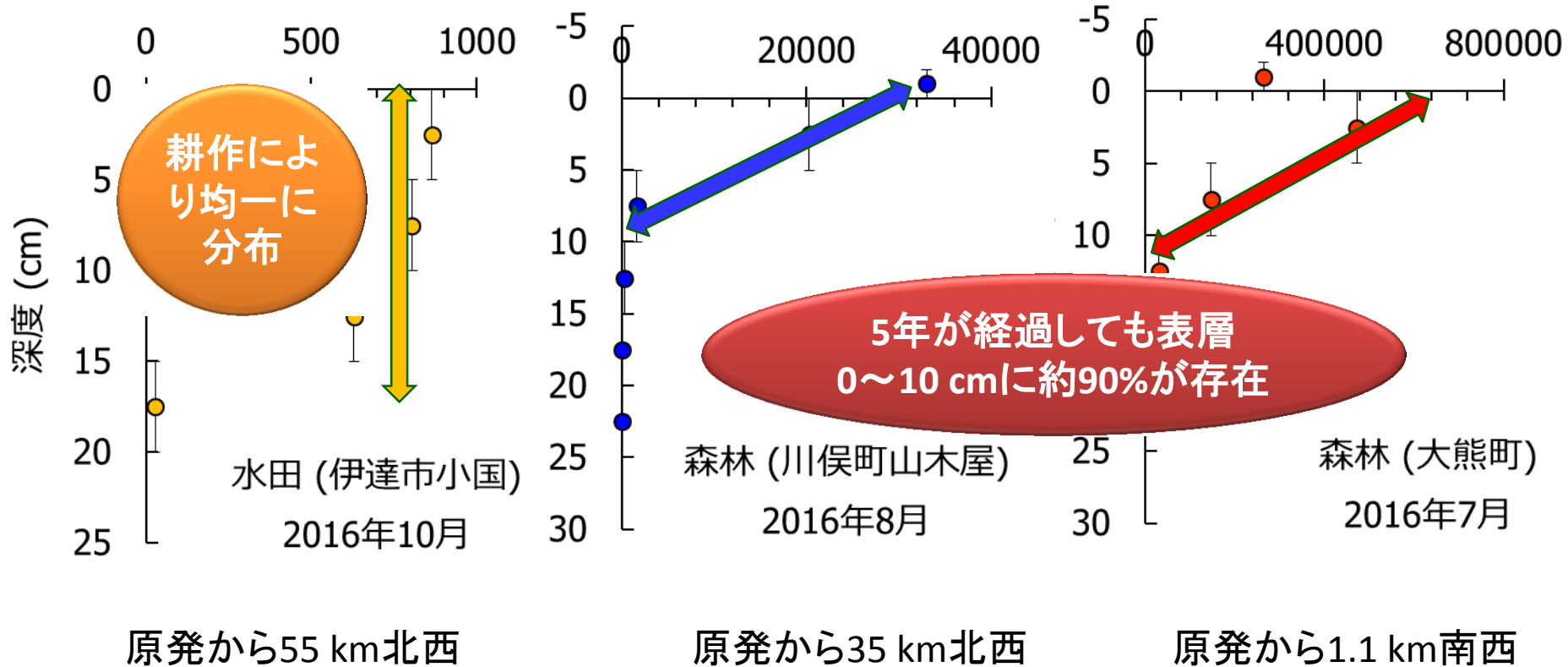


添加した ^{85}Sr および ^{137}Cs 、ならびに大気圏核実験由来の ^{90}Sr および ^{137}Cs の1 M酢酸アンモニウムによる無施肥土壌からの抽出率の経時変化

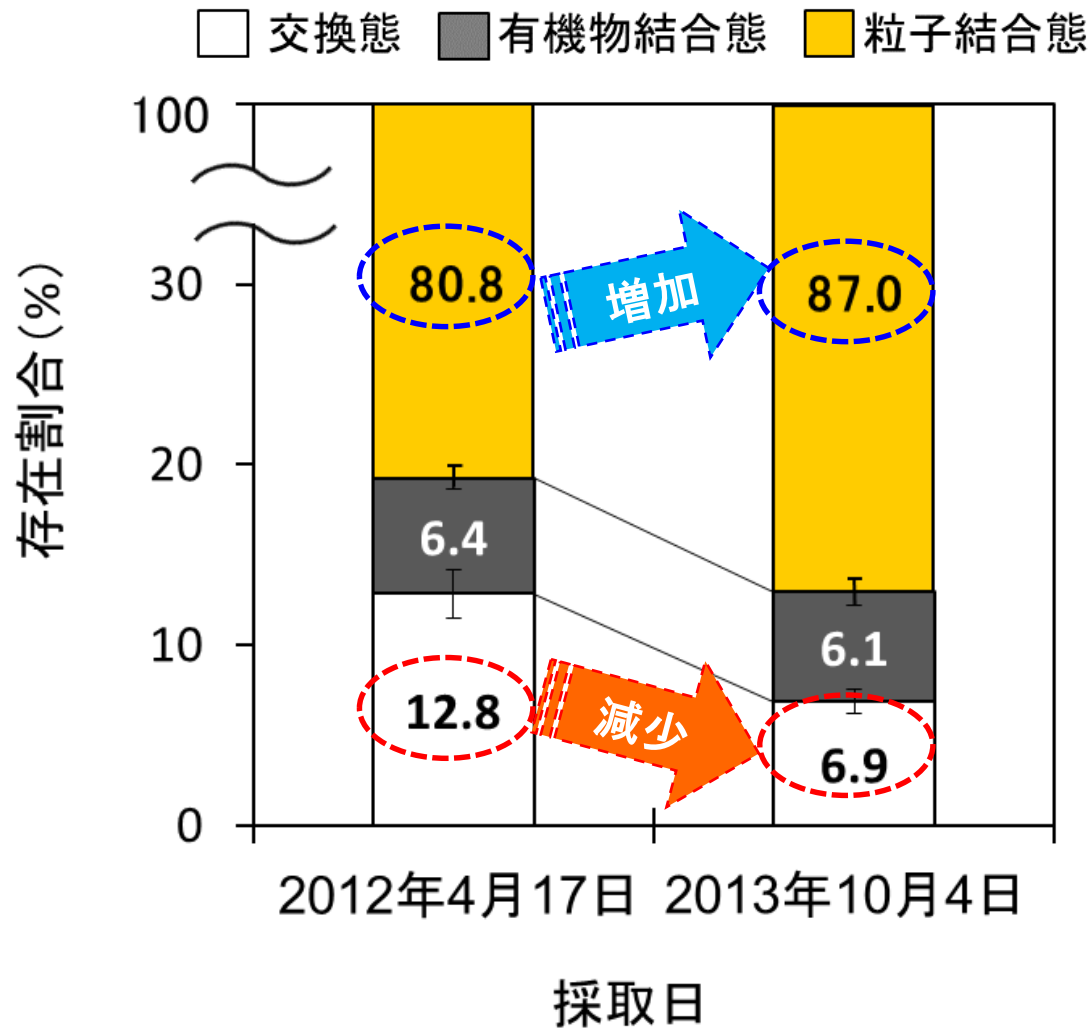


東電福島第一原発事故から5年後の耕作地と未耕作地における放射性 ^{137}Cs の鉛直分布

土壌における ^{137}Cs 濃度の鉛直分布 (Bq/kg)



土壤中形態別¹³⁷Csの存在割合の経時変化 (採取地点:福島県伊達市小国)



“交換態”とは: 作物に移行する可能性のある存在形態

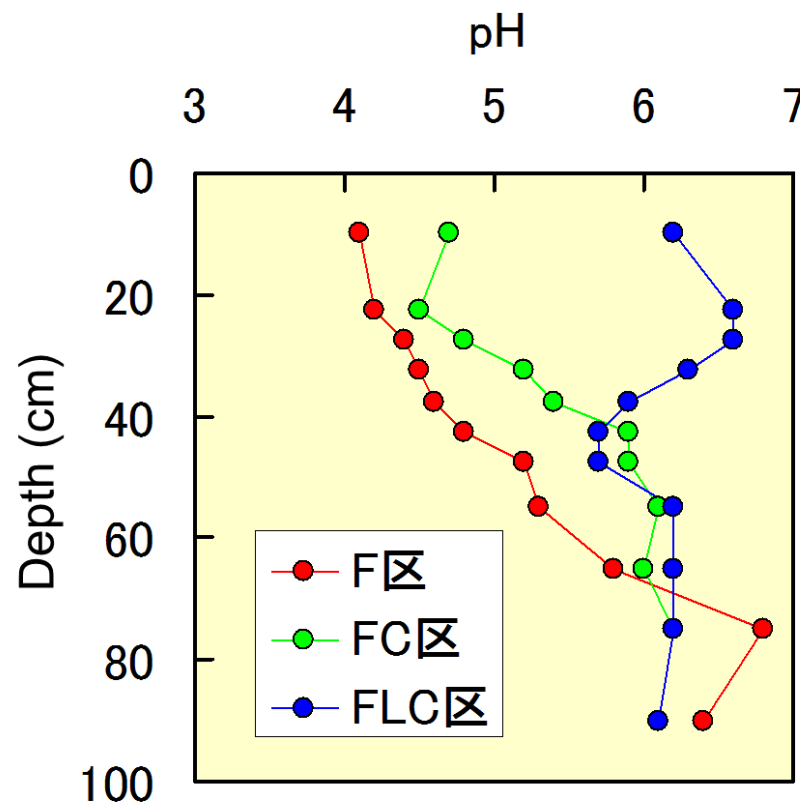
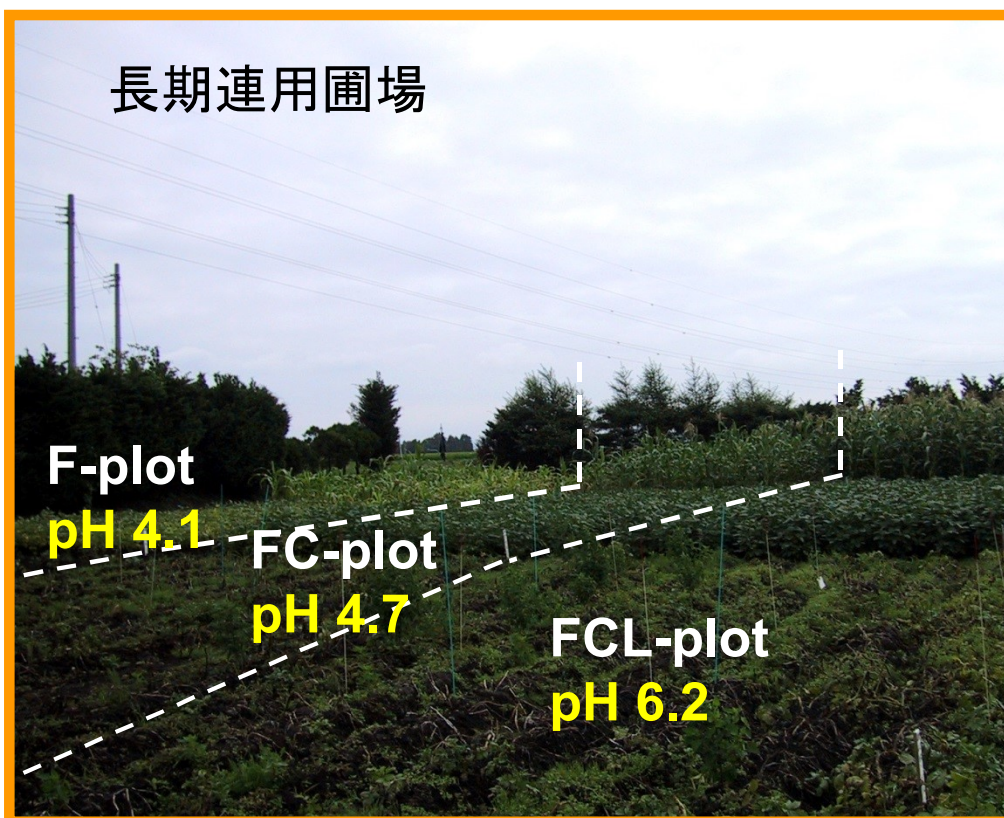
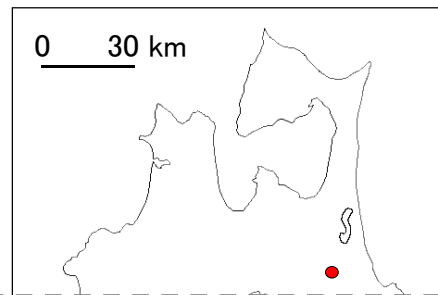
土壌の酸性化でセシウムは移動しやすくなるか？

長期連用試験区(十和田藤坂、設定1940, 2001年8月試料採取)

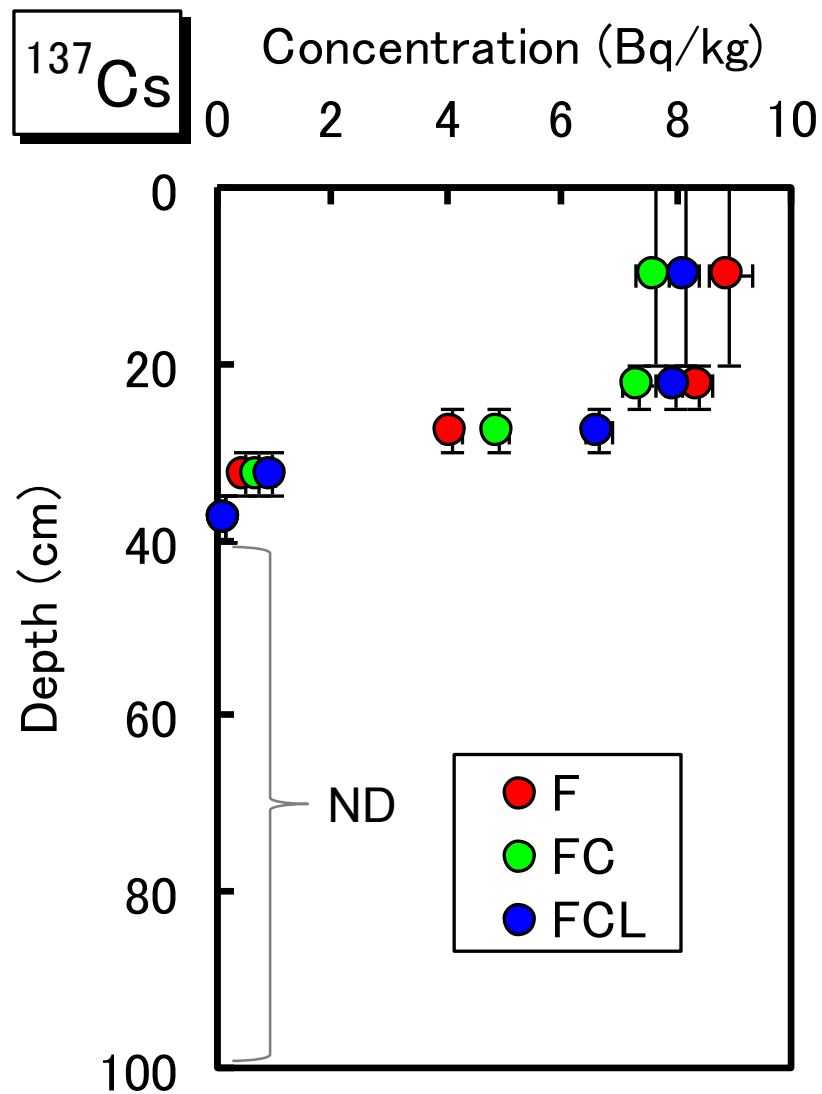
F-plot(化学肥料, N:P:K = 12:15:10 g m⁻² y⁻¹)

FC-plot(化学肥料+堆肥, 1100 g m⁻² y⁻¹)

FCL-plot(化学肥料+堆肥+石灰, 75 g m⁻² y⁻¹)



藤坂連用圃場土壌における ^{137}Cs 濃度の鉛直分布

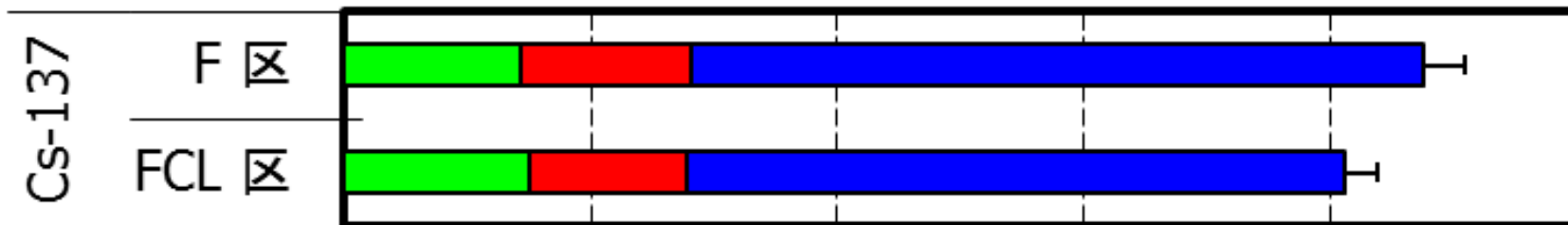


藤坂連用圃場の表層土壌における¹³⁷Csの存在形態分布

■ 交換態画分 ■ 有機物結合態画分 ■ 粒子結合態画分

濃度 (Bq/kg)

0 2 4 6 8 10



F区, pH 4.1; FCL区, pH 6.2

放射性セシウム捕捉ポテンシャル (Radiocesium Interception Potential, RIP)

$$\text{RIP (mmol/kg)} = K_c^{\text{EFS}}(\text{Cs-K}) \times [\text{FES}]$$

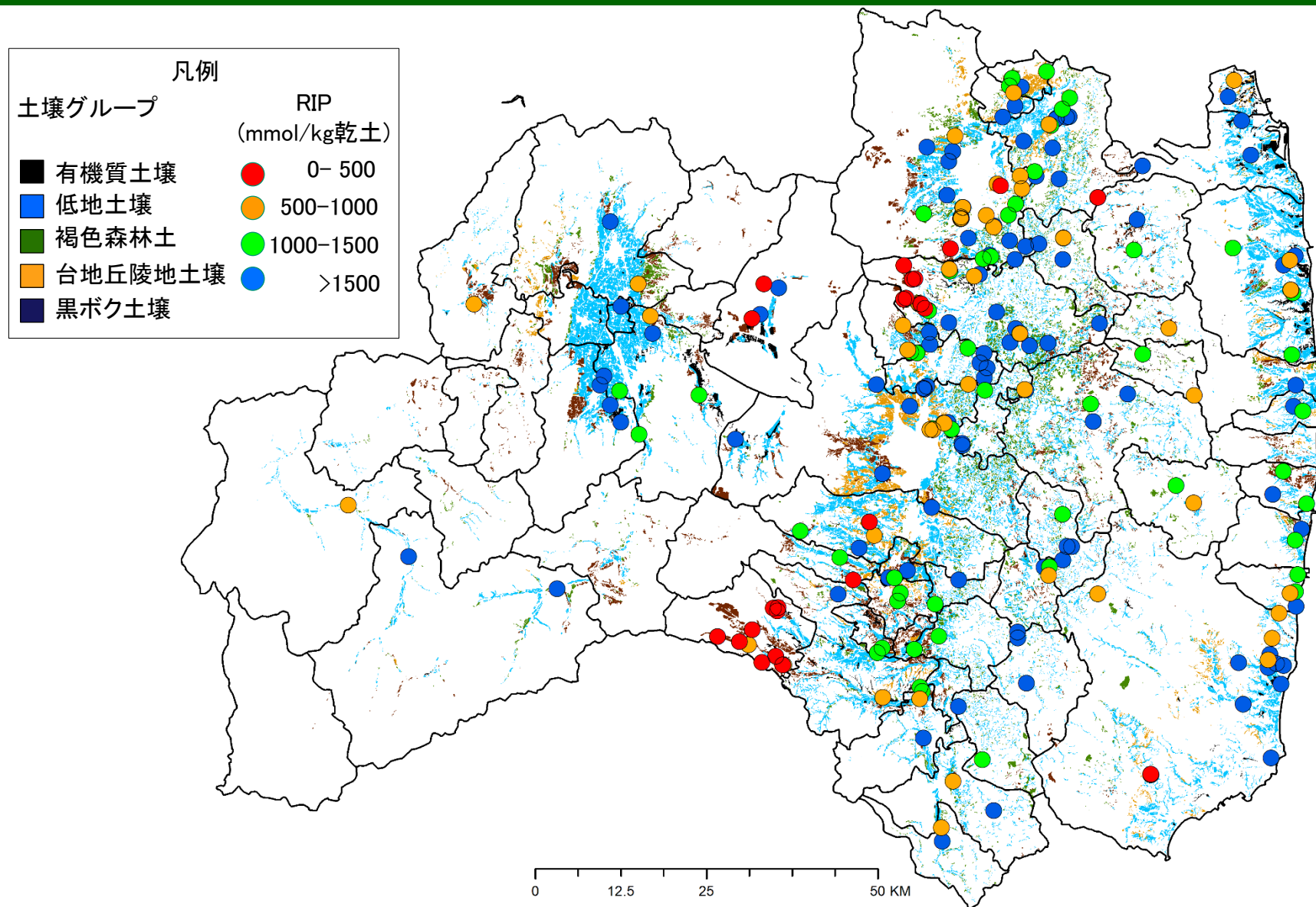
フレイド・エッジにおける
CsのKに対する吸着選
択係数

土壌1 kg当り
のフレイド・
エッジ量

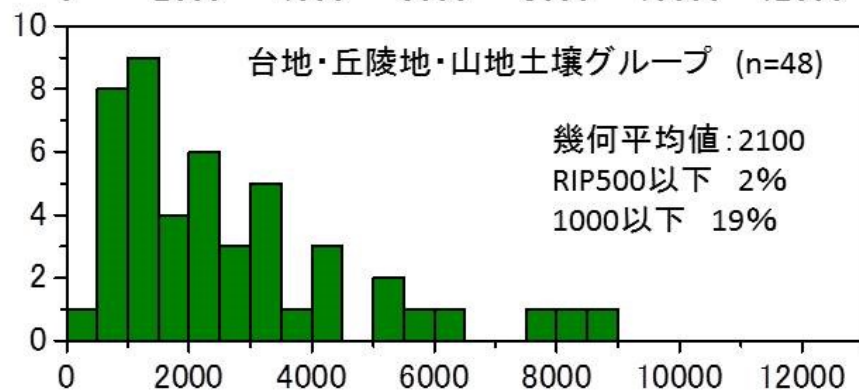
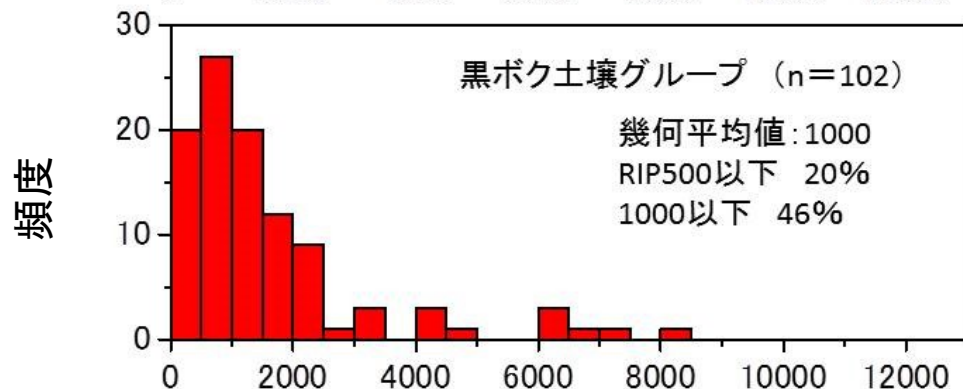
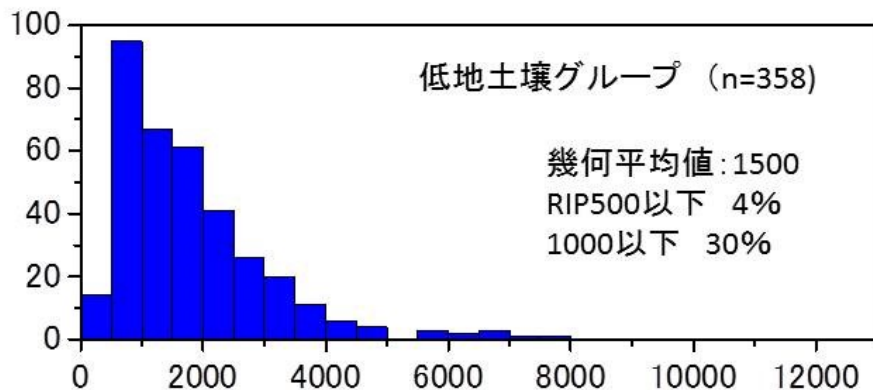
RIP値は、土壌における放射性Cs保持力の脆弱性を示す指標であり、値が大きいほど捕捉する能力が大きく、値が小さければ捕捉力が弱い。

(Cremers et al., 1988; Wauters et al., 1996)

福島県の農地土壌におけるRIPの分布および農地土壌図 (農環研との共同研究)



福島県の土壌グループ別RIP値の頻度



RIP (mmol kg⁻¹)

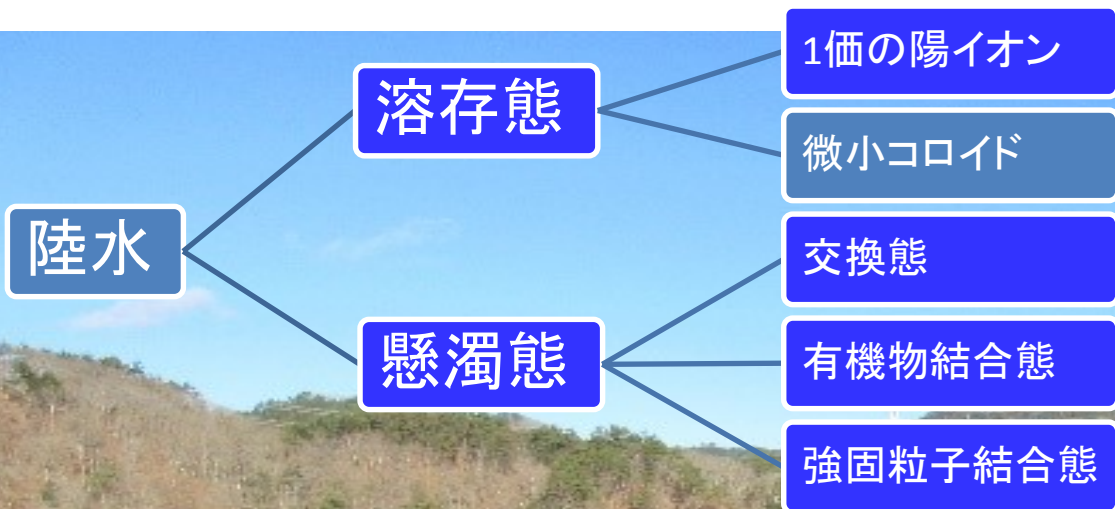
土壌グループ	RIP (mmol kg ⁻¹)
低地土壌	1,900 ± 1,500 (n=358)
黒ボク土壌	1,600 ± 1,600 (n=102)
その他	2,800 ± 2,300 (n=48)

500 mmol kg⁻¹以下の土壌は、黒ボク土壌グループで多い



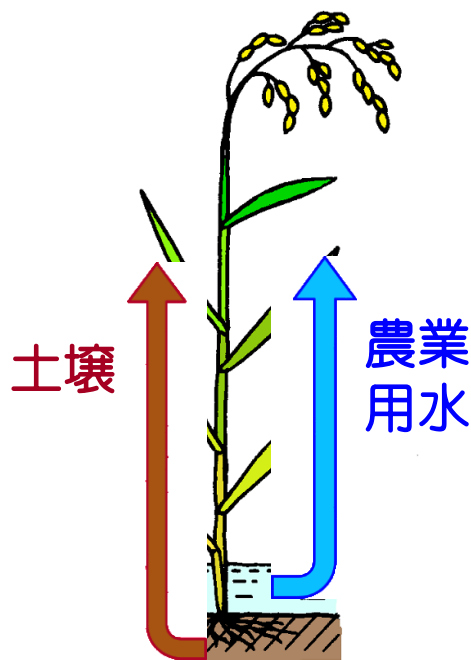
安心して営農継続のためには、資材の施用が必要

陸水における放射性セシウム



水と土壌から玄米への放射性セシウム（Cs）の移行

土壌から玄米への移行率に比べ、**農業用水からの放射性Csの移行率は高い**



移行率は10,000倍の差

農業用水から玄米への移行率
(玄米中濃度 (Bq/kg) / 水中濃度 (Bq/L))
~10 (ポット栽培試験からの予測値、溶存態)

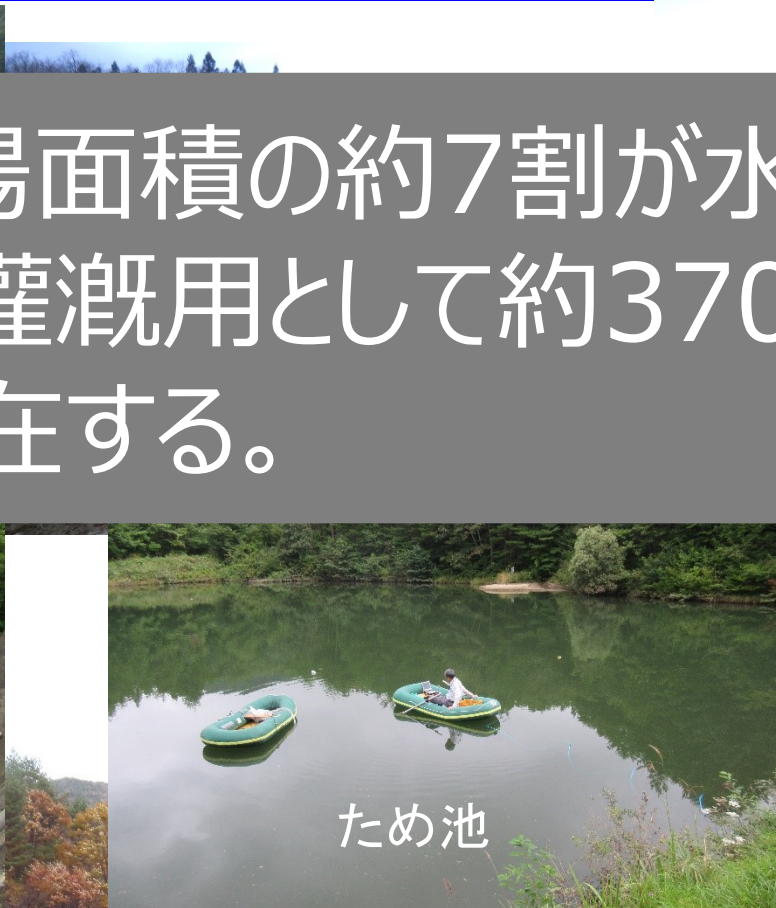
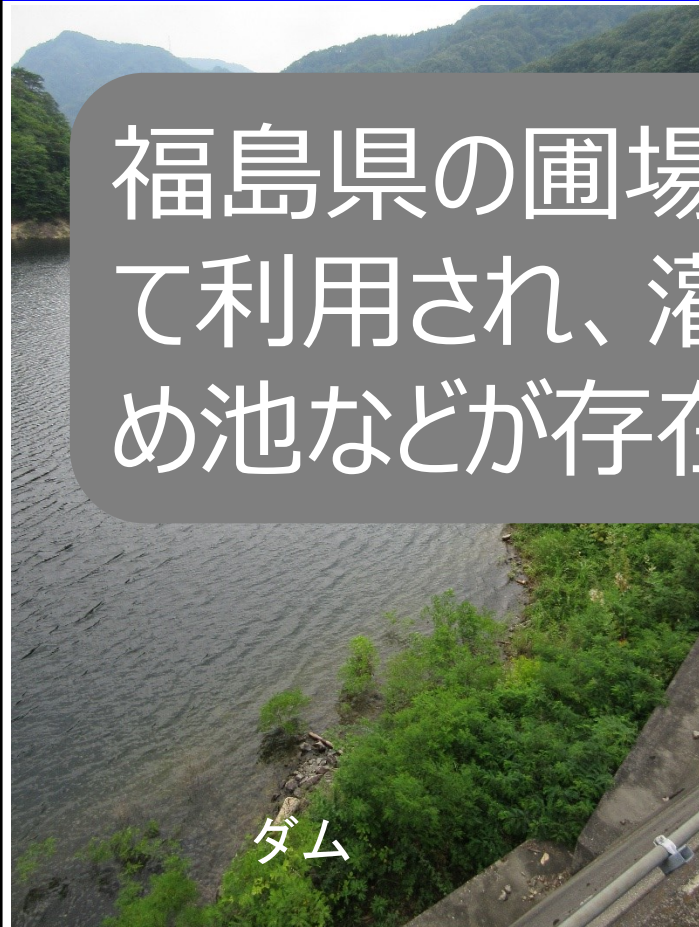


土壌から玄米への移行率 (移行係数)
(玄米中濃度 (Bq/kg) / 土壌中濃度 (Bq/kg))
~0.001 (伊達市小国の実測値)

うわ根

農業用ダム、ため池、河川

福島県の圃場面積の約7割が水田として利用され、灌漑用として約3700のため池などが存在する。



陸水中放射性セシウム分離と形態分析

陸水試料

ろ過 (0.45 μm , 40 L)

ろ液

ろ過液中存在形態

溶存態 (TD) Csラドディスク (3M)
(蒸発濃縮)

溶存無機態 (D_{inorg}) 微小コロイド (D_{org} = TD - D_{inorg})

連続高速遠心分離 (2000~4000 L)

懸濁物質

懸濁物質中存在形態

粒子態 (SM)

懸濁物質の形態分析 (逐次抽出法)

- ① 交換態 (SM_{ex})
 - ② 有機物結合態 (SM_{org})
 - ③ 粒子結合態 (SM_{part})
- (SM = SM_{ex} + SM_{org} + SM_{part})

伊達市小国の試料採取地点

平成23年度：玄米中放射性セシウム濃度が一部の圃場で500 Bq/kgを超え

平成24年度：作付禁止

平成25年度：作付再開 → 玄米中放射性セシウム濃度は基準値(100 Bq/kg)を大きく下回る(福島大学の調査結果：平均値 8.0 Bq/kg, n=29)



連続遠心分離法による懸濁物質の採取

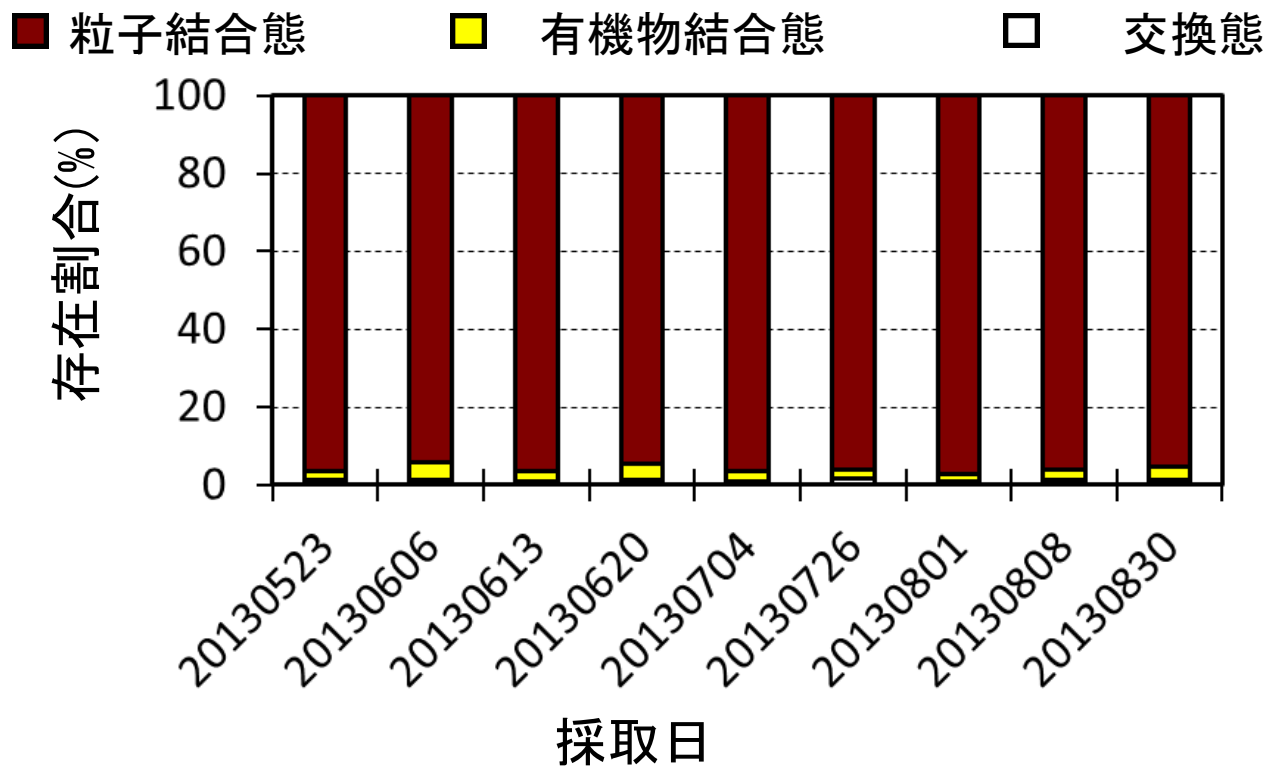
高速遠心分離法によって農業
用水中懸濁物質を採取



捕集時間: 4~6時間
ろ過流量: 12.5 L/min
捕集量 : 2~20 g



伊達市小国における灌漑水懸濁態¹³⁷Csの形態別存在割合



存在割合(%)	平均値	最小値		最大値
□ 交換態	1.2	0.90	—	1.5
■ 有機物結合態	2.9	1.8	—	4.5
■ 粒子結合態	96	94	—	97

→ 水への溶解もなく植物へ移行しない

80 km圏内における農業用水の調査地点 (n=54)

採取地点

市町村区分

南相馬市(16)、飯館村(13)、富岡町(5)、浪江町(5)、双葉町(5)、大熊町(4)、郡山市、相馬市、伊達市、二本松市、川内村、楡葉町の54地点

利用区分

ため池(42)、ダム(2)、河川(10)

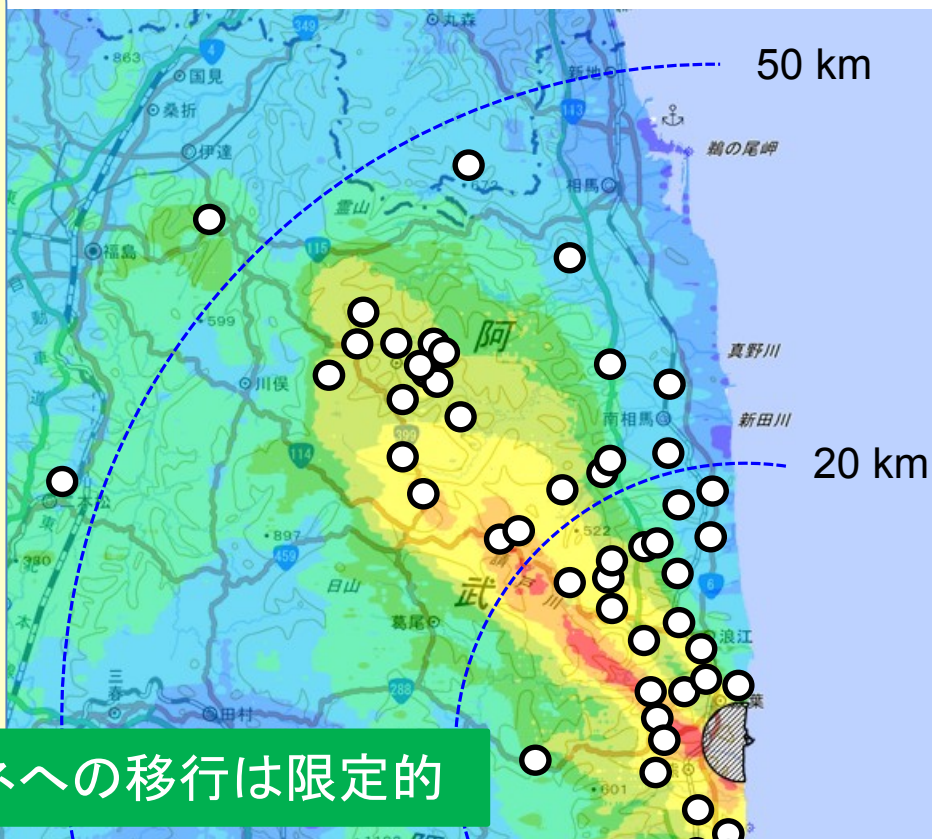
原発からの距離

50 km圏内, 51地点; 20 km圏内, 27地点

採取時期

2014/4/7~2014/10/16

懸濁態からのイネへの移行は限定的

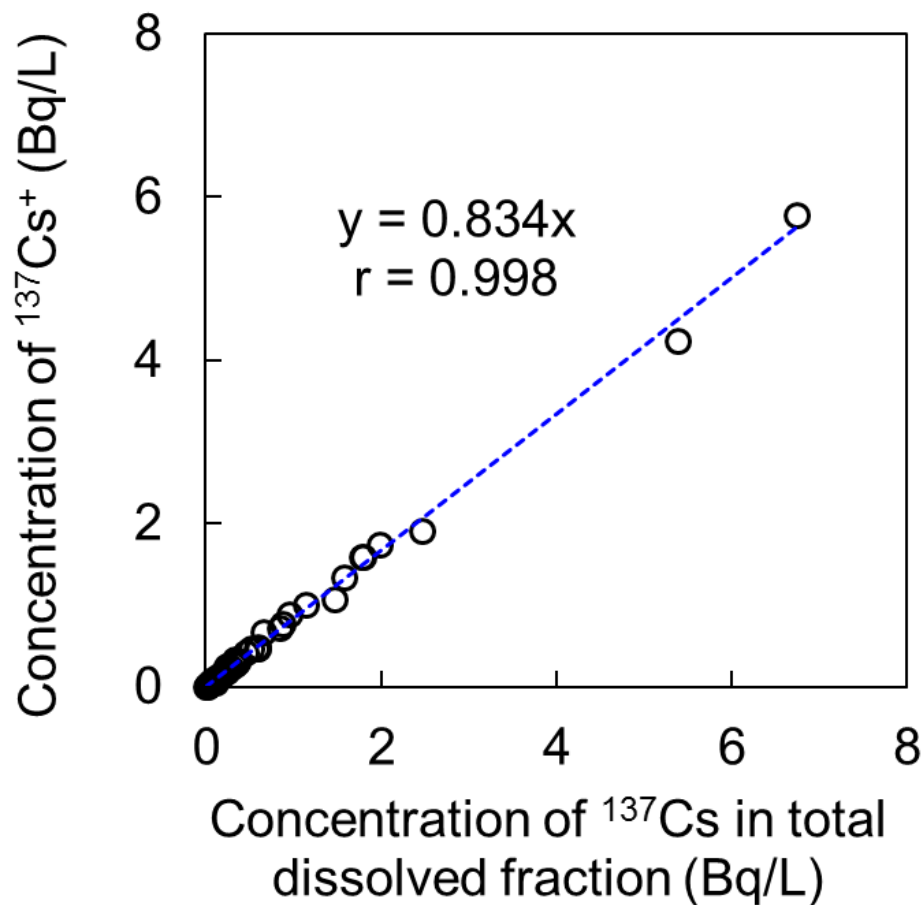


	サンプル数	算術平均値	最小値	最大値
懸濁態 (Bq/L)	54	0.67 ± 2.1	0.0068	15
溶存態 (Bq/L)	54	0.66 ± 1.2	0.0075	6.7

イネ中放射性セシウム濃度が70 Bq/kg

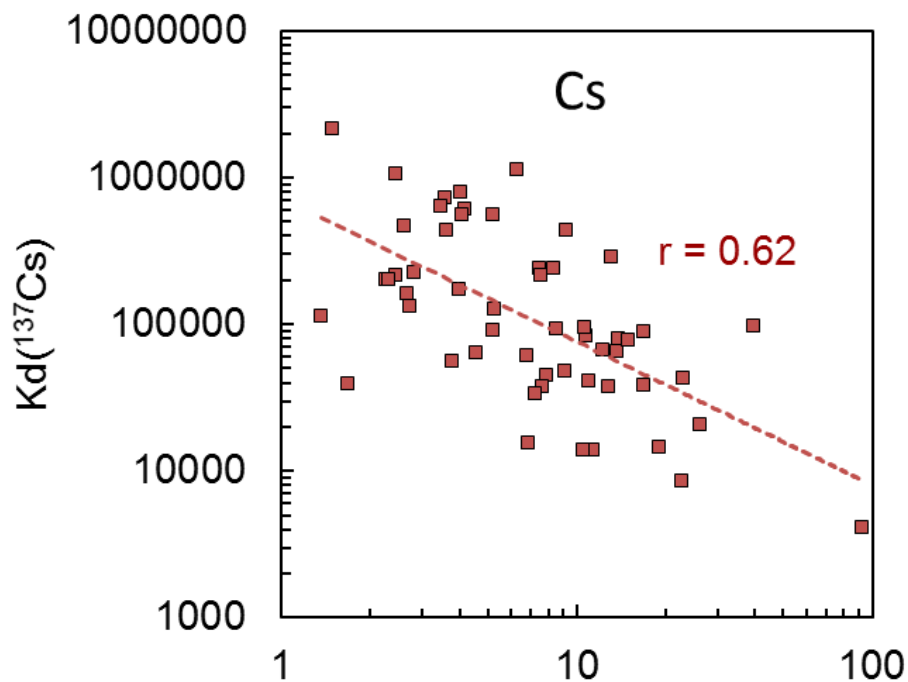
大熊町
(原発立地)

FDNPSから80 km圏内における溶存態 ^{137}Cs 濃度と $^{137}\text{Cs}^+$ 濃度の関係

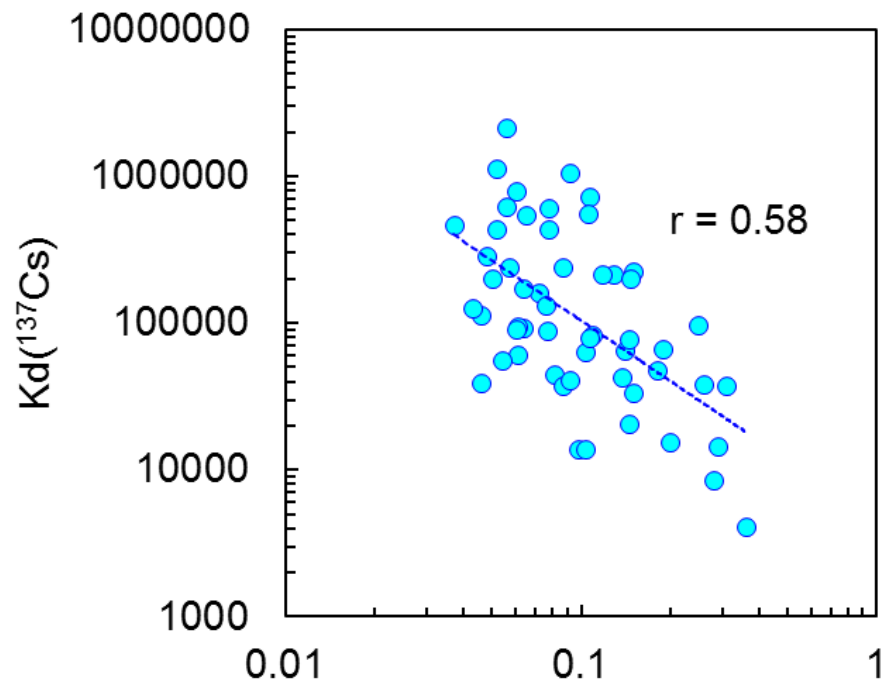


溶存態 ^{137}Cs 濃度に対する $^{137}\text{Cs}^+$ 濃度の比: 0.88 ± 0.15

安定 ^{133}Cs 、主要元素、電気伝導率と K_d 値の関係

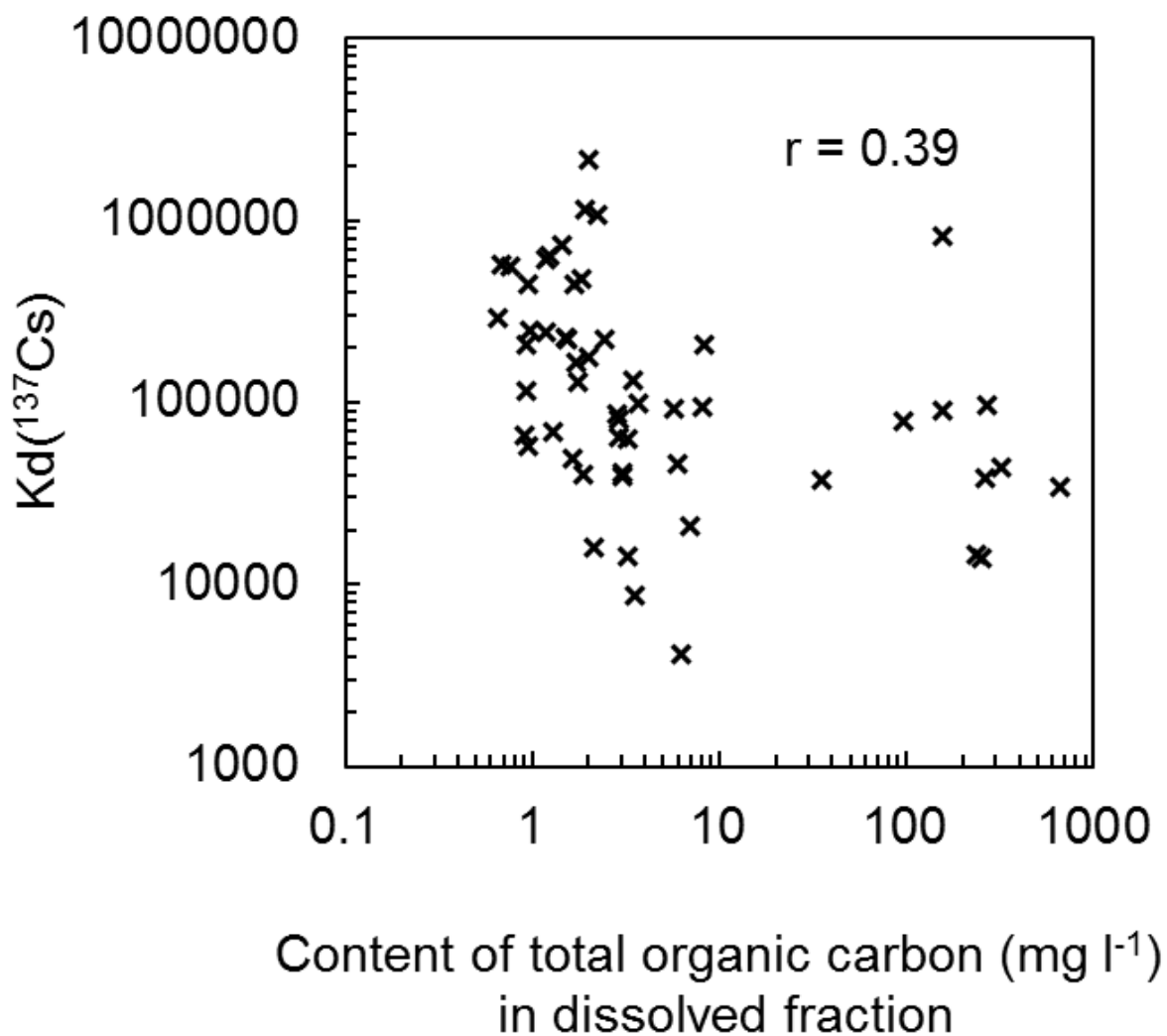


Concentrations of stable Cs (ng/L) in dissolved fraction



Electric conductivity (mS/cm) in dissolved fraction

溶存態炭素とKd値の関係



まとめ

- ✓ 環境中での放射性セシウムの挙動を理解するためには、存在形態の情報が不可欠である。
- ✓ 土壌中では、交換態、有機物結合態および強固結合態として存在する。そのうち強固結合態で多く存在し、粘土鉱物の特異的な層間であるフレイド・エッジに強く吸着しており、水への溶出、植物への移行はきわめて限定的である。
- ✓ 水中では、懸濁態および溶存態として存在する。懸濁態では、交換態、有機物結合態および強固結合態として存在している。溶存態としては、1価の陽イオンと微小なコロイドとして存在しているが、多くが陽イオンとして存在する。

ご清聴ありがとうございました
*Thank you very much
for your attention!*

