

放射性セシウムは土壌中でどう振舞うか

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



色が違う
色々な土がある
鉱物・母岩
有機物含量
団粒,
化学性,
……性質が異なる
土は地域性が強い

土のコレクション(フレーベル館から)

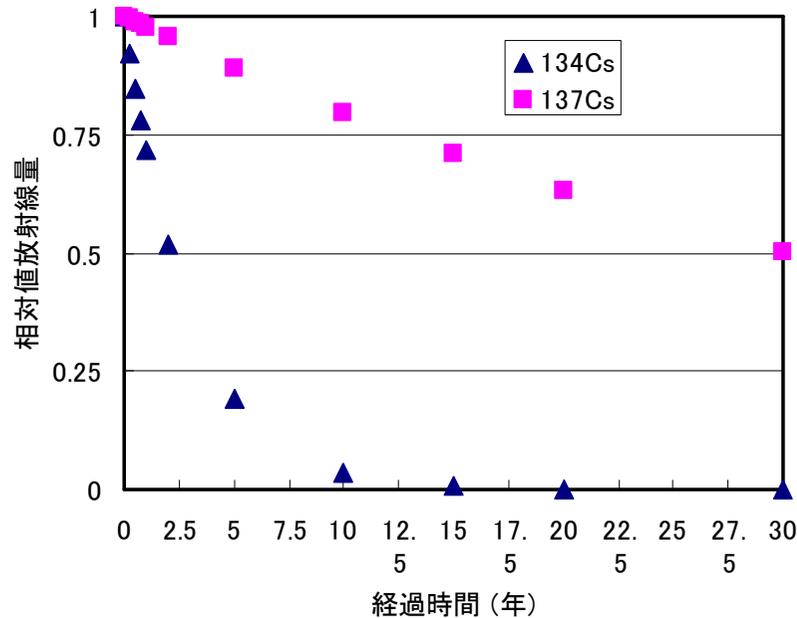
スライドの構成

1. 放射性物質の土への吸着と移動
2. なぜ粘土にCsはよく吸着するのか？

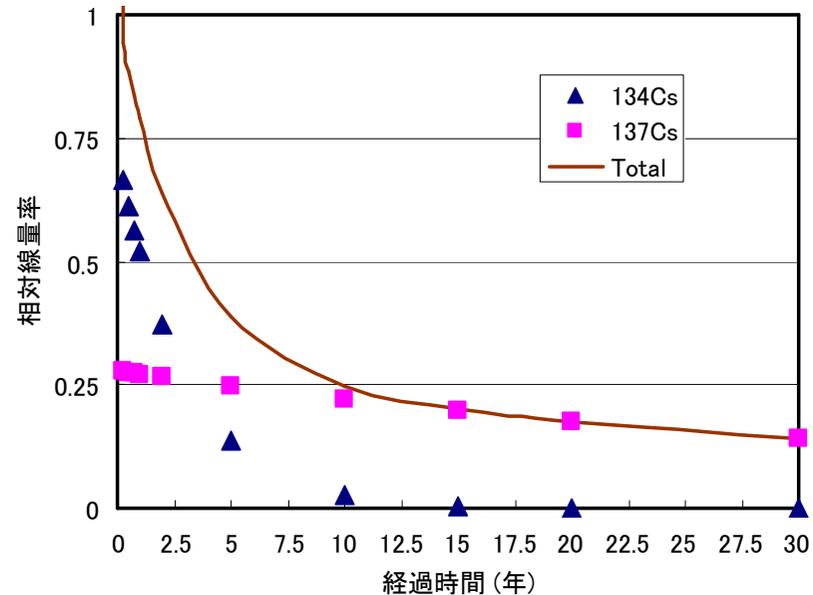
拡散先の多くが農村や中山間農林地帯



何が問題となるか？



放射性 ^{134}Cs (半減期2.1年)と ^{137}Cs (半減期30.1年)の減衰



線量率の減衰と線量率に占める ^{134}Cs (半減期2.1年)と ^{137}Cs (半減期30.1年)割合

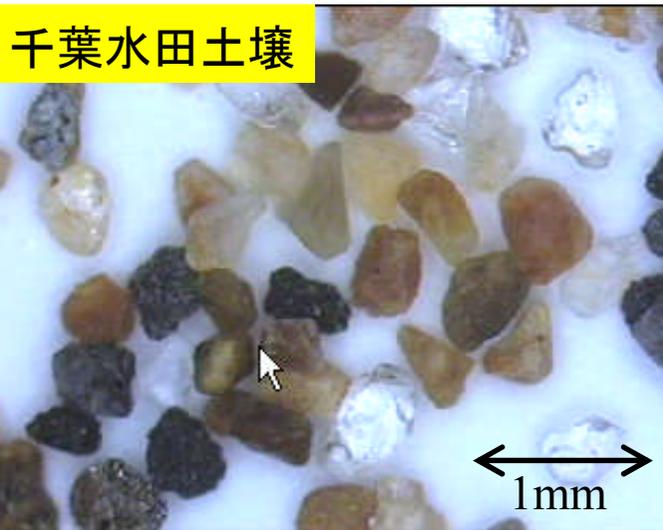
もっと半減期の短いもの: Te、I、Sb、。。。。

- 短期的には、半減期の短い ^{134}Cs や ^{131}I (半減期8.1日)の影響が大きいが、時間の経過と共に ^{137}Cs の影響が相対的に大きくなる。
- 4月以降に出芽してきた牧草にはほとんど放射性物質は無い(今後は直接汚染リスク少)
- 間接汚染における植物への移行係数は小さいとされるが、定量的な議論はさらに必要。また、感覚的には回避したい。
- 間接汚染抑制のために土壌汚染の対処が重要。
- 土壌に沈着した放射性Csはどうなるか？

すべての粒子は0.125~0.25mmの画分、レンズは75倍

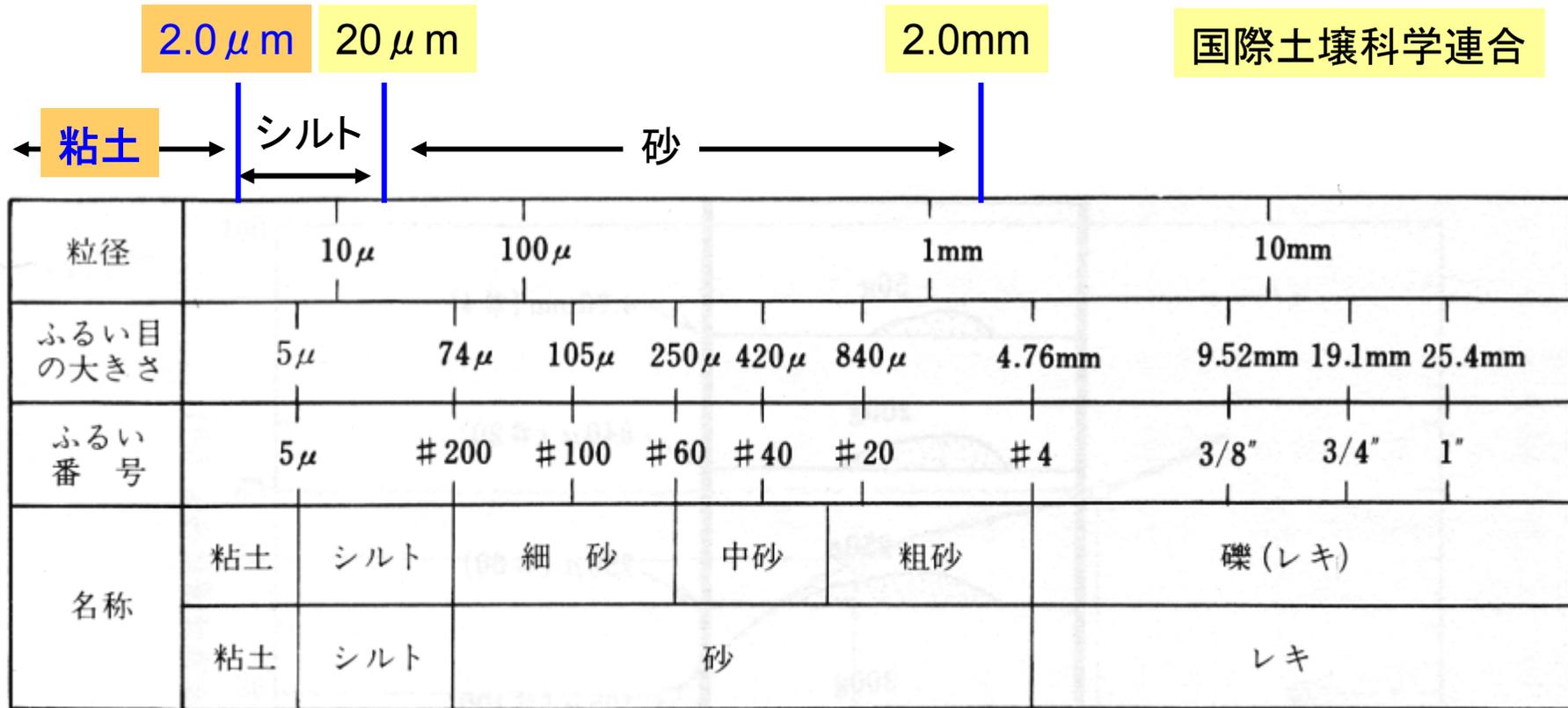


現場の土壌の様子
富山県富山市畑地



土壌を構成する粒子の様子

粒の大きさを整理する



国際土壌科学連合

1 μ (ミクロン)=10⁻³mm # : ふるい番号 " : インチ 1インチ=2.54cm

図 1.4 粒径の区分と名称 (統一分類法による)

土質力学第2版
石原研而著

粘土粒子: 細粒で反応性が高い

多くの場合, 負の荷電を帯び, 陽イオンを吸着し易い。

土壌中における化学物質の移動と吸着

液相の濃度に応じて吸着する

線形吸着 $C_{ads} = K \times C_{liq}$

Freundlich式 $C_{ads} = K \times C_{liq}^{\beta}$

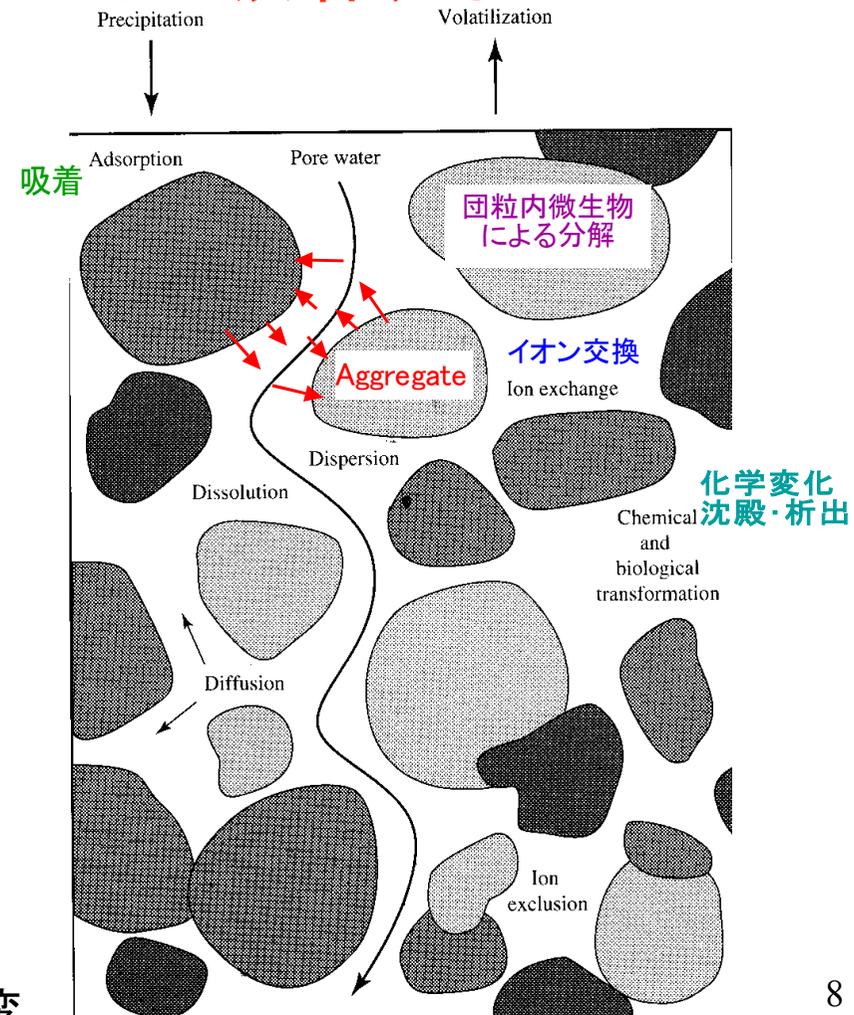
K, β : 定数

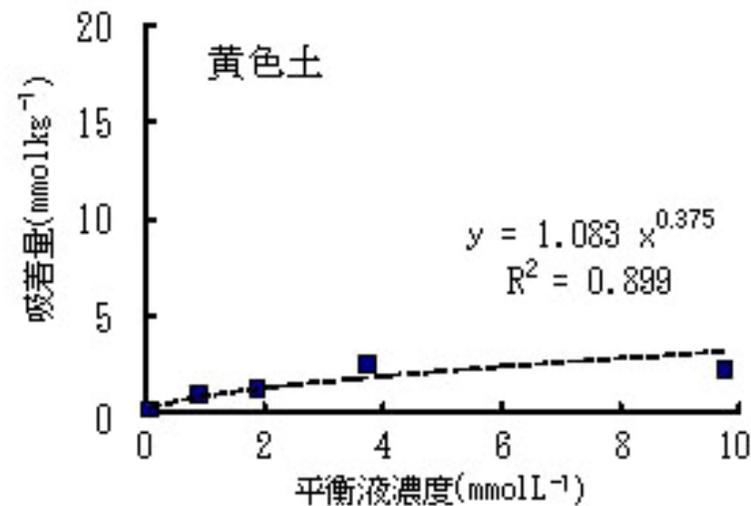
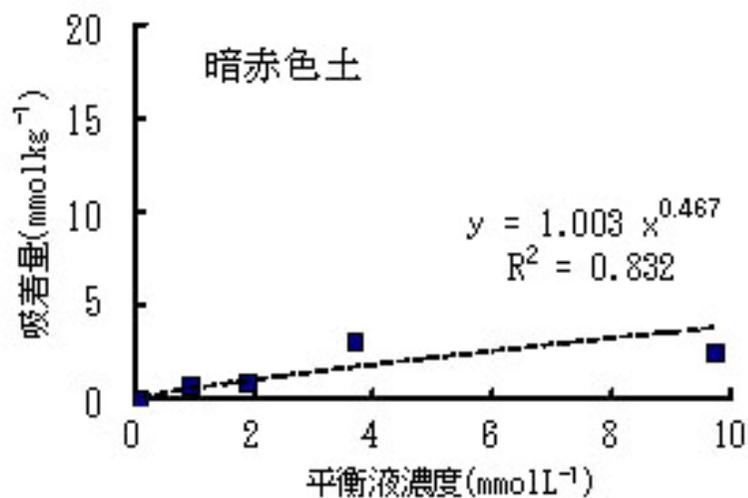
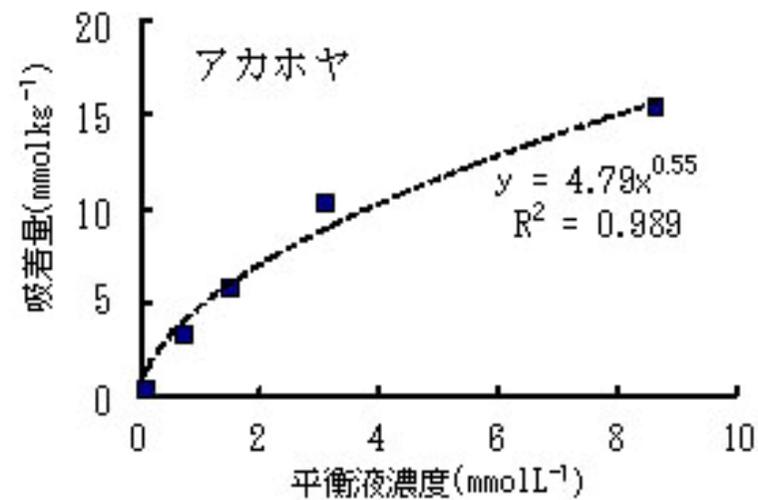
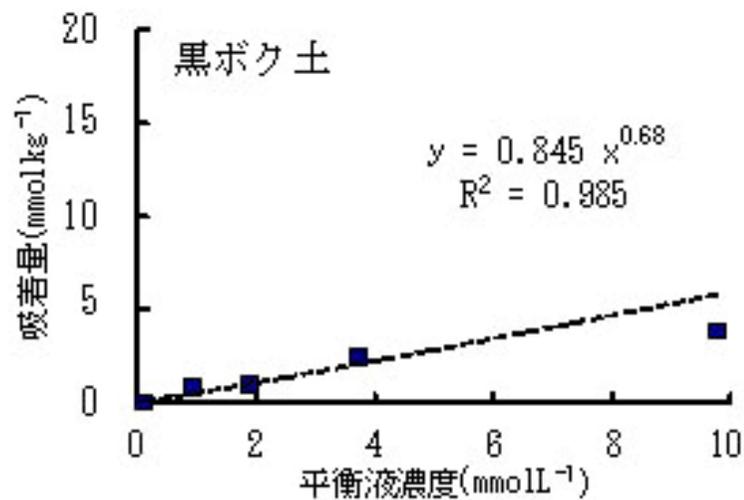
Kを特に分配係数と呼ぶ

C_{ads} : 吸着濃度

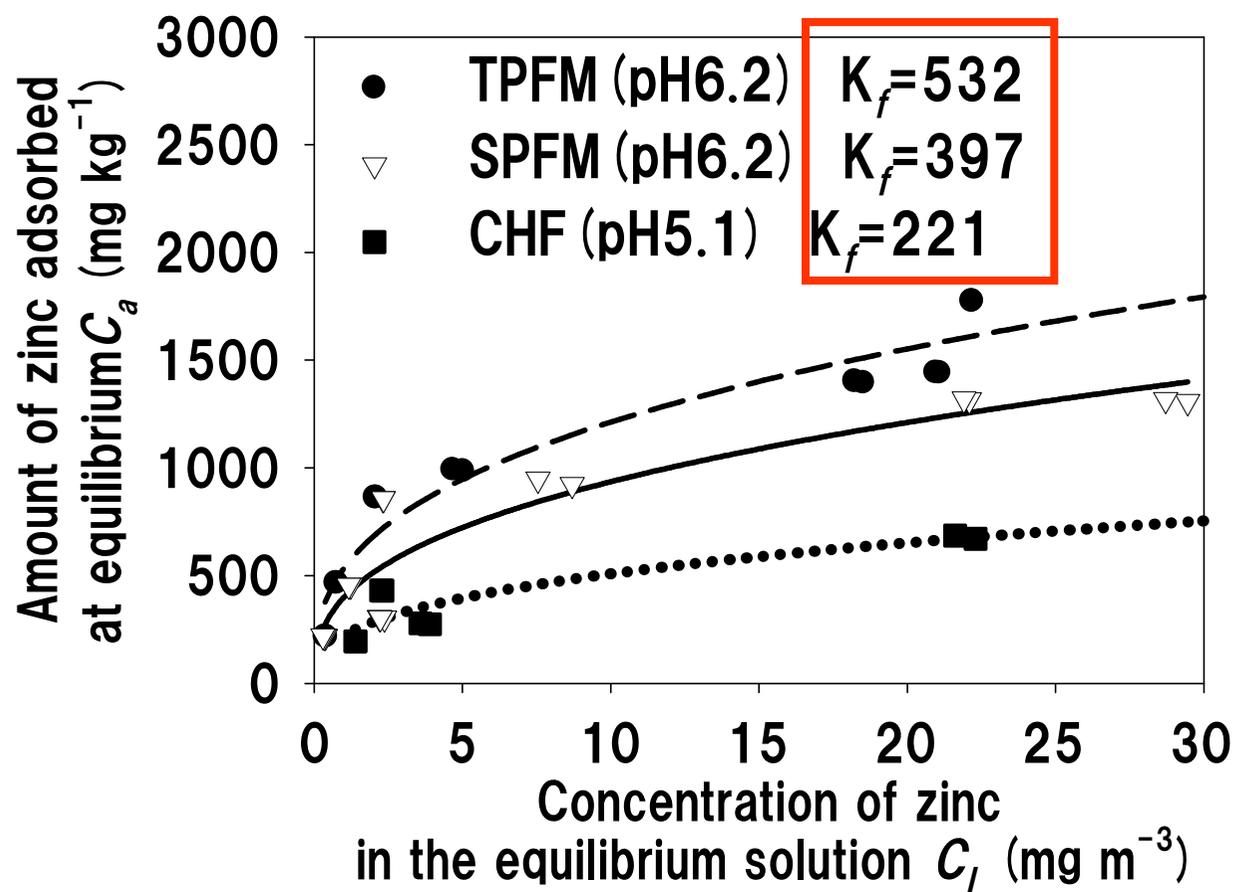
C_{liq} : 液相の濃度

Unsaturated Zone Hydrology by
J.A. Tindall&J.R. Kunkel, P274を改変





硝酸イオンの吸着(九州沖縄農業研究センターH19年成果から)
Xが液中濃度, 分配係数(K)≒1~5程度



金属イオン(特に重金属(Zn, Cu, Cdなど)は、非常に良く土壤に吸着し、Kが100を超える。(朝田,西村他, 2010)
 硝酸による地下水汚染とはまったく異なる現象になる。

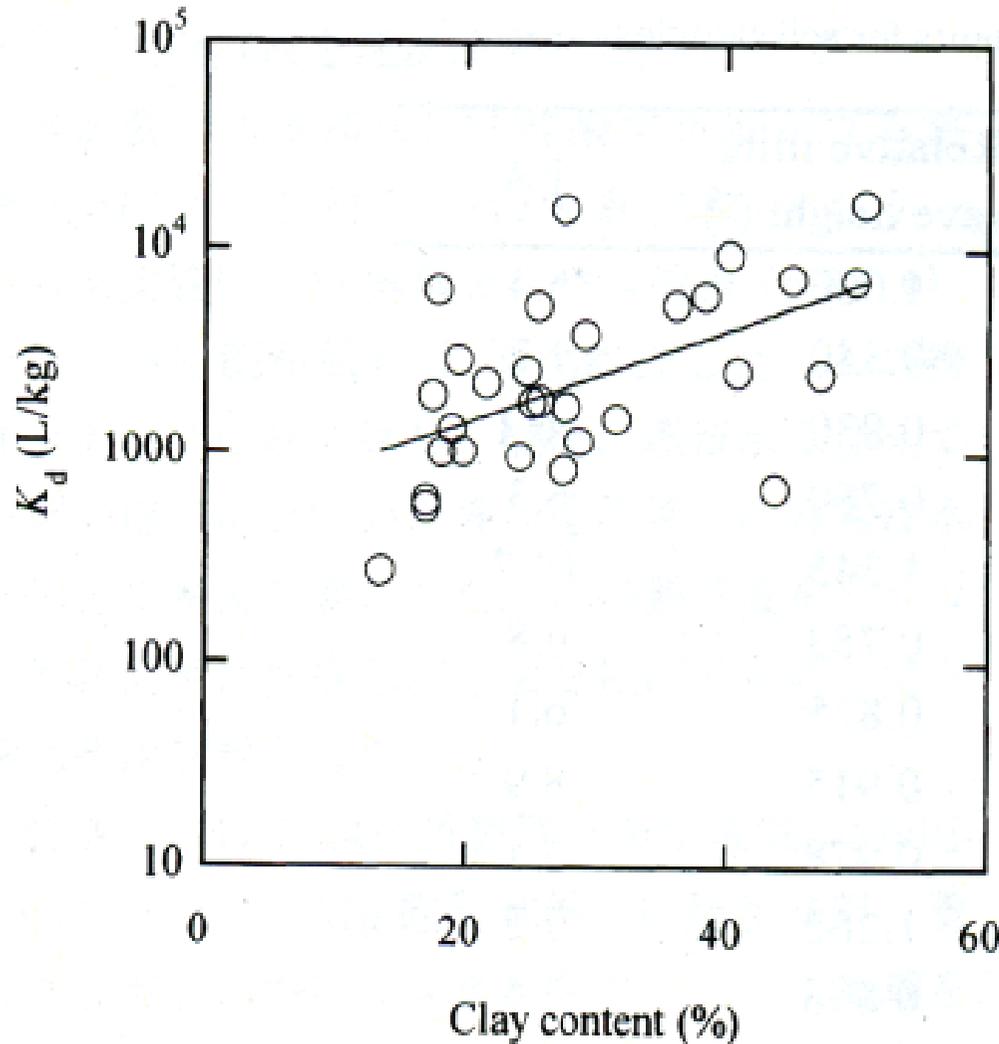


Fig. 2 Correlation between clay content and K_d ($R_c = 0.55, p < 0.005$).

Csは重金属と同程度もしくはそれ以上によく土壤に吸着する。

1000を超えることもある。

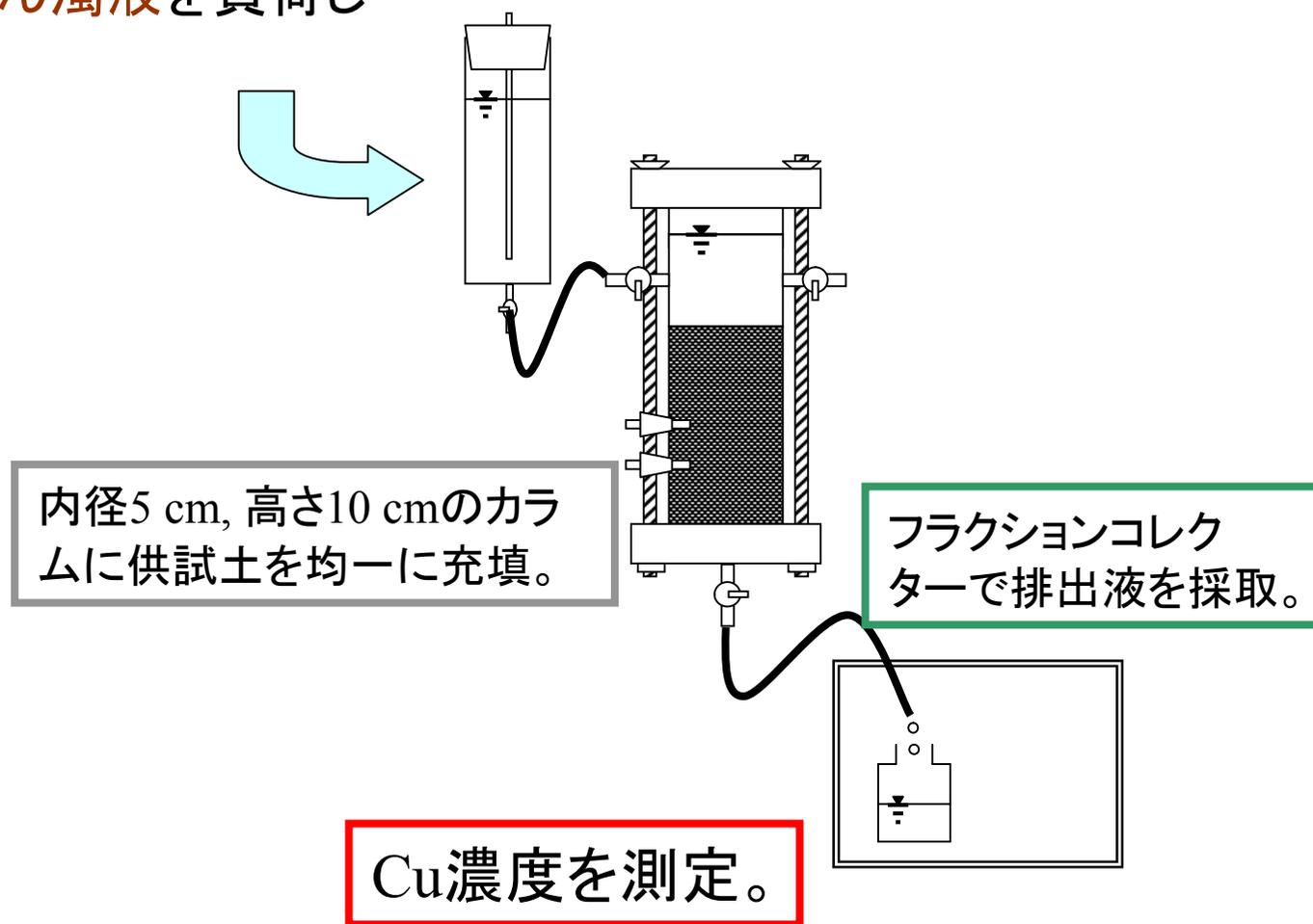
土の方で5000Bq/kgのとき分配係数が1000L/kgとするとイオン交換平衡状態では、水に、約5Bq/L程度の放射性Csが存在することになる。

土壤がある限り、水溶性の形態の移動は、小さいと考えられる。

郡山市の測定例
現場の土壤の放射線量4000~5000Bq/kgはほぼ、粘土粒子に吸着したCsの量(1万~1.3万Bq/kg-soil)で説明できる。

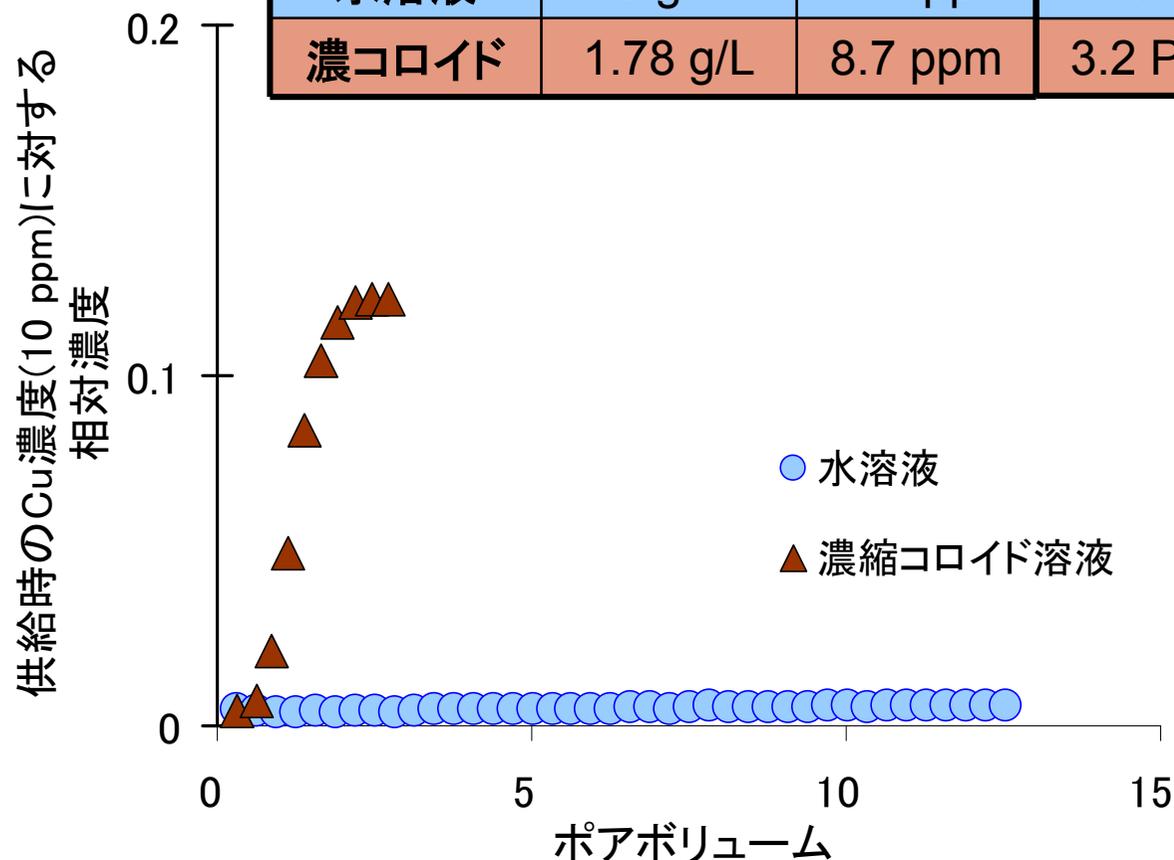
粘土分(コロイド)に吸着すると何が起きるか(その2)

土壤にCu水溶液とコロイドに
吸着したCuけん濁液を負荷し
た場合



コロイド(粘土や有機物)に付いた重金属の移動が顕著
 土自体が重金属を補足しやすいが, コロイド収着体の重金属は,
 土に捕まらずに移動する可能性大

	粒子濃度	Cu濃度	供給量	Cu負荷	粒子量
水溶液	0 g/L	10.1 ppm	12.5 P.V.	20.2 mg	0 g
濃コロイド	1.78 g/L	8.7 ppm	3.2 P.V.	4.5 mg	0.91 g



細川卒論(2011.2)

粘土分(コロイド)に吸着すると何が起きるか(その3)

土中を移動するだけではなく、降雨に伴う侵食中に土壌コロイドと共に地表面を面的に広がるリスクもある。



水食：降雨中、侵食で生じた濁水(土壌コロイドを含む)は農地から排水路を経由して河川を流下する(石垣島)

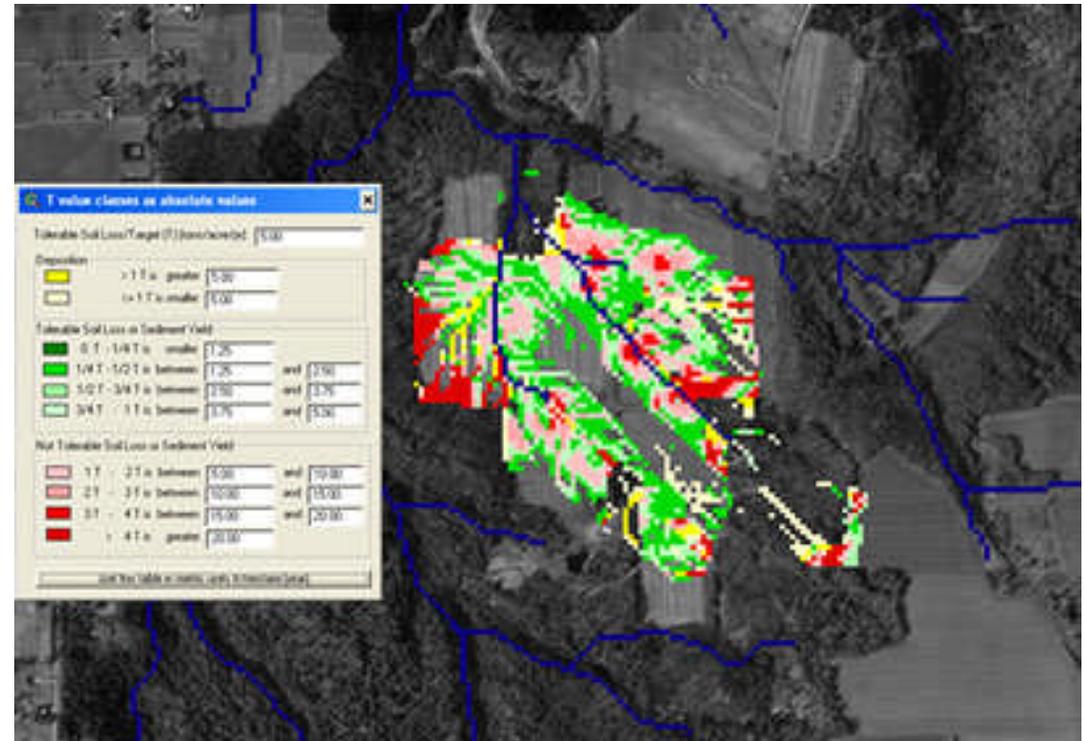


小括

- 粘土分にCsが強く吸着していることを前提として考えるべき。
- Csの移動と土砂の移動(侵食)との関わりにもっと注目すべき。
- 流亡土砂の扱い方によっては, 放射性物質除去にも貢献できるかもしれない。

農地や流域における流亡土砂の動態Water Erosion Prediction Project

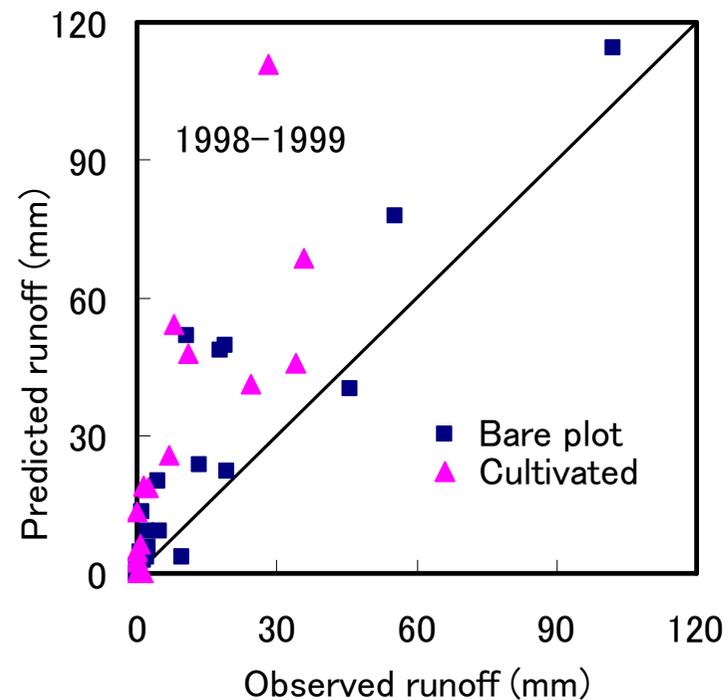
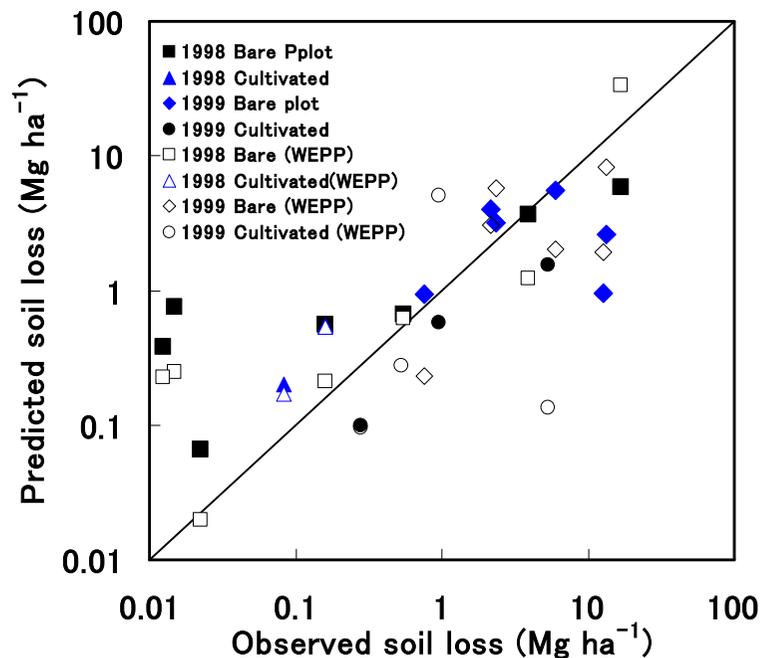
WEPP



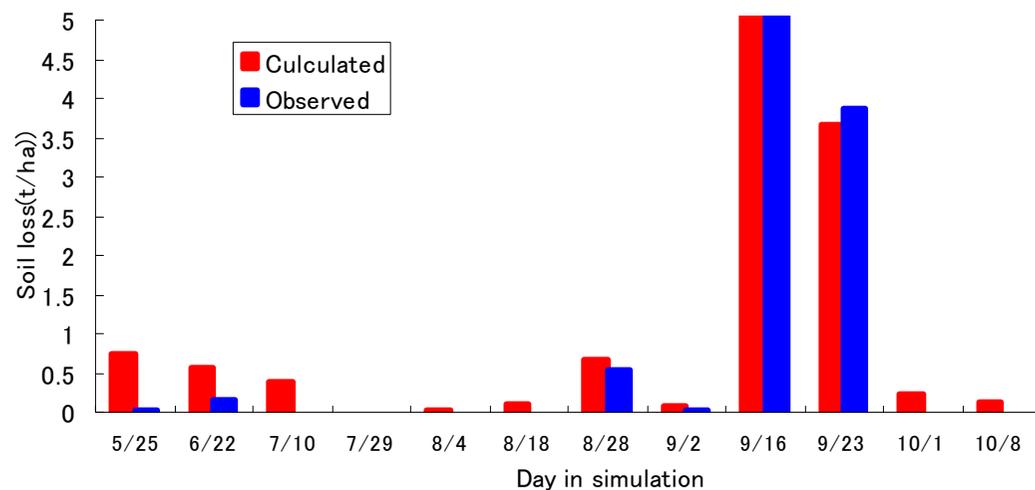
GeoWEPP



降雨時に泥水がどこに流れつくのか？
米国農務省で開発



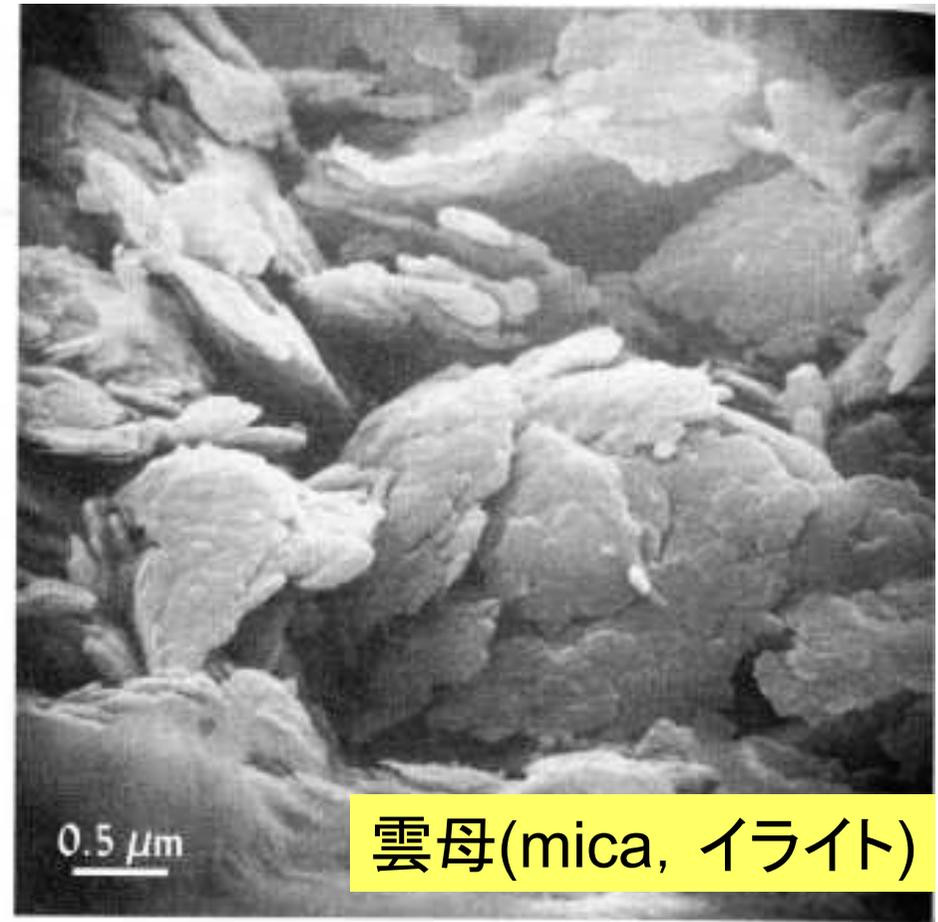
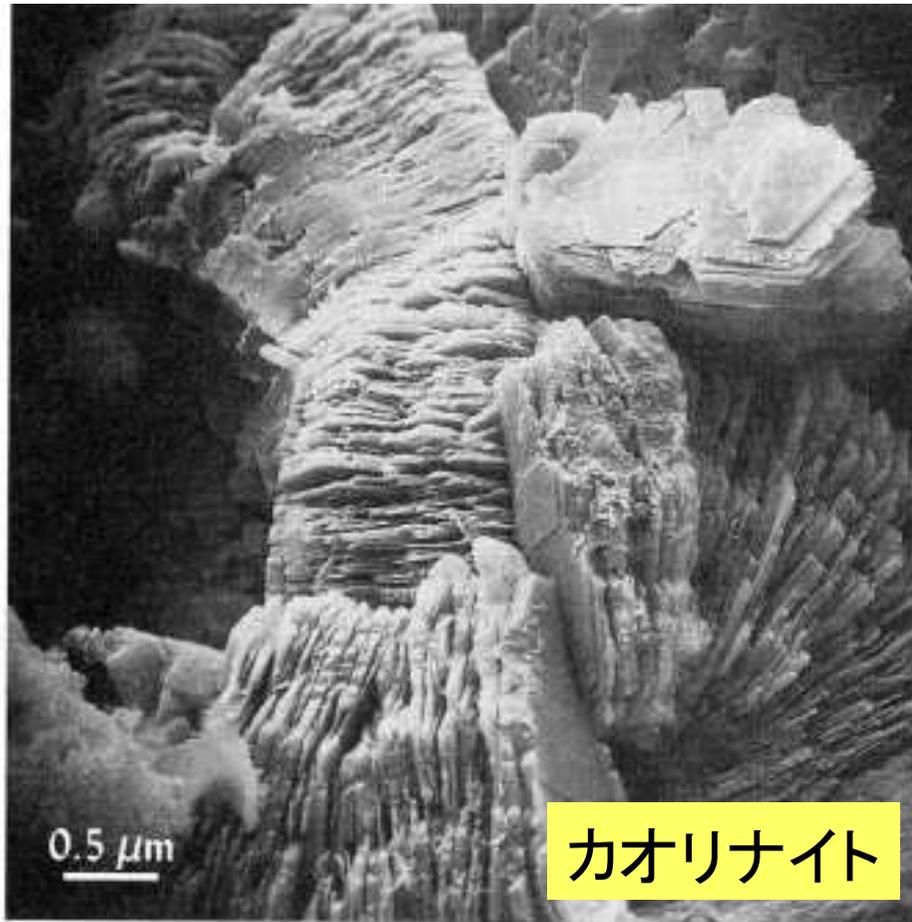
1998年の孺恋村キャベツ畑の侵食予測と観測値



降雨時の濁水の量や、流亡土砂量を予め予測して、対策を講じることが重要になる。
 図は、群馬県孺恋村におけるWEPPの適用例
 日本でも利用はある程度可能
 (小谷, 西村, 2007)

何故粘土によく付く？

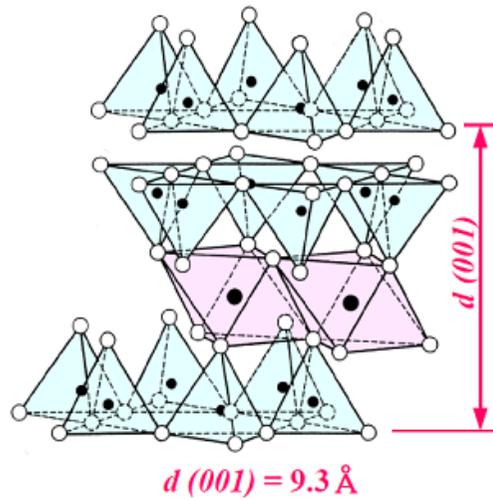
粘土の電子顕微鏡写真



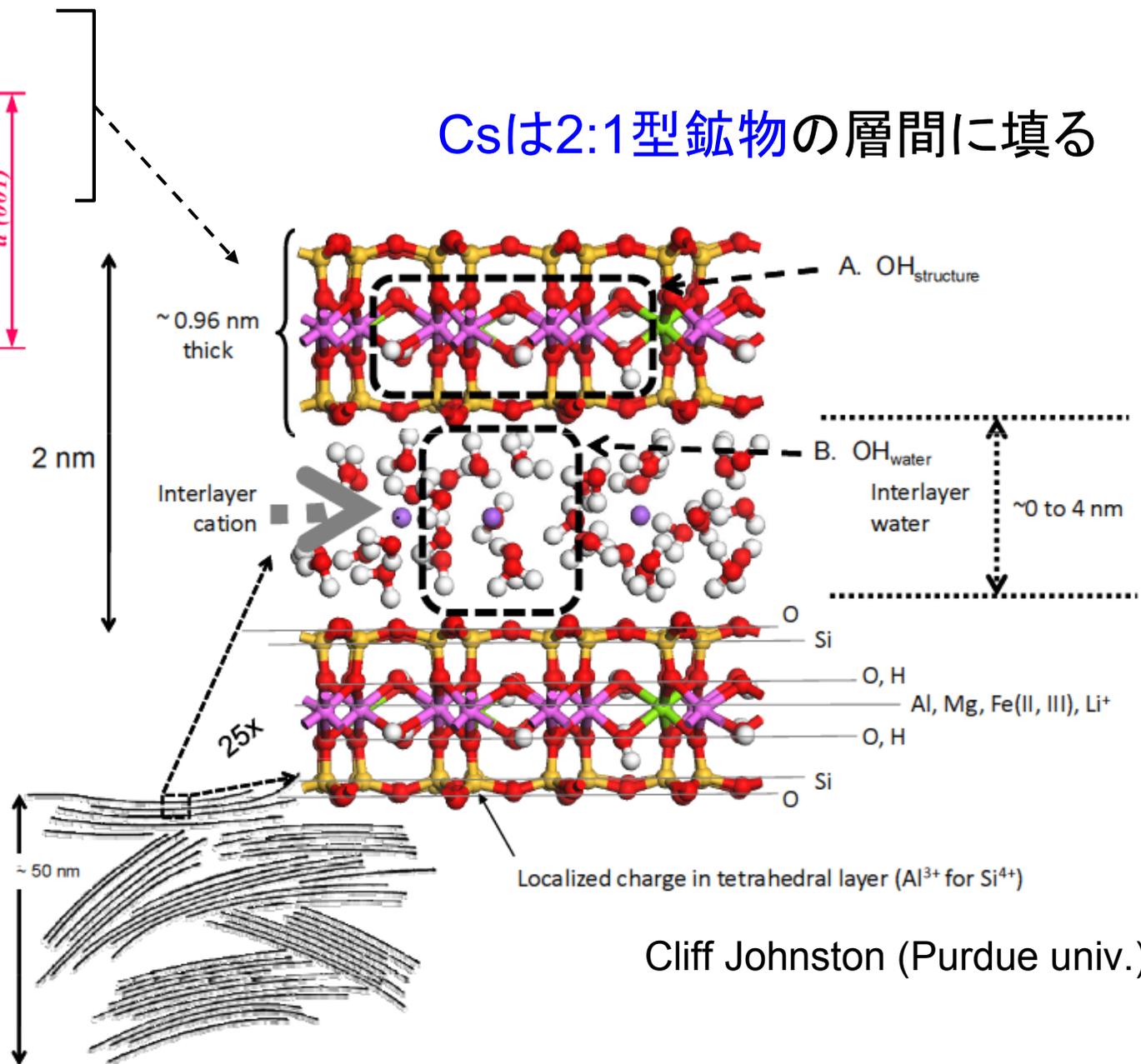
膨れ上がった電話帳のようなイメージ

The Nature and
Properties of Soils 14th
edition, Brady&Weil
2008

B) パイロフィライト構造



Csは2:1型鉱物の層間に填る



Cliff Johnston (Purdue univ.)

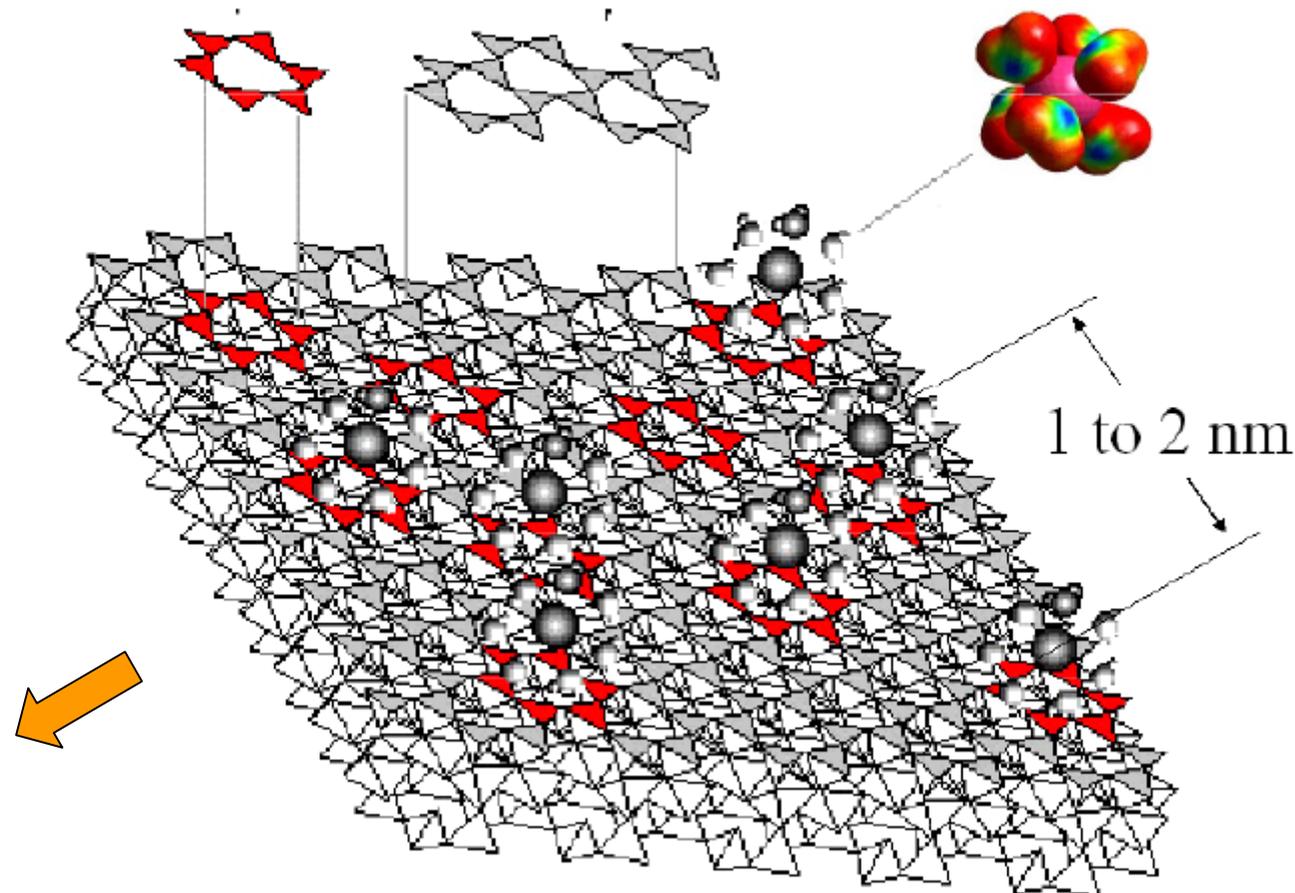
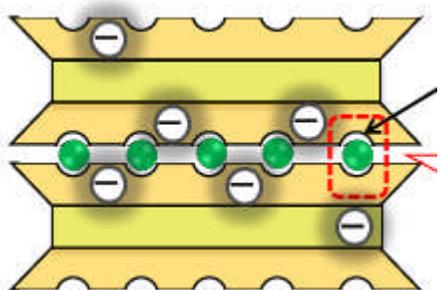
電話帳のページとページの間で起きてること

Hydrophilic Sites
(red)

Hydrophobic sites
(grey)

Cliff Johnston (Purdue univ.)

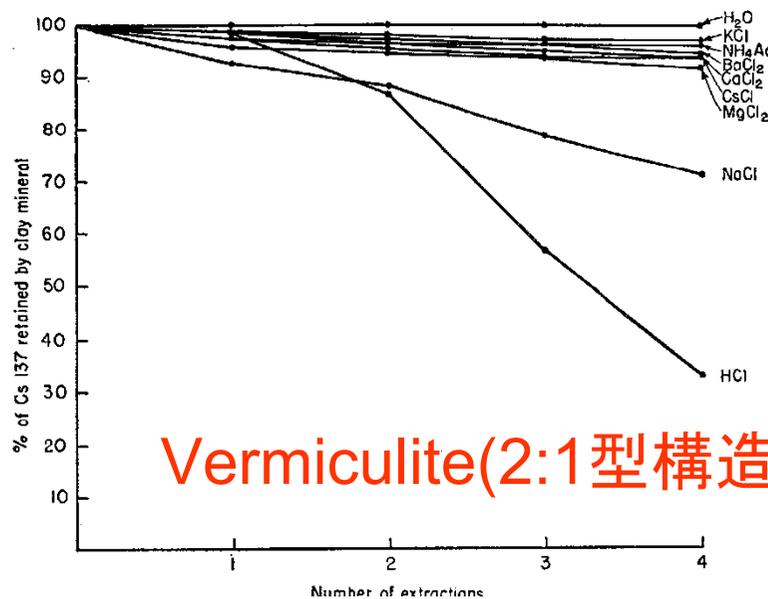
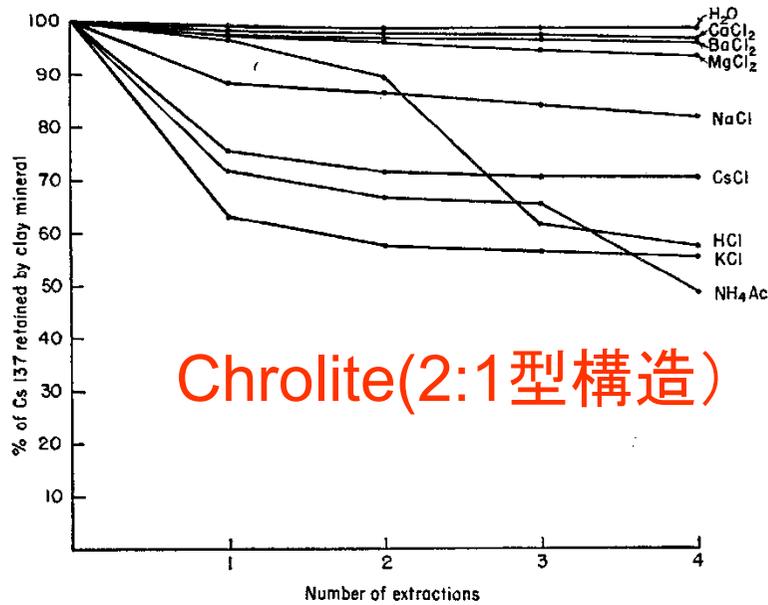
土壤肥料学会HPから



K^+ や NH_4^+ が填る孔に Cs^+ もちょうどうまく填ることができる
 K^+ や NH_4^+ との競合も報告されている

粘土鉱物種の違い: 一旦吸着した¹³⁷Csの洗浄除去効率

On the soil chemistry of ¹³⁷Cs, Schoultz & Overstreet and Barshad 1960 Soil Sci.



イライト粘土、モンモリロナイト粘土も
洗浄が効きにくい。

洗浄に使用した溶液

水

MgCl₂

CaCl₂

BaCl₂

NaCl

KCl

CH₃COONH₄

HCl

¹³⁴CsCl

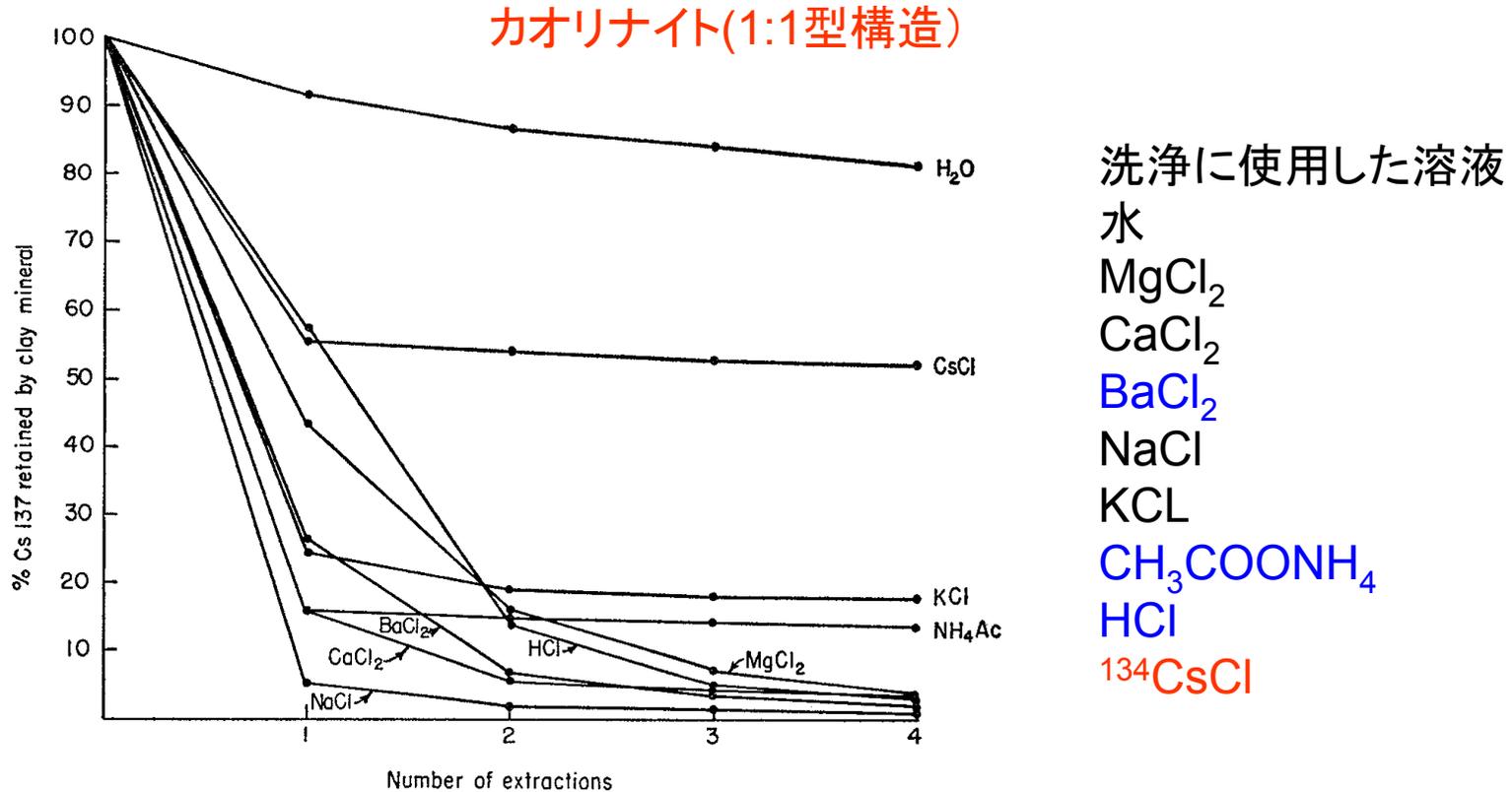
青字: イオンの抽出,
除去によく使う

一価のCsを洗い出す効果が高いと
予想されるMg²⁺, Ca²⁺といった二価
の陽イオンに効果が少ない。
逆に、K⁺, NH₄⁺による溶出が目立つ

☆Csの特徴

粘土鉱物種の違い: 一旦吸着した¹³⁷Csの洗浄除去効率

On the soil chemistry of ¹³⁷ Cs, Schoultz & Overstreet and Barshad 1960 Soil Sci.



一旦Csで汚染した土壌を色々な溶液で洗淨して、Csが出てくるかどうかという実験。カオリナイト粘土では、イライトとは逆に、すぐに流出してくる (注(6/1): クロボク土でも、こちらに近い挙動が予想される) 23

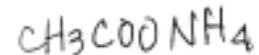


表 Cs-137の土壤置換態／全量比の19年間平均(駒村ら, 2006)

地点	地目	土壤	腐植含量 (%)	粘土含量 (%)	置換態 ／全量
北海道	水田	多湿黒ボク土	3.9	26.7	0.27
岩手	畑	多湿黒ボク土	11.7	20.2	0.27
茨城	畑	黒ボク土	6.0	25.7	0.27
埼玉	水田	灰色低地土	0.8	27.1	0.075
大阪	水田	灰色台地土	2.9	21.5	0.086
岡山	水田	グライ土	1.6	23.1	0.087
福岡	水田	灰色低地土	2.2	17.1	0.090

Csは土壌の攪乱がなければ、多くの場合、表層に限定して存在する。

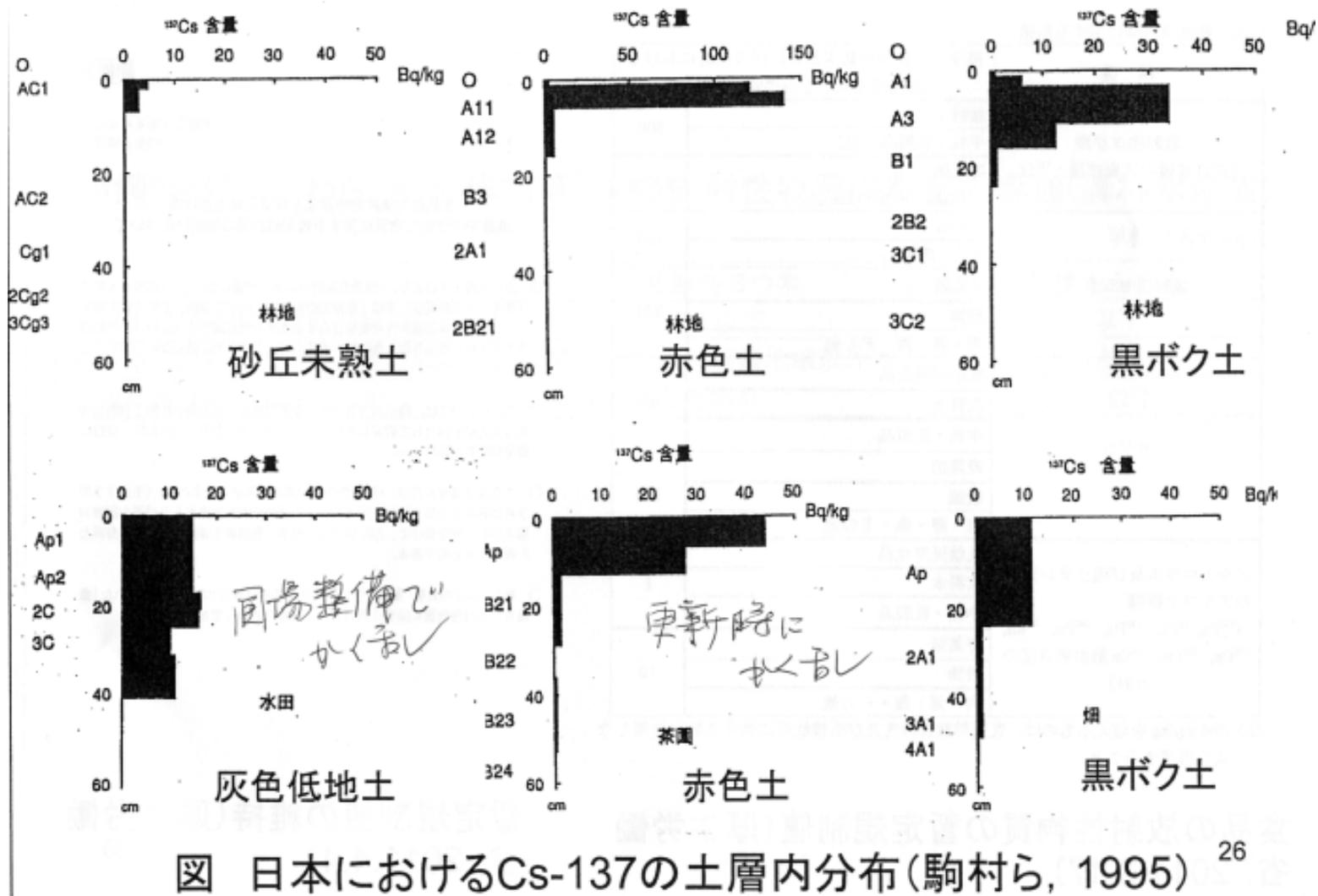


図 日本におけるCs-137の土層内分布(駒村ら, 1995) ²⁶

農地で耕起, 耕うんがあると, その範囲で均等化される。(灰色低地土, 赤色土, クロボク土)
 クロボク土は, 耕起範囲を超えて移動している傾向が見られる。
 大気核実験で放出された核種なので, 約30年間の移動結果

森林土壌

物質座標: kg m^{-2} :
土の乾燥密度が
 1.0g/cm^3 で一定と仮
定すると土の厚さ
1cmが 10kg/m^2 に対
応する。

国内の森林土壌
について、場所で
多少のばらつきは
あるが、7~10cm
程度までCsが分
布

2010 Wakiyama &
Onda, Geoderma 159
(国内の実験データ)

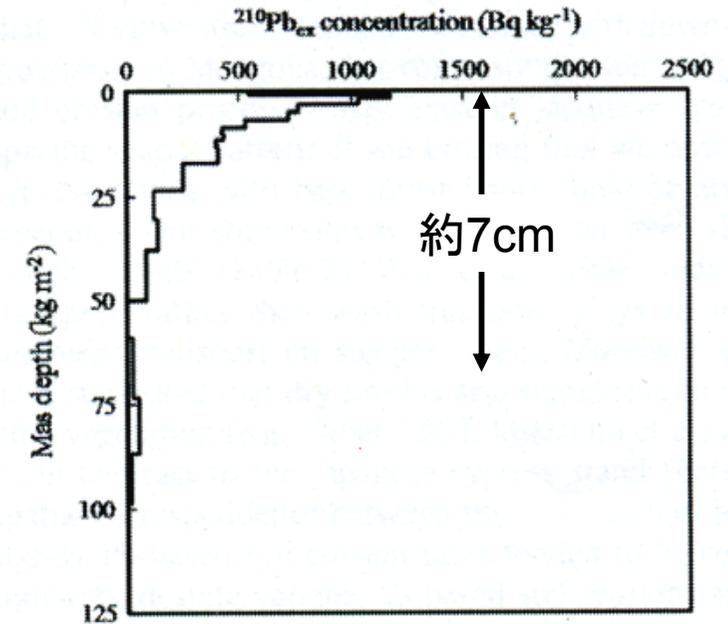
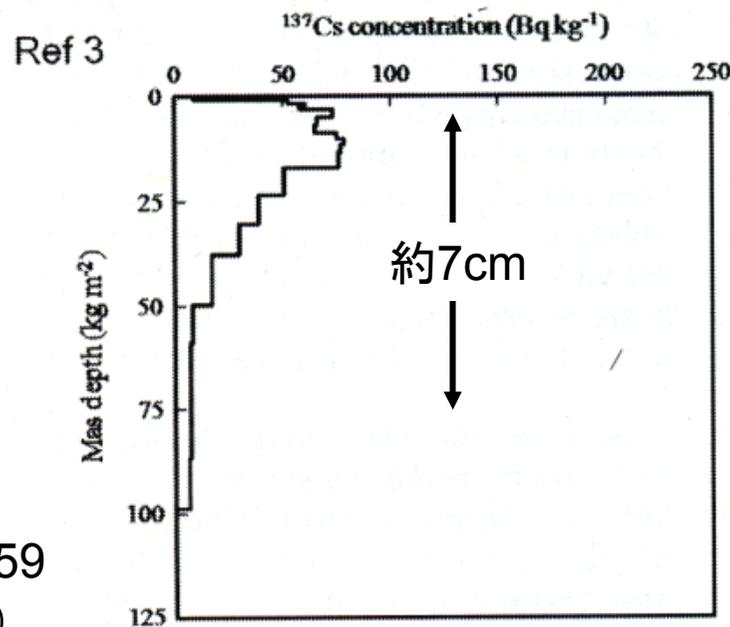
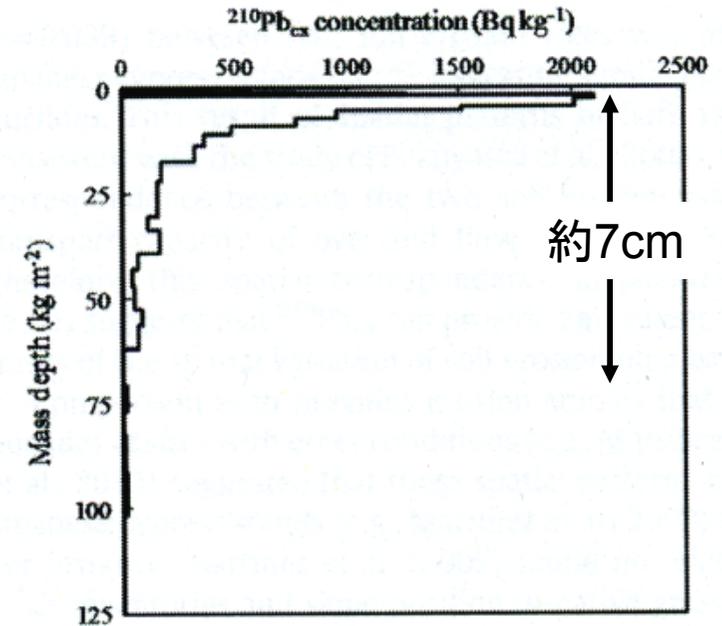
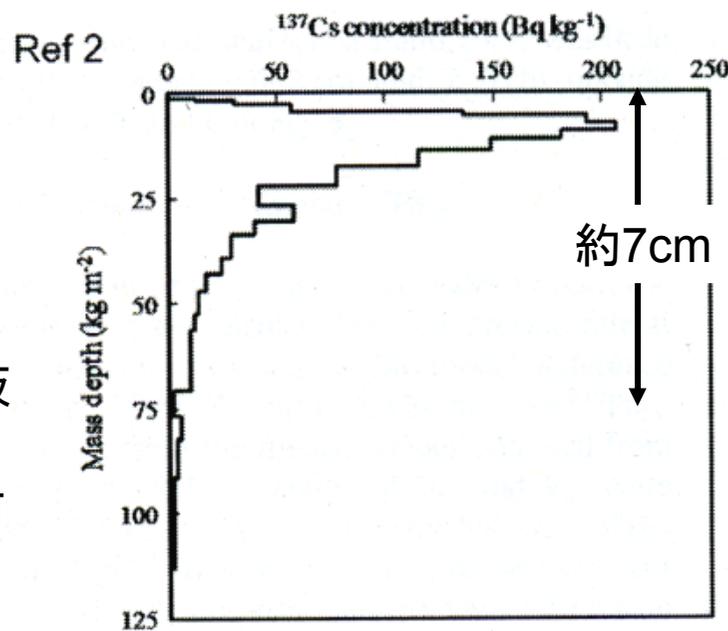


Fig. 4. Depth distributions of radionuclides at the reference site (left: ^{137}Cs ; right: $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$).

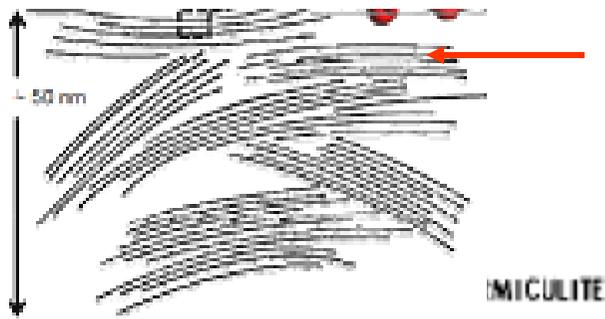
- 土(粘土)への吸着の程度が土中の分布を決めていると考えられる。
- ある種の粘土鉱物に非常に強く吸着する。
- 攪乱がなければ, 沈着したCsは地表近傍に居座る。
- 長期的には, 土壌中の粘土分の物理性・化学性を考慮した流出土壌コロイドの制御によるCs管理が要点となると考えられる。
- 土中を動き難いことを前提に, 対策や除去法を検討すべきである。

ご静聴ありがとうございました

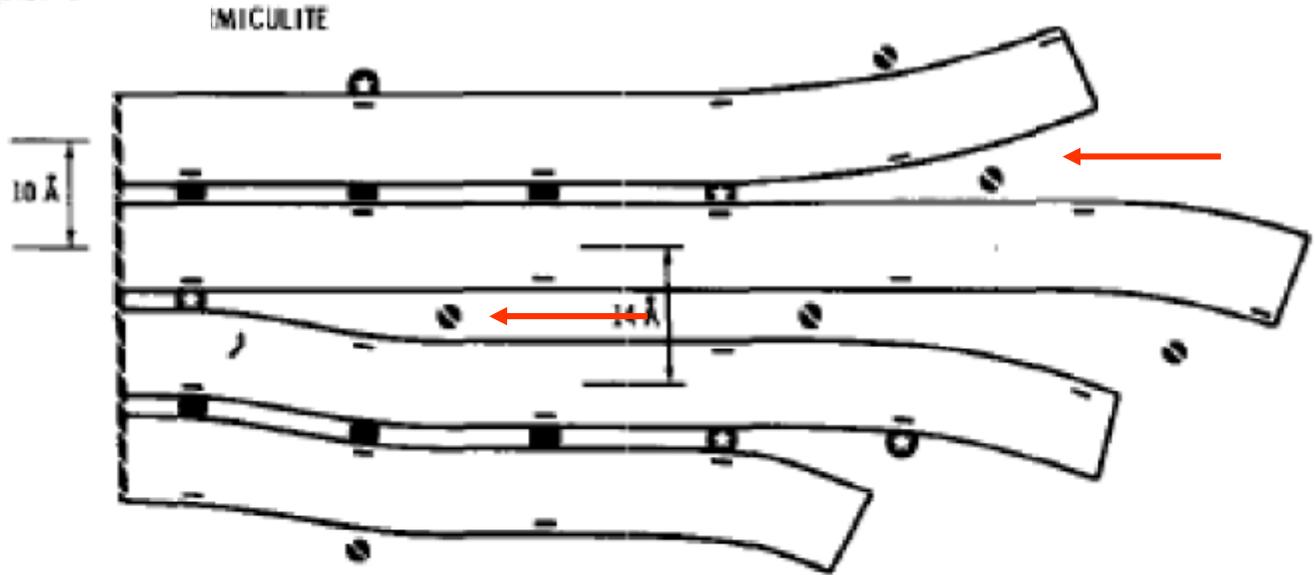


色が違う
色々な土がある
鉱物・母岩
有機物含量
団粒,
化学性,
……性質が異なる
土は地域性が強い

土のコレクション(フレーベル館から)



隙間にもぐりこんでいくCs



- NONEXCHANGEABLE K
 - ⊙ EXCHANGEABLE K (K_X)
 - ⊖ EXCHANGEABLE Ca (Ca_X)
- LAYER CHARGE DENSITY = 184 meq / 100 g
 K_X / Ca_X = 0.83 (CATION RATIO)
 K_X / Ca_X = 0.41 (EQUIVALENT RATIO = CES)

Cation Exchange Selectivity of Some Clay-Sized Minerals and Soil Materials¹

D. L. DOLCATER, E. G. LOTSE, J. K. SYERS, AND M. L. JACKSON² SOIL SCI. SOC. AMER. PROC., VOL. 32, 1968