2015年10月29日

放射性セシウムの土壌中の挙動と水系への流出

東京大学農学生命科学研究科　生物・環境工学専攻
農地環境工学研究室
塩沢　昌

放射性セシウムの

１．土壌中の挙動

２．水系への流出、流域からの流出

（３．農作物への移行）

セシウムの土壌への固定

1．弱い固定：

土粒子の電荷による一般的な陽イオン固定。

負電荷をもつ土粒子や有機物は陽イオンを引きつけている

：交換性陽イオン（Ca^{2+}、Na^{+}、NH_4^{+}、K^{+}、 Cs^{+}）

2．強い固定

特定の粘土鉱物(2：1型層状珪酸ケイ酸塩)の表面へのCsの特異的な固定

（フレイド・エッジなど）

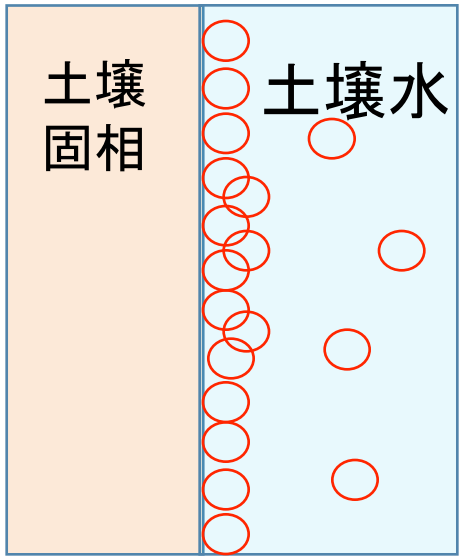
$$\text{分配係数}\ (K_d) = \frac{\text{土壌に固定されたCs量（mg/kg土）}}{\text{土壌水中のCs量（mg/L水）}}$$

IAEA handbook: K_d= 1200（平均 ） （ Sr: K_d =57 ）

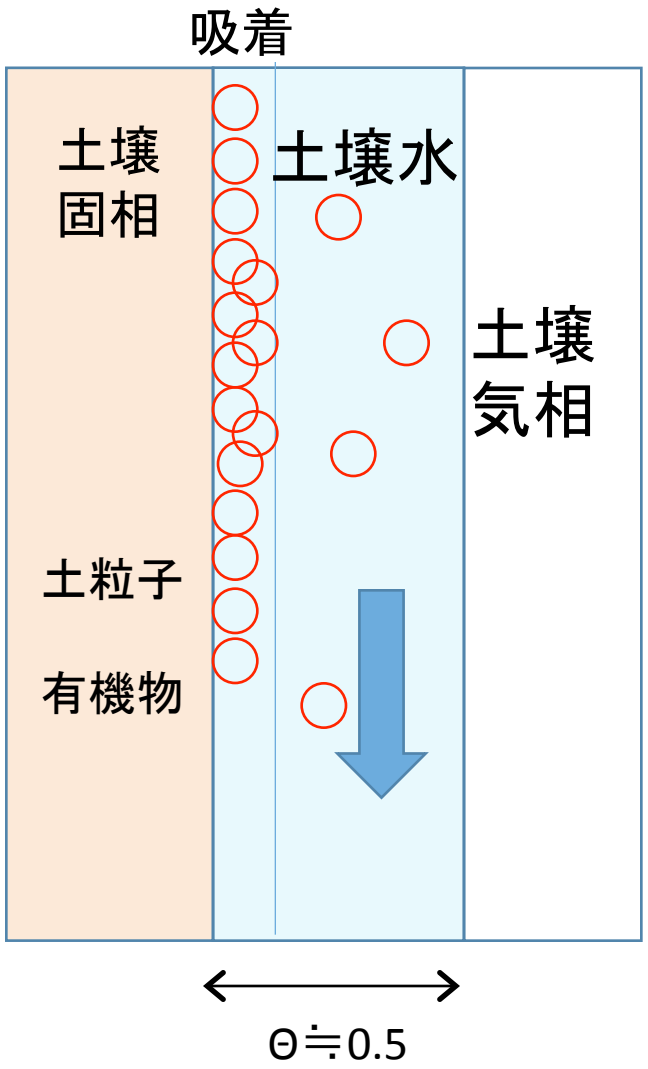
日本の水田土壌での実験室での測定によれば、

K_d= 200～20000 （数千）

（石川、内田、田上, Radioisotopes, 56,（2007））



浸透水とセシウム（Cs）の移動速度（理論）



水の浸透量 = 降水量（1600mm/y）-蒸発散量
=1000 mm/y

水分子の速度
=浸透量 ／体積含水率（θ）
≒ 1000 ／ 0.5
= 2000 mm/y = 2 m/y

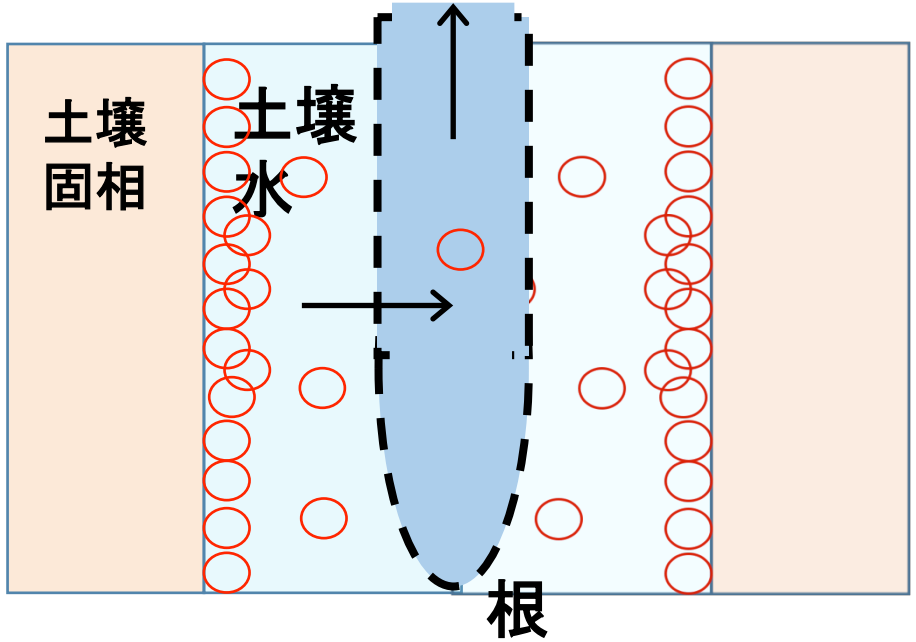
$$\frac{\text{Csの移動速度}}{\text{水の移動速度}} = \frac{\text{土壌水中のCs量}}{\text{土壌のCs量}} \approx \frac{\rho_b}{K_d\theta}$$

（ ρ_b : 乾燥密度）

文献では
= 1／1000 程度

文献のKdによれば1-5 mm/y 程度

根のイオン吸収



根は水に溶解したCsイオンを土壌水とともに（選択的に）吸収する。

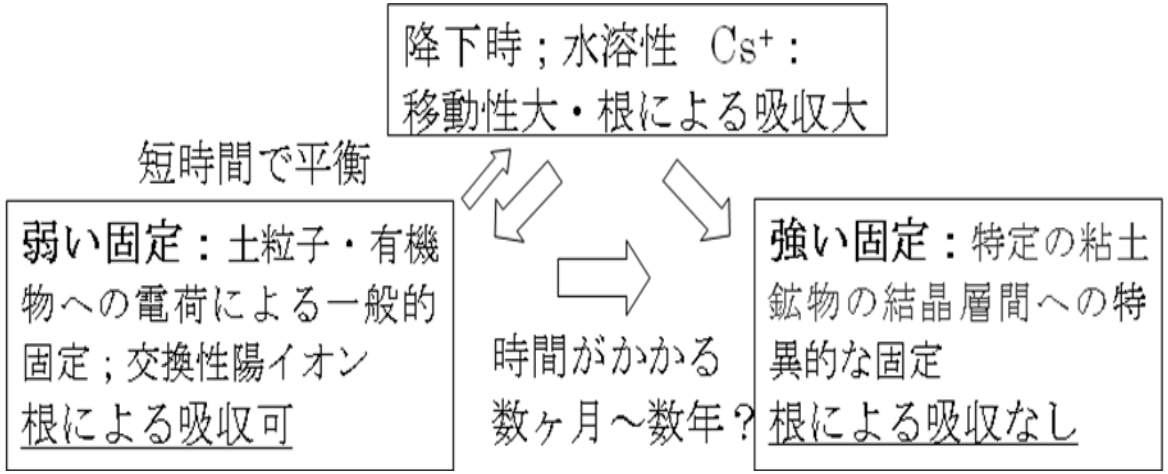
根による吸収されやすさ（移行係数）も

$$\frac{\text{Csの移動速度}}{\text{水の移動速度}} = \frac{\text{土壌水中のCs量}}{\text{土壌のCs量}}$$

を反映する。

土壌中の挙動（結論）：

放射性セシウムは、土壌に強く固定されて水とともに移動しにくく、土壌被覆の土地で地下水や河川流出することがほとんどなく、土壌に高濃度で存在するのもかかわらず植物にほとんど吸収されない。しかし、セシウムが土壌表面にフォールアウトした直後には移動しやすく植物にも吸収されやすかったが、２～３ヶ月の時間を経て、強い固定が進んだ。



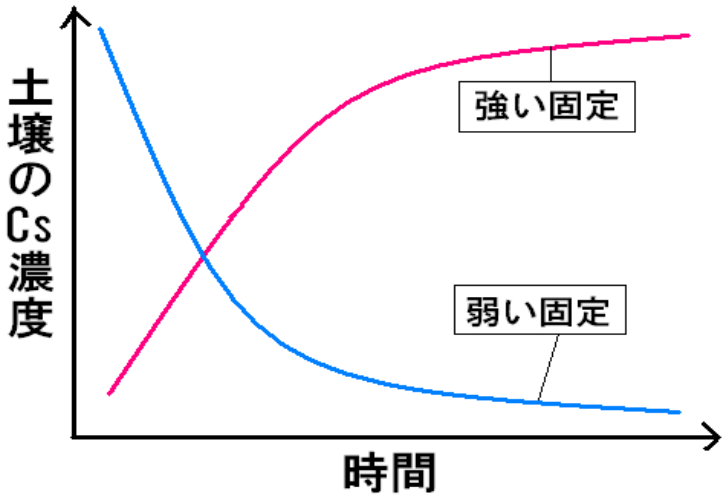
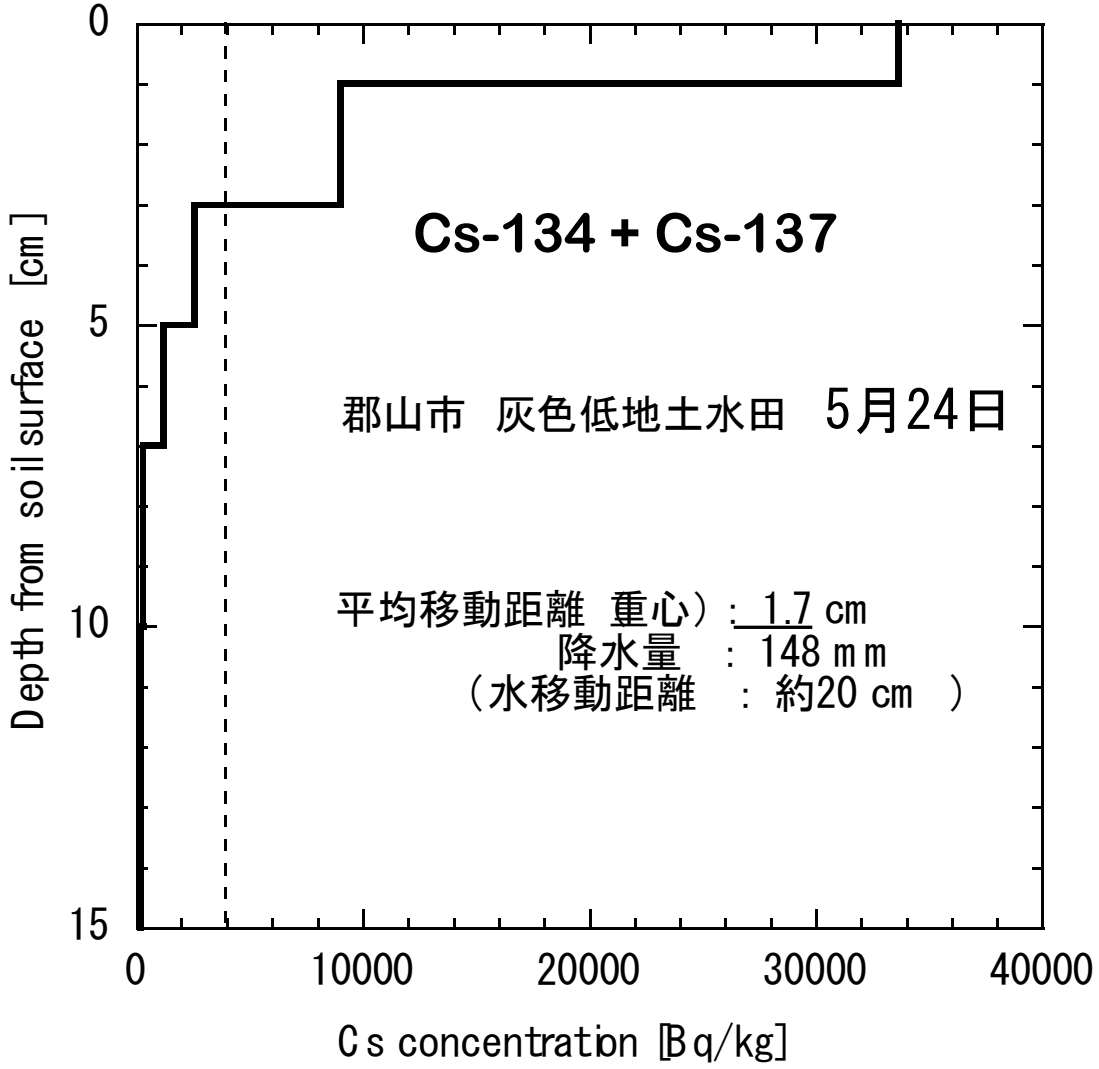


図　土壌・有機物による放射性セシウムの固定。

放射性セシウムの当初の鉛直分布と移動速度
（不耕起水田、2011年）



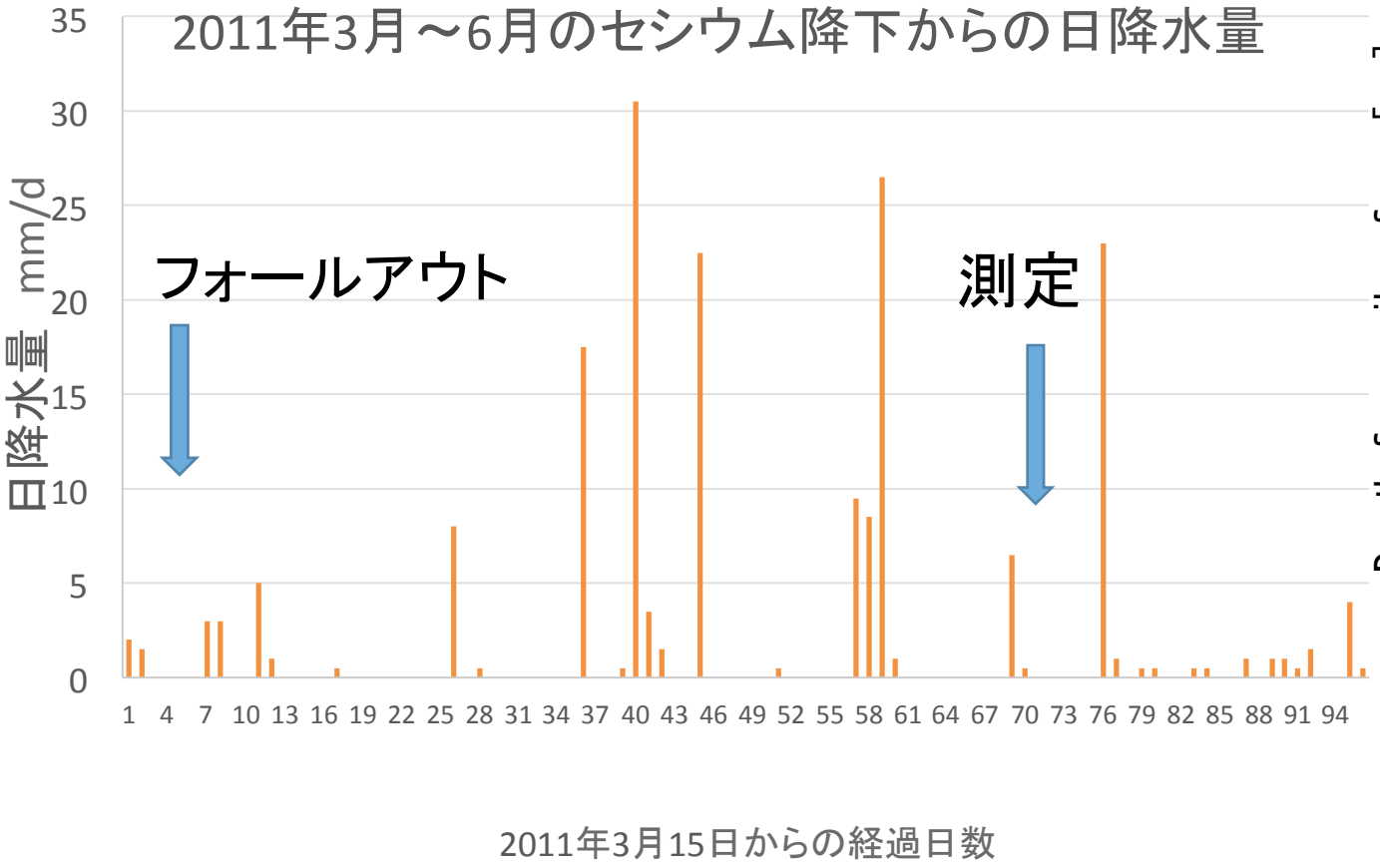
（塩沢・田野井・根本ら: *RADIOISOTOPES,60,*　2011）

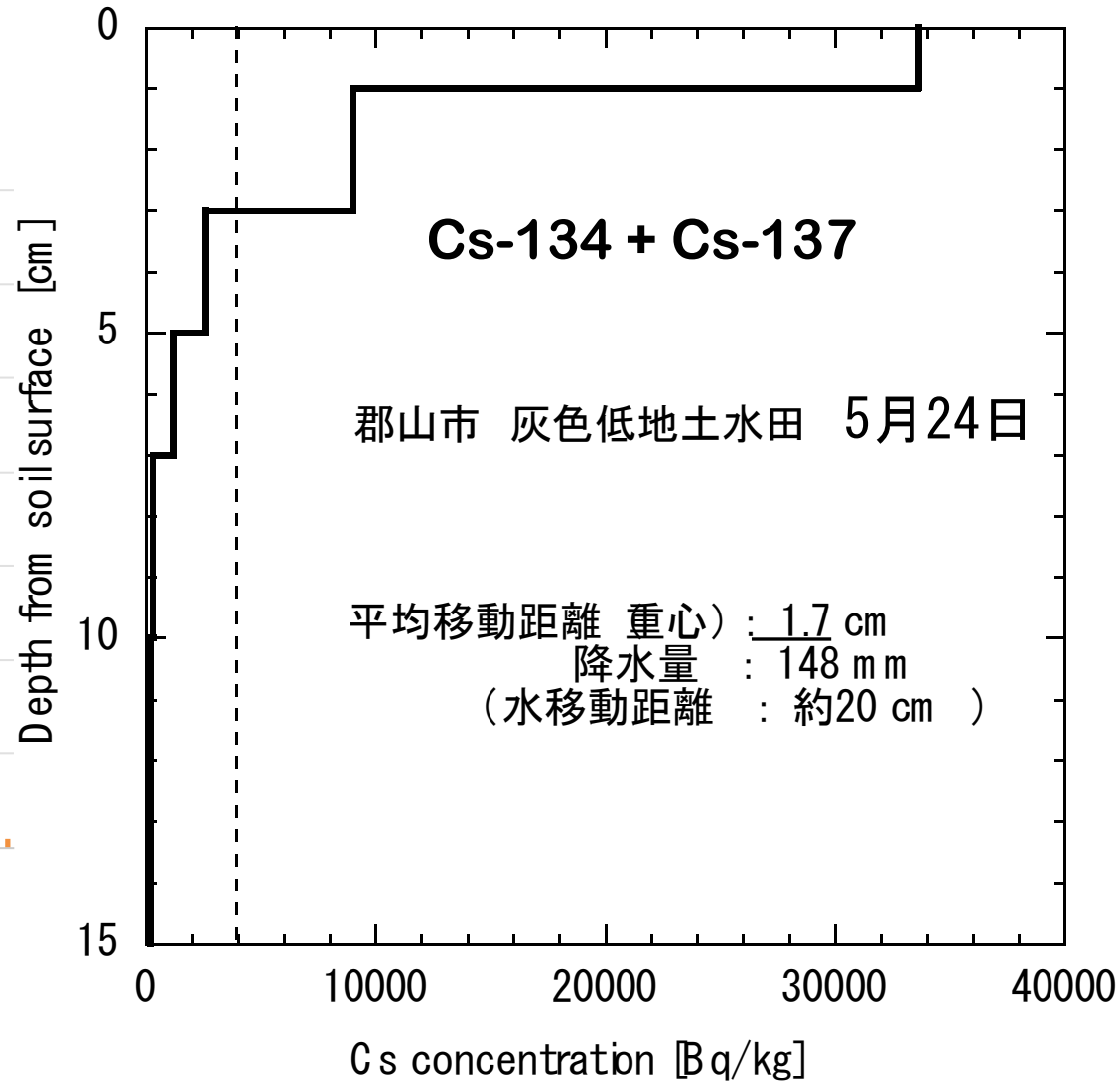
６月上旬までの２～３ヶ月間は、予想外に速く移動した:
水分子の速度の1/10

現場の長期測定や実験室での吸着平衡実験からの予想では、水分子の速度の1/1000

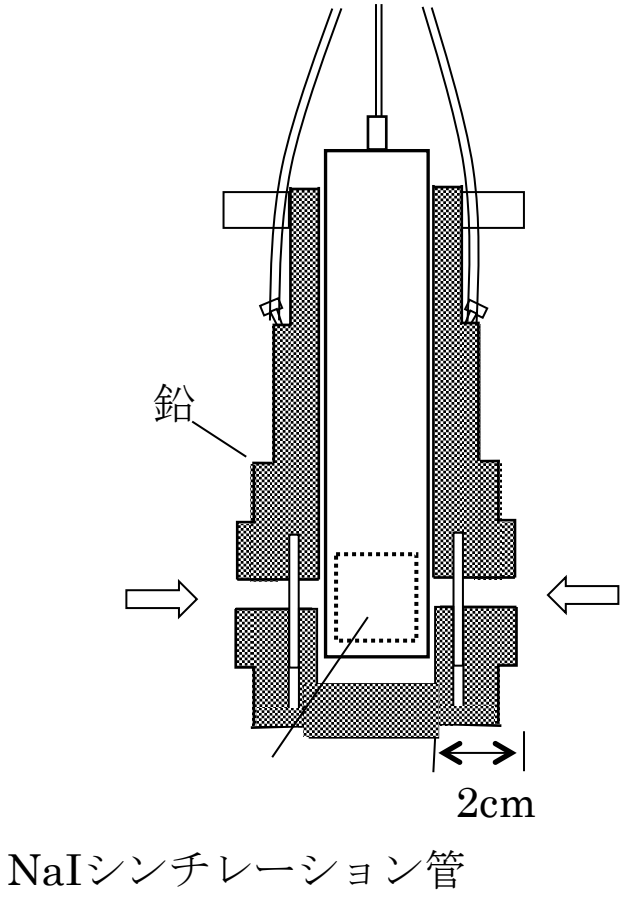
いつ動いた？

フォールアウトから1～2ヶ月後の降雨浸透で予想外に速く移動した：水溶性Csがかなりあった。

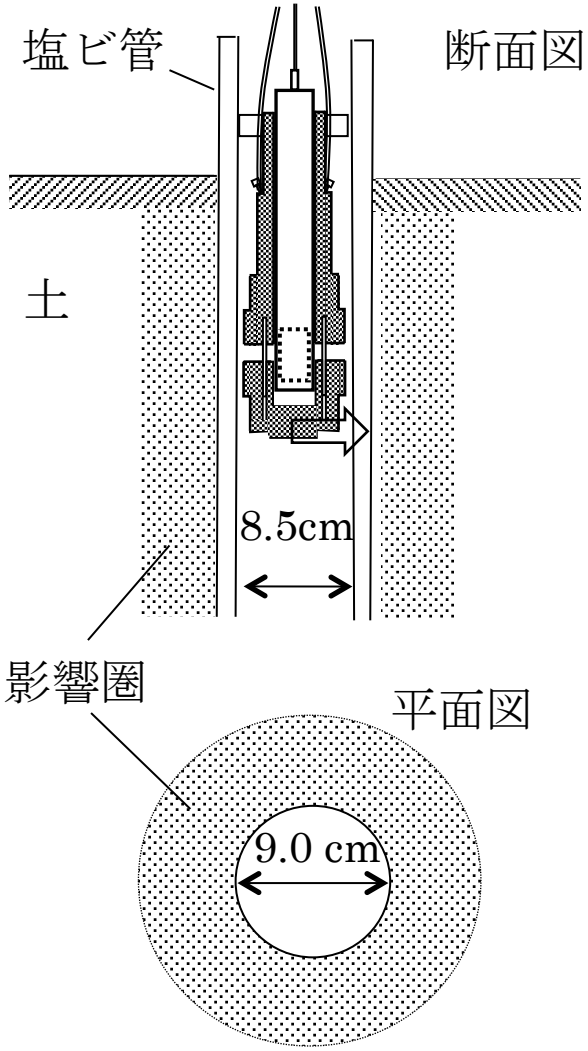




土中ガンマ線源量測定システム



鉛コリメータ

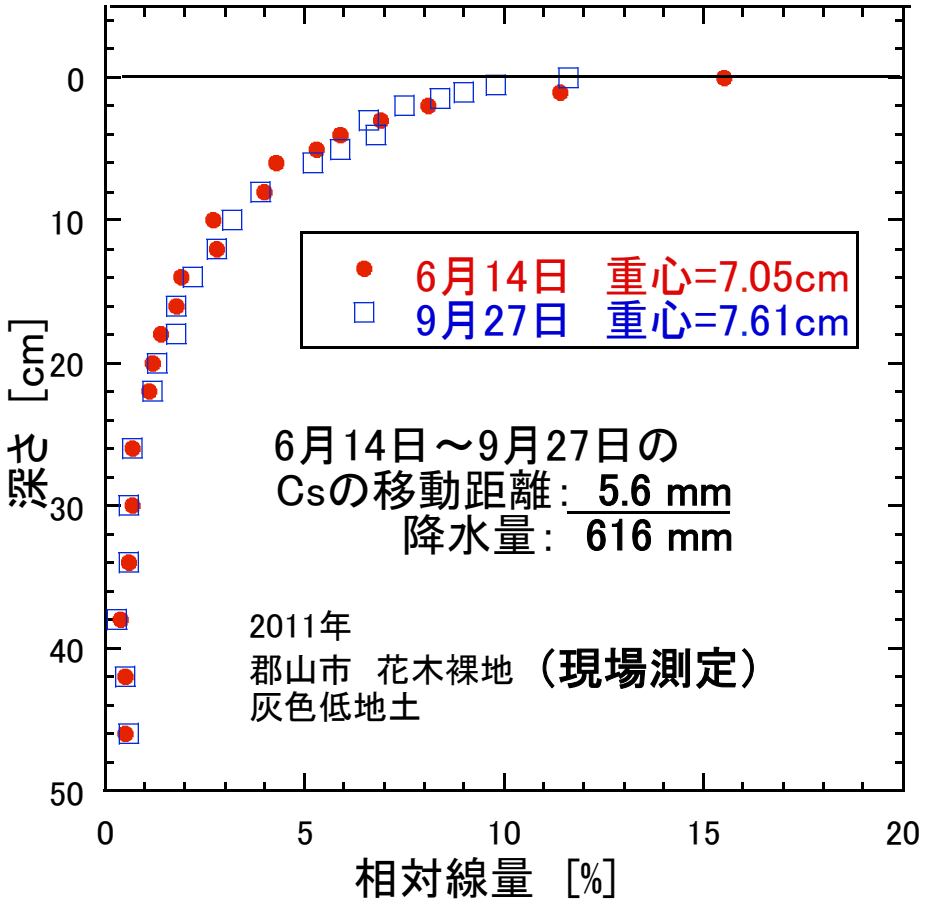


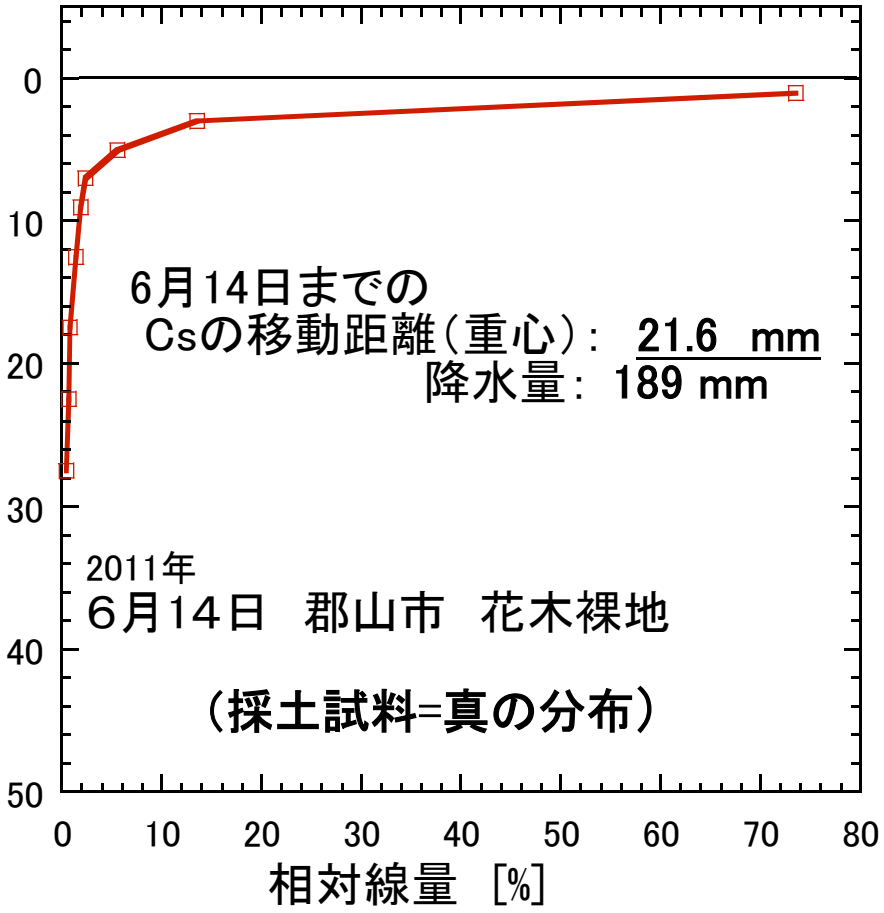
シンチレーションサーベイメータにコリメータを付け、土中の塩ビパイプ内で、水平方向に入射するガンマ線量を測定する:

２時点の分布を比較して、放射性Csの平均移動距離を求める。

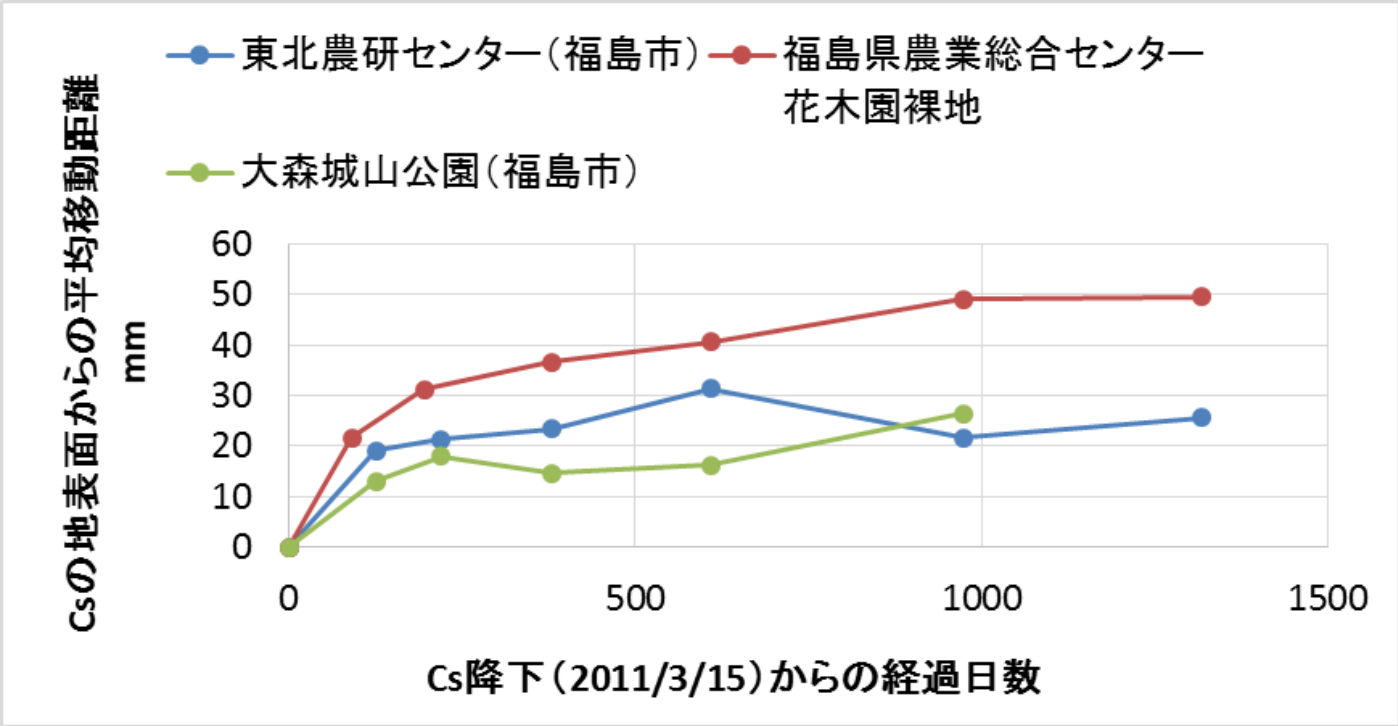
土中ガンマ線源量モニタリングパイプと測定

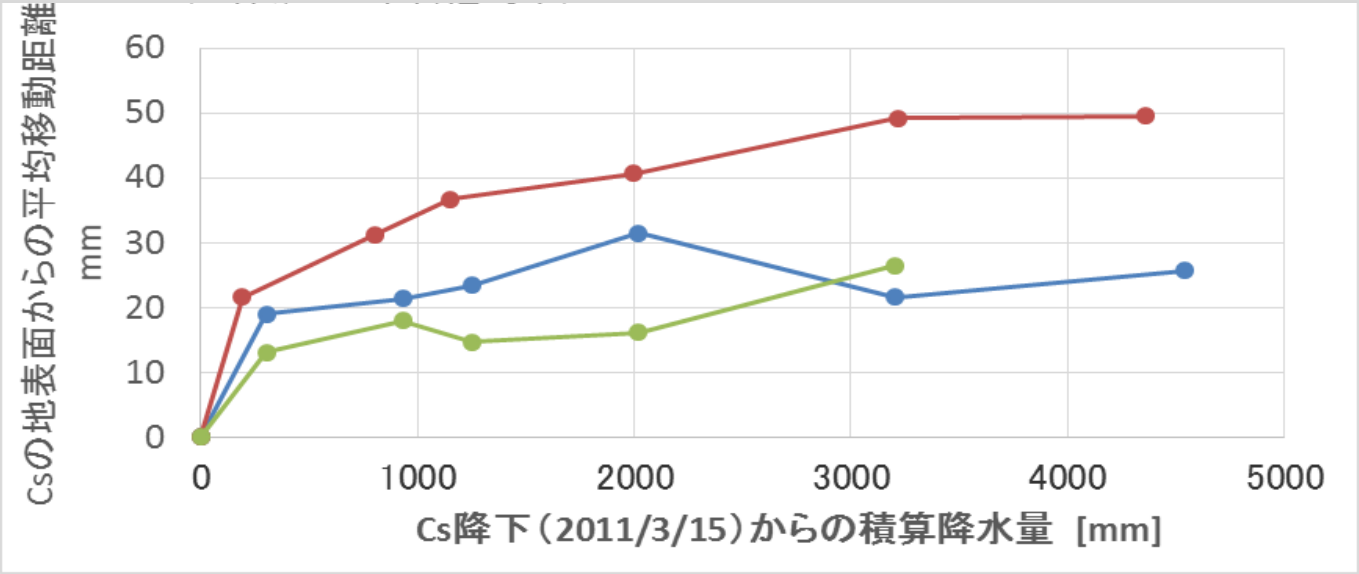
土中放射線分布の2時点の比較：裸地





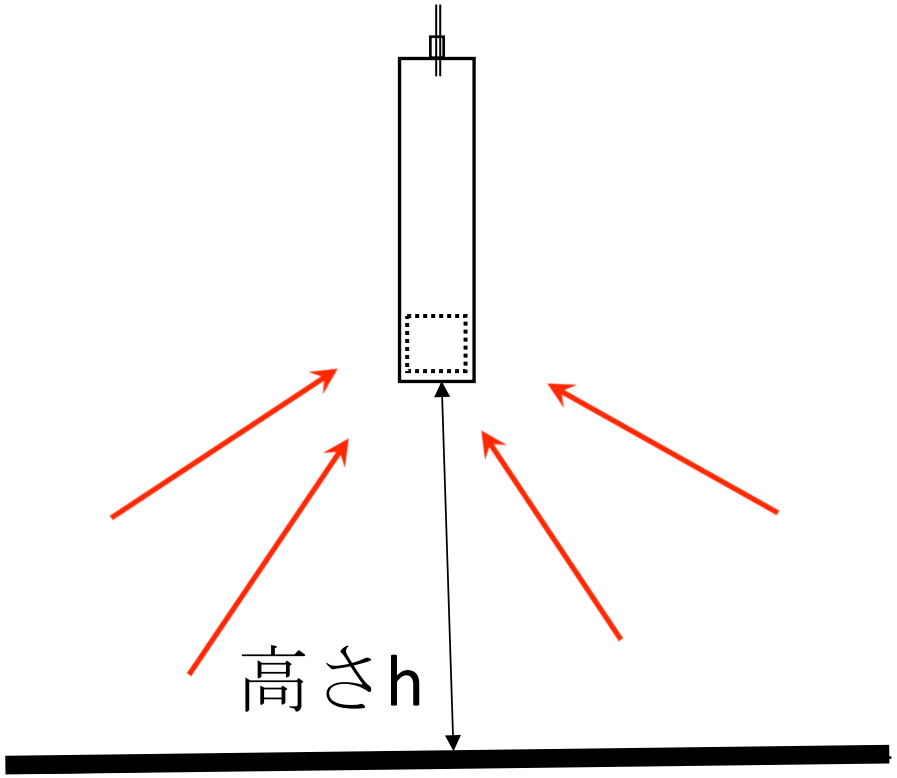
土中のCs移動量モニタリング結果（3.5年間）

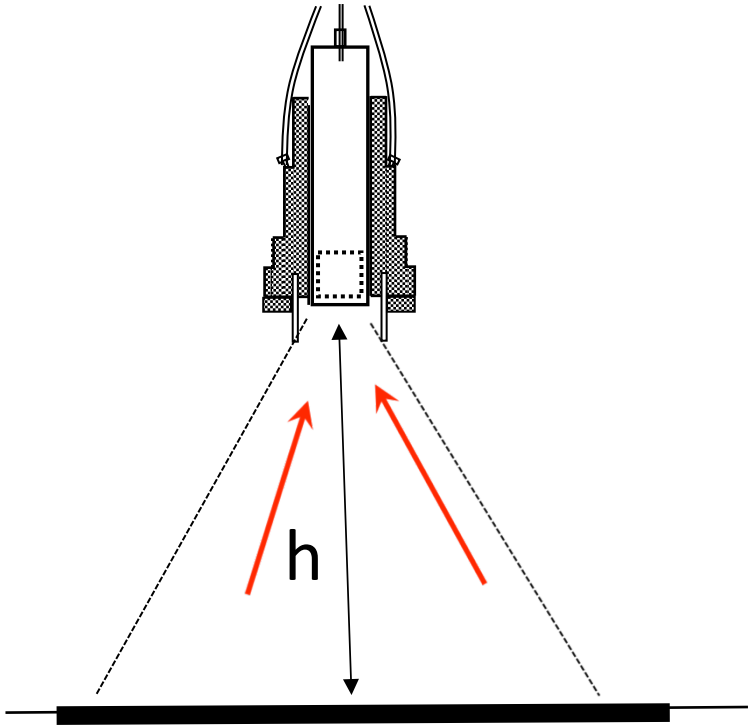




ファールアウトから2-3か月間は、水分子の速度(2m/y）の1/10~1/20であったが、その後は、1/500～1/1000（数mm/y）に低下：土壌への強い固定が進行

土壌表面Cs濃度の水平分布
表面濃度の測定原理:コリメータ

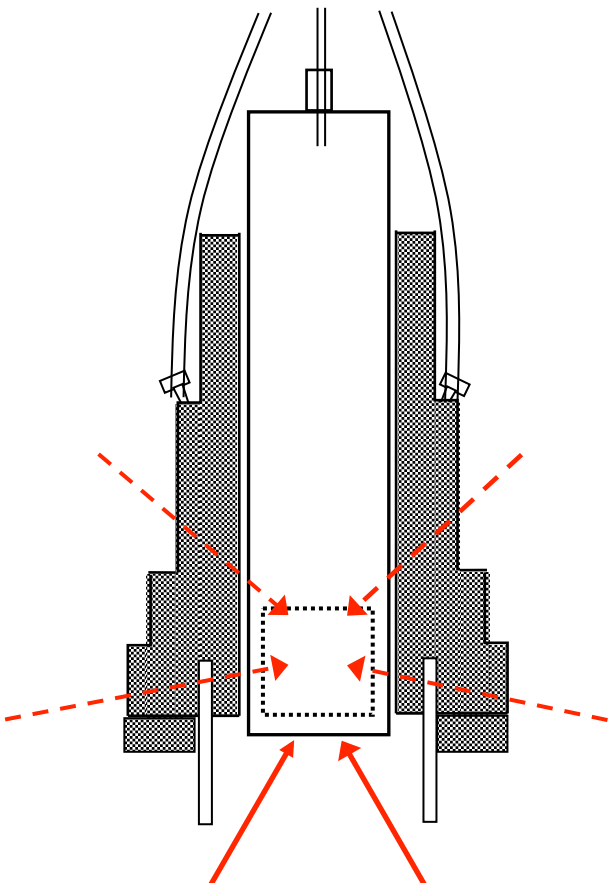




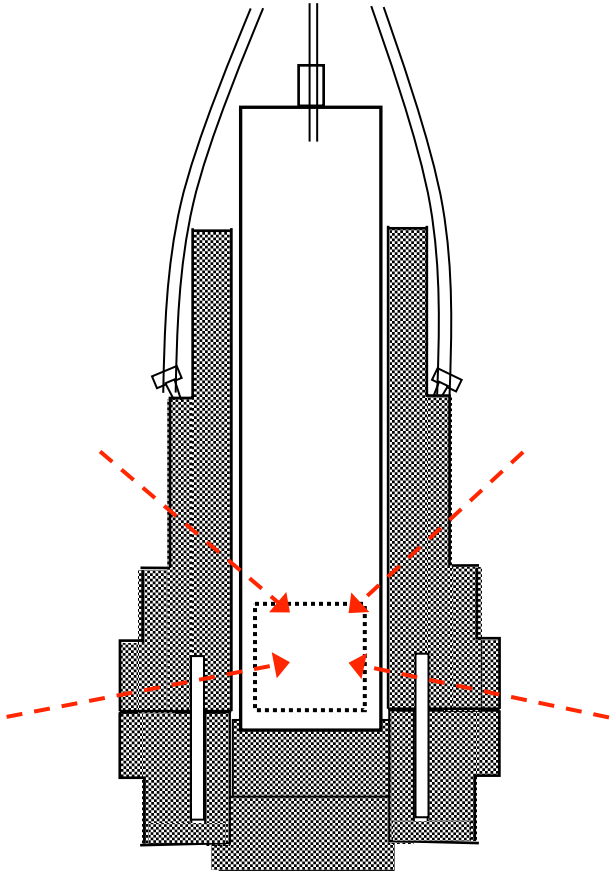
表面濃度が均一ならば測定値は高さによらない;均一でなければ高さによる

鉛で視野外を遮蔽して、測定対象範囲に視野を狭める:コリメータ

測定装置と方法



open



close

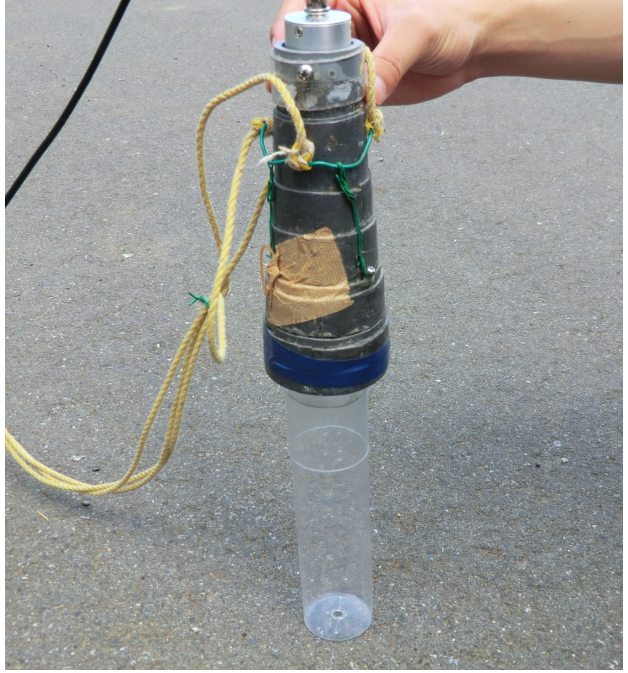
Inflow from window = open - close

NaIシンチレーションサーベイメータを鉛コリメータで覆う。1.5~2cmの鉛遮蔽

周囲からの入射を1/10以下にするには、3~4cmの鉛遮蔽が必要；重さが4倍以上になる。

フタは3.5cmの鉛で、フタあり（close）の測定値を漏れとみなして、フタなし（open）から差し引く

Open



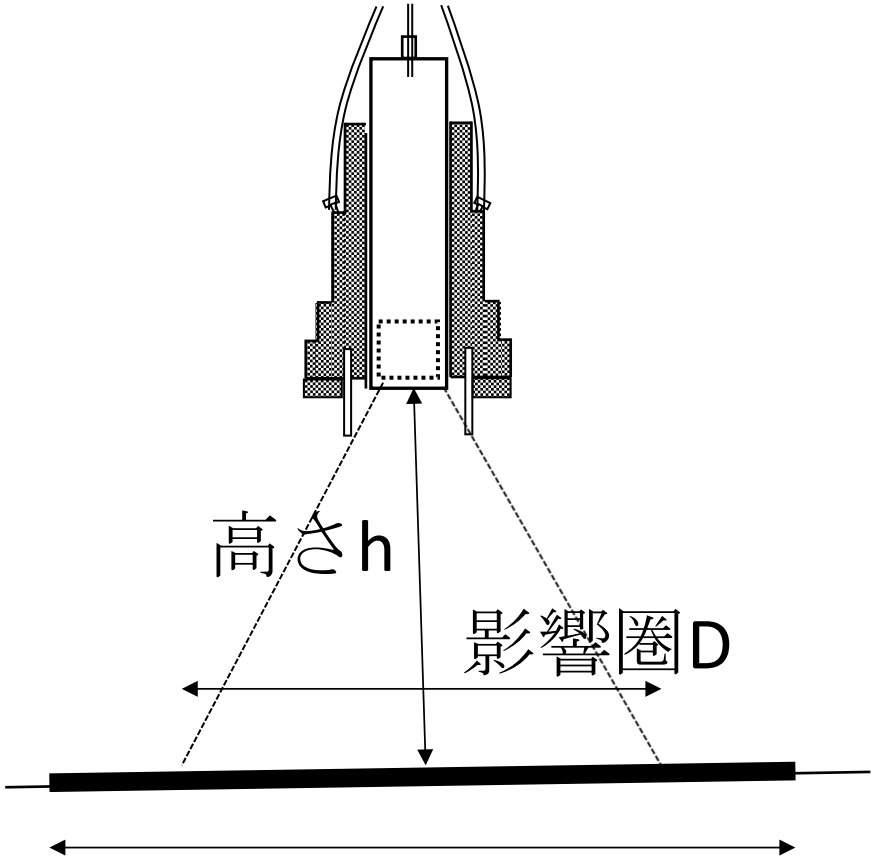
h=4 cm

h=20 cm

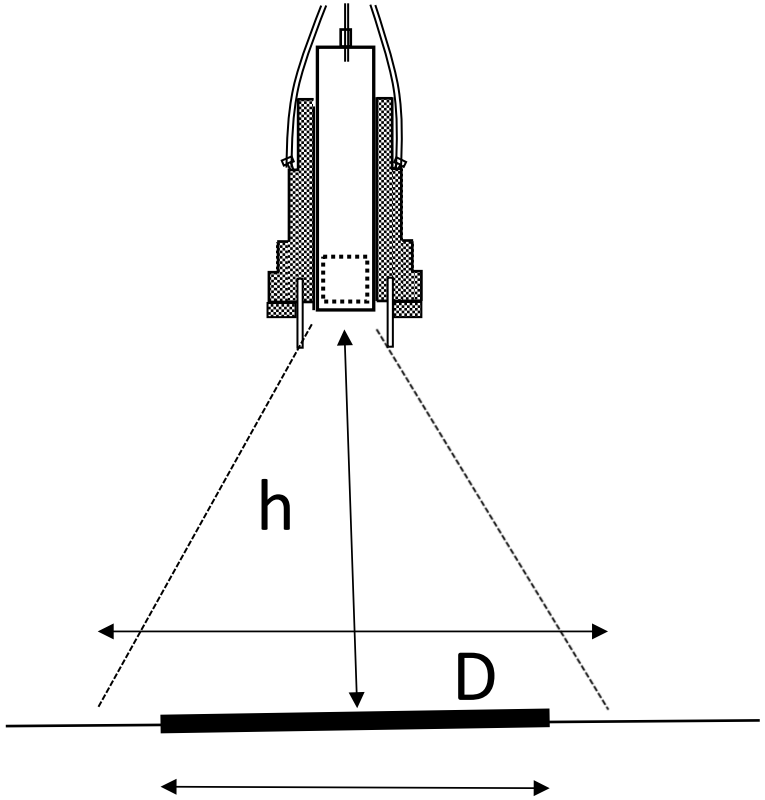
Close

120 cm> h >4 cm

影響圏確認の室内実験

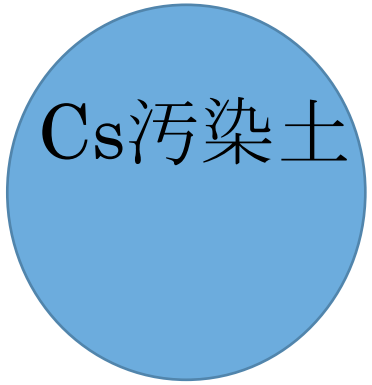


Cs汚染土直径d



d =88cm
44cm

平面図



d＞Dの範囲で、測定値はhによらない

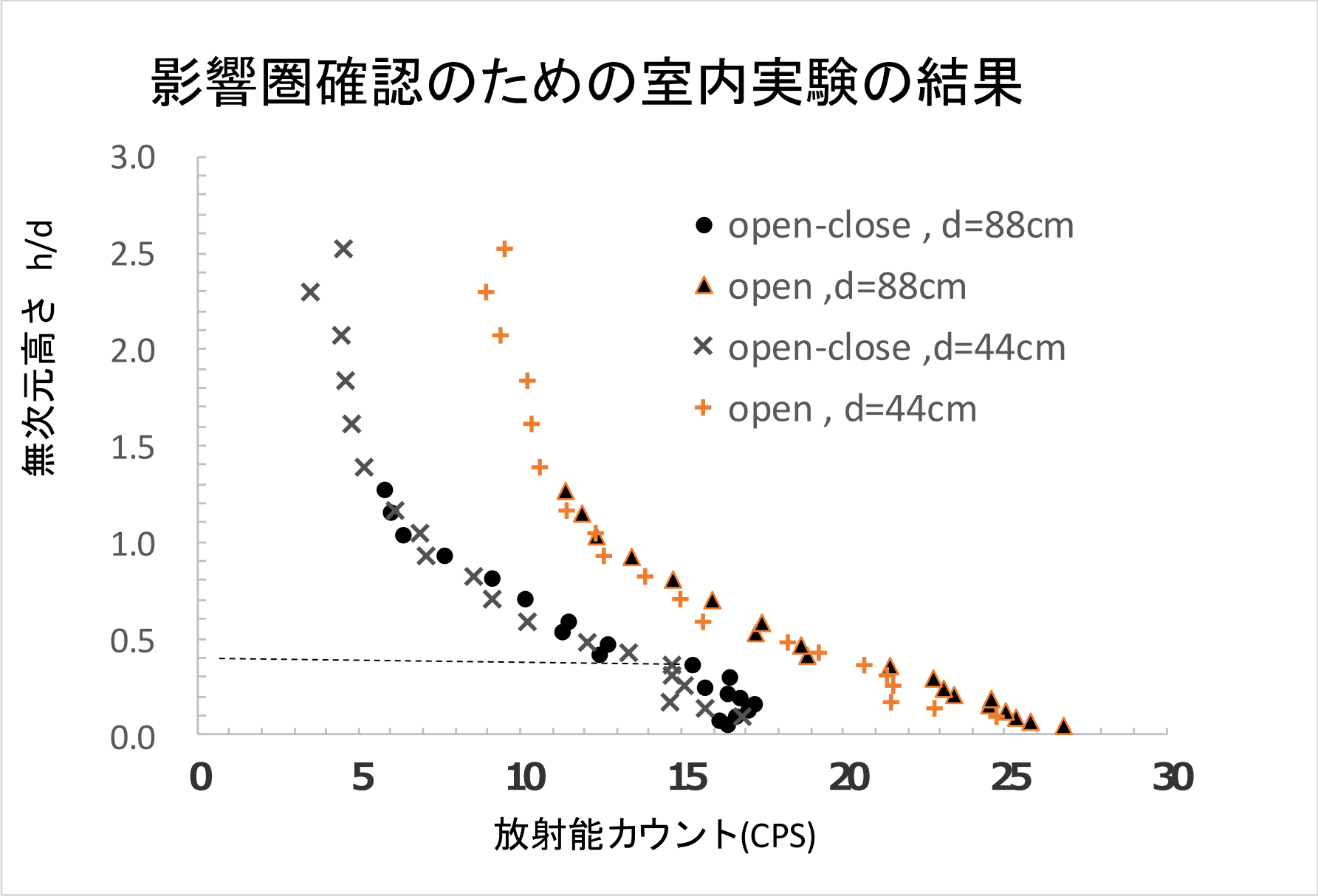


Fig.3　測定高さと測定値(CPS)との関係

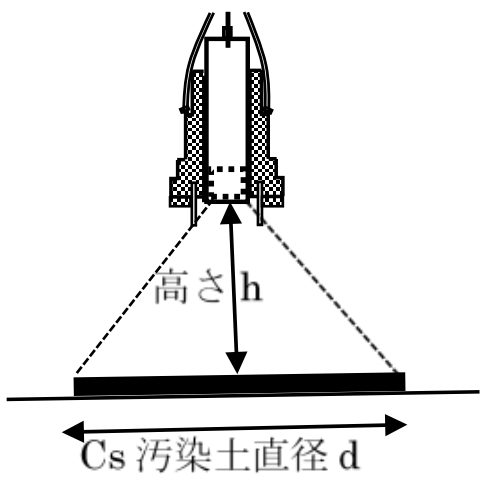


Fig.2　影響圏確認実験の配置

影響圏（平均化範囲）の直径はおよそD=2.5h

測定法の現場検証と変換係数の決定

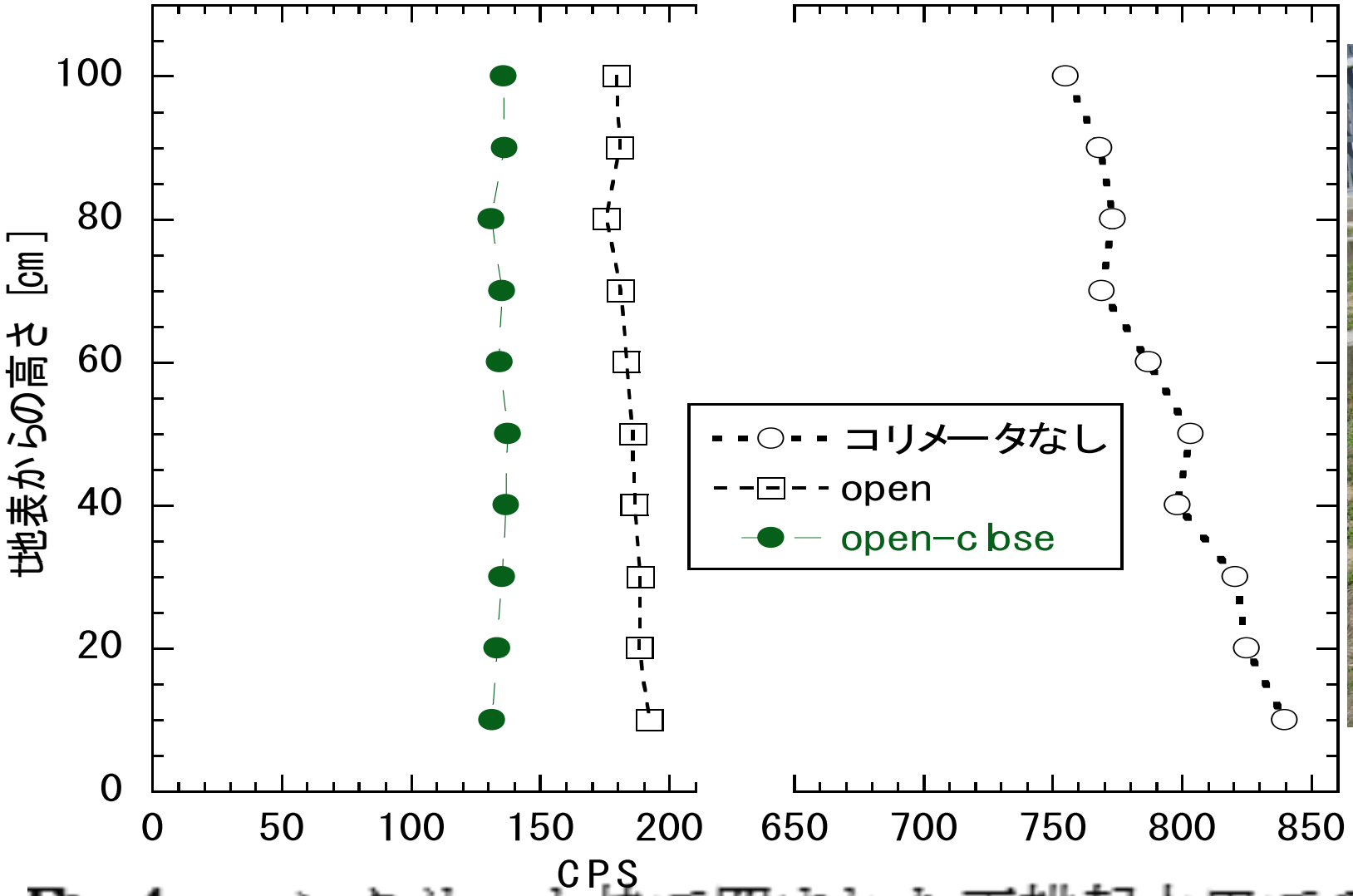
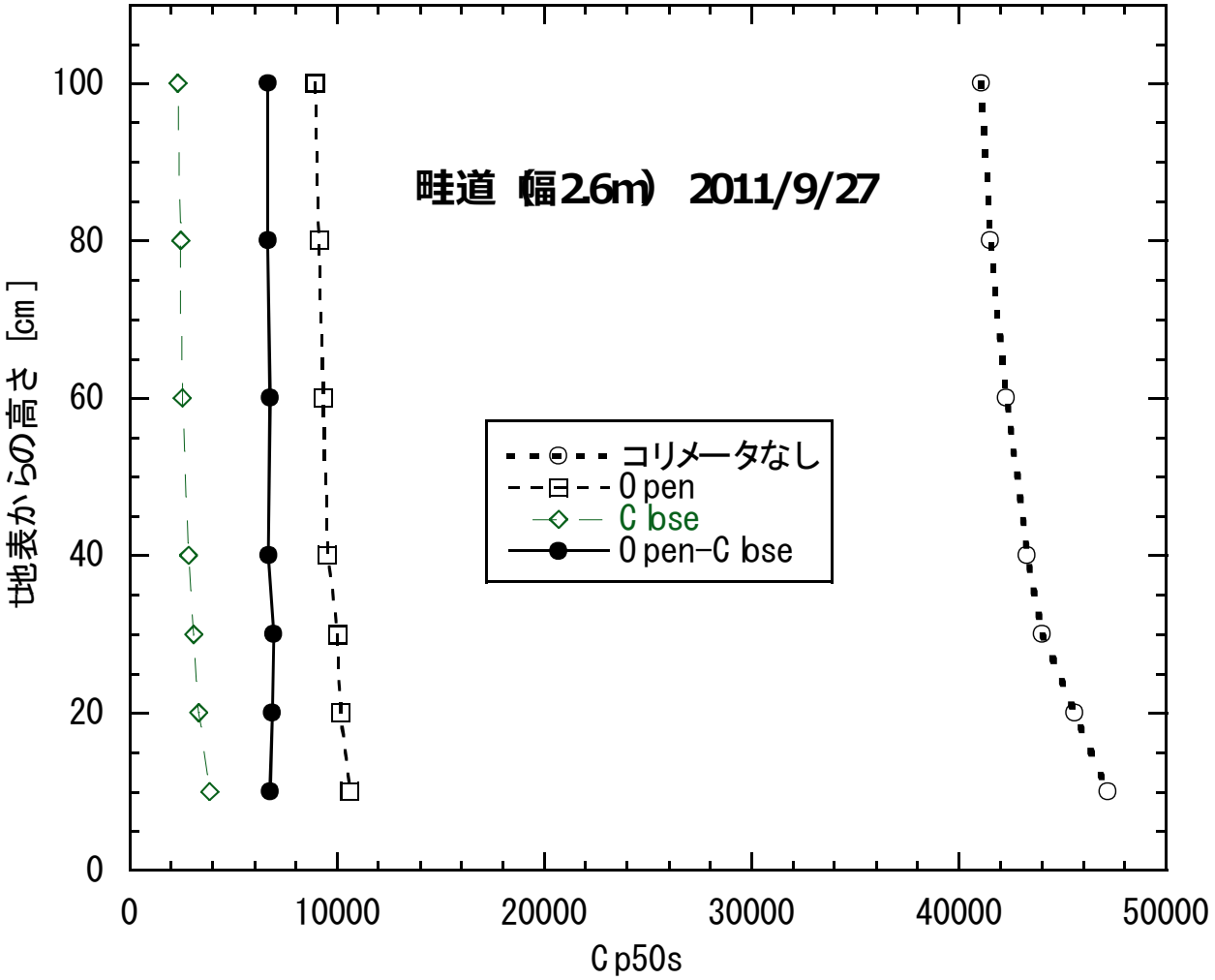


Fig.4　コンクリート枠で囲まれた不耕起水田での高さと測定値との関係；2011 年 9 月、Cs 濃度=634 kBq/m^2

測定法の現場検証



両側が耕起水田の農道の表面濃度測定；耕起水田の（みかけの）表面濃度は農道の約1/2

測定例1.　畝に直交する測線上のCs濃度分布

写真:
福島県農業総合センター(郡山)の花木園;畝が2本見える。2011年以前から乱されていない。

粘質土で長期間耕起されておらず、透水性が低いと思われる。
草の根もあり、土壌浸食が生じるところではない。

測定例1.　畝に直交する測線上のCs濃度分布

写真:
福島県農業総合センター(郡山)の花木園;畝が2本見える。2011年以前から乱されていない。

粘質土で長期間耕起されておらず、透水性が低いと思われる。
草の根もあり、土壌浸食が生じるところではない。

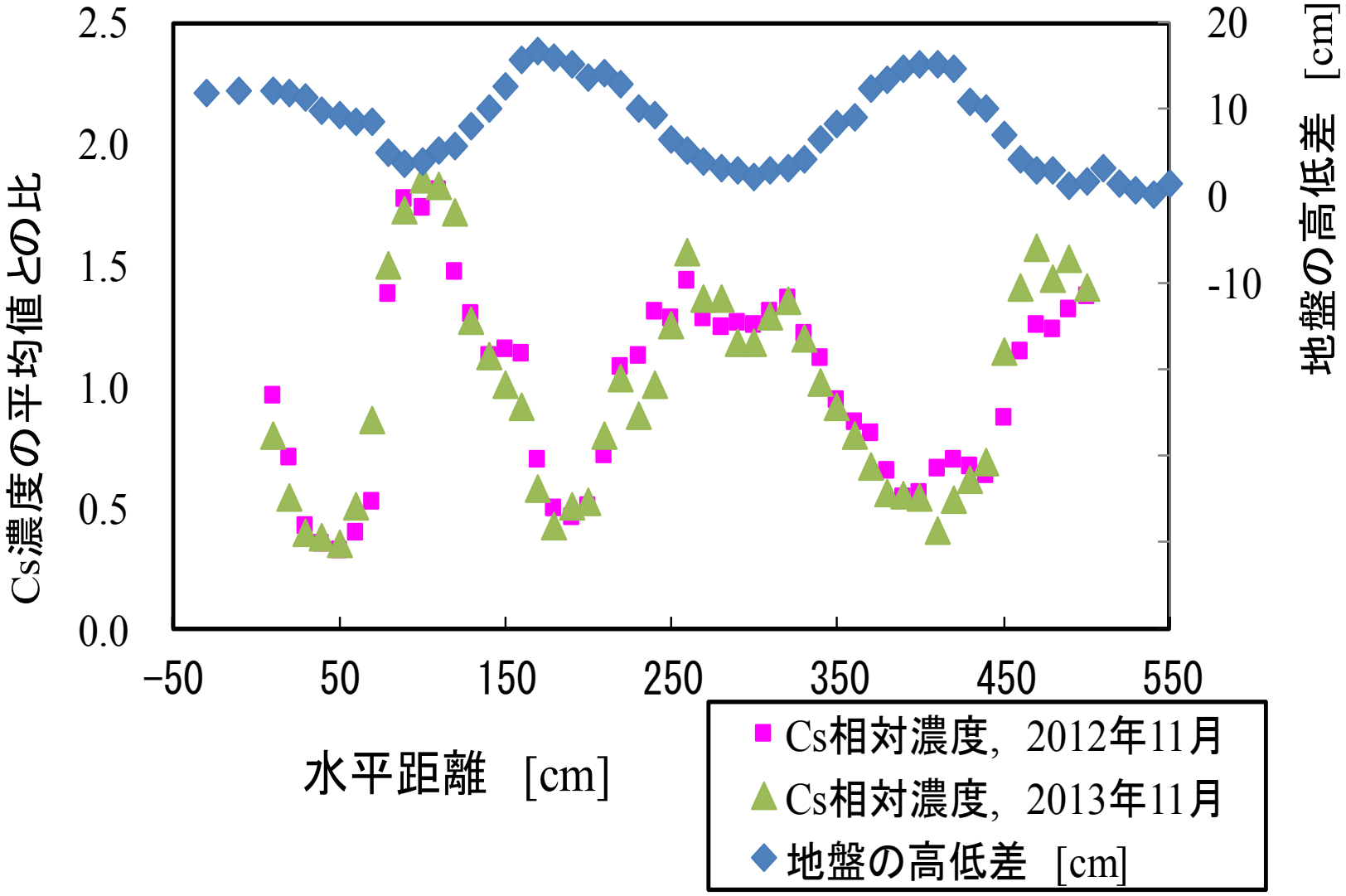
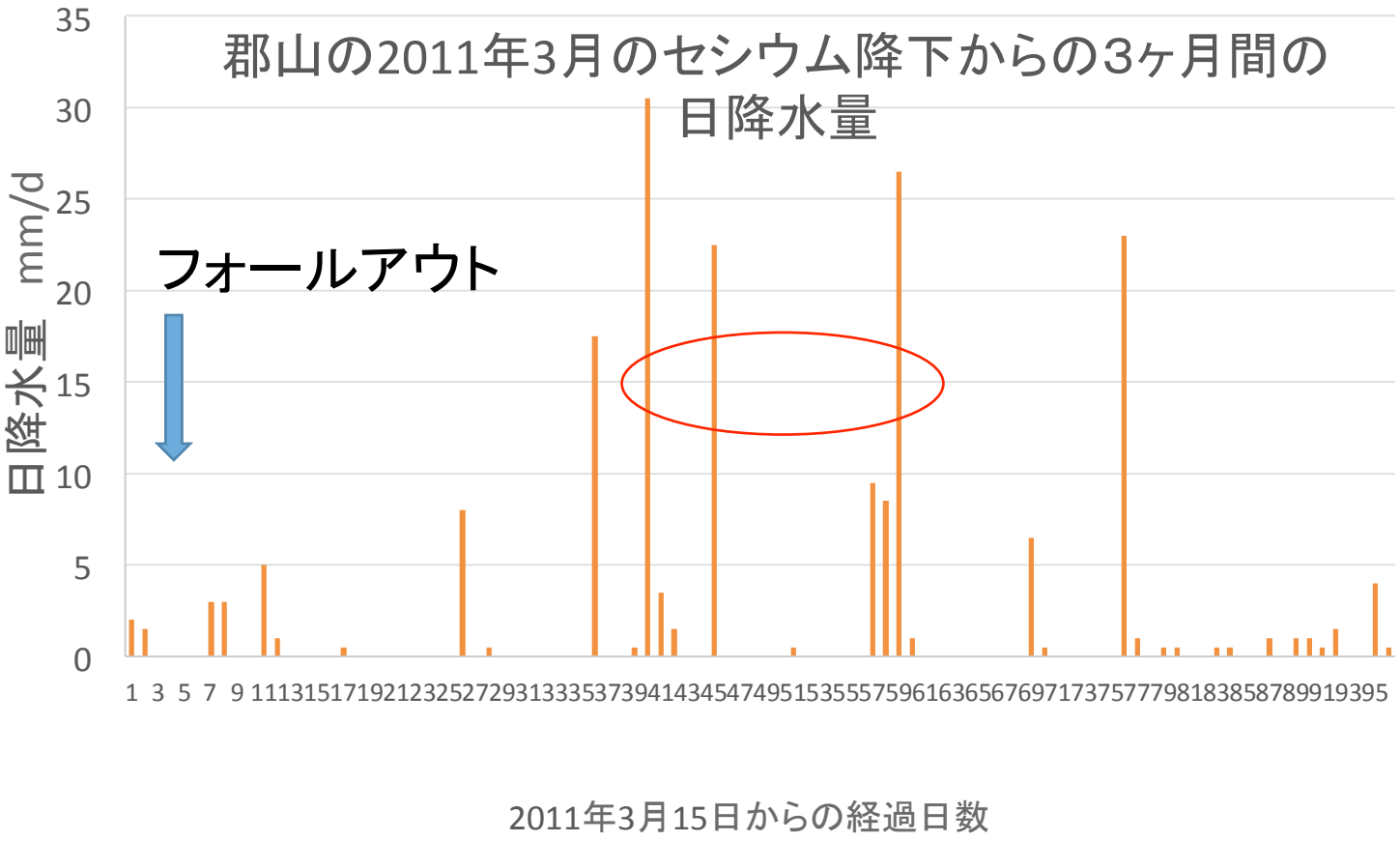
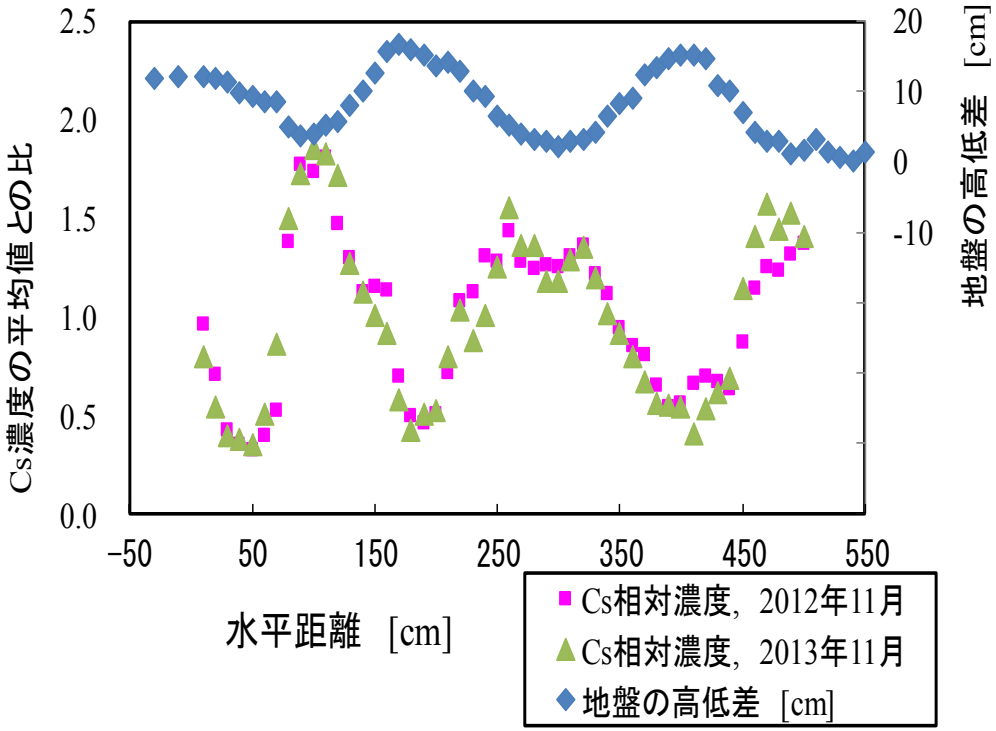


Fig.5 花木園（農業総合センター）の畝に直交する測線上のCs相対濃度（測線上の平均値に対する比）分布と地盤高分布。測定高さ4 cm（影響圏直径10cm）.Cs濃度の測線平均値は431 kBq/m^2(2012年)と316 kBq/m^2(2013年)である.

畝の山で濃度が低く、谷で高い
2011年4-5月の3回の降雨（20-30mm/d）によって、水溶性の形態で地表面を流れたと考えられる。2012年と2013年の分布はほぼ同じ:
フォールアウトから2ヶ月程度は水溶性Csがあって、水とともに移動しやすかった。

フォールアウトから1～2ヶ月後の降雨浸透で水平移動した：水溶性Csがかなりあった。





作物への移行係数

セシウムの土壌への固定

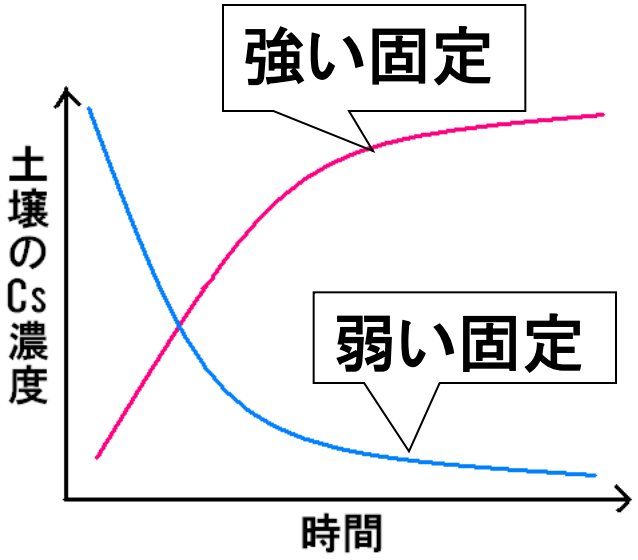
弱い固定 → 強い固定

・交換性陽イオン

・植物に吸収されうる

・一度固定されたら離れない

・植物にほとんど吸収されない



$$\text{移行係数} = \frac{\text{作物中の放射性セシウム濃度(Bq/kg生重)}}{\text{土壌中の放射性セシウム濃度(Bq/kg乾土)}}$$

↓

土中のセシウムの固定状況を示す

↓

事故後数ヶ月の間の短期間の推移は分かっていない

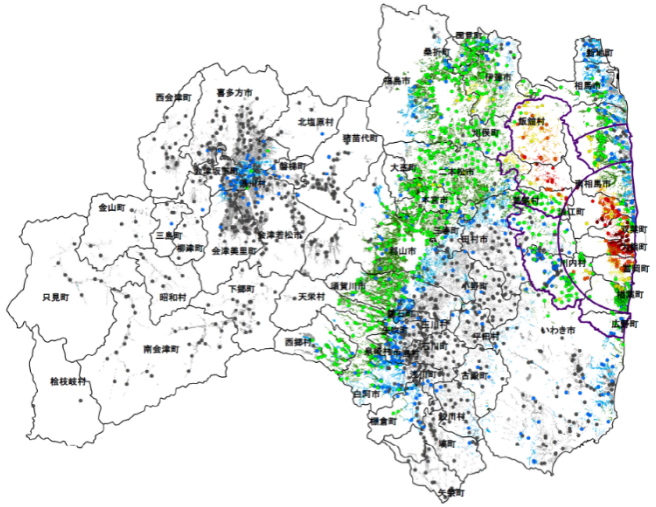
方法：移行係数の算出

$$\text{移行係数} = \frac{\text{作物中の放射性セシウム濃度(Bq/kg生重)}}{\text{農地土壌中の放射性セシウム濃度(Bq/kg乾土)}}$$

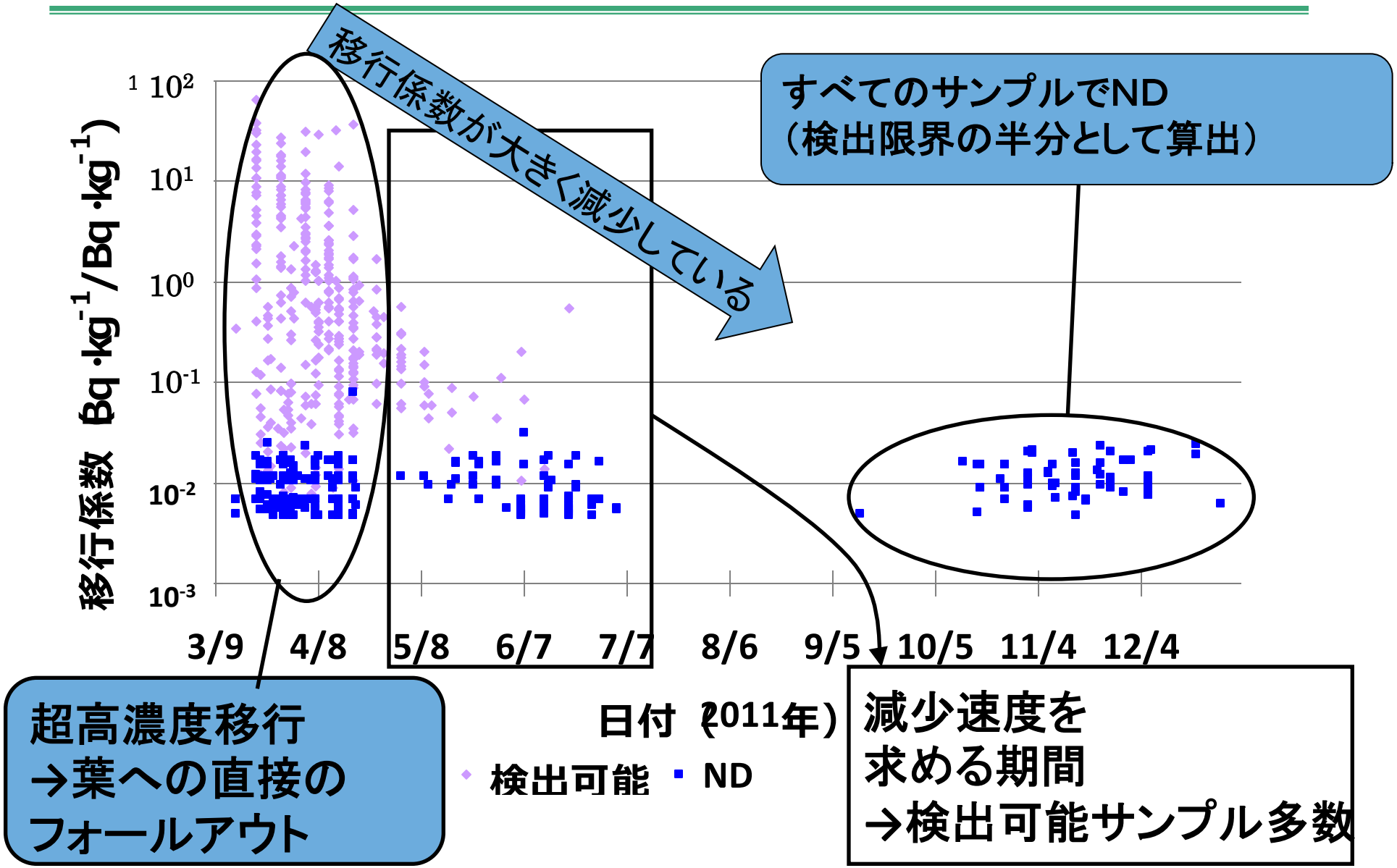
福島県農林水産物
モニタリングデータ

・ホウレンソウを用いる
・2011年だけで300サンプル以上
→サンプル数が多い！
・収穫時期と吸収時期が近い
→生育期間が1～1．5ヶ月と短い

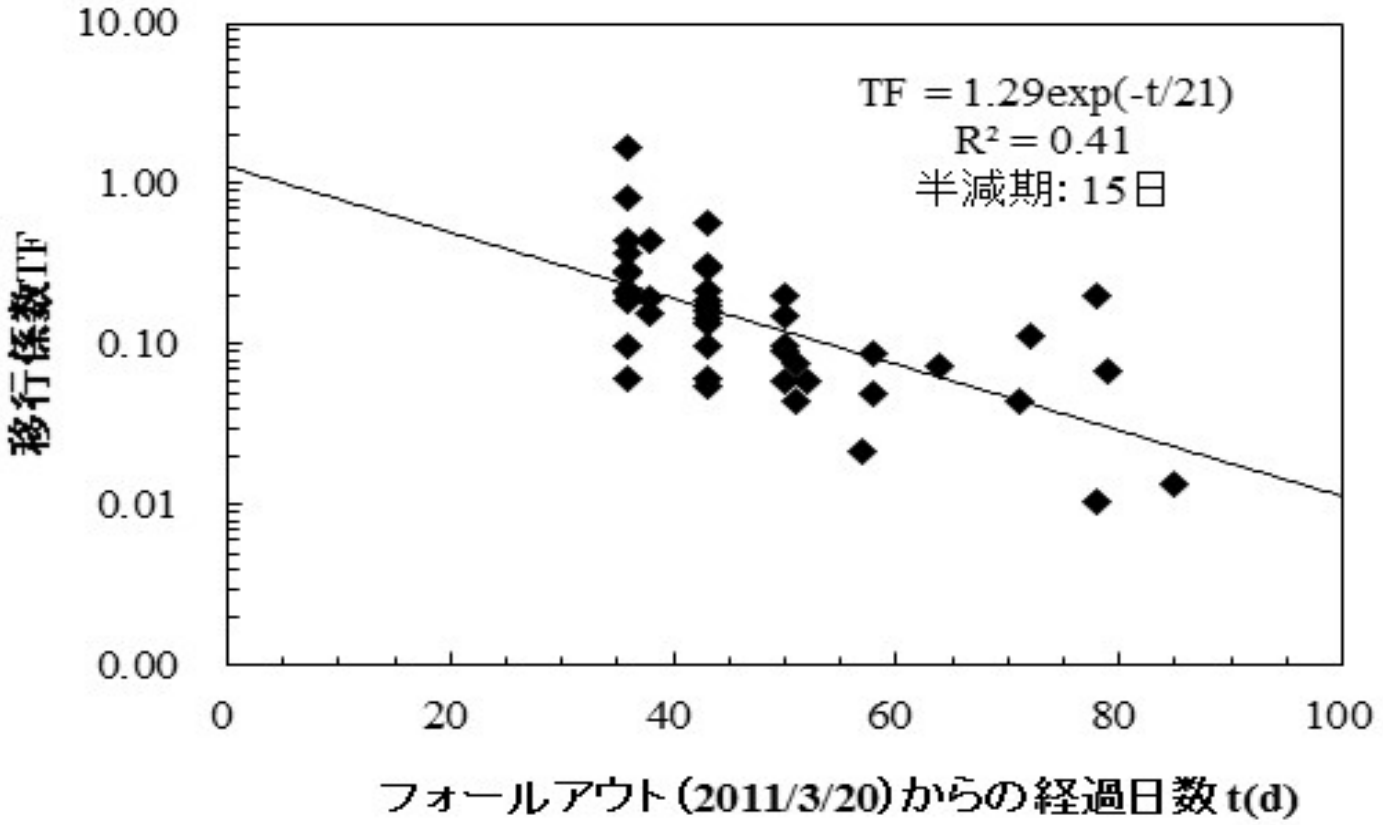
農林水産技術会議の
農地モニタリングデータ
・2247地点
・59市町村ごとに算出



結果：移行係数の推移


移行係数が大きく減少している
すべてのサンプルでND
（検出限界の半分として算出）
移行係数 Bq・kg-1/Bq・kg-1
1 10^2
10^1
10^0
10^-1
10^-2
10^-3
3/9
4/8
5/8
6/7
7/7
8/6
9/5
10/5
11/4
12/4
日付（2011年）
検出可能
ND
超高濃度移行
→葉への直接の
フォールアウト
減少速度を
求める期間
→検出可能サンプル多数

フォールアウト後4カ月間の移行係数の減少速度（ホウレンソウ）

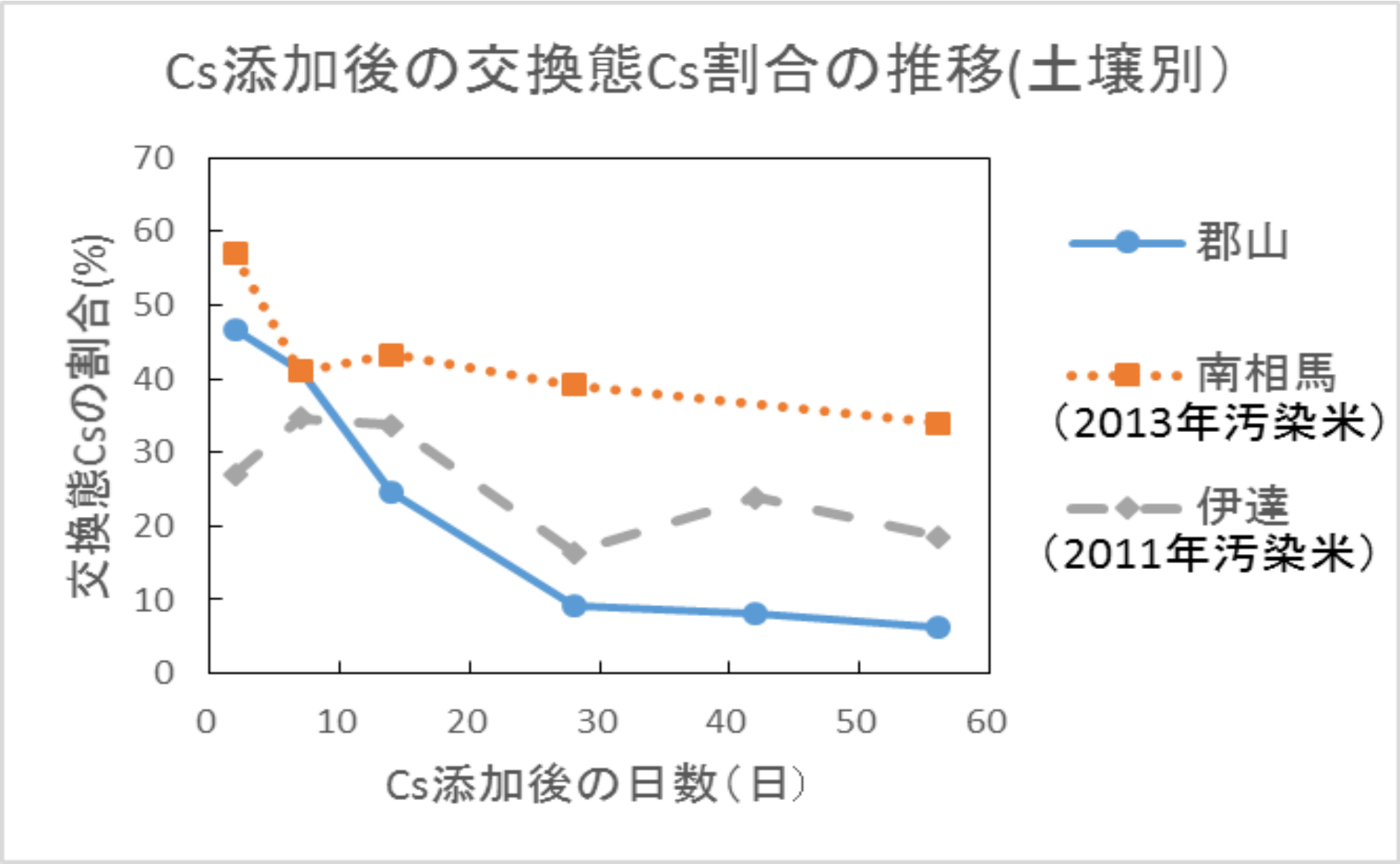


半減期＝15日

放射性セシウムの強い固定も同様の速度で進んだと考えられる。

Fig.4 ホウレンソウの移行係数とフォールアウトからの経過時間との関係.　直線は回帰直線

Csの強い固定への移行速度は土壌によって異なる： Cs添加実験



何れも水田土壌

2013年汚染米産出水田土壌は著しく遅い

実験継続中

Csの土壌固定の長期的推移はわかっている

大気圏核実験以降の放射性Cs降下量

1963年から3年間で1/10
その後、1990までに、さらに1/1000

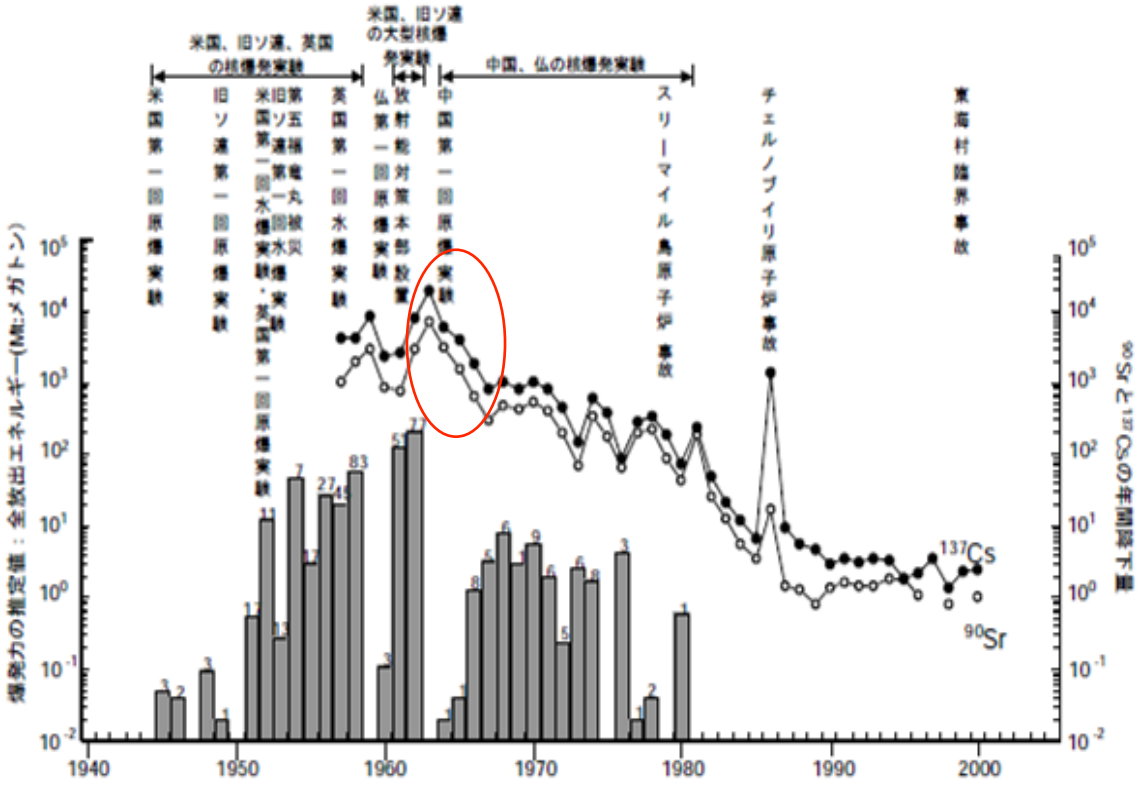


図1　大気圏内核爆発実験の年次ごとの回数と爆発力の推定値およびわが国における^{90}Srと^{137}Csの降下量
（原子力安全委員会（1983）、青山ら（1996）および気象庁：放射能観測報告（2003）を参考に作図）
注）棒線は爆発力の推定値。その上の数字は核爆発実験回数を示す。折れ線は^{90}Srと^{137}Csの年間降下量である。

玄米と白米のCs濃度の経年推移

1963年から3年間で1/10
その後、1990年までの30年間でさらに1/10

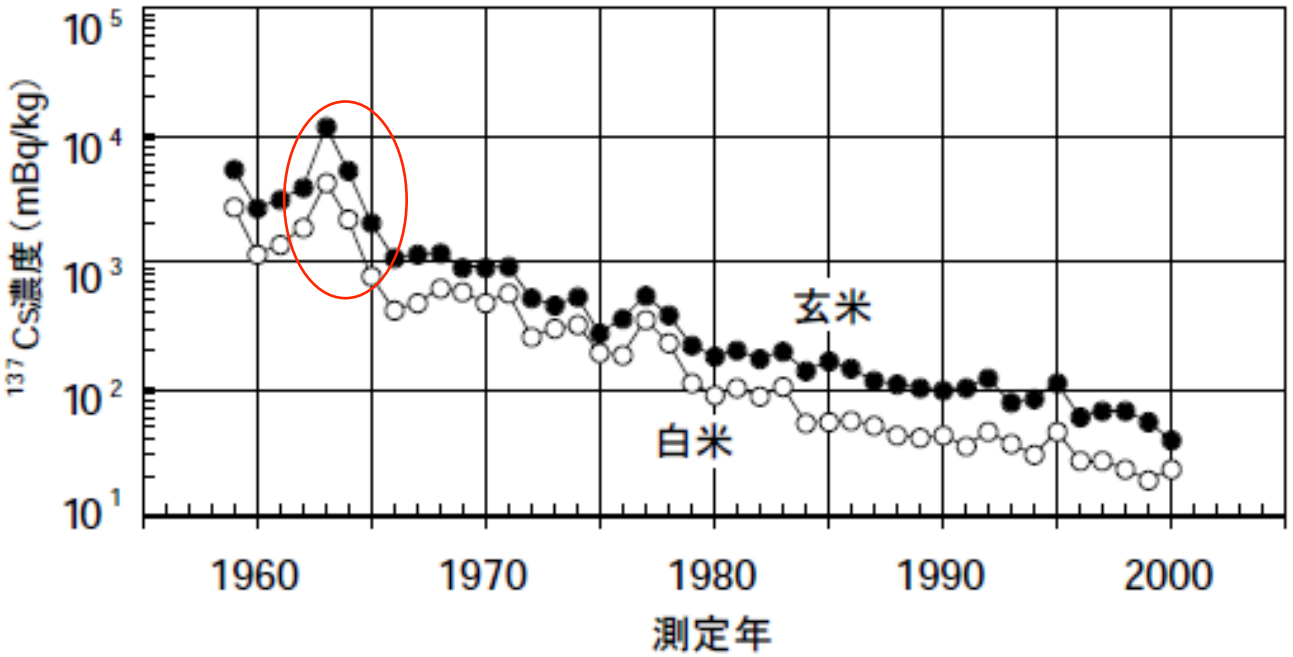
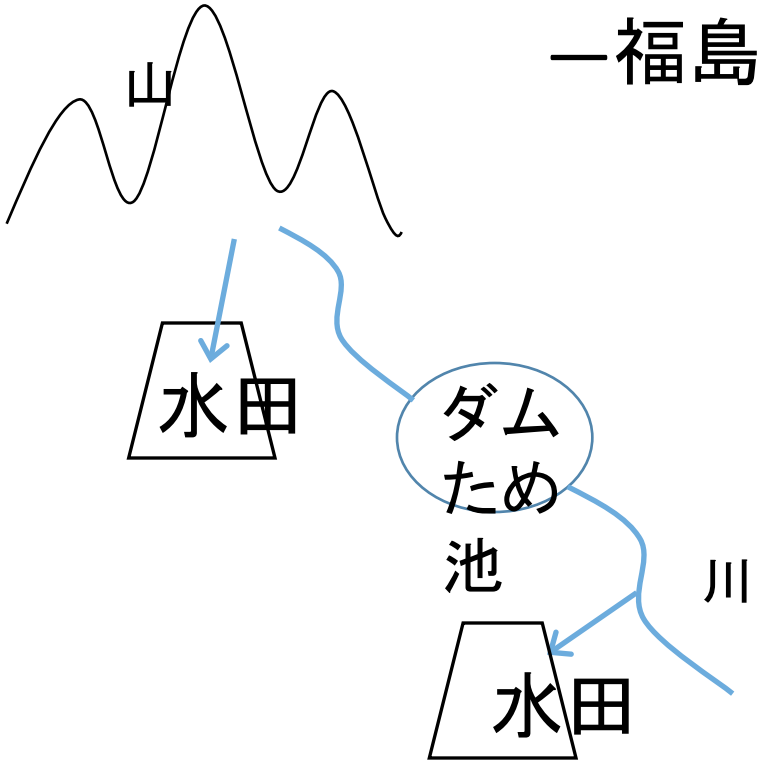


図３　玄米と白米における^{90}Srと^{137}Cs濃度の経年推移（全国平均）

（駒村美佐子ら: 農技研報 24 (2007) より）

放射性セシウムは
どこから水系に流出したのか



―福島のため池の蓄積量調査から―

仮説

- 原発事故で降下した放射性Csが一部の水系に流出し、ホットスポットを形成している.

  山から流出？

- Csは土に強く吸着されるため、森林からはほとんど流出していなはず。

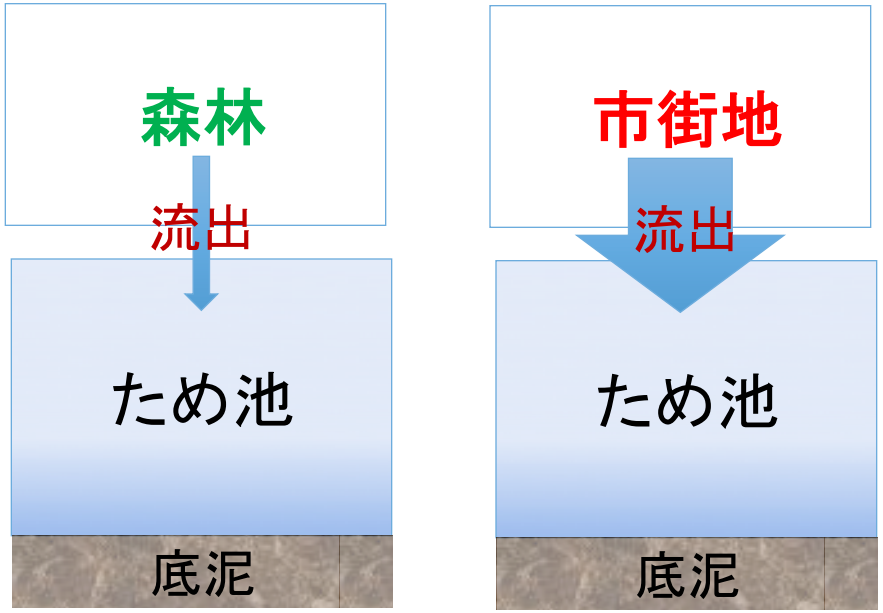
Ø 仮説:　土壌のない市街地（アスファルト・屋根）からCsが流出し、水系に蓄積

ため池調査による仮説の検証

- ため池では、ため池水面に降下したCsとともに、2011年3月以降に上流から流出したCsが沈降し、底泥に蓄積している。

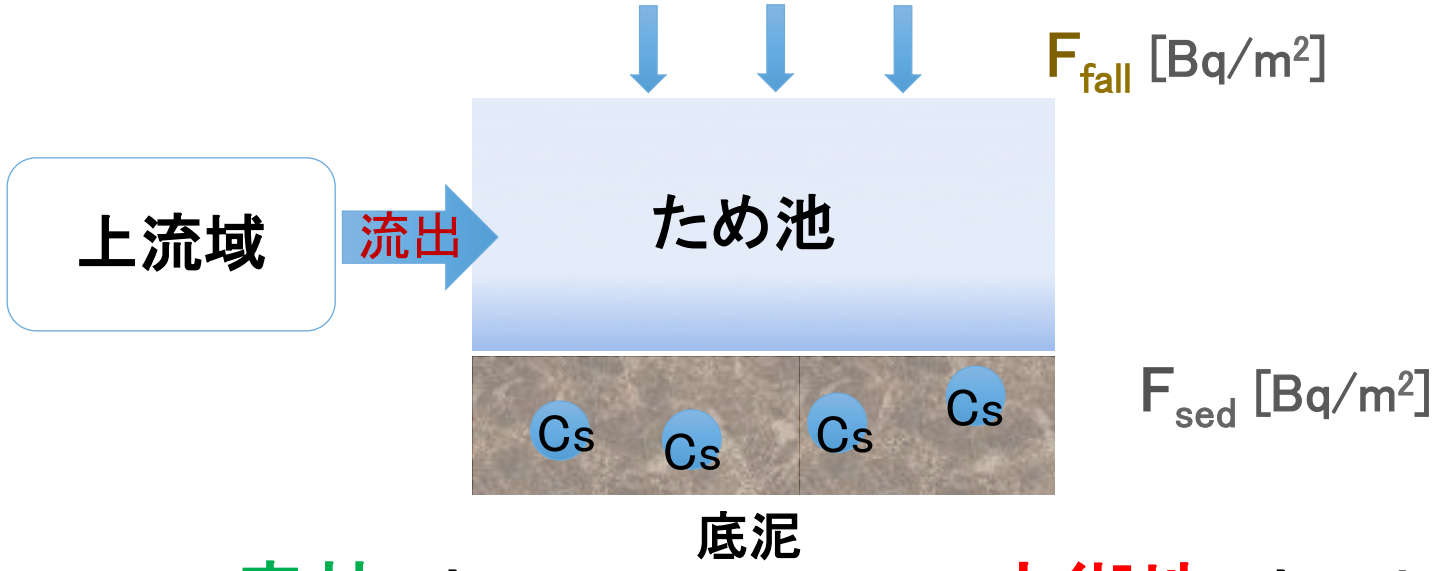
⇨ **上流部が森林であるため池と、市街地であるため池に蓄積しているCs量を比較する**

仮説



仮説の検証

底泥の平均Cs量F_{sed}と、ため池水面への降下Cs量F_{fall}の比を求め、**森林**ため池と**市街地**ため池で比較



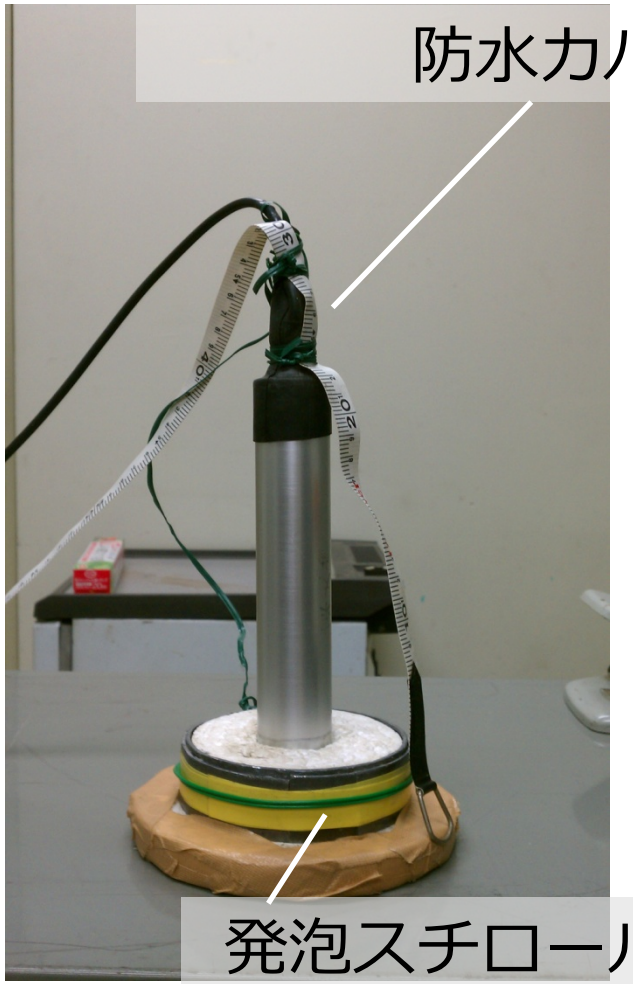
森林：流入小

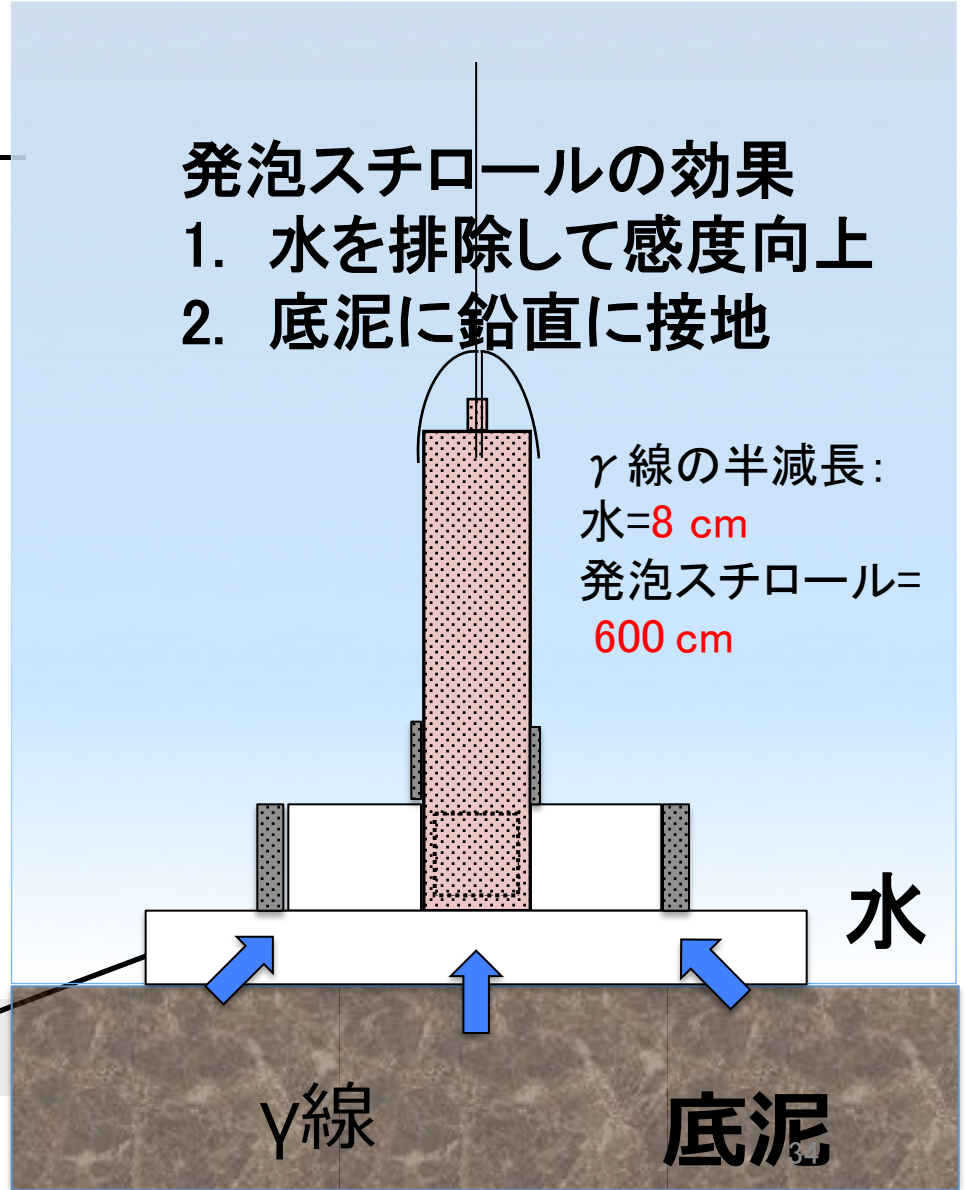
$$\frac{F_{sed}}{F_{fall}} \cong 1$$

市街地：流入大

$$\frac{F_{sed}}{F_{fall}} > 1$$

F_{sed} の測定（水中底泥のCs量測定）





調査ため池

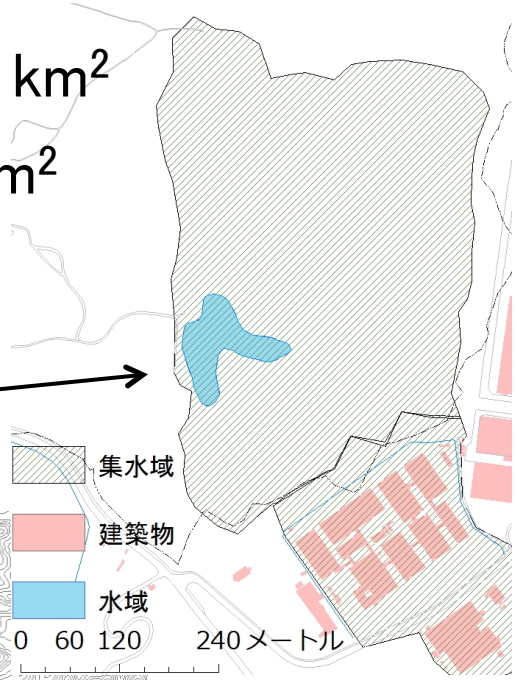
- 森林ため池①（大池；本宮市）

集水域面積:A=0.17 km^2

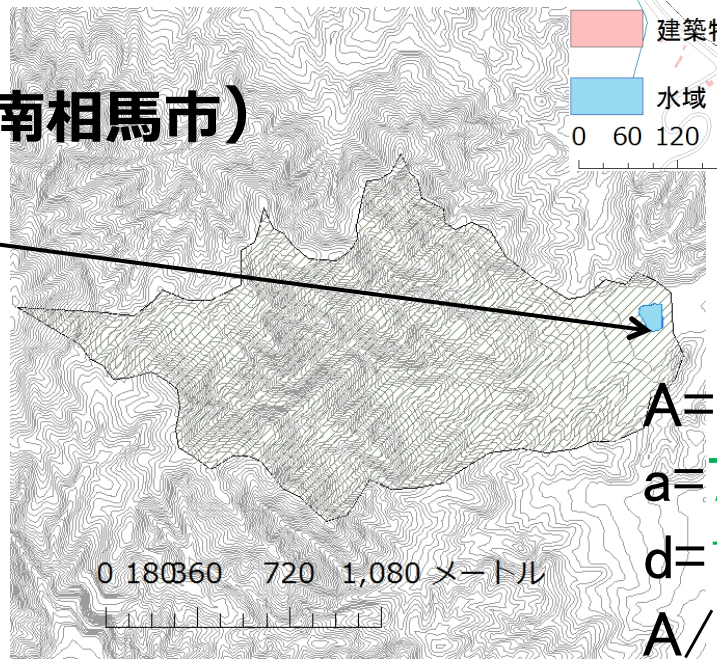
満水面積:a=7,090 m^2

平均水深:d=3.00 m

A/a=23.9



- 森林ため池②（ヤボケ池；南相馬市）



A=1.67 km^2

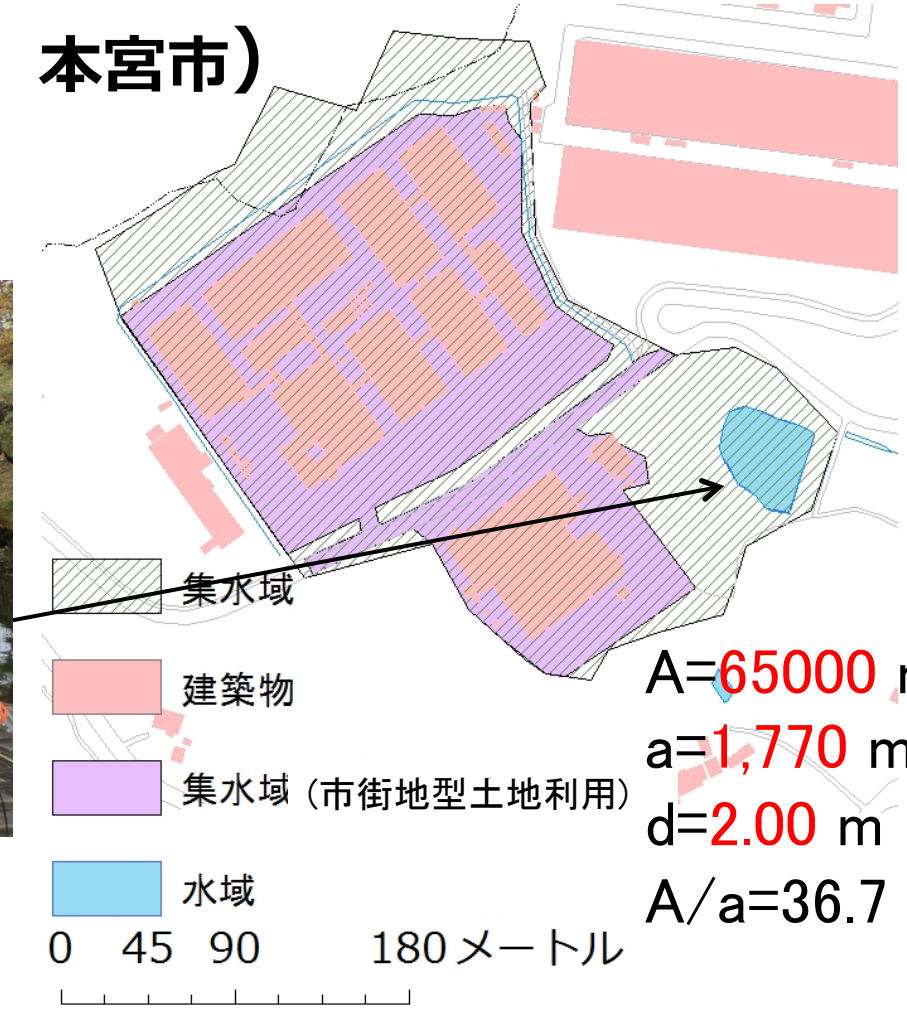
a=7,580 m^2

d=1.27 m

A/a=220（？）

調査ため池

- **市街地ため池（H池;　本宮市）**

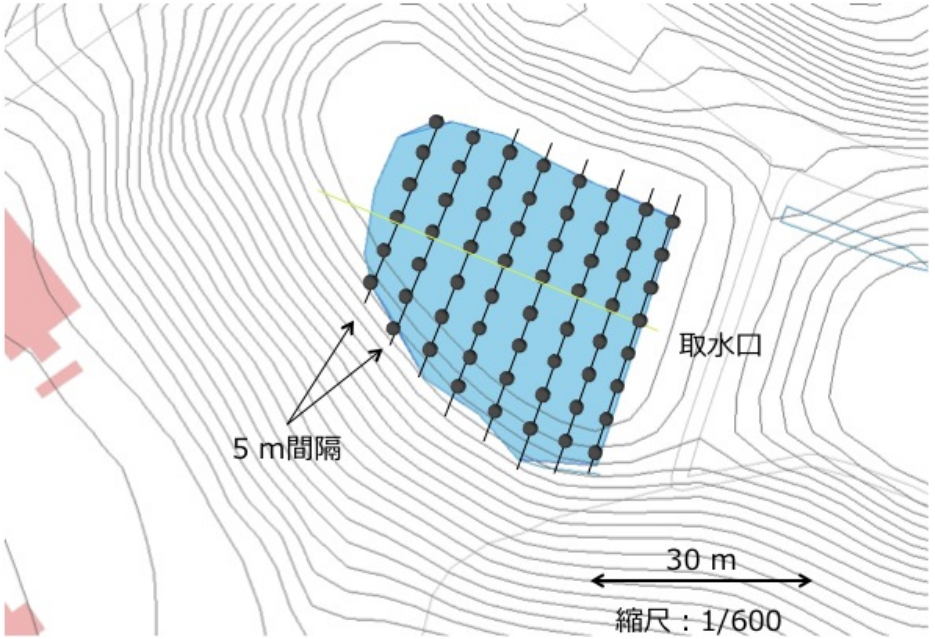


A=65000 m^2
a=1,770 m^2
d=2.00 m
A/a=36.7

調査は2012年12月～2013年2月にかけ計4回調査

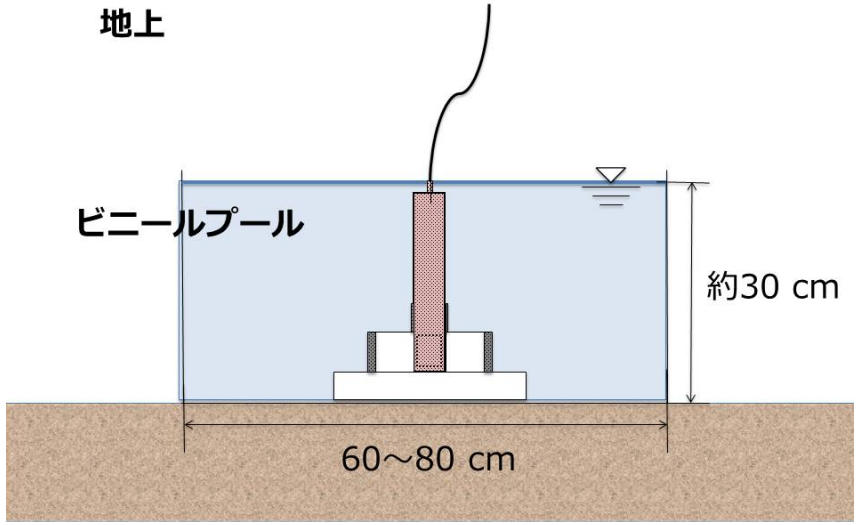
F_{sed} の測定

- 格子状に5 mまたは10 m間隔で測定点を設定
  大池：85地点，ヤボケ池：65地点，　H池：83地点
- 測定線上にロープを張り、ボートを固定して測定



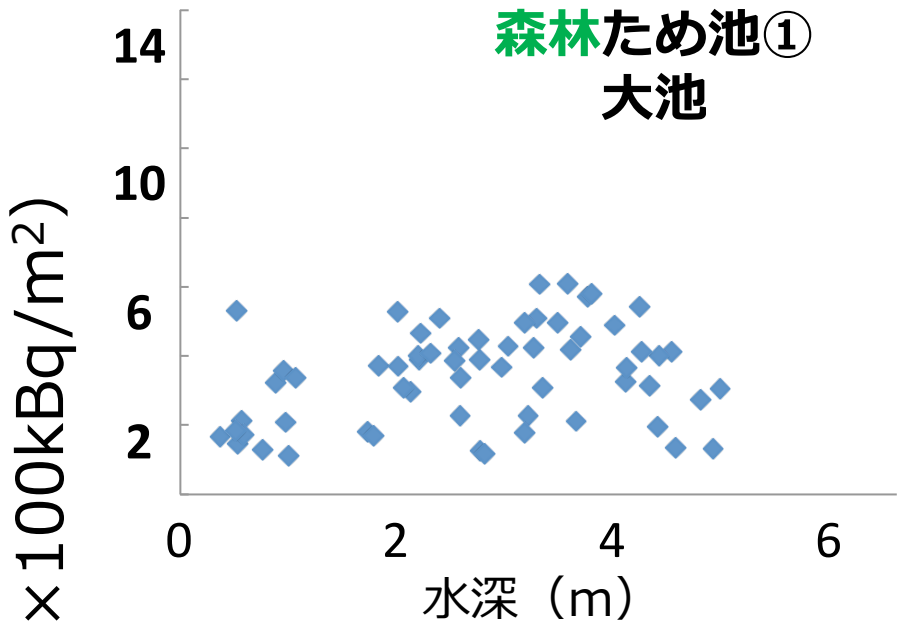
フォールアウト濃度F_{fall}の測定

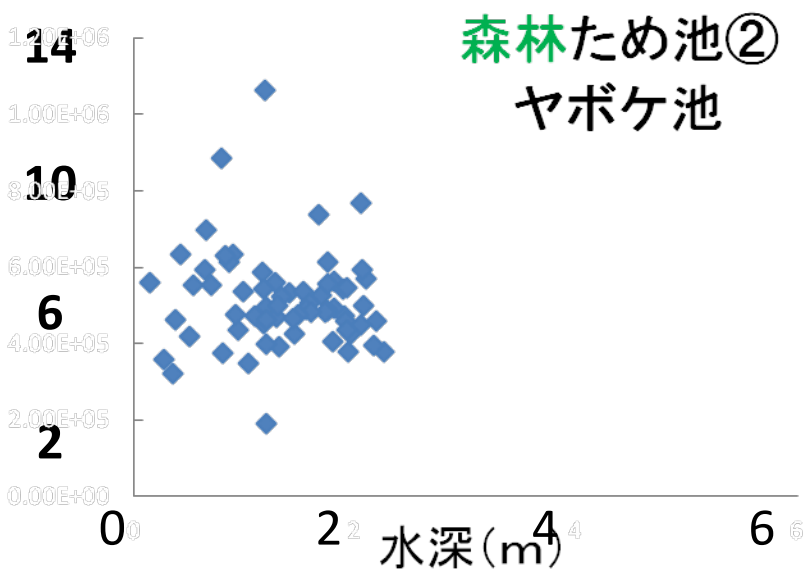
- 地上（堤体部土壌）のCs量を，ため池水面で降下したCs量F_{fall}とみなし，底泥と同じ測定器，同じ条件で測定する。
- 底泥と同様にサーベーメータ周囲を水にするため，ビニールプール内で測定

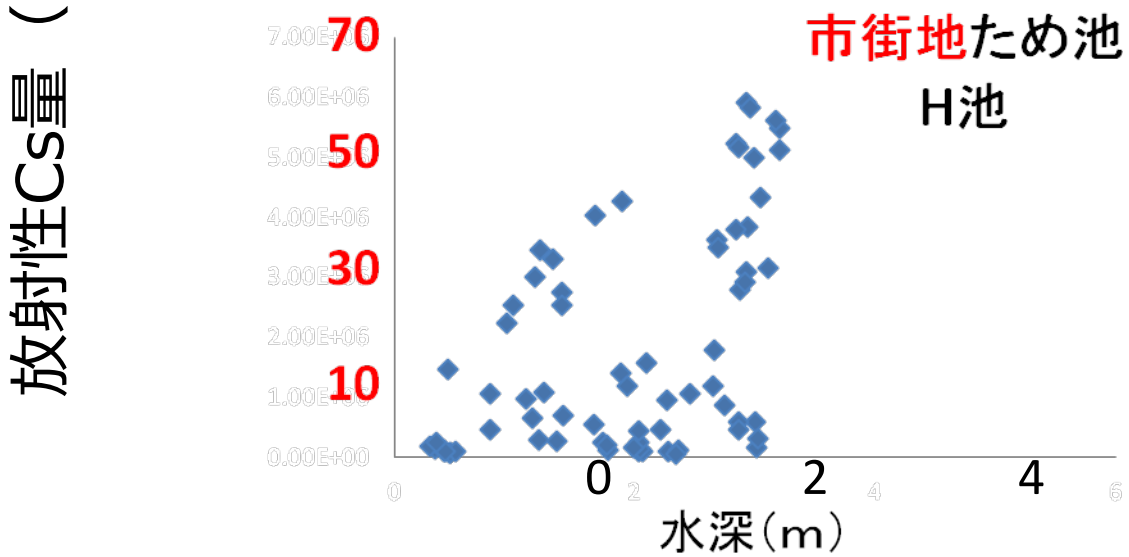


底泥のCs量と地上のCs量との比較が可能になる。

放射性Cs量と水深との関係







放射性Cs量（×100kBq/m²）

水深が深いほど濃度が高い傾向があるが、ばらつきが大きい

結果： ため池の放射性Cs量

	森林ため池		市街地ため池
	大池	ヤボケ池	H池
ため池底泥の平均Cs量 F_{sed} [kBq/m^2]	343	505	**1680**
ため池水面に降下したCs量 F_{fall} [kBq/m^2]	399	603	350
F_{sed}/F_{fall}	**0.86**	**0.84**	**4.8**
調査時の水の濃度 [Bq/L] （懸濁態＋溶存態）	0.34	0.45	1.59
溶存態	0.12	0.20	0.93

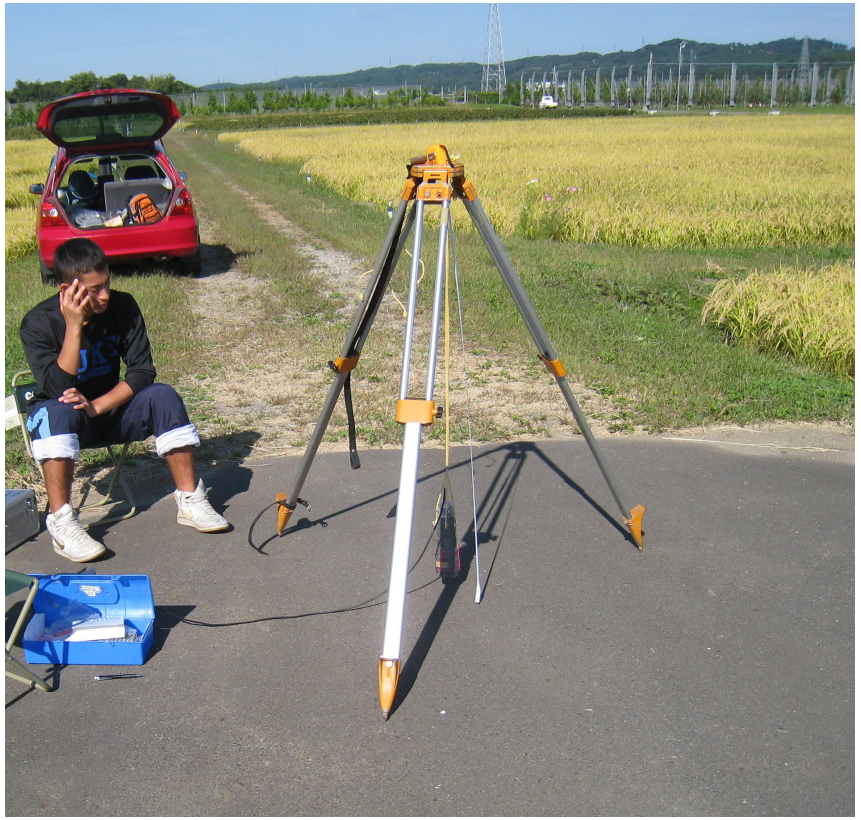
市街地が集水域：F_{sed}/F_{fall}が1より大きく,少なくともF_{fall}の**４倍程度が上流から流入**

森林が集水域：F_{sed}/F_{fall}が1に近いが,F_{fall}の**15%程度**がため池から**流出**

放射性Csの水系への大きな流出は、森林（山）から生じたのではなく、一部の市街地から生じた

アスファルトと土壌面の地表面濃度の比較

場所 測定月	土壌 kBq/m²	アスファルト kBq/m²	アスファルト/土壌
本宮市,農道 2011.9	636	340	**0.53**
本宮市,工場敷地 2013.2	258	102	**0.40**
大柿ダム周辺，2013.11	6480	2770	**0.43**



アスファルトからは、フォールアウト量の約1/2のCsが流されている

・放射性Csの水系への大きな流出は、森林（山）から生じたのではなく、一部の市街地（アスファルト）から生じた。

農業用水路に堆積したCsの多くは、付近のアスファルト道路から、フォールアウト直後に流出したCsであろう。

大柿ダムの場合（農水省調査データを用いて解析）

- 流域面積（A）: 103.8 km^2 、84%が森林
- ダム湖面積(a) : 0.9 km^2 , A/a=115

F_{sed} ＝ 6.65 MBq/m^2 (2013年測定 ; 農水省調査データ)

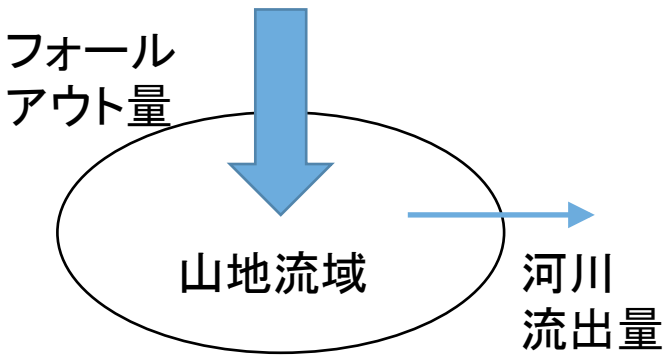
F_{fall} ＝ 7.57 MBq/m^2 (塩沢測定)

F_{sed} / F_{fall} ＝ <u>0.88</u>　(2013年時点）

ダム湖低質の濃度はフォールアウト濃度（周囲の土壌濃度）と同程度

山からの放射性セシウムの流出速度（大柿ダム）

流域の存在量= 3.93×10^{8}　MBq　（文科省第1次航空機モニタリングデータから農水省解析）



年間流出量（農水省の調査）:

2013年7月-11月　7.83×10^{5}　MBq

2014年7月-11月　5.71×10^{5}　MBq

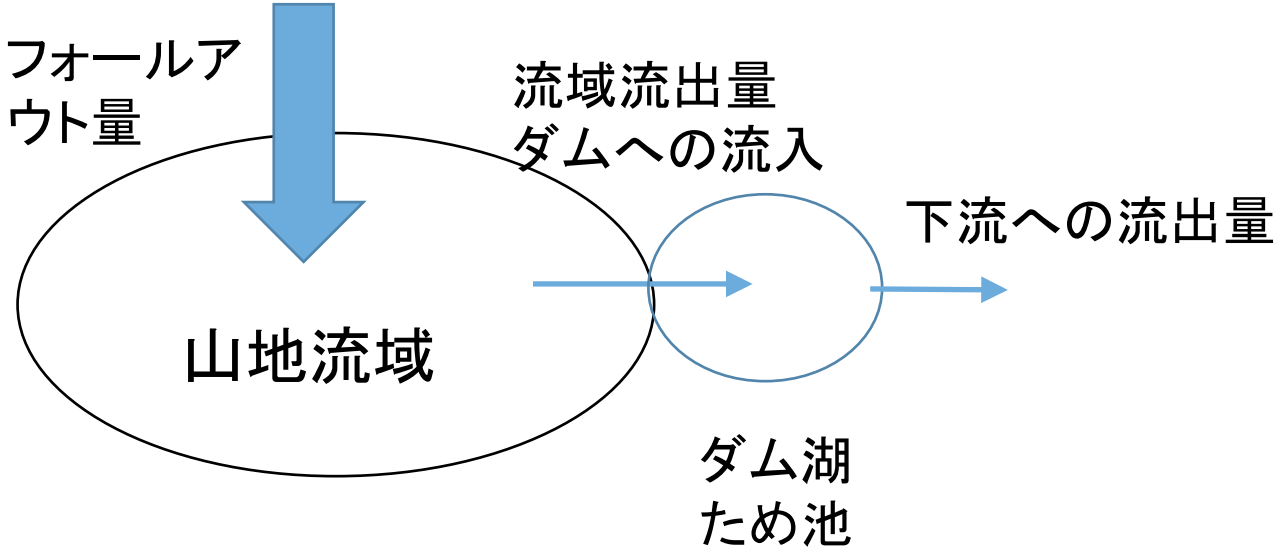
90%以上が懸濁態（土粒子）で、ほとんどが豪雨時に流出

流出量（ダム湖への流入量）は一年間に、流域存在量（フォールアウト量）の1/500~1/700で、流域Cs収支としては無視できるが、

（流出半減期　300～500年　;Cs-137の自然崩壊半減期30年）

[ダム湖面積]/[流域面積]が小さいので、ダム湖堆積量としては、湖面フォールアウト量の1/5～1/7で、無視できない。

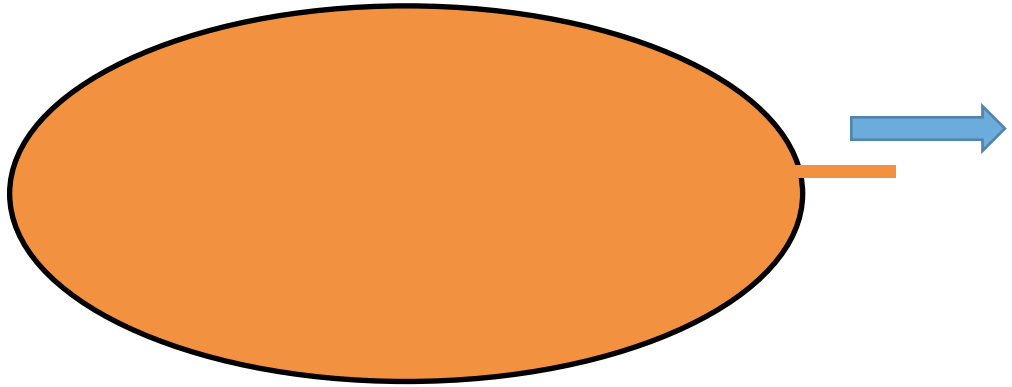
ダム湖やため池は放射性セシウムをトラップして下流への流出・拡散を防いでいる



大柿ダムは上流から流入する放射性Csの約90%をトラップしている。（農水省調査）
ダムがなければ下流の河床に堆積しているであろう。

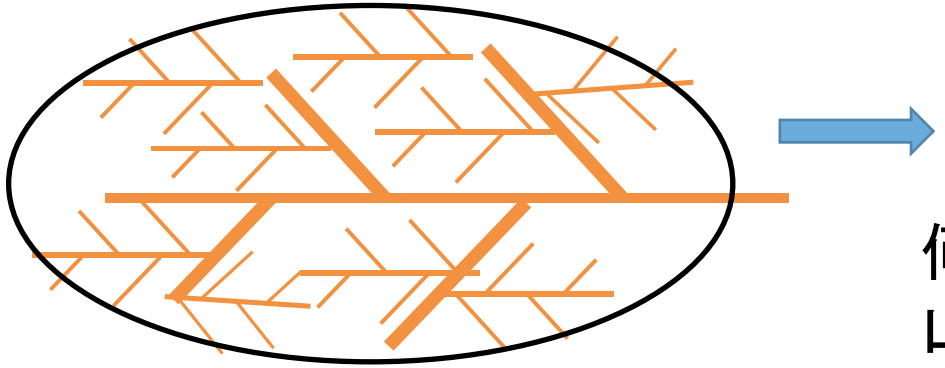
Csは流域からどのように流出しているのか、今後どのように減衰するか

1. 流域全体から平均的に流出:



流出量の減衰には時間がかかる
流出半減期300～500年？

2. 豪雨時の河道のみから流出:



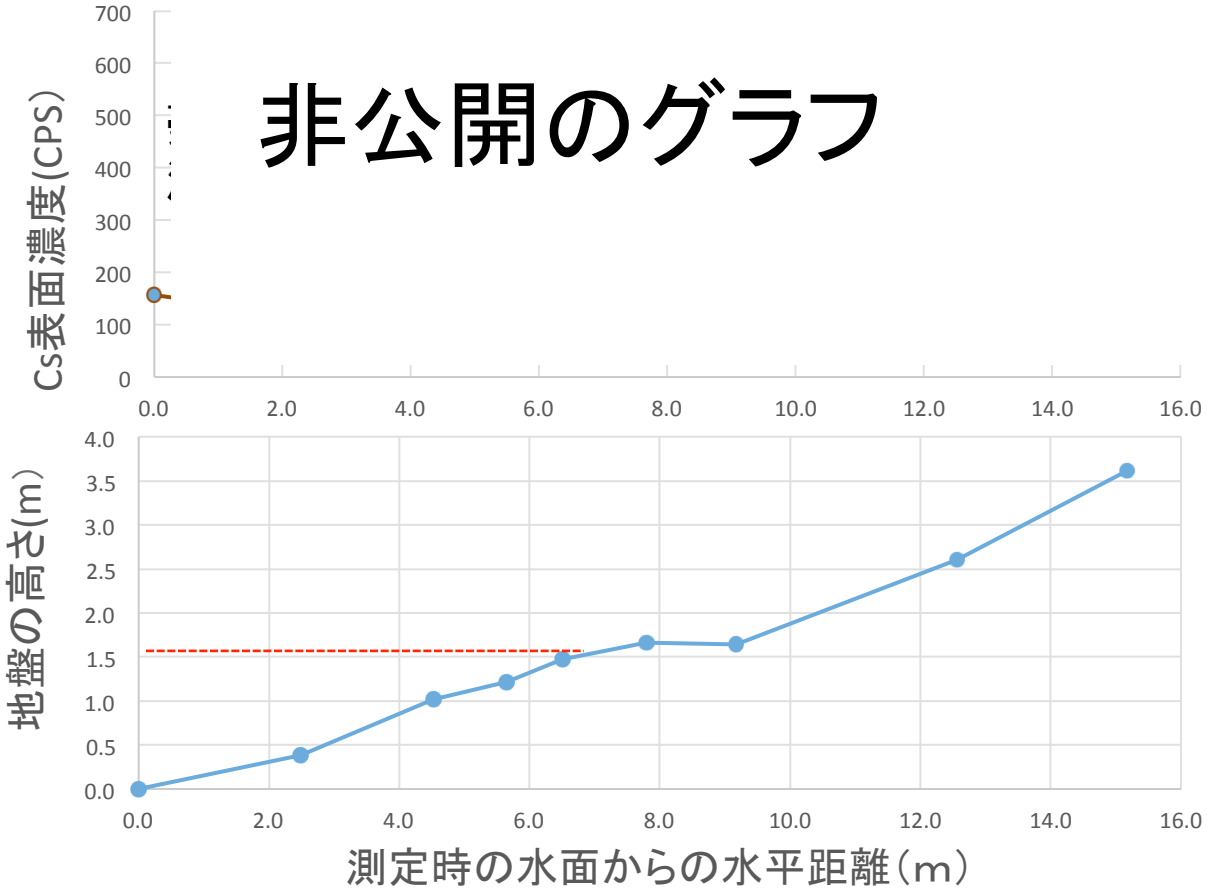
流出量の減衰は速い
流出半減期10年程度？

何れにしても、ほとんどのCsは流出せずに
山に残って自然崩壊で減衰する

進行中の研究；仮説の検証：

「流域が森林の上流の河川において、
流出しているCsは、<u>森林からの流出ではなく</u>、主に河川敷にフォールアウトしたCsが、豪雨時に流出している」

河川敷内のCs濃度分布を測定し、
河川敷からの流出量を推定する。



Thank you