

# 土壤中放射性セシウムの経時的な変化

塚田祥文

キーワード 放射性セシウム, エイジング, 交換態, 放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP), 改良資材

## 1. はじめに

2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所(以下、「東電福島第一原発」と記す)の事故から3回目の秋を迎え各地で農作物の収穫を終えた。イネをはじめ多くの作物で放射性セシウム濃度の低減化が報告されている。福島大学の調査でも、福島市、伊達市等の市場から購入した農作物(コメ、芋類、葉菜類、根菜類、豆類、果菜類および果実)中放射性セシウム濃度は、飲食物の基準値である $100 \text{ Bq kg}^{-1}$ 生を超える農作物はなく、平成24年度産の平均値は $7.3 \text{ Bq kg}^{-1}$ 生( $n=32$ )、平成25年度産については $1.4 \text{ Bq kg}^{-1}$ 生( $n=35$ )と約1/5に減少した。しかしながら、ごく限られた範囲や作物ではあるが、一部の作物で基準値を超える値が報告されている。土壌-作物系における放射性セシウムの動態については、多数の解説(例えば、塚田ら、2011等)があるが、それではいったい、土壌中放射性セシウムは時間の経過とともにどのように変化しているのだろうか。ここでは、汚染地域の放射性セシウム濃度の変化、時間の経過に伴う放射性セシウムの存在形態の変化、土壌における放射性セシウムの保持力の評価等について紹介する。

## 2. 伊達市小国地区における空間放射線量率の経時変化

東電福島第一原発から北西55 kmに位置する伊達市小国地区は、山間部において稲作を営んでいる地域である。小国地区では「放射能からきれいな小国を取り戻す会」によって、事故後の2011年10月に圃場および住宅地等地区内の空間線量率の測定を $100 \times 100 \text{ m}$ のメッシュ毎に、500地点以上で実施した(図1(a))。本地区は、2011年に収穫された玄米が暫定基準値( $500 \text{ Bq kg}^{-1}$ 生)を超えた地域である。空間線量率を測定した時点では既に耕作により土壌の上下混合が行われた後である。このときの空間線量率の平均値±標準偏差は $2.73 \pm 0.72 \mu\text{Sv h}^{-1}$ ( $n=532$ )であった。2011年度産米が暫定基準値を超えたこ

とから本地区では、2012年度には作付は実施されなかった(ごく一部で試験作付を実施)。2013年4~5月の作付前(除染が実施される前)に再び空間線量率を測定した結果、 $1.29 \pm 0.35 \mu\text{Sv h}^{-1}$ ( $n=525$ )と1年6ヶ月後で約50%に減少した(図1(b))。この減少率は、 $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の半減期による減衰から想定される以上の低下率であり、侵食による放射性セシウムの移動、攪乱等による土壌の遮蔽効果等によると考えられる。

## 3. 土壤中放射性セシウムの経時変化

未耕地土壌における放射性セシウムの下方浸透速度は、おおよそ $1 \sim 10 \text{ mm y}^{-1}$ と報告(例えば、Bunzl *et al.*, 1995等)されているように非常に遅く、耕作層より深い土壌への移行はきわめて少ない(例えば、Tsukada *et al.*, 2012等)。放射性セシウムは、土壌に沈着後から存在形態が変化し、水への溶出や植物移行が時間の経過と共に減少することが知られている。土壌(黒ボク土)へキャリアフリー $^{137}\text{Cs}$ を添加した実験では、水抽出率は添加から2日後には1%以下にまで減少し、64日後には約0.1%まで更に減少した。1 M酢酸アンモニウムで抽出される交換態画分の割合は、2日後に約60%、64日後に34%、1年後に25%、2年後に22%まで減少した(図2)。加えて、東電福島第一原発事故前から土壌に存在する大気圏核実験由来による $^{137}\text{Cs}$ の交換態画分の割合は9.3%(降下物のピークである1963年から40年以上経過)であった。従って、交換態画分には比較的短時間で減少する成分と、長い時間をかけて徐々に減少する少なくとも2成分が存在する(高橋・本間, 2001; Takeda *et al.*, 2013等)と考えられる。

小国地区の水田圃場から2012年4月17日およびそれから1年6ヶ月後の2013年10月4日に再び同一水田圃場から土壌(採取深度; 0~15 cm)を採取し、放射性セシウム濃度を測定した(図3)。放射性セシウム濃度は $4770 \text{ Bq kg}^{-1}$ (2012年4月17日)から $2750 \text{ Bq kg}^{-1}$ (2013年10月4日)へ約58%に減少した。そのうち $^{137}\text{Cs}$ 濃度は $2800 \text{ Bq kg}^{-1}$ から $1930 \text{ Bq kg}^{-1}$ へと約69%に減少した。一方で、 $^{134}\text{Cs}$ 濃度は半減期が2.07年と $^{137}\text{Cs}$ 半減期(30.1年)より短いため、1年6ヶ月の間に42%に減少した。両時期に採取した土壌中 $^{137}\text{Cs}$ を逐次抽出によって交換態、有機物結合態および粒子結合態の3画分の存在形態に区分した(図4)。作物への主な移行画分とされる交換態画分の

Hirofumi TSUKADA: Behavior of radioactive cesium in soil with aging

福島大学 うつくしまふくしま未来支援センター (960-1296 福島市金谷川1番地)

日本土壌肥科学雑誌 第85巻 第2号 p.77~79 (2014)

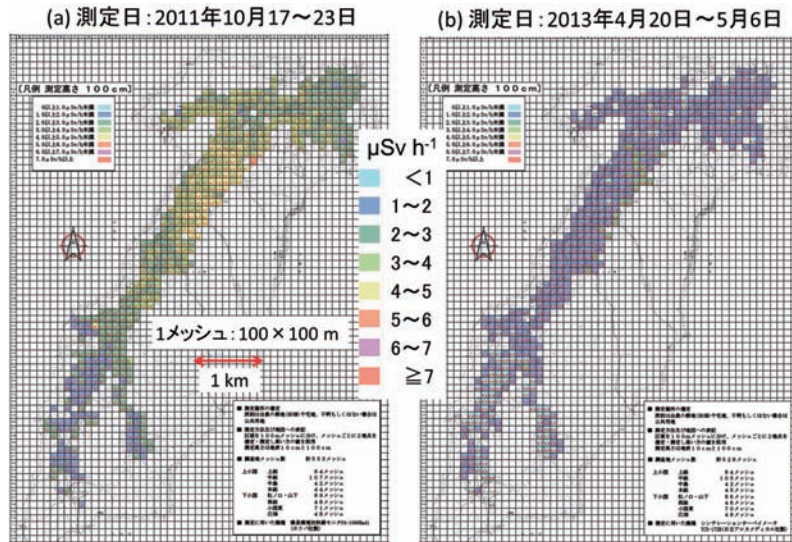


図1 伊達市小国（東電福島第一原発から北西55km）における地上1mでの空間放射線量率

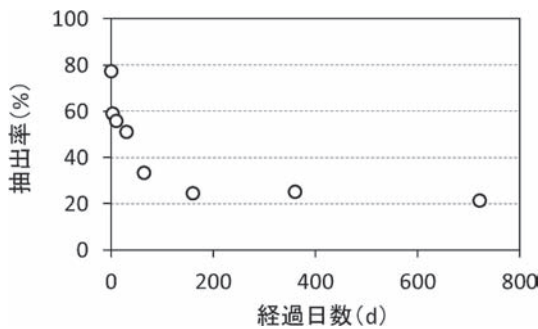


図2 キャリアフリー<sup>137</sup>Csを添加した土壌（黒ボク土）の経過的な1M酢酸アンモニウム抽出（交換態画分）率の変化

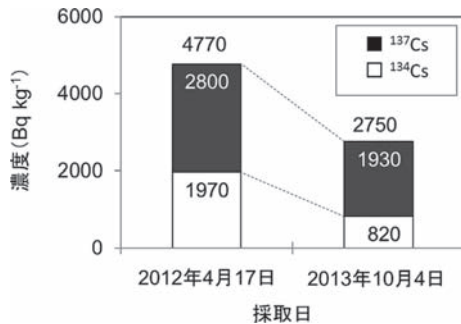


図3 伊達市小国における水田土壌中放射性セシウム濃度の経時変化  
採取地点：37° 43' 52.45"N；140° 33' 31.20"E

存在割合は12.8%（2012年4月17日）から6.9%（2013年10月4日）へと約半分に減少した。一方で、有機物結合画分の割合は6.4%から6.1%と変化は小さかった。粒子結合画分の割合は、交換態画分が減少した分、1年6ヵ月の間に80.8%から87.0%と増加しており、エイジングによって粒子との強固な結合画分の存在割合が増加していた。

#### 4. 土壌の保持力の評価

土壌に沈着した放射性セシウムはやがて強固な結合画

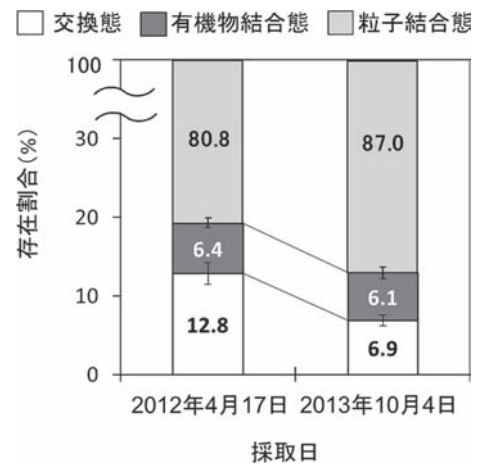


図4 伊達市小国における水田土壌中<sup>137</sup>Csの形態別存在割合の経時変化  
採取地点：37° 43' 52.45"N；140° 33' 31.20"E  
縦線は計数誤差を示す。

分へと移動する (Tsukada *et al.*, 2008). 土壌が放射性セシウムを保持する潜在力を評価する方法の一つとして放射セシウム捕捉ポテンシャル (Radiocesium Interception Potential, RIP) がある (Cremers *et al.*, 1988). 土壌ではセシウムは選択的に保持される負電荷 (Frayed Edge Site, FES) に強く保持されるが、FESの存在量を直接求めることが難しいため、代わって比較的測定方法が簡便なRIP値を求め指標としている (農文協, 2012). 陽イオン交換容量 (CEC) に対するFESの寄与は非常に少ないが、FESに捕捉された放射性セシウムは、水への溶脱が困難となり、そのため植物への移行も難しくなる。エイジングによって交換態画分の割合が減少し、粒子結合態の割合が増加する。このことは、放射性セシウムがFESに捕捉されるまでに時間を要することを示唆している。従って、RIP値を用いた土壌における放射性セシウムの保持力の評価は、エイジングがある程度進んだ状態 (放射性セシウムが土壌中で比較的平衡な状態) となった時点での放射性

セシウムの保持力を示す値である。土壤中放射性セシウムの存在形態が比較的一様（交換態画分のうち比較的短時間で減少する成分が一様になるまでの間）になるには、およそ1年から数年を要すると報告されている（Konoplev *et al.*, 1996；Roig *et al.*, 2007；Takeda *et al.*, 2013）。RIPは、植物移行係数とも比較的良好な相関が示されており（Delvaux *et al.*, 2000）、土壤の放射性セシウム汚染に対する脆弱性を示す値としても利用可能である。土壤の放射性セシウムの保持力を示す値としては、分配係数、CEC等は必ずしも適しておらず、RIP以外に適当な指標は見当たらない。RIP値は、土壤や改良資材において固有な値を示し、それらを混合してもそれぞれの持つRIP値と混合割合から計算によって、混合後土壤のRIP値を求めることができる。例えば、RIP値が $1200 \text{ mmol kg}^{-1}$ の土壤に $56500 \text{ mmol kg}^{-1}$ の天然ゼオライトを2%混合させたときのRIP値は、計算上 $2300 \text{ mmol kg}^{-1}$ となる。実際に天然ゼオライトを2%混合した土壤を作成しRIP値を測定した結果、 $2400 \text{ mmol kg}^{-1}$ となり、計算結果と概ね一致した。このように、混合する前に各試料のRIP値を測定しておけば、改良資材を投入した混合後のRIP値を事前に予測することができ、土壤の放射性セシウム汚染に対する脆弱性とその改良のための改良資材の選定、投入量を計算から求めることが可能である。土壤中放射性セシウム濃度が高くRIP値の比較的低い土壤では、改良資材の施用により土壤への放射性セシウムの保持力を向上し、放射性セシウムの固定化を図り、作物への移行を低減化することが必要である。福島県内の土壤のRIP値を測定した結果 $334 \sim 7110 \text{ mmol kg}^{-1}$  ( $n=121$ )にあり、多くの土壤では放射性セシウムを保持するのに十分なRIP値であることから改良資材の施用の効果は高くないと考えられる。一方、比較的低いRIP値の土壤（例えば、砂質土壤、有機質土壤等）については、改良資材の施用によりRIP値を増大し作物移行を低減化させることができると期待される。土壤のRIP値を高める改良資材としては、一般に流通している陽イオン交換容量を増加させる様々な資材が利用可能である。しかしながら、流通している4種類のゼオライトのRIP値を測定した結果、1430、18300、48600および $56500 \text{ mmol kg}^{-1}$ と約40倍の差があり、土壤中放射性セシウムの保持力を向上させるために使用する改良資材は、施用する前に吟味が必要である。

## 5. おわりに

事故後3年に及ぶ多くの大学、研究機関等の調査研究によって膨大なデータと成果が蓄積した。今後は科学的に裏付けのある成果を精査し、まだ問題を抱える地域（作物への移行の高い地域、居住制限区域、帰宅困難区域等、今後営農を再開する地域等）において、意欲を持って安心して営農を継続できるような対策を施すことが求められる。更には、除染によって分別された土壤の処分、再利用等に向

けた取り組み、加えて、農地を取り巻く森林環境、ダム、ため池等への対策も急務と考える。

謝辞：本研究の一部は、厚生労働科学研究費補助金食品の安全確保推進研究事業「食品中の放射性物質濃度の基準値に対する影響に関する研究」、および文部科学省平成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」による成果である。伊達市小国の空間線量率マップの掲載について許可いただいた、「放射能からきれいな小国を取り戻す会」に深く感謝申し上げます。また、土壤のサンプリングに協力いただいた、福島大学の瀬健嗣博士および石井秀樹博士、並びに実験の補助をしていただいた菅野章氏および鈴木千佳氏に感謝します。更に、コメント頂いた農業環境技術研究所の山口紀子博士に感謝します。

## 文 献

- Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W., and Auerswald, K. 1995. Migration of fallout  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the various horizons of a forest soil under pine. *J. Environ. Radioactiv.*, 28, 17-34.
- Cremers, A., Elsen, A., Depreter, P., and Maes, A. 1988. Quantitative-analysis of radiocesium retention in soils. *Nature*, 335, 247-249.
- Delvaux, B., Kruyts, N., and Cremers, A. 2000. Rhizospheric mobilization of radiocesium in soils. *Environ. Sci. Technol.*, 34, 1489-1493.
- Konoplev, A. V., Bulgakov, A. A., Popov, V. E., Hinton, J., and Comans, R. N. J. 1996. Long-term investigation of  $^{137}\text{Cs}$  fixation by soils. *Radiat. Prot. Dosim.*, 64, 15-18.
- 農文協 2012. 最新農業技術 土壤施肥 vol.4. 塚田祥文・鳥山和伸・中尾 淳・山口紀子・武田 晃 特集東日本大震災の農地汚染に挑む 放射性物質による汚染とその対策, p. 41-64. 農文協, 東京.
- Roig, M., Vidal, M., Rauret, G., and Rigol, A. 2007. Prediction of radionuclide aging in soils from the Chernobyl and Mediterranean areas. *J. Environ. Qual.*, 36, 943-952.
- 高橋知之・本間俊充 2001. チェルノブイリ原子力発電所近傍モニタリングデータを用いた $^{137}\text{Cs}$ の外部被ばく線量評価パラメータの土質による差異に関する検討. 保健物理, 36, 111-121.
- Takeda, A., Tsukada, H., Nakao, A., Takaku, Y., and Hisamatsu, S. 2013. Time-dependent changes of phytoavailability of Cs added to allophanic Andosols in laboratory cultivations and extraction tests. *J. Environ. Radioactiv.*, 122, 29-36.
- Tsukada, H., Takeda, A., Hisamatsu, S., and Inaba, J. 2008. Concentration and specific activity of fallout  $^{137}\text{Cs}$  in extracted and particle-size fractions of cultivated soils. *J. Environ. Radioactiv.*, 99, 875-881.
- Tsukada, H., Takeda, A., and Nakao, A. 2012. Vertical distribution and physicochemical form of fallout  $^{137}\text{Cs}$  in an allophanic Andisol acidified by long-term fertilizer application. *Pedologist*, 55, 435-441.
- 塚田祥文・鳥山和伸・山口紀子・武田 晃・中尾 淳・原田久富美・高橋知之・山上 睦・小林大輔・吉田 聡・杉山英男・柴田 尚 2011. 土壤-作物系における放射性核種の挙動. 土肥誌, 82, 408-418.