

放射性セシウムの沈着と農地土壌における輸送過程

江口定夫

キーワード 溶存態, 懸濁態, 固液分配係数, 遅延係数, エイジング

1. はじめに

2011年3月11日の東京電力福島第一原子力発電所(東電FDNPP)事故により環境中へ放出された様々な放射性核種のうち、約3年後の現在も高濃度で広く農業環境中に存在するのは、放射性セシウム(物理的半減期2.07年の ^{134}Cs と同30.1年の ^{137}Cs)である。農地土壌中における放射性Cs存在量は、放射壊変による物理的半減期に従って減少するだけでなく、農地系外からの大気降下物(湿性・乾性沈着)、灌漑水、湧水、堆肥施用等による放射性Cs入ると、農地系外への土壌侵食(風食、水食)、表面排水、暗渠排水、浸透水等による放射性Cs支出との差し引きによる物質収支(物質輸送に伴う増減)の影響を強く受ける。環境中での物質輸送に伴う増減と物理的半減期を共に考慮した放射性Csの半減期は、実効的半減期(effective half-life)(Paller *et al.*, 2013) または滞留半減時間(駒村ら, 2006)等と呼ばれる。集水域内のある農地で栽培される作物の放射性Cs吸収量を説明・予測するためには、その農地だけでなく、集水域スケールあるいは集水域を超えたスケールでの林地や市街地等も含めた面的な放射性Cs輸送過程を理解する必要がある。本稿では、事故後3年間に得られた新たな知見を中心として、大気からの放射性Csの沈着と再浮遊、農地系外からの放射性Csの流入及び系外への流出等も考慮しながら、農地土壌中における放射性Csの輸送過程について解説する。

2. 大気降下物の沈着と再浮遊

東電FDNPP事故由来の放射性Csによる土壌・作物汚染は、大気からの水溶性及び粒子状放射性Csの乾性または湿性沈着により引き起こされた。事故直後の主な放射性プルームの動きと当時の降水状況については、緊急時迅速放射能影響予測ネットワークシステム(System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information, SPEEDI)によるシミュレーション結果が公表されている(日本原子力研究開発機構, 2011)。Adachi

et al. (2013) は、事故現場から170 km 南西に位置する茨城県つくば市において、2011年3月14日夜から15日にかけての晴天時に、最初の高放射能プルーム($>10\text{Bq m}^{-3}$)を観測した。その時に設置していたエアロゾル採取用フィルターのイメージングプレート画像では非常に放射能の高い粒子状物質が多数見られ、そこから摘出した直径 $2.0\sim 2.6\mu\text{m}$ のほぼ完全な球形の粒子状物質には、鉄や亜鉛と共にCsが極めて高濃度で含まれていた(重量の2.5~5.5%がCs)。粒子内における各元素の分布はほぼ均質であり、低水溶性であることから、高温でいったん液状または蒸気状になった各元素が、冷却・凝縮する過程でほぼ球状の合金粒子(スラグ様物質)を形成したと考えられる。一方、2011年3月20日夜から21日朝にかけては二回目の高放射能プルーム($>10\text{Bq m}^{-3}$)が観測され、21日朝に降り始めた雨の初期に回収したフィルター上には、溶存態の放射性物質がフィルター全面におよそ均一に分布している様子が見られた。粒子状の高放射能物質は、最初のプルームに比べると大きく減少していた。降下した放射性Csの主体が溶存態であったことは、Kaneyasu *et al.* (2012) が、つくば市内で2011年4月末~5月下旬に採取したエアロゾルについて粒径別放射性Cs濃度を測定し、粒径 $0.5\sim 0.6\mu\text{m}$ の硫酸エアロゾル(水溶性物質)が放射性Csの主な輸送媒体であったとする指摘と一致する。すなわち、つくば市では、最初のプルームは、低水溶性の高放射能粒子状物質による乾性沈着、二回目のプルームは、水溶性物質主体だが低水溶性の高放射能粒子状物質も含む乾性及び湿性沈着であったと考えられる。両プルームに含まれていた低水溶性の高放射能粒子の沈着量、広域分布及び環境中での挙動(スラグ様物質の溶解速度、植物吸収に及ぼす影響等)については、まだほとんど知見がない。沈着した放射性Csが溶存態だったのか、高放射性Cs濃度粒子だったのかという情報は、土壌中での放射性Csの挙動や作物吸収を予測する上で必要不可欠であり、今後、さらなる研究が必要である。

全都道府県で行われている月間降下物モニタリング(原子力規制委員会, 2014)によれば、現在も東北~関東の広範囲で放射性Csの沈着が続いており、冬期には沈着量がやや上昇する傾向も見られる。福島県内4地点(郡山市日和田、二本松市上長折、福島市大波、伊達市月舘)における大型水盤(面積 0.5 または 1.0m^2)を用いた月間降下物モニタリング結果(江口ら, 2013)によれば、水盤中の水

Sadao EGUCHI: Radiocesium deposition and transport processes in agricultural soils

(独) 農業環境技術研究所 (305-8604 つくば市観音台3-1-3)

日本土壌肥科学雑誌 第85巻 第2号 p.80~85 (2014)

試料（乾性及び湿性降水物を含む）中の放射性Csのうち2～25%程度が溶存態（孔径0.025 μm のメンブレンフィルターを通過する物質）であり、降下する放射性Csの主体は懸濁態（粒子状物質）であった（2012年2月以降のデータ）。粒子状の放射性Csは、現在も地表面からの再浮遊と沈着を様々な空間スケールで繰り返していると考えられる。Yamaguchi *et al.* (2012) は、2011年4月7～8日、つくば市内の黒ボク土畑において、緑肥として栽培されていた冬小麦のハンマーナイフモアによる刈り取り時及びロータリー耕による鋤込み時に再浮遊する土壌粒子（直径<2.5 μm のPM2.5及び同く10 μm のDust-10）の放射性Cs濃度を測定した。放射性物質の土壌からの再浮遊の度合いを表す指標としては、再浮遊係数RF (m^{-1}) が用いられる。

$$\text{RF} = \frac{C_{\text{air}}}{S_{\text{srf}}} \quad (1)$$

ここで、 C_{air} は空気中の体積当りの放射能 (Bq m^{-3})、 S_{srf} は土壌表層の単位面積当たりの放射能 (Bq m^{-2}) である。この農作業では、PM2.5及びDust-10のRF値（それぞれ、 $2 \sim 4 \times 10^{-6}$ 及び $7 \sim 8 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ ）が作業開始前の16倍となること、再浮遊する粒子はPM2.5よりも粗大な粒子が主体であることが示された。

3. 事故直後の農地土壌中の放射性Cs輸送

東電FDNPP事故後、農地土壌中の放射性Cs濃度鉛直分布が各地で測定された。放射性Csは土壌固相に非常に強く吸着されることが知られており、次式で定義される固液分配係数 K_d (L kg^{-1})の値は、International Atomic Energy Agency (IAEA) (2010)によれば、平均 $1.2 \times 10^3 \text{ L kg}^{-1}$ （最小値4.3, 最大値 3.8×10^5 ）である。

$$K_d = \frac{Q}{C} \quad (2)$$

ここで、 Q は放射性Csの吸着濃度 (Bq kg^{-1})、 C は溶存態Cs濃度 (Bq L^{-1}) である。この K_d 値から、土壌中の水移動に対するCs移動の遅れ（遅延係数 R ）を算出することが出来る。

$$R = 1 + \frac{K_d}{\theta} \rho \quad (3)$$

ここで、 θ は土壌の体積含水率 ($\text{m}^3 \text{ m}^{-3}$)、 ρ は土壌のかさ密度 (Mg m^{-3}) である。例えば、 $\theta = 0.3 \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ 、 $\rho = 1.0 \text{ Mg m}^{-3}$ の土壌中に $I = 100 \text{ mm}$ の降水が浸入した場合、定常状態を仮定すれば、水または非吸着性溶質 ($K_d = 0$, $R = 1$)は深さ33 cm ($= I / \theta R$)まで到達するが、放射性Cs ($K_d = 1.2 \times 10^3$, $R = 4001$)の到達深さは、わずか0.1 mmに過ぎない。

このような既往の知見に基づき、事故由来の放射性Csは、未攪乱土壌であれば、ごく最表層のみに留まると予想

された。しかし、実際には、放射性Csは予想よりもずっと深くまで到達していた。また、放射性Csの移動速度は、相対的にずっと移動しやすいはずの放射性ヨウ素 (^{131}I)と大差のないものであった。IAEA (2010)によれば、 ^{131}I の K_d は平均 6.9 L kg^{-1} （最小値 1.0×10^{-2} , 最大値 5.8×10^2 ）であり、前出の土壌・降水条件では、 $R = 24$ で深さ1.4 cmまで到達する計算になる。

2011年4月7日（事故後の積算降水量42.5 mm）、Yamaguchi *et al.* (2012) は、前出の黒ボク土畑において、農作業前の深さ15 cmまでの土壌を採取し、深さ別の ^{131}I 、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 濃度を測定した。その結果、いずれの放射性元素濃度もおよそ類似した鉛直分布となり、各元素の土壌中存在量のほとんどは深さ0～5 cmにあったものの、ごく一部は、既に、深さ10 cm以深まで到達していた。同様の結果は、Tanaka *et al.* (2012)及びKato *et al.* (2012)の鉛直分布データでも示されている。2011年4月13日、Tanaka *et al.* (2012)は、事故現場から55～65 km離れた福島県内の郡山市日和田（灰色低地土、畑）、西白河郡矢吹（黒ボク土、果樹）及び福島市飯坂（褐色森林土、果樹）において深さ30 cmまでの土壌を採取し、深さ別の ^{131}I 及び ^{137}Cs 濃度を測定した。その結果、 ^{131}I が深くまで到達している土壌ほど ^{137}Cs も深くまで到達する傾向があり、黒ボク土（果樹）ではむしろ ^{131}I よりも ^{137}Cs の方が、深さ2.5または5.0 cm以深へ侵入した割合がわずかに高かった（図1）。すなわち、両元素の吸着特性の非常に大きな違いよりも、採取地点による土壌条件の違いの方が、両元素の輸送速度に大きな影響を及ぼしている可能性がある。2011年4月28日、Kato *et al.* (2012)

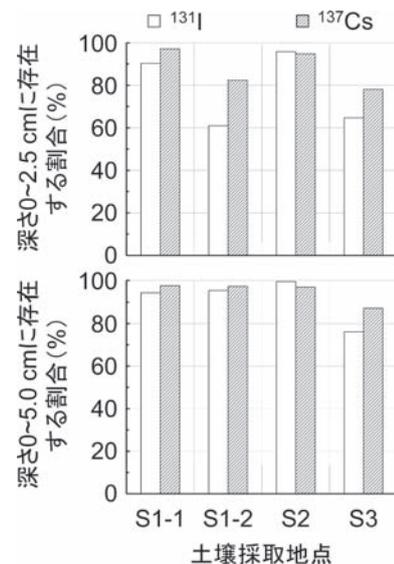


図1 2011年4月13日に福島県内の郡山市日和田（灰色低地土、畑:S1-1及びS1-2）、西白河郡矢吹（黒ボク土、果樹:S2）及び福島市飯坂（褐色森林土、果樹:S3）で採取した深さ0～30 cmの土壌中に存在する ^{131}I 及び ^{137}Cs のうち、深さ0～2.5 cm（上）及び0～5.0 cm（下）に含まれる量の割合 Tanaka *et al.* (2012)より作成。

は、事故現場から40 km離れた川俣町山木屋の家庭菜園において深さ30 cmまでの土壌を採取し、深さ別の ^{131}I 、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 濃度を測定した。その結果、 ^{131}I と ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の鉛直分布に大きな差はなく、 ^{131}I 及び ^{134}Cs + ^{137}Cs 存在量の79%及び86%が、深さ0~2.0 cmに含まれていた。

このように、遅延係数 R が2オーダーも異なるはずの ^{131}I と放射性Csの土壌中の移動速度は、上記文献中のどの地点においても、見かけ上、大きな差がなかった。この事実、事故由来放射性Csの現場土壌中における輸送過程の実態を解明する上で、多くの示唆を与える。以下、この事実の原因として考えられる3つの可能性を指摘したい。

一つ目は、土壌溶液中での放射性Csの吸着平衡が成立する前に、IAEA (2010)の K_d 値から予想されるよりもずっと深くまで放射性Csが到達したという可能性である。すなわち、降下直後の放射性Csの R 値は、バッチ実験の吸着平衡溶液中の K_d から計算される値よりもずっと小さく、 ^{131}I と同等程度だった可能性がある。塩沢ら (2011)は、郡山市日和田 (灰色低地土、耕起前の水田)において、2011年5月24日 (事故後の積算降水量148 mm)に採取した深さ15 cmまでの土壌中の ^{134}Cs + ^{137}Cs 濃度鉛直分布より、 $R=10$ と推定している。なお、Yamaguchi *et al.* (2012)とTanaka *et al.* (2012)は、採取土壌中の放射性Csがほとんど水抽出されないことを確認している。また、Takeda *et al.* (2013)によれば、土壌への安定Cs添加1日後には、その70%が酢酸アンモニウム溶液で抽出されない。したがって、放射性Csが移動しやすいとしても、それは降水が土壌中に浸入した直後のみに限られ、大部分のCsは日単位以下の短い時間スケールで速やかに土壌固相に吸着されると考えられる。この要因の影響を明らかにするためには、バッチ法による平衡吸着実験だけでなく、非平衡吸着条件下での土壌カラムへのCs溶液浸入実験等が必要だろう。

二つ目の可能性は、土壌中の不均一な水移動・溶質輸送 (選択流)の影響である。図1上によれば、同一畑圃場内での放射性Cs及び ^{131}I 鉛直分布の地点間差 (S1-1とS1-2)は、土壌・地目間差よりも大きい。また、2011年4月~5月の未攪乱農地土壌中の放射性Csまたは ^{131}I 濃度鉛直分布の一部 (Kato *et al.*, 2012; Tanaka *et al.*, 2012; Yamaguchi *et al.*, 2012)には、浅い層よりも深い層の濃度の方がやや高くなる部位が存在する。これらの結果は、降水中の放射性Csまたは ^{131}I の少なくとも一部は、土壌マトリックスとの相互作用が十分に生じないような経路 (粗大間隙等)を選択的に流下し、土壌固相に吸着されないまま予想よりも深くまで到達したことを示している。この要因の影響を明らかにするためには、充填土壌及び不攪乱土壌カラムを用いたCs輸送過程の比較研究等が必要だろう。

三つ目は、放射性Cs及び ^{131}I が土壌コロイド粒子に吸

着したまま土壌中を流下した可能性である。これは、コロイド担体輸送 (colloid-facilitated transport) と呼ばれ (Kretzschmar *et al.*, 1999)、事故以前の2007年11月、重粘土質の水田転換畑で行われた観測事例 (Eguchi *et al.*, 2010)によれば、暗渠から流出するグローバルフォールアウト由来 ^{137}Cs はすべて懸濁態 (>0.025 μm の粒子)であった。事故後 (2012年2月以降)、前出の福島県内の水田4地点での調査結果 (江口ら, 2013)によれば、暗渠排水に含まれる放射性Csのうち懸濁態の割合は2~98%であり、この割合は懸濁物質 (suspended solid, SS)濃度と共に増大した。Matsunaga *et al.* (2013)は、事故現場から70 km離れた福島市南西部の異なる畑、果樹、緑地、草地及び林地において2011年6月19~20日に採取した表層土壌を用いて、その水抽出液を遠心分離 (3000 rpm)後、上澄み液に含まれる放射性Cs濃度を測定した。その結果、18試料中6試料において放射性Csが定量され、各試料に含まれる全放射性Csの最大4.7%が水抽出性だった。ただし、この値については、上澄み液がコロイド吸着態の放射性Csを含むために、比較的高い値になったと考えられる。これに対して、 ^{131}I については、土壌中におけるコロイド担体輸送についての知見が乏しい。

最後の三つ目の要因の影響を明らかにするには、基本的な実験手法や得られたデータの解釈について、幾つか解決すべき課題がある。水試料中の溶存物質と懸濁物質は、ろ過または遠心分離等によって実験操作的に区分される。このため、実験操作的に決まるろ液中の溶存物質濃度は、ろ過に使用するフィルター孔径に強く依存する。Horowitz *et al.* (1996)は、孔径0.45 μm メンブレンフィルターのろ液に含まれる微量元素濃度が、製品の違いやろ過量によって数倍以上変化しうることを示した。その最も大きな原因として、微細なコロイド粒子のフィルターの通過しやすいの違いを指摘している。江口ら (2013)は、コロイド粒子のろ液中への混入をできるだけ避けるため、市販では最も孔径の小さい0.025 μm のメンブレンフィルターを使用しているが、ろ過やろ液の蒸発乾固にかかる時間の短縮が課題となっている。保高ら (2013)とTsuiji *et al.* (2014)は、溶存イオン態の Cs^+ のみを強く吸着するプルシアンブルー (PB)カートリッジ法を開発し、現地での迅速な溶存態及び懸濁態放射性Csの分離を目指している。一方、従来の0.45 μm メンブレンフィルターによるろ液の蒸発濃縮液の放射性Cs濃度が、PBカートリッジ法で求めた放射性Cs濃度よりも35~40%大きいことから、孔径0.45 μm を通過するコロイド吸着態Csの可能性を指摘している (保高ら, 2013)。

4. 農地土壌中の中長期的な放射性Cs輸送

事故から数ヶ月以上経過した後の放射性Cs濃度鉛直分布については、事故直後と異なり、既往の知見で説明可能な結果が報告されている。Koarashi *et al.* (2012)は、2011年6月18~20日 (事故後の積算降水量197.5

mm), 事故現場から 70 km 離れた福島市南西部の水田, 畑, 果樹園, 草地, 林地等合計 15 地点から表層土壌を採取し, 深さ別の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 濃度を測定した. その結果, 粘土が少なく有機物が多い土壌ほど, 放射性 Cs が深くまで到達していることが示された. これは, Kamei-Ishikawa *et al.* (2007) のバッチ吸着実験において土壌の粘土含量 \times pH / 全炭素含量の値が大きいほど ^{137}Cs 固定割合が高かったこと, 農林水産省 (2013) の福島県内外における調査で土壌の放射性 Cs 捕捉ポテンシャル (Radiocaesium Interception Potential, RIP) が全炭素含量と負の相関を示したこと, Absalom *et al.* (2001) の植物への放射性 Cs 移行予測モデル内では粘土含量から土壌の RIP を推定していること等と一致する. この RIP については, 次の段落で説明する. さらに Matsunaga *et al.* (2013) は, 2011 年 7 月 19 ~ 20 日または 8 月 1 ~ 2 日 (事故後の積算降水量 407.5 mm) に, Koarashi *et al.* (2012) と同じ地点から表層土壌を採取し, この約 1 ヶ月間に積算降水量が約 2 倍になったにも関わらず, 放射性 Cs が土壌中でほとんど移動していないことを示した. 時期による蒸発散量の違いを考慮したとしても, 事故直後に比べて放射性 Cs の移動速度が大きく低下したことは間違いないと考えられる.

土壌の放射性 Cs 捕捉ポテンシャル RIP は, 風化雲母, イライト, パーミキュライト等を持つフレイド・エッジ・サイト (frayed edge site, FES) と呼ばれる負電荷における Cs^+ 固定能を定量的に評価するための指標であり (Cremers *et al.*, 1988), 次式で定義される.

$$\text{RIP} = K_{\text{Cs/K}}^{\text{FES}} M_{\text{FES}} \quad (4)$$

ここで, $K_{\text{Cs/K}}^{\text{FES}}$ は FES における K^+ に対する Cs^+ の選択係数であり約 10^3 の値を持つとされ (Cremers *et al.*, 1988; Wauters *et al.*, 1996), M_{FES} は土壌中の FES 濃度 (mol kg^{-1}) であり FES 以外の負電荷をマスクした条件下で FES に吸着させた K^+ を定量することで近似的に求められる. 土壌の RIP と FES の詳細については, 山口 (2014) の総説を参照されたい. 土壌の RIP は, K^+ 飽和条件下での FES の K_d ($K_{d\text{FES}}$) そのものであり, RIP と $K_{d\text{FES}}$ は, 次のような式で関係づけられる.

$$K_{d\text{FES}} = \frac{\text{RIP}}{C_{\text{K}} + k_{\text{NH}_4} C_{\text{NH}_4} + k_{\text{Na}} C_{\text{Na}}} \quad (5)$$

これまで, 実験的に, あるいは, モデルフィッティングパラメータとして, $k_{\text{NH}_4} = 4.2 \sim 5.3$ 及び $k_{\text{Na}} = 0 \sim 0.02$ の値が使われている (Wauters *et al.*, 1994; Wauters *et al.*, 1996; Smolders *et al.*, 1997; Absalom *et al.*, 2001; Sanchez *et al.*, 2002). また, FES 以外の吸着サイトを RES (regular exchange site) とすると (Sanchez *et al.*, 2002), 土壌全体での K_d は, 次のように表される.

$$K_d = K_{d\text{FES}} + K_{d\text{RES}} \quad (6)$$

ここで, $K_{d\text{RES}}$ は, RES についての K_d である. RES は, Cs^+ 選択性の低い pH 依存性の変異荷電と Cs^+ 選択性の高い構造由来の永久荷電の両方を含むが, 前者への放射性 Cs 吸着はほとんど無視できるレベルと考えられ, 後者に吸着された放射性 Cs 吸着は K^+ や NH_4^+ など Cs^+ と同等の選択性を持つ多量の陽イオンにより置換されやすい. これに対して, FES は Cs^+ 選択性が高いだけでなく他の陽イオンがアクセスしにくい場所に存在する負電荷であることから, Cs^+ に対する高い選択性を有する. 降下後, いったんは RES に吸着された放射性 Cs も, 時間をかけて FES に移行すると考えられる. このため, 土壌全体の K_d に対する $K_{d\text{FES}}$ の寄与は, 時間と共に増大すると考えられる. これはエイジング効果と呼ばれ, グローバルフォールアウト由来 ^{137}Cs の移動速度が, チェルノブイリ原発事故由来 ^{137}Cs よりも遅いこと (IAEA, 2010) 等により欧州各地で実証されている.

農地系外からの放射性 Cs 流入や系外への流出が土壌中の放射性 Cs 濃度に与える影響は, 中長期的な視点になるほど重要となる. 駒村ら (2006) によれば, 水田作土及び畑地作土におけるグローバルフォールアウト由来 ^{137}Cs の滞留半減時間 (大気降下物による存在量増加を除き補正したもの) の全国平均値は, 水田作土で 16 年 (9 ~ 24 年), 畑地作土で 18 年 (8 ~ 26 年) であった. 即ち, 農地からの表面排水等の流出等に伴う ^{137}Cs の支出は, 農地における ^{137}Cs 存在量の減少速度を平均 40 ~ 50 % 程度も早める効果がある. 前出の江口ら (2013) によれば, 福島県内の水田 4 地点における灌漑水, 表面排水, 暗渠排水等に含まれる放射性 Cs 濃度は SS 濃度に強く依存し, SS 濃度と共に増大する. したがって, 農地における SS 流入と SS 流出のバランスが, 放射性 Cs 収支をほぼ規定すると考えられる. 吉川ら (2013) は, これらのうち 3 地点の水田について 2012 年 5 月から約 1 年間の放射性 Cs 収支をモニタリングし, 流入量よりも流出量が多い傾向にあることを示した.

これに対して, 2011 年の水稻栽培後, 水管理条件によっては土壌中放射性 Cs 濃度が上昇したとする事例も幾つか報告されている. Harada and Nonaka (2012) は, 2011 年 9 月 6 日, 事故現場から 200 km 離れた新潟県南魚沼の水稲栽培後の水田内 3 地点 (水口, 中央, 水尻) で深さ 13 cm までの土壌を採取し, 深さ別の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 濃度を測定したところ, 水口付近の土壌表層 0 ~ 5 cm において 970 Bq kg^{-1} の最大値が得られた. これは, 灌漑水からの放射性 Cs 流入による局所的な濃度上昇が生じたことを示唆している. Endo *et al.* (2013) は, 2011 年 10 月 14 日, 事故現場から 22.5 km 離れた南相馬郡の多湿黒ボク土の有機栽培水田 (地下水灌漑区, 横川ダム用水灌漑区) において, 深さ 30 cm までの土壌を採取し, 深さ別の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 濃度を測定した. その結果, 横川ダム用水灌漑区の深さ約 15 cm までの土壌中放射性 Cs 濃度は, 地下水灌漑区の 1.7 倍に達した. 水稻の部位別濃

度についても、横川ダム用水灌漑区で地下水灌漑区より高く、最大で1.6倍に達した。一方、次式で定義される土壌から水稲への放射性Cs移行係数(transfer factor, TF)は、灌漑区によらず、土壌中の放射性カリウム (^{40}K) 濃度の低い区で、高い傾向にあった。

$$\text{TF} = \frac{P_{\text{Cs}}}{M_{\text{Cs}}} \quad (7)$$

ここで、 P_{Cs} は植物体のある部位または全体に含まれる放射性Cs濃度(Bq kg^{-1})、 M_{Cs} は土壌中の放射性Cs濃度(Bq kg^{-1})である。部位別のTFを算出すると、玄米へのTFは0.013~0.017であったが、根のTFは0.31~0.48と、部位別TFの中で最も高い値を示した。

5. おわりに

農地土壌や大気を含む環境中での放射性Csの面的な輸送は、事故後の水溶性エアロゾル降下直後を除けば、主として懸濁態(粒子状)で生じている。事故直後に沈着した放射性Csには水溶性(硫酸エアロゾルを媒体)と粒子状(スラグ様物質)のものが含まれ、その割合は、プルーム及び地域によって大きく異なっていたと考えられる。降下直後(2011年4~5月)、土壌中の放射性Csは、吸着平衡を仮定した予想よりもずっと深くまで到達していたが、数ヶ月以上が経過した頃には(2011年6~8月)、移動速度は見かけ上大きく低下した。事故後3年が経過し、放射性Csのほとんどは既にFESに強く固定され、溶存態として土壌中に存在する画分はごくわずかと考えられる。しかし、植物吸収や土壌中での放射性Cs輸送を考える上では、このわずかな溶存態が重要であり、中長期的な視点では、この溶存態の挙動を予測することが必要である。チェルノブイリ事故後に欧州で蓄積された膨大な知見と、東電FDNPP事故由来の放射性Cs動態についてこの3年間で急速に蓄積された新たな知見を組み合わせ、今後の中長期的な将来予測のために必要な取組みについて、異なる分野間であらためて認識を共有する必要がある。

文 献

- Absalom, J. P., Young, S. D., Crout, N. M. J., Sanchez, A., Wright, S. M., Smolders, E., Nisbet, A. F., and Gillett, A. G. 2001. Predicting the transfer of radiocaesium from organic soils to plants using soil characteristics. *J. Environ. Radioactiv.*, 52, 31-43.
- Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., and Igarashi, Y. 2013. Emissions of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.*, 3, 2554; DOI:10.1038/srep02554.
- Cremers, A., Elsen, A., De Preter, P., and Maes, A. 1988. Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils. *Nature*, 335, 247-249.
- Eguchi, S., Yamaguchi, N., Fujiwara, H., Fukuyama, T., Mori, Y., Seki, K., Suzuki, K., and Adachi, K. 2010. Cosmogenic, anthropogenic, and airborne radionuclides for tracing the mobile soil particles in a tile-drained heavy clay soil. 19th World Congress of Soil Science, 1-6 August 2010, Brisbane, Australia.
- 江口定夫・吉川省子・板橋 直・三島慎一郎・坂口 敦・朝田 景・坂西研二・木方展治・井倉将人・神山和則・藤原英司・山口紀子・藤村恵人・齋藤 隆 2013. 福島県内の異なる水田環境における溶存態及び懸濁態放射性セシウム濃度の変動要因. 土肥要旨集, 59, 10.
- Endo, S., Kajimoto, T., and Shizuma, K. 2013. Paddy-field contamination with ^{134}Cs and ^{137}Cs due to Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and soil-to-rice transfer coefficients. *J. Environ. Radioactiv.*, 116, 59-64.
- 原子力規制委員会 2014. 放射線モニタリング情報. <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/195/list-1.html>
- Harada, N., and Nonaka, M. 2012. Soil radiocesium distribution in rice fields disturbed by farming process after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Sci. Total Environ.*, 438, 242-247.
- Horowitz, A. J., Lum, K. R., Garbarino, J. R., Hall, G. E., Lemieux, C., and Demas, C. R. 1996. Problems associated with using filtration to define dissolved trace element concentrations in natural water samples. *Environ. Sci. Technol.*, 30, 954-963.
- International Atomic Energy Agency. 2010. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Reports Series No. 472, p.1-194. Vienna.
- Kamei-Ishikawa, N., Uchida, S., and Tagami, K. 2008. Distribution coefficients for Sr-85 and Cs-137 in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 277, 433-439.
- Kaneyasu, N., Ohashi, H., Suzuki, F., Okuda, T., and Ikemori, F. 2012. Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Technol.*, 46, 5720-5729.
- Kato, H., Onda, Y., and Teramage, M. 2012. Depth distribution of ^{137}Cs , ^{134}Cs , and ^{131}I in soil profile after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident. *J. Environ. Radioactiv.*, 111, 59-64.
- Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Matsunaga, T., Sato, T., Nagao, S., and Nagai, H. 2012. Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions. *Sci. Total Environ.*, 431, 392-401.
- 駒村美佐子・津村昭人・山口紀子・藤原英司・木方展治・小平 潔 2006. わが国の米、小麦および土壌における ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度の長期モニタリングと変動解析. 農業環境技術研究所報告, 24, 1-21.
- Kretzschmar, R., Borkovec, M., Grolimund, D., and Elimelech, M. 1999. Mobile subsurface colloids and their role in contaminant transport. *Adv. Agron.*, 66, 121-193.
- Matsunaga, T., Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Nagao, S., Sato, T., and Nagai, H. 2013. Comparison of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident radiocesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. *Sci. Total Environ.*, 447, 301-314.
- 日本原子力研究開発機構 2011. 福島第一原子力発電所事故に伴うCs137の大气降下状況の試算—世界版 SPEEDI (WSPEEDI)を用いたシミュレーション—. <http://www.aec.go.jp/jicst/NC/iinkai/teirei/siryo2011/siryo34/siryo2.pdf>

- 農林水産省 2013. 土壌の放射性セシウム固定力の分布の把握.
<http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/pdf/130709-04.pdf>
- Paller, M. H., Jannik, G. T., and Baker, R. A. 2013. Effective half-life of caesium-137 in various environmental media at the Savannah River Site. *J. Environ. Radioactiv.*, **131**, 81-88.
- Sanchez, A. L., Smolders, E., Van den Brande, K., Merckx, R., Wright, S. M., and Naylor, C. 2002. Predictions of in situ solid/liquid distribution of radiocaesium in soils. *J. Environ. Radioactiv.*, **63**, 35-47.
- 塩沢 昌・田野井慶太郎・根本圭介・吉田修一郎・西田和弘・橋本 健・桜井健太・中西友子・二瓶直登・小野勇治 2011. 福島県の水田土壌における放射性セシウムの深度別濃度と移流速度. *Radioisotopes*, **60**, 323-328.
- Smolders, E., Van den Brande, K., and Merckx, R. 1997. Concentration of ^{137}Cs and K in soil solution predict the plant availability of ^{137}Cs in soils. *Environ. Sci. Technol.*, **31**, 3432-3438.
- 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.
- Tanaka, K., Takahashi, Y., Sakaguchi, A., Umeo, M., Hayakawa, S., Tanida, H., Saito, T., and Kanai, Y. 2012. Vertical profiles of Iodine-131 and Cesium-137 in soils in Fukushima Prefecture related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident. *Geochem. J.*, **46**, 73-76.
- Tsuji, H., Kondo, Y., Suzuki, Y., and Yasutaka, T. 2014. Development of a method for rapid and simultaneous monitoring of particulate and dissolved radiocesium in water with nonwoven fabric cartridge filters. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **299**, 139-147.
- Wauters, J., Elsen, A., Cremers, A., Konoplev, A. V., Bulgakov, A. A., and Comans, R. N. J. 1996. Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocaesium in soils and sediments. Part one: a simplified procedure for solid phase characterization. *Appl. Geochem.*, **11**, 589-594.
- Wauters, J., Sweeck, L., Valcke, E., Elsen, A., and Cremers, A. 1994. Availability of radiocesium in soils - A new methodology. *Sci. Total Environ.*, **157**, 239-248.
- 山口紀子 2014. 土壌への放射性 Cs 吸着反応. 土壌の物理性, **126**, 印刷中.
- Yamaguchi, N., Eguchi, S., Fujiwara, H., Hayashi, K., and Tsukada, H. 2012. Radiocesium and radioiodine in soil particles agitated by agricultural practices: Field observation after Fukushima nuclear accident. *Sci. Total Environ.*, **425**, 128-134.
- 保高徹生・辻 英樹・今藤好彦・鈴木安和 2013. プルシアンブルー不織布カートリッジを用いる水中の溶存態放射性セシウムの迅速モニタリング技術の開発. 分析化学, **62**, 499-506.
- 吉川省子・江口定夫・板橋 直・井倉将人・大越 聡 2013. 福島県内の立地の異なる水田における放射性 Cs 流入・流出量の推定. 2013年度土壌物理学学会大会講演要旨集, 121-122.