

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：82111

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2021

課題番号：18K18211

研究課題名(和文) 同位体比解析による土壌放射性セシウムのエージングの実態解明

研究課題名(英文) Elucidation of actual process of radiocesium ageing in soil by isotope ratio analysis

研究代表者

若林 正吉 (Wakabayashi, Shokichi)

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・東北農業研究センター・主任研究員

研究者番号：80707654

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：土壌に沈着した放射性セシウム(137Cs)は、時間の経過とともに雲母鉱物の層間へと固定されて溶出しにくくなる。エージングと呼ばれるこの現象について、本研究では、新たな分析指標(交換性画分の137Cs/133Cs比)を用いて、東京電力福島第一原子力発電所事故以降の経過を明らかにすることを目的とした。複数圃場における指標値の経時変化を解析したところ、長期的なエージングの進行速度(交換性画分の137Cs/133Cs比の減衰率)は平均0.04/年、最大で0.07/年程度と評価された。また、畑と水田とではエージングの進行に違いがあることや、土壌のカリウム肥沃度が137Csの挙動に影響することが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

土壌中における放射性セシウムのエージングは、農作物の汚染リスクが時間経過とともにどの程度低減するかを見積もる上で重要である。本研究で評価したエージングの進行速度に、土壌中の放射性セシウム濃度の減少速度(放射性壊変や土壌からの溶脱による)を評価し加算することで、農作物の汚染リスク(ある条件下で栽培された農作物の放射性セシウム濃度)の経年変化を見積もることができる。農作物の放射性セシウム濃度が基準値を超過することを中長期にわたり防ぐ上で、汚染リスクが過去に比べてどの程度低下したかを見積もることは、今後の対策や調査の必要性・規模について議論するための判断材料となる。

研究成果の概要(英文)：Radioactive cesium (137Cs) deposited in soil becomes fixed to the interlayer of micaceous minerals over time and becomes less leachable. This phenomenon is called as the "ageing" of soil 137Cs. This study investigated the process of the ageing after the accident at the Tokyo Electric Power Company's Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant using a new analytical index (137Cs/133Cs ratio in exchangeable fraction). Analyzing the dynamics of the index in many farmlands, the progression rate of long-term ageing (the decline rate of 137Cs/133Cs ratio in exchangeable fraction) was evaluated as 0.04 /y on average and 0.07 /y at the maximum. Additionally, some analytical results indicated that there were differences in the ageing progress between upland fields and paddy fields, and that soil potassium fertility affected the behavior of 137Cs.

研究分野：土壌学

キーワード：農地土壌 放射性セシウム エージング 同位体比 交換性画分

## 1. 研究開始当初の背景

東京電力福島第一原子力発電所事故によってセシウム-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ) が沈着した地域では、農作物の汚染リスクを長期にわたり管理する必要がある。土壌に沈着した  $^{137}\text{Cs}$  は、時間の経過とともに、雲母鉱物の層間へと固定されて溶出しにくくなる。エイジングと呼ばれるこの現象は、作物汚染リスクの経年変化の要因として注目され、リスク管理の上で定量的な評価が求められる。例えば、1986年に発生したチェルノブイリ原子力発電所の事故に由来する  $^{137}\text{Cs}$  に関して、Fesenko et al. (2009) は、多年生牧草の移行係数(植物の  $^{137}\text{Cs}$  濃度/土壌の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の比)が、1989~1999年の10年間に、エイジングにより生態学的半減期4.6~21年の速度で低下したことを報告した。しかし、今回の原発事故の汚染地域においてエイジングの経過を定量的に示すような報告はなく、時間経過による  $^{137}\text{Cs}$  の固定化がどの程度の速度で進行し、いつ頃まで継続するのかといった、作物汚染リスクの経年変化に関わる情報が提示されていない。

エイジングの評価において、分析手法上の課題もある。既存研究では、土壌に沈着した  $^{137}\text{Cs}$  について、中性アンモニウム塩溶液によって抽出される“交換性画分”の割合が経時的に低下することが報告され、この交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合の時間変化がエイジングの主な指標とされてきた。ところが、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合は、土壌環境が変化した際にエイジングとは無関係に変動する。過去に行った土壌培養室内試験では、アンモニウム濃度の増減や酸化還元に応じて、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合が増減することが明らかとなった(Wakabayashi et al., 2017)。栽培管理や作物成長、天候などの影響を受ける圃場環境においては、こうした土壌環境変化の効果がエイジングに重なって作用するため、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合の経時変化による従来手法では、エイジングの経過を正確に評価することができないと考えられた。

この問題を克服するため、本研究では安定同位体のセシウム-133 ( $^{133}\text{Cs}$ ) に着目した。土壌中に天然に存在する  $^{133}\text{Cs}$  は、原理上エイジングを生じないが、土壌環境変化の影響は  $^{137}\text{Cs}$  と同様に受ける(Wakabayashi et al., 2017)。そこで、「エイジング =  $^{133}\text{Cs}$  の変動を伴わない  $^{137}\text{Cs}$  特有の固定反応」として捉え、交換性画分において  $^{137}\text{Cs}$  そのものではなく、 $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$  同位体比の時間変化をエイジングの新たな指標とすることを考えた。この同位体比は、環境要因が  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{133}\text{Cs}$  の両方に同じ影響をもたらす場合は一定であり、 $^{137}\text{Cs}$  に特有の動態のみを反映して変化すると考えられる。

## 2. 研究の目的

本研究は、福島第一原子力発電所の事故により農地土壌に沈着した  $^{137}\text{Cs}$  のエイジングの経過を明らかにすることを目的とし、具体的には以下の課題に取り組んだ。

- (1) 交換性画分の  $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$  同位体比という新たな指標を用いた経年的解析により、圃場におけるエイジングの進行速度を評価し、手法上の有効性を検証した。
- (2) 農地形態(水田・畑の別)、土壌鉱物組成、カリウム(K)肥沃度などの条件の異なる複数圃場を比較することで、エイジングの経過やこれと区別されたCs ( $^{137}\text{Cs}$  および  $^{133}\text{Cs}$ ) の固定現象に影響をおよぼす要因を解析した。
- (3) 乾燥・湿潤を繰り返した培養処理によってエイジングを加速化させて、将来におけるエイジングの進行の予測を試みた。

## 3. 研究の方法

### (1) 分析対象圃場の選定

原発事故初年目から近年までの交換性画分の変化を解析するために、経年的に作土試料が採取・保管されている、つくば市内の農研機構所有試験圃場3地点の2011~2020年度土壌試料(11~15時区分)を用いた。各圃場の土壌分類および農地形態は、低地土水田、黒ボク土大豆畑、黒ボク土水田である。黒ボク土水田は、1981年から続く長期連用施肥試験の実施地であり、K施肥の有無が異なる2つの試験区(K無区、K有区)を分けて解析した。

エイジングの進行速度やCs固定の要因を解析するために、農林水産省による福島県内広域調査事業のもとで経年的に採取された複数圃場の時系列アーカイブ作土試料セット2種を用いた。1つ目の試料セットは、水田6圃場、畑7圃場の計13圃場についての2012~2018年度土壌試料(7時区分)である。2つ目の試料セットは、水田と畑各5圃場、計10圃場についての2013~2017年度土壌試料(6時区分)である。

### (2) 土壌特性の分析

土壌の交換性画分は、土壌試料に1M酢酸アンモニウム溶液を固液比1:10で混合させ24時間

かけて抽出した。ゲルマニウム半導体検出器および ICP 質量分析装置を用いて抽出液の  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{133}\text{Cs}$  を分析し、交換性  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{133}\text{Cs}$  濃度に換算した。また、土壌試料の全  $^{137}\text{Cs}$  濃度をゲルマニウム半導体検出器で定量し、フッ酸・過塩素酸・硝酸による全分解処理と ICP 質量分析装置により、全  $^{133}\text{Cs}$  濃度を定量した。これらの数値を用いて、下式より、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合、交換性  $^{133}\text{Cs}$  割合、交換性画分の  $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$  比 ( $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$ ) を計算した。

$$\text{交換性 } ^{137}\text{Cs} \text{ 割合 (\%)} = \text{交換性 } ^{137}\text{Cs} \text{ 濃度 (Bq/kg)} / \text{土壌全 } ^{137}\text{Cs} \text{ 濃度 (Bq/kg)} \times 100$$

$$\text{交換性 } ^{133}\text{Cs} \text{ 割合 (\%)} = \text{交換性 } ^{133}\text{Cs} \text{ 濃度 (\mu g/kg)} / \text{土壌全 } ^{133}\text{Cs} \text{ 濃度 (\mu g/kg)} \times 100$$

$$(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}} = \text{交換性 } ^{137}\text{Cs} \text{ 割合 (\%)} / \text{交換性 } ^{133}\text{Cs} \text{ 割合 (\%)}$$

これらの特性値の経年変動を指数関係式 [ $y = y_0 \exp(-t)$ ] ( $t$  は原発事故以降の経過年数) に回帰させ、減衰率 ( $\lambda$ ) と半減期 ( $\ln(2)/\lambda$ ) を算出した。なお、本研究でエイジングの指標とした  $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  は、交換性割合において  $^{137}\text{Cs}$  が  $^{133}\text{Cs}$  の何倍高いかを示すファクター値であり、その経時低下は  $^{137}\text{Cs}$  が  $^{133}\text{Cs}$  との同位体平衡に至る過程と解釈できる。

交換性画分の経時変化の要因解析のために、交換性 K、非交換性 K 含量、粒径組成、粘土鉱物組成を分析した。非交換性 K 含量の分析には、Carey et al. (2011) によるテトラフェニルほう酸ナトリウム抽出法を用い、その土壌抽出 K 総量から交換性 K 含量 (1M 酢酸アンモニウム溶液で抽出された K 含量) を差し引いて定量した。なお、非交換性 K とは、雲母鉱物層間に固定された K のうち、放出されやすい状態のものである。粒径組成は沈降法で分析し、その粘土画分を X 線回折装置にかけて粘土鉱物組成を分析した。

### (3) 乾湿培養試験

エイジングの進行は乾燥と湿潤が繰り返されることで加速化することが知られており、将来のエイジングの進行を予測するために、2018 年採取土壌試料を乾湿反復培した。供試試料には、つくば市内の低地土水田、黒ボク土大豆畑に加え、福島県内の水田 3 圃場の土壌試料を用いた。培養瓶に封入した試料を純水で飽和させ 25 °C で 24 時間静置した後、70 °C で 4~5 日かけて風乾水分量以下まで乾燥させた。この操作を、4、8、17、32、64、128 回繰り返し、その後に交換性画分を分析した。並行して、供試試料の採取圃場で交換性画分の経時調査を行い、現場と培養試験における  $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  の経過を比較することで将来予測を試みた。

## 4. 研究成果

### (1) 2011~2020 年にかけての交換性画分の推移とエイジング

つくば市内の 3 圃場では、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合は有意 ( $p < 0.01$ ) に経時低下しており、その減衰率は 0.042~0.105/年 (半減期 6.6~16.4 年) であった。ただし、この間、もともと土壌に存在する  $^{133}\text{Cs}$  の交換性割合についても同様の経時低下が認められ、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合の推移が示す“見た目上のエイジング”には、環境要因による Cs ( $^{137}\text{Cs}$  および  $^{133}\text{Cs}$ ) の可動性変化の影響が含まれていると考えた。一方で、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  の推移も、有意 ( $p < 0.05$ ) に低下しており、 $^{137}\text{Cs}$  が  $^{133}\text{Cs}$  との同位体平衡に近づく過程を示す結果となった。その減衰率は 0.035~0.054/年 (半減期 12.9~19.6 年) であり、これが正味のエイジングの進行速度に相当するものと考えた。

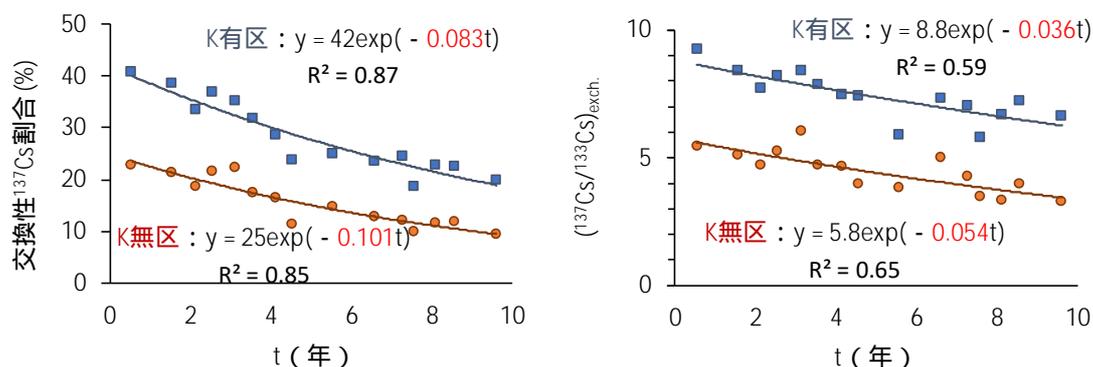


図 1. 黒ボク土水田における交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合 (左) と  $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  (右) の推移

図 1 に黒ボク土水田での交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合および  $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  の推移を示した。K 施肥管理の異なる試験区間を比較したところ、K 無区は K 有区に比べて、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  ともに初年目から数値が低く、減衰率も大きかった。エイジングによる  $^{137}\text{Cs}$  の固定は、 $^{137}\text{Cs}$  が雲母鉱物層間のフレイドエッジサイト (FES) という部位から鉱物中心部に向けて拡散移動することで生じるが、K イオンは FES への吸着を巡って Cs イオンと競合する。そのため、K イオンの少ない K 無区の土壌では、FES への  $^{137}\text{Cs}$  の拡散と固定が早く進行したと考えた。

以上の結果より、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  の経時解析が  $^{137}\text{Cs}$  のエイジングを評価する上で有効な手法であることを確認できた。

### (2) 福島県内農地におけるエイジングの経過と農地形態による差異

2012～2018年度土壌試料 13 圃場分および 2013～2017 年度土壌試料 10 圃場分に関して、圃場別に推移を解析したところ、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合については 5 圃場、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  についても 7 圃場でしか、有意 ( $p < 0.10$ ) な経年低下が認められなかった。これらの圃場での交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合の減衰率は 0.040～0.125/年、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  の減衰率は 0.033～0.070/年と評価された。

広域調査事業での採取試料を用いた今回の経時分析では、年毎に土壌採取者が代わりうるため、サンプリング誤差の影響も少なくない考えられた。そこで、誤差の影響を小さくするために、複数圃場の幾何平均を用いて解析を行い、一つ目の土壌セット (2012～2018 年度土壌試料 13 圃場分) での結果を図 2 に示した。全圃場幾何平均値では、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  とともに有意 ( $p < 0.05$ ) な経年低下を示し、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合の減衰率 (見た目のエイジング速度) は 0.055/年、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  の減衰率 (正味のエイジング速度) は 0.042/年と評価された。水田 (6 圃場) と畑 (7 圃場) に分けて平均値を解析すると、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  いずれにおいても、減衰率は畑のほうが大きかった。一方、水田では、 $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  が原発事故後の早い段階ですでに低く、その後には有意な経年低下が認められなかった。以上の結果より、福島県の農地におけるエイジングの経過は畑と水田で差があり、水田では、2012 年以降エイジングが進行していない圃場が多いことが明らかになった。

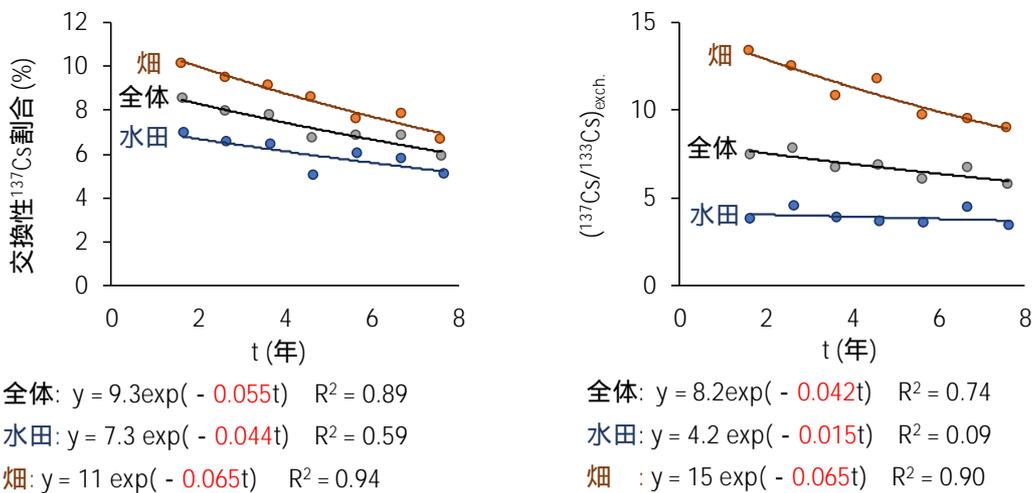


図 2. 福島県内 13 圃場の幾何平均値における交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合 (左) と  $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  (右) の推移

### (3) 福島県内農地における交換性 $^{137}\text{Cs}$ 割合の推移に対する K 肥沃度の影響

2 つ目の試料セット (2013～2017 年度土壌試料 10 圃場分) の幾何平均分析においても上記と同様の結果が得られたが、この試料セットでは、交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合の減衰率 (0.168/年) は  $(^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs})_{\text{exch.}}$  (0.034/年) の減衰率より 5 倍も大きかった。この大きな差異は、エイジングではなく、何らかの土壌環境の変化によって Cs 固定が進行したことを示している。この Cs 固定の要因について解析したところ、K 肥沃度の指標である交換性 K 含量、非交換性 K 含量の推移と交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合、交換性  $^{133}\text{Cs}$  割合との間に有意な負の相関関係が認められた。

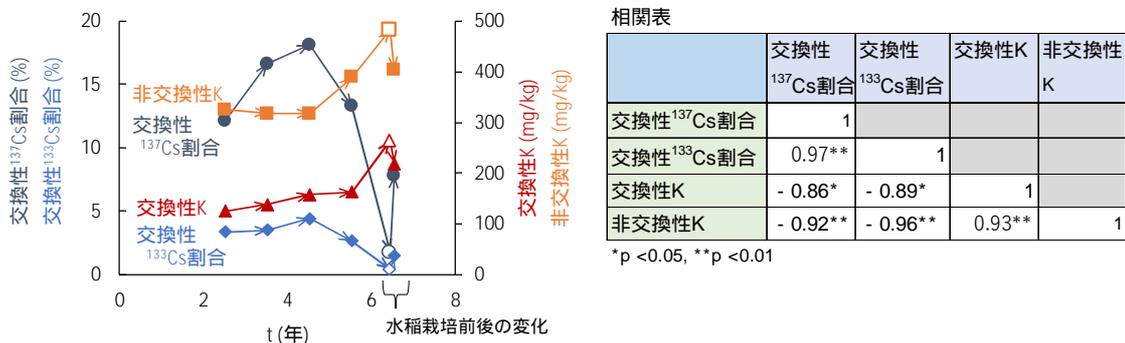


図 3. Cs の交換性割合と K 肥沃度の推移の関係を示す福島県内水田の事例

グラフのデータは主に水稲収穫期のものだが、白抜きの部分は移植期のものである。

図 3 にその代表的な水田の事例を示した。この水田では、収穫期の交換性 K 含量と非交換性 K 含量が経年的に増加しており、それらの増加と連動して交換性  $^{137}\text{Cs}$  割合、交換性  $^{133}\text{Cs}$  割合が低

下していた。福島県では水稻を中心とした作物への<sup>137</sup>Cs移行抑制対策として、2012年以降、K肥料の追加施肥が毎年実施された。したがって、この交換性K含量の増加は追加施肥の蓄積によるもので、また、同時に非交換性Kが増加したことから、蓄積したKの一部は雲母鉱物の層間に固定されたと考えられた。雲母鉱物にKが固定されると、Csが同時に固定されたり(Absalom et al., 1995)、FES様のCs固定サイトが新たに形成されたりする(Degryse et al., 2004)。したがって、福島県内の圃場においては、K追加施肥によりK固定量が増加したことで、一時的なCsの固定化が進行したと考えられた。この固定反応は可逆的であり、固定されたKが外部に放出されればCsも可動化する。実際に、水稻栽培期間の前後で比較したところ、非交換性Kの消費と連動して、交換性<sup>137</sup>Cs割合、交換性<sup>133</sup>Cs割合の増加が認められた(図3グラフの右端部)。

以上の結果より、K追加施肥の実施された福島県内農地では、エイジングとは別に、K肥沃度の増大に由来する可逆的なCs固定が進行していたことが明らかになった。

#### (4) 乾湿培養試験

土壌に対して乾湿反復処理を施すと、交換性<sup>137</sup>Cs割合は乾湿4回目までに大幅低下したが、その後は低下しなかった(黒ボク土大豆畑以外)。一方、(<sup>137</sup>Cs/<sup>133</sup>Cs)<sub>exch.</sub>では、3つの土壌で、乾湿回数に応じた継続的な低下が認められ、乾湿処理の反復が<sup>137</sup>Csを<sup>133</sup>Csとの同位体平衡に近づけることが示された。この3土壌について、乾湿128回後の(<sup>137</sup>Cs/<sup>133</sup>Cs)<sub>exch.</sub>の値は、現地圃場でのモニタリング値よりも低かった。つくばの低地土水田と黒ボク土大豆畑では、現地圃場における(<sup>137</sup>Cs/<sup>133</sup>Cs)<sub>exch.</sub>の減衰率がそれぞれ0.047/年、0.035/年と評価されており、この速度でのエイジングが今後も続くと仮定すると、乾湿128回後の数値に到達する時期は、低地土水田で2031年、黒ボク土大豆畑で2034年と試算された。

本研究では、(<sup>137</sup>Cs/<sup>133</sup>Cs)<sub>exch.</sub>を用いることで、<sup>137</sup>Csのエイジングの経過を、<sup>133</sup>Csの動態変化を伴うような反応と区別して評価できることを明らかにした。この新たな指標の減衰率からエイジングの進行速度を評価すると、平均0.04/年、最大で0.07/年程度と見積もられた。このことから、エイジングの効果は、原発事故以降10年間の間に交換性<sup>137</sup>Cs濃度を最大で50%減少させたと推定された。また、一部の圃場では、今後10年間程度、エイジングが継続する可能性が示された。ただし、福島県内の水田においては、事故後初期の段階でエイジングの進行が停止した圃場も多かった。一方で、K肥沃度の変化に応じて一時的なCs固定が生じた圃場も散見され、その作用が交換性<sup>137</sup>Cs濃度に及ぼした影響は、エイジングの効果よりも大きなものであった可能性が考えられた。

#### <引用文献>

- Fesenko, S., Sanzharova, N., Tagami, K., Evolution of plant contamination with time, In: IAEA-TECDOC-1616, Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments, IAEA, Vienna, 2009, pp. 259-263.
- Wakabayashi, S., Itoh, S., Takahashi, S., Influence of flooding on exchangeability and release of stable and radioactive cesium in contaminated paddy soil, Soil Science and Plant Nutrition, 63, 2017, 110-118.
- Carey, P.L., Curtin, D., Scott, C.L., An improved procedure for routine determination of reserve-K in pastoral soils, Plant and Soil, 341, 2011, 461-472.
- Absalom, J.P., Young, S.D., Crout, N.M.J., Radio-caesium fixation dynamics: measurement in six Cumbrian soils, European Journal of Soil Science, 46, 1995, 461-469.
- Degryse, F., Smolders, E., Cremers, A., Enhanced sorption and fixation of radiocaesium in soils amended with K-bentonites, submitted to wetting-drying cycles, European Journal of Soil Science, 55, 2004, 513-522.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Shokichi Wakabayashi, Shigeru Takahashi, Hisaya Matsunami, Shioka Hamamatsu, Mayumi Hachinohe, Nobuharu Kihou, Noriko Yamaguchi	4. 巻 218
2. 論文標題 Evaluation of <sup>137</sup> Cs ageing by dynamics of <sup>137</sup> Cs/ <sup>133</sup> Cs ratio in Andosol paddy fields with/without potassium fertilizer application	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jenvrad.2020.106252	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 若林正吉・藤村恵人・矢ヶ崎泰海
2. 発表標題 福島県内農地土壌における交換性 <sup>137</sup> Csの経時変化とその要因
3. 学会等名 日本土壌肥料学会東北支部
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 若林正吉、伊藤純雄、高橋 茂、松波寿弥、濱松潮香、八戸真弓、木方展治、山口紀子
2. 発表標題 <sup>137</sup> Cs/ <sup>133</sup> Cs比を用いた黒ボク土水田における放射性セシウムのエイジングの評価
3. 学会等名 日本ペドロロジー学会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------