

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 25 日現在

機関番号：24302

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25850044

研究課題名(和文)黒ボク土の放射性セシウム捕捉ポテンシャルを規定する風成塵の影響解明

研究課題名(英文) Micaceous minerals derived from aeolian dusts control the radiocesium retention in Japanese Andosols

研究代表者

中尾 淳(Nakao, Atsushi)

京都府立大学・生命環境科学研究科(系)・助教

研究者番号：80624064

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：黒ボク土の放射性セシウム(RCs)吸着能を規定する要因を明らかにすることを目的として、日本各地の農耕地黒ボク土および月別採取した大気降下物から分画したシルト・粘土粒子を用いて、RCs吸着能の指標である放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP)の測定および鉱物組成の解析を行った。その結果、同じ粒径の黒ボク土および降下物粒子について、RIPと雲母および石英量との間に高い正の相関関係が示された。さらに、各粒子から単離した石英の酸素同位体比が風成塵起源の可能性を強く示したことから、日本の黒ボク土のRCs吸着能は風成塵の降下・混入量に大きく規定されていることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Factors controlling the abilities of Andosols to retain radiocesium (RCs) were assessed. The radiocesium interception potentials (RIPs), mica K contents, and quartz contents were determined in the silt and clay particle fractions of soils from agricultural fields in areas representative of Japanese Andosols. The oxygen isotope ratio ( $^{18}\text{O}$ ) in the quartz isolated from each particle fraction was determined to identify the origin of the quartz in each soil sample. The RIPs and mica K contents in each fraction positively correlated, indicating that the abilities of the soils to retain RCs were mainly controlled by the micaceous mineral contents. The mica K content was proportional to the quartz content in the  $<20\ \mu\text{m}$  particles, and the mean  $^{18}\text{O}$  in the quartz was similar to those in Chinese loess, indicating that the abilities of Andosols to retain RCs are largely controlled by micaceous minerals originating in aeolian dust.

研究分野：土壌化学

キーワード：放射性セシウム捕捉ポテンシャル アロフェン質黒ボク土 酸素同位体比 風成塵 石英 雲母類 XRD  
クリストパライト

## 1. 研究開始当初の背景

黒ボク土は日本に広く分布する代表的な土壌であり、畑地や牧草地として広く利用される。そのため、黒ボク土における放射性セシウム (RCs) の移行挙動とその規定要因を解明することは、福島原発事故によって汚染された農地の修復および持続的利用の観点から非常に重要である。一般に、土壌中の RCs は雲母類に強く固定される。これは、雲母類が層状構造のすき間 (層間) にマイナスの電荷をもち、その一部が大きさが、セシウムイオンのサイズと適合することが主な原因である。雲母類は土壌中にほぼ普遍的に存在する鉱物であるため、この「鉱物学的固定」によって、RCs は土壌表層に長期間留まり続ける。ただし黒ボク土は必ずしもこの法則に当てはまらない。なぜなら雲母類は、黒ボク土の原料 (母材) である火山灰にはほとんど存在しないうえ地表では生成されず、結果的に黒ボク土には含まれないためである。実際、世界各地で採取された土壌の RCs 固定能を調べると、黒ボク土 (Andosol) の能力がとりわけ低いという結果が得られている。これに対し、日本には雲母類をある程度含む黒ボク土が存在する。この事実が、日本の黒ボク土における RCs 挙動の予測を難しくし、現場対応に混乱を生じさせる一因となっている。

黒ボク土に含まれる雲母類は、おそらく火山放出物以外の母材の一部として混入したものであり、その混入経路として最も有力なものが大陸から大気輸送される風成塵 (主に 2~20  $\mu\text{m}$  の微細粒子) である。つまり、日本に分布する黒ボク土には、風成塵によって雲母類が供給され、その結果、高い RCs 固定能を示す可能性が考えられる。しかしこれまで、日本に降下する風成塵が示す RCs 固定能やその大きさを規定する雲母類の影響について調べた研究はなかった。さらに、風成塵中に含まれる雲母類が大陸からの輸送・降下・土壌生成という一連のプロセスの中で、いつ・どのように変性するのか、そしてその結果、どの程度の RCs 固定能を示すのかを調べた研究はほとんどないのが現状である。

## 2. 研究の目的

本研究では、1) 日本の黒ボク土が発現している RCs 固定能について詳しく調べること、2) 黒ボク土の RCs 固定能を規定する要因が風成塵由来の雲母類であることを明らかにすること、3) 風成塵由来の雲母類が示す RCs 固定能について、黒ボク土に降下する前後での変化を調べること、を目的とする。

日本の黒ボク土の RCs 固定能と鉱物組成の関係性を調べた研究は限られており、RCs 固定能に対する風成塵由来の雲母の寄与について調べた研究は国際的にも例が無い。そのため、黒ボク土の RCs 固定能に対する風成塵の影響を明らかにすることができれば、日本の

生態環境で発達した黒ボク土の RCs 固定能が変異する要因を解明する糸口となる。このことにより、日本の農耕地における RCs の作物移行量の予測に有用な基礎的知見が得られるとともに、RIP に関する現在の世界的な認識をより深めることにつながるものと期待される。

## 3. 研究の方法

供試試料には、日本全国 (北海道~九州) にわたる広域から採取された 180 点の農耕地表層土壌の中から、アロフェン質黒ボク土の基準を満たすものを 23 点選別した。これらの土壌からサイズ分画により得られたシルト (2 - 20  $\mu\text{m}$ ) および粘土 (<2  $\mu\text{m}$ ) 粒子を用いた。これに加えて、京都府立大学 1 号館屋上にてハイボリウムエアサンプラーまたは水盤を用いて月別採取した大気降下物 17 点 (2013 年 5 月~2014 年 11 月) からサイズ分画により得られたシルト (2 - 20  $\mu\text{m}$ ) および粘土 (<2  $\mu\text{m}$ ) 粒子も同様の実験に供試した (図)。

各粒子の RCs 固定能の指標として国際的に用いられている、放射性セシウム捕捉ポテンシャル (RIP) を測定した。RIP は一定の固液条件下での  $^{137}\text{Cs}$  の固液分配比から求められる値であり、微量な雲母の存在量差に対応して値が変動することが報告されている。

各粒子のおおまかな鉱物組成は、X 線回折法 (XRD)、走査型電子顕微鏡観察およびエネルギー分散型 X 線分光法 (SEM-EDX)、湿式分解後の全元素分析により求めた。さらに、雲母類の含有量を Jackson の選択溶解法により溶解する K 量から推定するとともに、雲母類の起源推定のために石英の存在量および石英の酸素同位体比を測定した。黒ボク土に含まれる <20  $\mu\text{m}$  サイズの微細石英は主に風成塵由来であり、その酸素同位体比 ( $^{18}\text{O}$ ) は 15-17‰ の範囲の値を取ることが報告されている。石英の単離はヘキサフルオロケイ酸溶解法を用いて行い、単離した石英の酸素同位体比は、安定同位体比測定用質量分析装置 VG SIRA12 (岡山大学地球物質科学研究センター) にて測定した。

## 4. 研究成果

アロフェン質黒ボク土から分画したシルトおよび粘土粒子の RIP 平均値は、それぞれ  $1.7 \pm 0.8 \text{ mol kg}^{-1}$  および  $2.6 \pm 1.3 \text{ mol kg}^{-1}$  であった。これらの値は黒ボク土以外の土壌から採取した同じサイズの粒子と比べると明らかに低いことから、黒ボク土の RCs 固定能が小さいことが確認できた。また XRD の結果では、各粒子に含まれる結晶性の粘土鉱物として、石英とクリストバライト (石英と同じ  $\text{SiO}_2$  の多形) は明瞭に検出されたものの、雲母類を含む層状鉱物の存在はほとんど検出されなかった。SEM-EDX を用いることで、

雲母類の存在は確認されたが、選択溶解法によって推定された雲母類の存在量は5%以下であったため、供試したアロフェン質黒ボク土には微量の雲母類が含まれていることが確認できた。

RIPも雲母類の存在量も他の土壌粒子と比べると極めて低い値を示すにもかかわらず、両者の間には高い正の相関関係が得られた( $p < 0.01$ )。このことは、アロフェン質黒ボク土のRCs固定能が、微量成分である雲母類の量によって規定されていることを示している。さらに、雲母類の存在量が石英量とも高い正の相関関係を示し、石英の酸素同位体比(約15‰)が黄砂の値と類似していたことから、石英および雲母類の起源が風成塵であることを確かめることができた。このように、アロフェン質黒ボク土のRCs固定能を規定する要因が風成塵由来の雲母類であることを実験的に明らかにしたことは、本研究の大きな成果である。

続いて、大気降下物を用いて得られた結果について示す。シルトおよび粘土サイズの粒子の月ごとの合計降水量は春に最も多く、夏から冬に減少する傾向がみられた。年間降水量は $4.98 \text{ g m}^{-2} \text{ year}^{-1}$ となり、日本の風成塵の年間推定飛来量 $1 \sim 5 \text{ g m}^{-2} \text{ year}^{-1}$ と大きく矛盾していなかった。また、降水量に季節変動はあるものの、鉱物組成に大きな違いはみられず、雲母類をはじめ、石英、曹長石、カオリナイトを含む粒子が継続的に降下していることが分かった。シルトおよび粘土粒子のRIP平均値は、それぞれ $4.99 \pm 1.77 \text{ mol kg}^{-1}$ (値域 $2.22 \sim 9.39 \text{ mol kg}^{-1}$ )および $12.2 \pm 5.11 \text{ mol kg}^{-1}$ (値域 $5.54 \sim 22.2 \text{ mol kg}^{-1}$ )であった。さらに、各粒径のRIPと雲母由来のK量は有意な正の相関( $p < 0.01$ )を示したため、風成塵のRIPも土壌と同様、主に雲母類の存在量によって規定されていることが分かった。RIPおよび雲母類の存在量が採取時期によって大きく異なったことは予想外であったが、おそらく風成塵の飛来源の違いが主な原因だと推察された。日本に飛来する風成塵は、ゴビ砂漠やタクラマカン砂漠など複数の起源をもつことが知られており、それぞれ異なる鉱物組成を示すためである。また、RIPを雲母類の存在量あたりに換算した場合、シルト、粘土粒子ともに大気降下物中の雲母類の方が黒ボク土の各サイズ粒子よりも大きな値を示した。この結果は、風成塵が地表に沈着した後に、雲母類のRCs固定能が低下したことを意味する。この原因を明らかにすることは今後の検討課題であるが、一つの可能性として、アルミニウムポリマーの影響が考えられた。雲母類のRCs固定能は、風化に伴い層間に生成する膨潤層において起こる。酸性の土壌では、この膨潤層にアルミニウムポリマーが固定され、RCs固定能の低下が起こり得ることが報告されているためである。

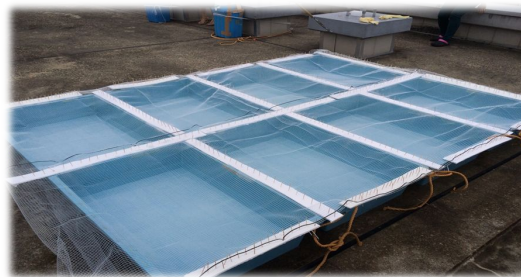


図 水盤を用いた大気降下物採取の様子

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3件)

〔1〕Atsushi Nakao, Akira Takeda, Sho Ogasawara, Junta Yanai, Oki Sano, and Toyoaki Ito, Relationships between paddy soil radiocesium interception potentials and physicochemical properties in Fukushima, Japan. *Journal of Environmental Quality*, 査読有 vol 44, p780-788, 2015.

DOI: 10.2134/jeq2014.10.0423

〔2〕Atsushi Nakao, Sho Ogasawara, Oki Sano, Toyoaki Ito, and Junta Yanai, Radiocesium sorption in relation to clay mineralogy of paddy soils in Fukushima, Japan. *Science of the Total Environment*, 査読有 vol 468-469, p523-529, 2014

DOI: 10.1016/j.scitotenv.2013.08.062

〔3〕Sho Ogasawara, Atsushi Nakao, Junta Yanai, Radiocesium Interception Potential (RIP) of smectite and kaolin reference minerals containing illite (micaceous minerals) as impurity, *Soil Science and Plant Nutrition*, 査読有 vol 59, p852-857.

DOI:10.1080/00380768.2013.862158

〔学会発表〕(計 6件)

〔1〕田代有希, 中尾淳, 矢内純太, 日本の水田土壌における放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP)の粘土鉱物学的な規定要因の解明. 日本土壌肥料学会本大会 2014年度大会, 2014年9月11日, 東京

〔2〕Nakao, A., Ogasawara, S., Sano, O., Ito, T. and Yanai, J. Relationship between radiocesium interception potential of paddy soil clays in Fukushima and their clay mineralogy. 20th World Congress of Soil Science, 査読有 2014年6月9日, Jeju, Korea.

〔3〕中尾彩, 中尾淳, 矢内純太, 黒ボク土の放射性セシウム捕捉ポテンシャルを規定する鉱物の決定とその起源についての考察, 日本ペドロロジー学会 2014年度大会, 2014年3月21日, 島根

〔4〕小笠原翔，中尾淳，矢内純太，黒雲母からのK放出に伴うフレイド・エッジ・サイトおよびバーミキュライト量の変化，日本ペドロロジー学会 2014 年度大会，2014 年 3 月 21 日，島根

〔5〕中尾淳，「福島大学うつくしまふくしま未来センター主催・環境中における放射性核種の動態研究の最前線から 外部講師による担い手育成のための講演会，土壤中における放射性セシウムの動態とその規定要因」2014 年 1 月 20 日，福島

〔6〕中尾淳，日本学会議主催公開シンポジウム 2013「復興農学 東日本大震災への土壌科学の貢献と課題 現地土壌におけるセシウム固定」2013 年 9 月 13 日，名古屋

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

中尾 淳 (NAKAO, Atsushi)

京都府立大学・大学院生命環境科学研究科・助教

研究者番号：80624064

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし