

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 30 日現在

機関番号：11601

研究種目：基盤研究(C) (特設分野研究)

研究期間：2014～2016

課題番号：26520302

研究課題名(和文) 農業生産環境中に存在する「有機態」放射性セシウムの化学形態の解明

研究課題名(英文) The chemical form of organic radiocesium in the agricultural environment

研究代表者

大瀬 健嗣 (Ohse, Kenji)

福島大学・うつくしまふくしま未来支援センター・特任准教授

研究者番号：90396606

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)： 土壌や河川懸濁物質中には化学分離により「有機態」に分画される放射性セシウムが存在するが、どのような有機物に含まれているかなど詳細は解っていない。本研究では、有機態放射性セシウムの存在状況を明らかにするためにいくつかの実験を行った。

リターのインキュベート実験では、リター分解に伴って溶出した放射性セシウムは速やかに微生物や粘土鉱物に再固定されることが明らかとなった。重液による比重分画と化学分画から、土壌中の有機態放射性セシウムの大部分は微生物を含む粗大有機物中に存在することが示唆された。また、有機態放射性セシウムの一部はクロロホルム燻蒸処理により可溶化することが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)： The major forms of radiocesium in soil are exchangeable, clay-bound, and organic. "Organic" radiocesium is defined as the fraction that it is not extracted by salt solution but should be solubilized by oxidative decomposition or alkali extraction. In our previous study, organic radiocesium was observed not only in soil but also in the suspended matter of streams. However, the mechanisms by which cesium ions bind with organic matter, the kinds of organic matter that bind with cesium ions, and whether cesium ions bind with organic matter at all remain unknown. In the present study, we aimed to clarify the actual chemical form of radiocesium extracted in the organic form from soil and suspended matter and the kinds of organic matter that bind with radiocesium. From density fractionation, chemical fractionation, and chloroform fumigation, it was suggested that most organic radiocesium was contained undecomposed organic matter including microorganism.

研究分野：土壌環境化学

キーワード：放射性セシウム 存在形態 土壌 河川懸濁物質 福島第一原発事故

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(以下、福島第一原発事故)によって大気中に放出された放射性セシウムは、福島県内の一部地域の森林や農耕地に高い濃度で沈着し、平成23年度には県内数か所の水田で生産された玄米から暫定規制値を超える放射性セシウムが検出された。また、地域・作目によっては現在でも放射性セシウムの食品安全基準を上回る値が報告され、放射性セシウムの農地への移行メカニズムが明らかにならなければ対策の取りようがないことから、生産者と消費者の双方にとって大きな不安材料となっている。

これまでイネをはじめとする農作物への放射性セシウムの吸収移行メカニズムを解明すべく、平成24年度より福島県伊達市および大熊町の協力のもと現地での試験栽培を行い、農作物への放射性セシウム移行量を調査するとともに、土壌や農業用水などの周辺環境中に存在する放射性セシウムの濃度、化学形態、起源について研究を行っている。農地に移行する放射性セシウムの多くは、懸濁物質として移動する。そのため、特に農業用水および河川水については、定期的に可搬型の大型連続遠心分離機を現場に持ち込んで懸濁物質を大量に採取し、そこに含まれる放射性セシウム(懸濁態)の化学形態と起源について詳細な分析を行っている。しかしながら、森林の腐植物質がどのように分解し、その過程で放射性セシウムの形態がどのように変遷し、河川の懸濁物質として農地へ移行していくか、そのメカニズムはよくわかっていない。また、溶存態にも有機物結合態の放射性セシウムが含まれているが、その動態は研究されていない。

一方、農地土壌中の放射性セシウムについて化学抽出を行うと、その6~7割程度が粘土鉱物の構造内部に強く結合した画分に、1割程度が農作物にとって吸収可能な交換態に、そして、2割程度が有機物結合態に分画される。交換態画分に存在する放射性セシウムは、カリウムと競合して植物へ移行する。一方で、有機物と結合した放射性セシウムはやがて分解して植物へ吸収されやすいイオン態となるが、その分解過程が不明である。

2. 研究の目的

本研究では、森林から河川に移動する有機態放射性セシウムの存在形態の変遷を明らかにする。福島県内の森林には多くの放射性セシウムが堆積したまま、その多くが腐植物質中に含まれていることが報告されている。それらはやがて河川を通して移動するが、その過程で一部は農業用水として利用される。農地に移行する放射性セシウムとしては、懸濁物質として移動する割合の高いことが知られている。森林から腐植物質の分解に伴い有機態の懸濁物質となって河川を移動し、やがて農地に沈着し、植物へ移行する。

森林の放射性セシウムの多くは地表のリター(堆積した落葉・落枝)中に存在し、様々な分解過程を経て移動する。しかしながら、リターを水で抽出しても放射性セシウムはほとんど抽出されず、水で長期間浸潤すると、多量の放射性セシウムが次第に抽出される。そこで放射性セシウムを含むリターを温度別に一定期間保存し、放射性セシウムの放出速度を見積もるとともに、その存在形態および結合している有機物の組成を明らかにし、森林から河川への移動過程を明らかにする。

また、農業用水や河川水中に存在する懸濁態放射性セシウムを捕集し、その化学形態(交換態、有機物結合態、鉱物結合態など)を明らかにしたうえで、有機物結合態の放射性セシウムについて、水への溶出要因を解明する。また、土壌から有機物結合態として抽出される放射性セシウムについても、その形態を分析し、農業用水中の有機物結合態セシウムと比較し、形態の変遷を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) リターインキュベート試験

福島県伊達市の針葉樹林(スギ林)および混交林から2013年に採取した林床リターを裁断し、重量比1:10の純水に浸して10、20、30、40でインキュベートし、放出された溶存態のCs-137を分析した。

(2) 土壌および懸濁物質中放射性セシウムの比重分画

福島県伊達市の山林から採取した表層土壌試料および近接する河川から連続遠心分離機により採取した懸濁物質試料を重液(ポリタングステン酸ナトリウム溶液)を用いて比重分画し、画分ごとにCs-137を測定した。

(3) 腐植物質中放射性セシウムの化学分画

福島県伊達市の畑地から採取した土壌試料中の土壌有機物を0.1M NaOH抽出、HCl添加沈殿によりフルボ酸、腐植酸および残差のヒューミンに分画し、画分ごとにCs-137を分析した。

(4) バイオマスCs-137分析

福島県伊達市の畑地から採取した土壌を20でプレインキュベートした後、クロロホルムで燻蒸し、Cs-137の存在形態を非燻蒸試料と比較した。

4. 研究成果

(1) リターインキュベート試験

図1にスギ林および混交林リターを300日までインキュベートしたときのCs-137放出量を示す。スギ林のリターでは、20から40までのインキュベート温度ではリター分解によるCs-137の放出量は100日目をピークに増加したが、その後は減少に転じ、200日目にはほぼ無くなった。また、10でのインキュベートでは開始から減少する傾向を

示し、やはり 200 日目にはほぼ 0 となった。
 混交林リターについては、40 でのみ 100 日目まで増加する傾向がみられたが、10 から 30 では早い段階から減少する傾向にあり、いずれも 200 日目にはスギ林リターと同様にほぼ 0 となった。

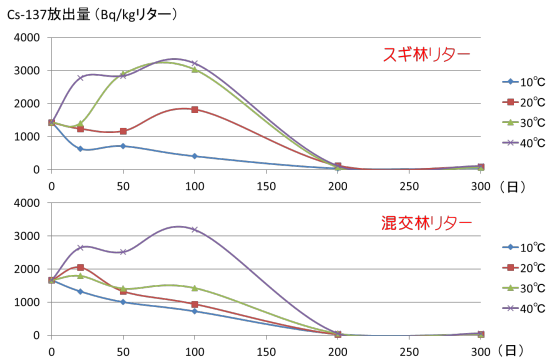


図 1 .リターのインキュベートによる Cs-137 の放出量

放出量が減少した原因の検証はしていないものの、おそらくはリター分解過程での糸状菌バイオマスの増加に伴い、リターから放出された Cs-137 が糸状菌に吸収・同化された可能性が高い。あるいは、リター中にも微量に混入している層状粘土鉱物のフレイドエッジサイトに固定された可能性もある。この結果から、山林のリターが分解しても、リター中に含まれる放射性セシウムは比較的速やかに糸状菌などに再吸収され、河川や周辺環境への流出は限られていることが示唆された。

(2) 土壌および懸濁物質中放射性セシウムの比重分画

森林土壌表層試料と河川懸濁物質試料における比重ごとの Cs-137 濃度を図 2 に、比重ごとの存在分布割合を図 3 に示す。

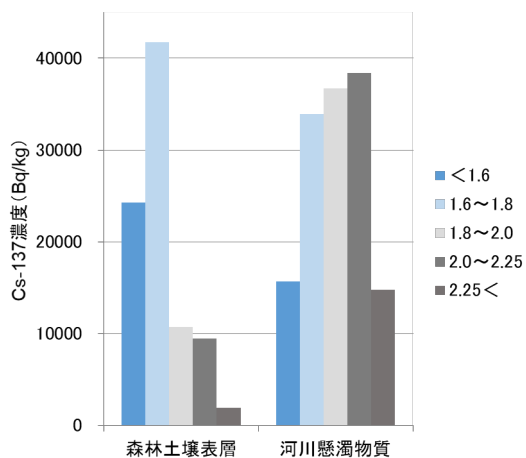


図 2 . 森林土壌表層と河川懸濁物質中の Cs-137 の比重別濃度

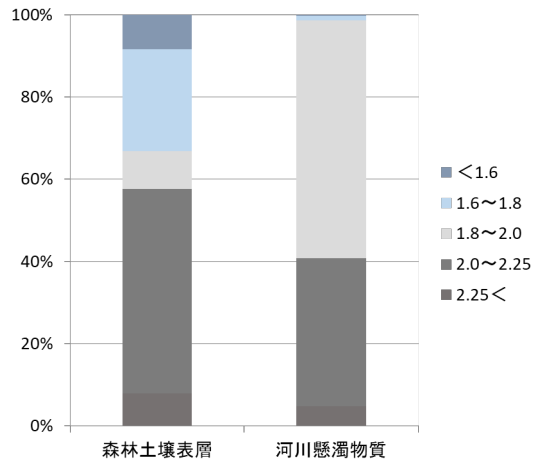


図 3 . 森林土壌表層と河川懸濁物質中の Cs-137 の比重別存在割合

森林土壌表層と河川懸濁物質とでは、Cs-137 の比重ごとの濃度および比重別存在量分布が大きく異なっていた。森林土壌表層では、Cs-137 濃度は比重が 1.8 g cm^{-3} より小さい画分で高く、それより大きい画分では低かった。これに対して河川懸濁物質では、 $1.8 \sim 2.0 \text{ g cm}^{-3}$ 画分および $2.0 \sim 2.25 \text{ g cm}^{-3}$ 画分でも高い濃度を示した。河川懸濁物質自体の比重は大部分が 2.0 g cm^{-3} 以上であったことから、結果として河川懸濁物質中の Cs-137 は大部分が 2.0 g cm^{-3} 以上の画分に存在していることが明らかとなった。これは一般的な鉱物の比重と概ね等しく、以前の研究で懸濁物質中の Cs-137 の大部分が鉱物結合態であった結果と一致する。一方、森林土壌表層では 1.8 g cm^{-3} より小さい画分にも 3 割程度の Cs-137 が存在しており、有機物や有機物と鉱物との結合物中に存在していることが示唆された。

(3) 腐植物質中放射性セシウムの化学分画

表 1 に有機態 Cs-137 の腐植画分別濃度を示す。

| | Cs-137 濃度 (Bq/kg 乾土) | |
|-------|----------------------|--------|
| | フルボ酸 | 14 ± 1 |
| 腐植酸 | 79 ± 3 | |
| ヒューミン | 532 ± 4 | |

森林土壌表層の有機物を腐植分画したところ、フルボ酸および腐植酸には Cs-137 はほとんど含まれておらず、大部分がヒューミン画分に存在することが明らかとなった。一般的にはヒューミンは植物遺体等が土壌中で分解・再合成した難溶性の有機物を指すが、森林の表層土壌ではヒューミン画分に分解途中の粗大有機物や微生物なども多く含ま

れている。フルボ酸や腐植酸には Cs-137 がほとんど含まれていなかったことから、有機態 Cs-137 の多くは粗大有機物や微生物中に存在している可能性が高いと考えられた。とくに糸状菌類はセシウムを濃縮することが知られており、これまでの結果と併せて考えると有機態セシウムの担い手である可能性が高い。そこで、クロロホルム燻蒸で微生物を処理して可溶化する Cs-137 を測定した。

(4) クロロホルム燻蒸による Cs-137 の形態変化

表2にクロロホルム燻蒸土壌と非燻蒸土壌におけるCs-137の化学形態別濃度を示す。交換態は酢酸アンモニウム溶液と塩化カリウム溶液で逐次抽出したものの合計で、有機態は残渣を過酸化水素で分解して可溶化したものを示している。

表2．クロロホルム燻蒸による Cs-137 化学形態の変化

| | | 非燻蒸土壌 | 燻蒸土壌 |
|---------------------|-----|-------|------|
| Cs-137濃度 (Bq/kg) | 交換態 | 71.6 | 79.1 |
| | 有機態 | 31.0 | 31.2 |

クロロホルム燻蒸土壌と非燻蒸土壌とでは、有機態 Cs-137 濃度には差が認められなかったものの、交換態 Cs-137 濃度は燻蒸によって有意に増加した。このことから、土壌中の放射性セシウムの一部は糸状菌などの微生物中に存在していることが示唆された。燻蒸処理によって可溶化する Cs-137 は微生物中の一部と考えられることから、微生物中の Cs-137 量は燻蒸土壌と非燻蒸土壌との差より大きいと考えられる。また、今回の試験には畑地土壌を用いたが、一般的に糸状菌バイオマスの大きい森林土壌ではこの差はさらに大きくなる可能性がある。

5．主な発表論文等

[学会発表](計 3 件)

Kenji Ohse, Syuntaro Hiradate, Kyo Kitayama, Chika Suzuki, Akira Kanno, Wakana Horiuchi, Kencho Kawatsu, and Hirofumi Tsukada, The chemical form of "organic" radiocesium in soil and suspended matter, The 9th International Symposium on the Natural Radiation Environment, Hirosaki, Japan, 2014, Sep, 23

大瀬健嗣, 鈴木千佳, 菅野章, 堀内季奈, 加藤 美紀, 塚田祥文, 土壌および懸濁物質中の「有機態」放射性セシウムの存在形態. 日本土壌肥料学会, 東京農工大学, 東京都小金井市, 2014, 9, 10

大瀬健嗣, 加藤美紀, 北山 響, 塚田祥文, CdZnTe 土壌および懸濁物質中の「有機態」放射性セシウムの存在形態. 日本土壌肥料学会, 京都大学, 京都府京都市, 2015, 9, 11

6．研究組織

(1) 研究代表者

大瀬 健嗣 (OHSE, Kenji)
福島大学・うつくしまふくしま未来支援センター・特任准教授
研究者番号: 90396609

(2) 研究分担者

塚田 祥文 (TSUKADA, Hirofumi)
福島大学・環境放射能研究所・教授
研究者番号: 50715498

北山 響 (KITAYAMA, Kyo)
福島大学・うつくしまふくしま未来支援センター・特任研究員
研究者番号: 40647244
H28, 6, 20 まで