

令和元年6月24日現在

機関番号：24302

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H06188

研究課題名(和文) 黄砂として飛来する放射性セシウム吸着剤(雲母)が日本の土壤に与えた累積影響の解明

研究課題名(英文) Historical impact of Kosa on Japanese land to enhance soil ability to retain radiocesium

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・准教授

研究者番号：80624064

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,300,000円

研究成果の概要(和文)：地質史を通じた黄砂の飛来・堆積によって、日本の土壤は放射性セシウムを吸着する能力を得たのではないかとこの仮説を検証するために、鍵となる堆積年代が識別された火山灰や泥炭の累積層から黄砂の粒径範囲である $<20\mu\text{m}$ の微細粒子を分画し、様々な化学・鉱物学・同位体地球学的な分析を実施した。その結果、1) K-Ar年代と単離石英の ^{180}Ar 値から推定された火山灰中の黄砂存在比が大きいほど、RCs固定能が高く、2) 火山灰への黄砂混入比が火山からの距離が離れるほど増加すること、3) 寒冷な古環境での黄砂の堆積がRCs固定能増加に重要であることなど、仮説を支持する新事実を明らかにすることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

黄砂が土壤の機能を規定する因子になり得ることは、福島原発事故が起こるまでほとんど見過ごされてきた。しかし、とりわけ日本においては地質史を通じた黄砂の飛来量が大きいため、放射性セシウム固定能を大きく高める効果があり、火山灰への黄砂混入比が高い黒ボク土ほどその固定能が大きいことが初めて実証された。この成果は、黒ボク土の放射性セシウム固定能に地点間差が生じる要因を新しい視点から証明しており、黄砂が供給する知られざる生態系サービスの解明という点で高い学術的意義があり、放射性セシウムの土壤-植物間での移行量予測に有用な知見を供給したという点で高い社会的意義を持っている。

研究成果の概要(英文)：The enhancement effect of historical accumulation of Kosa-dust on the ability of soils to retain radiocesium (RCs) was hypothesized. To verify this hypothesis, mineral particles with a diameter of $<20\mu\text{m}$, a typical size range of Kosa-dust, were isolated from cumulative volcanic or peaty layers and subjected to the chemical, mineralogical, and isotopic analyses.

This study obtained the following achievements that 1) higher inclusion of Kosa-dust, evidenced by K-Ar dating and quartz- ^{180}Ar values, well associated with both higher mica content and the ability of soils to retain RCs, 2) volcanic soils further away from volcanic craters have higher ability to retain RCs, and 3) higher deposition of Kosa-dust under the colder paleoclimate was much more important to enhance the ability of soils to RCs than that under warmer period.

研究分野：土壤化学

キーワード：石英の酸素同位体比 K-Ar年代 放射性セシウム捕捉ポテンシャル XRD 古環境解析

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

福島原発事故以降、基準値を越える放射性セシウム (RCs) で汚染された農作物は年とともに減少し、2014 年のコメ全袋検査では、基準値越えゼロが達成された。この成果は、民間学連携で推進したカリウム塩の農地散布に拠るところが大きい。セシウム吸収機能を持つ植物根のイオン輸送チャンネルは、カリウム不足により活性化する。これを抑制するために土壌にカリウム塩を施用し、植物可給性カリウム量を一定以上高く保つことで大きな移行低減効果が得られた。しかし、これはいわば劇薬によって病を無理やり押さえ込んでいた状態に近い。現在はコスト負担から、カリウム施用量の削減 (カリ卒) が検討され始めており、カリ卒した土壌での作物移行リスクの予測は緊急課題の 1 つである。

カリウム不足の土壌からの RCs の作物移行量は、吸着によってセシウムを固相に留める土壌の能力、すなわち RCs 固定能の大きさに依存し、その大きさは雲母の存在量によって概ね決定される。これは、雲母構造の一部に発現する、1.0~1.4 nm の中間の厚さを持つ層間 (フレイド・エッジとよばれる) にセシウムが強く吸着されるためである。それ故、カリ卒を行った土壌に雲母がほとんど含まれなかった場合、RCs の作物移行リスクが高くなることが予想される。そのリスクを最小限にとどめるためには、どの地点の土壌が雲母を多く含むのかを予測することが重要であるが、雲母含有量の地点間変異を既存の情報 (基岩の種類や土壌分類のタイプなど) から予測することは極めて困難であった。

そこで申請者は視点を換え、土壌への雲母の混入経路として、黄砂に着目した。黄砂は、毎年春先に降下のピークを示し、近年では公害物質 (PM2.5) あるいは大陸での大気圏核実験由来の RCs の輸送媒体として研究が進められてきた。黄砂はミクロンサイズの微細な雲母と石英を主な構成要素にもち、その累積降下量は完新世の 1 万年間でおよそ 100 kg/m²、更新世氷期にはその 10 倍の降下速度であったと試算されている。そのため黄砂は、沖積平野および洪積台地の農耕地土壌に相当量の雲母を供給したことが推定される。実際、日本広域に分布する完新世火山灰を主母材とする沖積土壌 (アロフェン質黒ボク土) において、RCs 固定能の規定要因が黄砂雲母であることが最近はじめに実証された。ただし、黄砂雲母の量が地点間で異なる要因は不明であり、平野が形成された年代 (古いほど多くの黄砂が堆積) が影響している可能性が考えられるが、それを確かめた研究はこれまで存在しなかった。

2. 研究の目的

そこで本研究では、黄砂雲母の堆積が日本の土壌の RCs 固定能に及ぼした累積効果について明らかにすることを目的とする。さらにその結果を踏まえ、福島県内に分布する農耕地における、黄砂雲母に由来する RCs 固定能を予測することを目的とする。

3. 研究の方法

1. 黄砂雲母が日本の土壌の RCs 固定能を引き上げた累積効果の推定

過去に日本に累積降下した黄砂を、分析試料として得ることは通常困難である。本研究では、過去に飛来した黄砂は、安定地形に累積した火山灰層または泥炭層に挟在すると考え、テフロクロノロジーあるいは ¹⁴C 年代法によって鍵層の年代の特定が既になされている累積層序を用いることとした。火山灰や泥炭は多くの場合雲母を含まないため、これらから分画された雲母は主に黄砂由来である可能性が高い。

試料採取地として選定したのが、1) 島根県雲南市掛合町の火山灰 - レス累積層 (研究協力者; 成瀬敏郎氏)、2) 熊本県阿蘇市の火山灰累積層 (研究協力者; 久保寺秀夫氏)、3) 京都府南丹市の泥炭累積層 (研究協力者; 高原光氏) である。これらの累積層から深さごとに試料を採取し、有機物分解後に黄砂の最多粒径である <20 μm の粒子を分画した。

上記の分画粒子 (<20 μm) について、X 線回折装置 (XRD) により雲母、石英の存在を確認するとともに、Jackson の選択溶解法により、分画粒子中の雲母の定量および微細石英の単離を連続して行い、単離石英量から黄砂の混入量をもとめた。石英、雲母の起源が黄砂であることを検証するために、単離石英に含まれる酸素をレーザー誘導フッ素化法により石英から遊離させ質量分析装置 (岡山大学惑星物質研究所) を用いて ¹⁸O/¹⁶O 比を測定し、標準海水の値との相対値である (¹⁸O) を算出した。(研究協力者; 田中亮史氏)。さらに分画粒子の K 量を湿式分解と原子吸光法により、⁴⁰Ar 量を質量分析装置 (ともにジョージア州立大学) により求め、これらの値から K-Ar 年代を算出した (研究協力者; クロフォード・エリオット氏)。供試する火山灰層序の年代が最古で 13 万年前であるのに対して、黄砂の K-Ar 年代はおよそ 1.8~2 億年程度と推定されているため、この年代差に基づいて雲母の起源が黄砂であることの証明を試みた。

分画粒子の RCs 固定能については、放射性セシウム捕捉ポテンシャル (Radiocesium Interception Potential; RIP) を指標とした。RIP は、特定の溶液条件下で人工添加した、¹³⁷Cs の固相吸着量に基づいて決定され、この値が 1000 mmol kg⁻¹ 以下の土壌では RCs の作物移行リスクが高いことが報告されている。

4. 研究成果

1. 黄砂雲母が日本の土壌の RCs 固定能を引き上げた累積効果の推定

【研究成果 1】 ¹⁸O 値および K-Ar 年代に基づく火山灰層中への黄砂混入割合の推定

土壌から単離した石英の ^{18}O 値と K 含有鉱物の K-Ar 年代は、土壌成分の起源を知るための有効な指紋情報である。堆積年代が判明している 4 つのテフラ鍵層（三瓶浮布 SUK；堆積年代 = 19 ka，三瓶池田 SI；40 ka，三瓶砂原 SS；59 ka，三瓶雲南 SUn；70 ka，三瓶木次 SK；105 ka）を含む火山灰-レス累積層を 15 層に区分し、黄砂の最多粒径である 2-20 μm 粒子を分画した。この 2-20 μm 粒子について、雲母・石英量を求めるとともに、K-Ar 年代・単離石英の ^{18}O 値を算出した。また、また、放射性セシウム固定能の指標として、RIP を求めた。

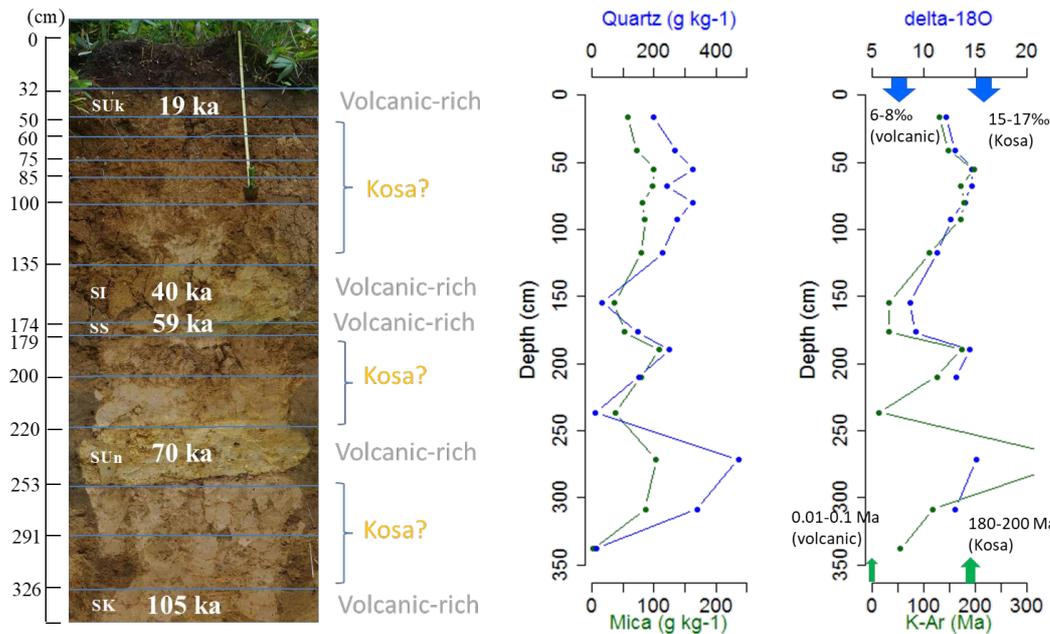


図 1 . 火山灰-レス累積層における雲母・石英量および石英 ^{18}O 値・K-Ar 年代の深度分布

その結果、累積層から単離した石英の ^{18}O 値は、火山岩中の石英の ^{18}O 値（6～8‰）と黄砂中の石英の ^{18}O 値（15～17‰）との間で幅広い値を示した。K-Ar 年代もまた、1 層を除いて火山灰の降下年代（0.019～0.105 Ma）と黄砂の K-Ar 年代（180～200 Ma）との間で幅広い値を示し、 ^{18}O 値と K-Ar 年代は高い相同性と直線的な比例関係を示した。この結果から、供試土壌は固有の ^{18}O 値と K-Ar 年代を持つ 2 成分、すなわち火山灰と黄砂の混合系であることを概ね検証することが出来た。さらに、これら 2 つの指紋情報から黄砂の混入割合が大きいと判断された土壌ほど、雲母系鉱物量も RIP も大きな値を示したことから、黄砂が黒ボク土の放射性セシウム隔離効果を引き上げていることを初めて実証することに成功した。

【研究成果 2】火口からの距離に応じた黄砂混入率の増加とそれに伴う RCs 固定能の増加

火山灰の降下量が火口からの距離に応じて指数関数的に減少するのに対して、黄砂の降下量は地域内変異が小さいことが想定される。そこで熊本県の阿蘇山中岳火口から約 10, 14, 16, 32 km に位置する 4 地点（Site 1, Site 2, Site 3, Site 4）の火山灰累積層を対象に、表層から年代が判別されている 2 つの鍵層 Site 1, Site 2 の場合はアカホヤ層（K-Ah: 7,300 年前）、Site 3, Site 4 では草千里ヶ浜軽石層（Kpfa: 3 万年前）までの累積層を識別層ごとに分けて採取し、2-20 μm 粒子を分画した。この粒子に含まれる雲母・石英量を求めるとともに、石英 ^{18}O 値および RIP の測定を行った。

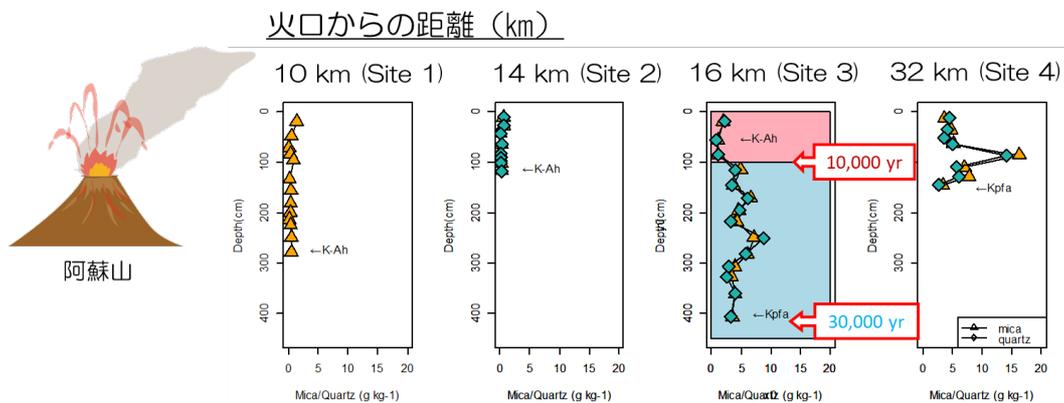


図 2 . 阿蘇山火口からの距離の異なる火山灰累積層中の雲母・石英量の深度分布

その結果、各層に含まれる雲母および石英量と RIP は 相互に高い相関関係を示すとともに、火口から離れた場所ほど (Site 1-4) 値が増加する傾向を示した (図 2)。石英の ^{18}O 値は場所・深さに関わらずほぼ 15~17‰ の範囲の値を取ったため、黄砂起源であることが強く示唆された。RIP を目的変数、雲母量を説明変数として単回帰分析をおこなった結果、RIP の約 9 割が雲母系鉱物量のみで説明できることが分かった。さらに、表層から K-Ah 層または Kpfa 層までの累積層の総量自体は地点ごとに大きく異なるにもかかわらず、その中に含まれる雲母・石英の総量は地点間でほぼ同量であった。これらの結果より、阿蘇火山灰累層の RCs 固定能はほぼ黄砂由来の雲母量のみで規定されており、火口に近づくほど火山灰の希釈効果によって固定能が減少することが明らかになった。この知見は、阿蘇山周辺のみならず、福島県を含む日本広域の火山周辺の土壌に適用できるものと期待される。

【研究成果 3】泥炭層に含まれる花粉情報を利用した黄砂雲母の歴史的な堆積速度の推定

日本への歴史的な黄砂の累積量を高い精度で調べるためには、黄砂以外の無機粒子の混入影響が小さい泥炭累積層の調査が有効と考え、京都府南丹市の神吉盆地内で採取された 9.1~2.9 万年前に相当する厚さ 14 m の泥炭ボーリングコア (研究協力者; 高原光氏) から、7.5~6.8 万年前の堆積層を約 5 cm 間隔で 21 等分し、各分割コアから $<20\ \mu\text{m}$ 粒子を単離した。この粒子に含まれる雲母・石英量ならびに鉱物組成全般を調べるとともに、石英 ^{18}O 値および RIP の測定を行った。

その結果、コアから単離された鉱物粒子の 90~99% が $20\ \mu\text{m}$ 以下であり、雲母、石英、カオリナイトを主要鉱物とし、鉱物粒子中の石英の酸素同位体比は 16.0~17.5‰ でほぼ一定であった。これらは全て黄砂に特有の性質であることから、本研究では $<20\ \mu\text{m}$ 粒子を黄砂として扱った。黄砂由来の雲母の堆積量を堆積速度に変換すると、 $1.4 \pm 0.9\ \text{g m}^{-2}\ \text{yr}^{-1}$ (値域: 0.15~3.0 $\text{g m}^{-2}\ \text{yr}^{-1}$) となり、変動が寒冷さの指標であるマツ科針葉樹の花粉存在比 (%) の増減傾向と高い相関性を示した (図 3)。つまり、古環境において寒冷な気候条件であるほど多くの雲母が降下したことが確かめられた。さらに、この雲母量と RIP は高い正の相関を示したことから、日本の土壌における RCs 固定能は寒冷期に飛来する黄砂によって大きく引き上げられたことが示唆された。

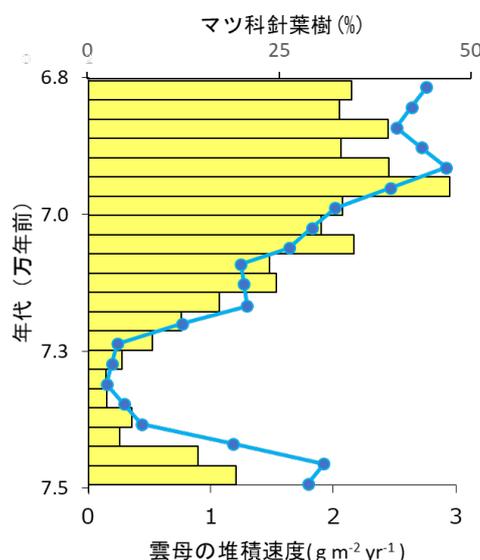


図 3 . 神吉盆地泥炭累積層における雲母の堆積速度 () と マツ科針葉樹花粉存在比 () の深度分布

なお、雲母の堆積速度を目的変数に、マツ科針葉樹の花粉存在比を説明変数とし直線回帰を行ったところ、高い正の決定係数が示され、雲母の堆積速度の約 75% が説明できた。このことから、第四紀学の分野で蓄積された古環境情報を利用することで、歴史的な黄砂由来雲母の降下量を推定できる可能性が示された。

【研究成果 4】福島の農耕地作土における RCs 固定能の規定要因推定

福島県浜通りに分布する除染済み農耕地土壌 172 点を用いて、土壌の RCs 固定能の指標として交換性 ^{137}Cs 脱着率を求めるとともに、その規定要因について調べた。その結果、RCs 固定能は地形条件 (沖積地、低位段丘、中位段丘) との明確な関係を示さず、古い地形面の表層土壌ほど ^{137}Cs 保持能が高いという本研究の仮説を実証することはできなかった。福島の農耕地では、除染の際に加えられた客土の種類や、火山群からの距離に応じた火山灰の混入量の違いなど様々な要因が RCs 固定能の規定要因の絞込みを困難にしていることが明らかになった。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 8 件)

Kurokawa, K., Nakao, A., Tsukada, H., Mampuku, Y., Yanai, J. Exchangeability of ^{137}Cs in soils of agricultural fields after decontamination in the eastern coastal area of Fukushima. Soil Science and Plant Nutrition. (in press), 査読有

Nakao, A., Tomita, M., Wagai, R., Tanaka, R., Yanai, J., Takashi, K. 2019. Asian dust increases radiocesium retention ability of serpentine soils in Japan. Journal of Environmental Radioactivity, 204 (2019), 86-94, 査読有

Ogawasara, S., Eguchi, T., Nakao, A., Fujimura, S., Takahashi, Y., Matsunami, H., Tsukada, H., Yanai, J., Shinano, T. Phytoavailability of ^{137}Cs and stable Cs in soils from

- different materials in Fukushima, Japan. Journal of Environmental Radioactivity, 198, (2019), 117-125, 査読有
- Takeda, A., Nakao, A., Yamasaki, S-I, Tsuchiya, N. Distribution and speciation of bromine and iodine in volcanic ash soil profiles. Soil Science Society of America Journal, 82 (2018), 815-825, 査読有
- Tashiro, Y., Nakao, A., Wagai, R., Yanai, J., Kosaki, T. Inhibition of radiocesium adsorption on 2:1 clay minerals under acidic soil environment: effect of organic matter vs. hydroxy aluminum polymer. Geoderma, 319 (2018), 52-60, 査読有
- Kitagawa, Y., Yanai, J., Nakao, A. Evaluation of nonexchangeable potassium content of agricultural soils in Japan by the boiling HNO₃ extraction method in comparison with exchangeable potassium. Soil Science and Plant Nutrition, 64 (2018), 116-122, 査読有
- Ogasawara, S., Nakao, A., Yanai, J. A stepwise change of frayed edge site content in biotite in response to the gradual release of potassium from the interlayers. Soil Science and Plant Nutrition, 63 (2017), 529-535, 査読有
- 伊藤遼・矢内純太・中尾淳日本の農耕地土壌の全粒径および細砂画分の元素組成による土壌大群の推定と地理的起源のスクリーニング, 分析化学, 66 (2017), 547-555, 査読有

[学会発表](計21件)

- Tashiro, Y., Nakao, A., Wagai, R., Yanai, J., Kosaki, T. 2017. Inhibitory effects of soil organic matters and hydroxy-Al polymers on radiocesium adsorption on 2:1 clay minerals. 14th International Conference on the Biogeochemistry of Trace Elements (ICOBTE2017), Zurich, Switzerland, July 16-20 2017.
- Ogasawara, S., Eguchi, T., Nakao, A., Fujimura, S., Takahashi, Y., Matsunami, H., Tsukada, H., Shinano, T., Yanai, J. 2017. Mobility of 137Cs and stable Cs in soil-plant systems in contaminated soils in Fukushima, Japan. 14th International Conference on the Biogeochemistry of Trace Elements (ICOBTE2017), Zurich, Switzerland, July 16-20 2017.
- Ito, R., Yanai, J., Nakao, A. 2017. Interactive effect of parent material and topography on the spatial variability of soil material characteristics of paddy soils in the alluvial plain. 13th International Conference of the East and Southeast Asia Federation of Soil Science (ESAFS), Pattaya, Thailand, December 12-15th, 2017.
- Yanai, J., Kitagawa, Y., Nakao, A. 2017. Nonexchangeable potassium content of agricultural soils by the boiling HNO₃ extraction method and its controlling factors: Implications to potassium fertility evaluation. 3th International Conference of the East and Southeast Asia Federation of Soil Science (ESAFS), Pattaya, Thailand, December 12-15th, 2017.
- Nakao, A., Uno, S., Tanaka, R., Kubotera, H., Nakao, A., Yanai, J., Kosaki, T. 2018: Mica in Asian dust as a natural amendment to increase soil ability to retain radiocesium. 21th World Congress of Soil Science, Rio, Brazil, August 12-17th, 2018.
- Kohei, K., Nakao, A., Yanai, J. 2018: Assessment of transfer risk of radiocesium in decontaminated agricultural land in Tomioka town, Fukushima prefecture, Japan. 21th World Congress of Soil Science, Rio, Brazil, August 12-17th, 2018.
- Terashima, M., Nakao, A., Elliott, W.C., Wampler, J.M., Tanaka, R., Yanai, J., Kosaki, T. 2017. Cesium fixation capacity of Asian dust deposited in Japan and its origin inferred from oxygen isotope analysis and K-Ar dating. 14th International Conference on the Biogeochemistry of Trace Elements (ICOBTE2017), Zurich, Switzerland, July 16-20 2017.
- Nakao, A., Uno, S., Tanaka, R., Yanai, J., Kosaki, T., Kubotera, H. 2017. Asian dust rendered volcanic-ash-soils the ability to retain radiocesium in Japan. American Geoscience Union (AGU) Fall Meeting, New Orleans, December 9-13, 2017.
- 小笠原翔・太田帆乃夏・中尾淳・矢内純太 2017: 京都府の農耕地土壌に含まれる雲母系鉱物の種類とセシウム脱着特性の関係. 日本土壌肥料学会本大会, 仙台
- 松山由樹・中尾淳・山口紀子・和穎朗太・矢内純太・小崎隆 2017: 異なる風化環境に置かれた黒雲母層間のセシウムに関する化学形態分析. 日本土壌肥料学会本大会, 仙台
- 田中佑樹・中尾淳・矢内純太・塚田祥文 2017: エアサンプラーで採取した大気降下物の放射性セシウム吸着能とその関連諸特性の日別変化. 日本土壌肥料学会本大会, 仙台
- 富田真悠・中尾淳・和穎朗太・矢内純太・小崎隆 2017: 異なる気候条件下で発達した蛇紋岩土壌における放射性セシウム吸着能の規定要因の解明. 日本土壌肥料学会本大会, 仙台
- 伊藤遼・矢内純太・中尾淳 2017: 沖積平野での土壌生成における地質因子と地形因子の相互作用の解析 - 滋賀県高島市鴨川流域を例に -. 日本土壌肥料学会本大会, 仙台
- 黒川耕平・中尾淳・塚田祥文・矢内純太 2017: 福島県富岡町の除染済み農耕地における放射性セシウムの移行リスク評価. 日本土壌肥料学会本大会, 仙台
- 北山陸夫・矢内純太・中尾淳・小笠原翔・小崎隆 2017: 多様な生態環境下の土壌を用いたセシ

ウムの植物移行リスクの要因解析．日本土壤肥料学会本大会，仙台
中尾淳・寺島真惟・エリオットクロフォード・ワンブラーマリオン・田中亮吏・矢内純太 2018：
酸素同位体比と K-Ar 年代を利用した火山灰 - 黄砂混合比の推定．地球惑星科学連合 連合大会
2018 年大会，千葉
Kurokawa, K., Nakao, A., Yanai, J. 2018: Risk assessment of radiocesium transfer from
soil to plant in decontaminated agricultural land in Tomioka, Fukushima. 地球惑星
科学連合 連合大会 2018 年大会，千葉
北山陸央・矢内純太・中尾淳 2018：雲母の種類と風化程度が Cs 吸着能に及ぼす影響．日本地球
化学学会 2018 年度大会，沖縄
田中佑樹・中尾淳・高原光・矢内純太 2018：ダンスガード・オシュガーサイクルに伴う変遷
する風成塵の飛来量と放射性セシウム吸着能の関係．日本地球化学学会 2018 年度大会，沖縄
中尾淳 2018：黄砂が規定する土壤の放射性セシウム隔離効果の検証．日本地球化学学会 2018
年度大会，沖縄（招待講演）
北山陸央・矢内純太・中尾淳 2018：雲母の種類と風化程度が Cs の固定能と脱着能に及ぼす影
響．日本ペドロロジー学会 2018 年度大会，愛知

〔図書〕(計 1 件)

中尾淳 2017．リンの事典（第二章 リンの地球科学 黄砂），pp44 - 45，朝倉書店

〔その他〕

ホームページ等

研究室個人ページ (<https://na4ka5.wixsite.com/kpu-soil-chemistry/publication>)

Researchmap (https://researchmap.jp/vermiculite_xrd/)

ResearchGate (https://www.researchgate.net/profile/Atsushi_Nakao)

6．研究組織

(1)研究分担者

なし

(2)研究協力者

研究協力者氏名：クロフォード・エリオット（ジョージア州立大学），田中亮吏（岡山大学），
江口哲也（農研機構），成瀬敏郎（元兵庫教育大学），久保寺秀夫（農研機構），高原光（京都府
立大学）

ローマ字氏名：Crawford Elliott (Georgia State Univ.), Ryoji Tanaka (Okayama Univ.),
Tetsuya Eguchi (NARO), Toshiro Naruse (Hyogo Univ. Education), Hideo Kubotera (NARO),
Hikari Takahara (Kyoto Pref. Univ.)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。