

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2021

課題番号：17K00917

研究課題名(和文) 実現可能な田畑土壌の除染 - セシウムをもってセシウムを制す -

研究課題名(英文) Feasible decontamination of field soil - Decontaminate radioactive cesium with stable isotope cesium -

研究代表者

矢永 誠人 (YANAGA, Makoto)

静岡大学・理学部・准教授

研究者番号：10246449

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：福島市内の2地域の水田土壌を用い、安定同位体の添加が土壌から米への放射性Csの移行に及ぼす影響を調べた。安定同位体のCsを含む水で栽培した玄米への放射性Csの移行係数は、無添加の水で栽培した玄米よりもはるかに大きいことが確認された。これは、添加されたCsが土壌中の放射性Csと置換したことを意味している。

その効果は、土壌成分の違いに強く影響されている。そこで、K、RbまたはCs水溶液を使って、放射性Csで汚染させた2種類の土壌、黒ボク土とパーミキュライトからの除染実験を行ったところ、Rbは、黒ボク土からの放射性Csの除去に大きく寄与した。さらに、Rbは、植物の生育障害を引き起こさなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射性セシウムにより汚染された土壌の除染が困難であることの大きな理由は、土壌に含まれる粘土鉱物、パーミキュライトに取り込まれたセシウムを取り除くことが困難なことにある。本研究は、セシウム同士であるならばイオン半径が同じであることから同位体交換をする可能性を考えたものであることが大きな特徴である。また、黒ボク土からは、ルビジウムを用いることにより放射性セシウムを取り除くことができたことから、現実的な除染に近づくことができ、風評被害の低減化や除染廃棄物の減容化が期待される。

研究成果の概要(英文)： Examination that the effect of addition of stable cesium on the transfer of radioactive cesium from paddy soil to rice using the soil of rice paddies of two areas in Fukushima city was performed. It was confirmed that the transfer factors of radioactive cesium for the brown rice cultivated with water including stable cesium ions were much larger than those for cultivated with water in which nothing had been added. This implies that the cesium ions added were replaced with radioactive cesium ions in soil.

The effect seemed to be strongly influenced by the difference of the soil ingredient. Another decontamination experiments were conducted on two types of soil contaminated with radioactive cesium, andosols and vermiculite, using an aqueous solution of potassium, rubidium or cesium. Rubidium ions contributed significantly to the removal of radioactive cesium from andosols, and did not cause plant growth disorders.

研究分野：核・放射化学

キーワード：土壌除染 放射性セシウム 原発事故 稲作 カイワレダイコン

1. 研究開始当初の背景

2011年3月に発生した東京電力福島第一原発事故により、多量の放射性セシウムが環境中に放出された。市街地においては、住宅などを中心とした除染や放射能の自然減衰により、外部被ばくにかかる空間線量率は低下してきた。しかし、田畑土壌については、一部の地域については表土の剥ぎ取り・土壌の入れ替えが行われたが、ほとんどの地域では反転耕や天地返しや、ゼオライトの散布などが行われたのみである。他方、事故発生から数年間は、さまざまな研究機関や民間会社において、土壌から放射性成分を除去する意味での除染についての研究が行われていた。しかしながら、実験室レベルでの化学除染についても、除染率自体は2011年には50%を超える成績のものも多く見られたが、年を経るにつれて同様の操作を行っても除染率は低下していき、除染にかかる研究は停滞傾向を呈している。

反転耕や天地返し、ゼオライトの散布は作物への放射性物質の移行防止を目的としたものであり、本質的に除染とは異なっている。しかし、幸いなことに、一般の農作物では土壌からのセシウムの移行がそれほど多くないことがわかってきているとともに、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の2種類の放射性セシウムのうち、半減期が約2年と比較的短い ^{134}Cs の放射エネルギーがすでに元の量の相当程度にまで減衰してきている。実際、現在、稲作が認められている田で収穫された米をはじめ、田畑で生産される農作物は、食品中の放射性セシウムの基準値以下であったり、検出限界以下であったりする。しかしながら、今なお出荷の際には全品について放射能測定が必須である。それは、農作物が土壌中の放射性セシウムをほとんど取り込まないと言われても、田畑土壌中に放射性セシウムが存在している限り、今なお、それを不安に感じる消費者がいるからである。すなわち、風評被害が払拭されていない状況にあり、それは現在でも変わっていない。

2. 研究の目的

これまでの研究結果を踏まえ、安定同位体の Cs^+ が汚染土壌、特にバーミキュライトに固着した放射性の $^{134}\text{Cs}^+$ や $^{137}\text{Cs}^+$ と同位体交換することが考えられることから、安定同位体のセシウムを汚染した田の土壌に添加して稲作を行うことによるファイトレメディエーションについて検討し、安定同位体添加による除染方法を確立することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 安定同位体セシウム添加による実汚染土壌からイネへの放射性セシウムの移行実験

福島市内の二つの地域で採取した田の土壌を用いて実験室内においてイネのポット栽培を行い、イネによる放射性セシウムの取り込みについて検討した。

福島市内のO地区およびY地区の二つの地域の田から土壌を採取した。19個のワグネルポットを用意し、9個のポットにはO地区の田の土壌を、残りの10個にはY地区の土壌を2.7kgずつ入れた。各地区のポットを、それぞれ、～の3群に分けてイネの栽培を行った。用水には、静岡市駿河区大谷の農業用地下水を利用した。なお、各群のポット数は、Y地区の群のみ4ポットとし、他の群は3ポットとした。中干し後の灌水時に、それぞれの群のポットには、 CsCl 水溶液として $2.00 \times 10^{-3} \text{ mol}$ 、群のポットには $6.00 \times 10^{-3} \text{ mol}$ の非放射性のセシウムを添加した。どちらの地域の土壌についても、群のポットは無添加の対照群とした。

本研究で使用したO地区およびY地区の土壌、イネ栽培中のポット内の水ならびに出穂後のイネの葉および茎についてPIXE分析を行った。葉の分析では、各茎の穂に近いなるべく緑色の葉、数枚ずつをとり、数時間105℃で乾燥させた。その数十mgを精秤し、In内部標準溶液を加え、硝酸灰化したものをバックリングフィルムに滴下・乾燥し、ターゲットとした。それぞれ、(公社)日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター(NMCC)の小型サイクロトロンにより加速した2.9 MeV陽子ビームを照射し、2台のSi(Li)半導体検出器を用いて試料から発生したX線を測定し、得られたスペクトルを解析プログラムSAPIXにより解析した。

玄米の放射能の測定は、それぞれの試料をU8容器に入れ、高純度Ge半導体検出器を用いて行った。線スペクトルの解析は、SEIKO EG&G社製の解析ソフトウェアGamma Studioにより行った。なお、検出効率曲線は、(公社)日本アイソトープ協会製の9核種混合の放射能標準ガンマ体積線源(MX033U8PP)を用い、試料の高さ補正も含めて作成した。

(2) 模擬汚染土壌の作成とアルカリ金属イオン間の競合に関する検討

土壌に添加したセシウムと土壌中のカリウムとの競合について検討することとした。しかしながら、もともと土壌に含まれるカリウム量が多いことから、土壌中の含有量が少なく、カリウムと代替しうるルビジウムとセシウムを同時に添加することにより、その競合関係を調べることにした。

9個のワグネルポットに静岡市内の休耕田から採取した土壌3.0kgずつを入れ、3ポットずつ群から群に分けた。苗植え付け前の灌水時に、群には CsCl 水溶液としてCsイオンを $4.28 \times 10^{-3} \text{ mol}$ を、群には同量のCsおよび RbCl 水溶液としてRbイオンを $4.26 \times 10^{-3} \text{ mol}$ 添加し、群のポットは無添加の対照群とした。

イネ栽培中に適宜、採水したポット内の水および出穂期の葉、また、籾、玄米および籾殻について PIXE 分析を行った。水については内部標準を添加した試料について、イネについては乾燥させた後、内部標準溶液を加えて硝酸灰化して分析に供した。

(3) セシウムによる生育阻害についての検討

安定同位体のセシウムを田の土壤に添加して稲作を行うと、イネによる放射性セシウムの吸収量が増加することが見出された。ところが、添加する安定同位体が多くなると、土壤中の放射性セシウムの植物への移行が増加する傾向はあるものの植物自体に生育障害が認められるようになった。この結果を受け、まず、播種から収穫までの期間が短く、また、セシウムの土壤への吸着を考慮する必要がない水栽培による実験が可能なカイワレダイコンを材料として、単純にアルカリ金属イオン濃度と生育との関係を調べるために、K、Rb および Cs イオンを拮抗させ、各アルカリ金属イオンが生育に与える影響について検討することとした。

市販のカイワレダイコンの種子を純水に浸して発芽させ、その後、Cs または Rb のみを添加した群、各イオンの比率を変えて Cs と K を添加した群、Cs と Rb を添加した群、Cs、K および Rb を混合して添加した群に分けて水栽培を行った。なお、各アルカリ金属イオンは塩化物水溶液として添加した。収穫したカイワレダイコンを乾燥し、葉および茎について機器中性子放射化分析を行った。短寿命核種の分析では、京都大学複合原子力科学研究所研究炉 KUR の Pn-3 にて 90 秒照射し、照射から 5~15 分後および 1~3 時間後にガンマ線測定を行った。また、長寿命核種の分析では、Pn-2 にて 4 時間照射を行い、3~6 週間経過後に測定を行った。

(4) 黒ボク土の除染についての検討

汚染土壤からの放射性セシウムの除去が困難な理由として、パーミキュライト等の粘土鉱物への放射性セシウムの固着があげられる。しかし、田畑土壤の主な成分は黒ボク土であることから、黒ボク土への放射性セシウムの吸着や黒ボク土からの除染について検討した。

市販の黒ボク土およびパーミキュライトを ^{137}Cs 水溶液に浸して放射性セシウムを吸着させ、模擬汚染土壤を作成した。それらを乾固させた後、KCl、RbCl または CsCl 水溶液を用いて ^{137}Cs の抽出を試みた。除染後の土壤は、純水で 1 回または 2 回の洗浄を行った。その後、それぞれの土壤でカイワレダイコンを栽培し、収穫した葉と茎に含まれる ^{137}Cs を定量した。

4. 研究成果

(1) 安定同位体セシウム添加による実汚染土壤からイネへの放射性セシウムの移行実験

両地区の土壤中の元素濃度を比較すると、表 1 のように顕著な差が見られる元素はカリウムであり、O 地区土壤中のカリウム濃度は低く、Y 地区土壤中の約 3 分の 1 であった。

表 1 Y 地区土壤と O 地区土壤中の元素濃度の比較

	Y地区土壤中濃度 (mg / kg)		O地区土壤中濃度 (mg / kg)	
Na	980.1 ±	186.8	712.0 ±	200.6
K	5792.0 ±	984.1	1980.4 ±	756.3
Mg	2436.2 ±	607.0	2399.3 ±	741.0
Ca	4527.8 ±	806.7	5730.3 ±	1376.2
Si	56013.6 ±	12645.2	72643.4 ±	24791.0
Mn	475.2 ±	70.4	519.9 ±	117.3
Fe	70228.2 ±	5480.7	68331.4 ±	5568.9
Cu	20.82 ±	7.65	39.87 ±	6.81
Zn	170.0 ±	36.4	115.1 ±	23.3
Rb	120.0 ±	26.7	39.0 ±	9.4

しかしながら、葉に含まれていたカリウムについての分析結果は、同じイネの茎の葉であってもそれぞれの葉の含有量が大きく異なることによるバラツキ(標準偏差)が大きいことを考慮すると、両者の間には有意な差はなく、O 地区土壤のイネが肥料中のカリウムや土壤中のカリウムを積極的に吸収したものと考えられる。

他方、土壤中濃度では両地区の間で差が見られなかったケイ素とマンガンについては、O 地区のイネでは積極的に取り込まれる傾向が認められた。

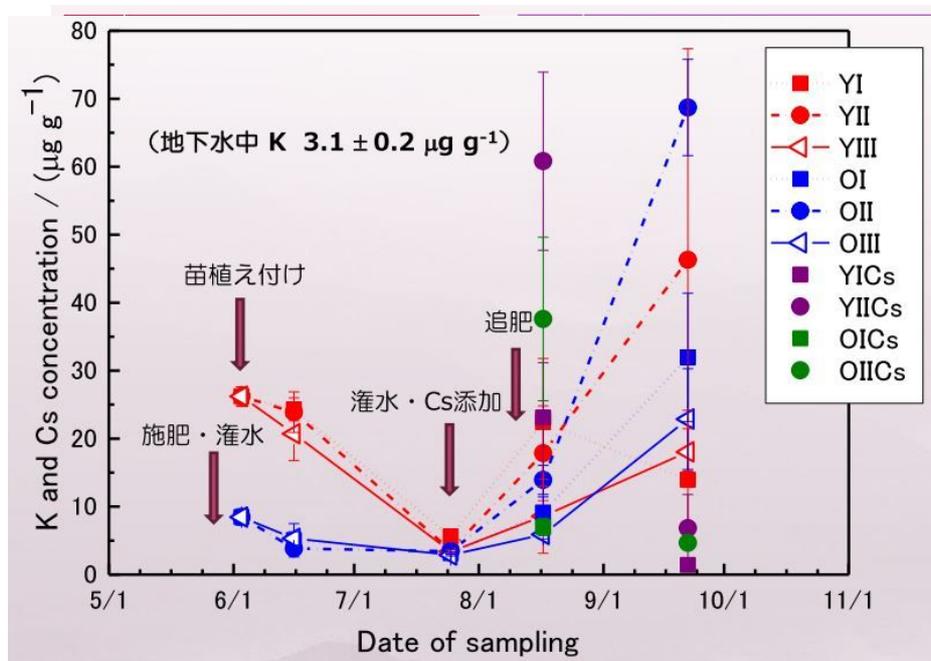


図1 ポット水中のカリウム濃度およびセシウム濃度（各群の平均値）

図1に見られるように、施肥および灌水後の苗植え付け時のポット内のカリウム濃度は、Y地区土壌を用いたポット水の方が有意に高く、これは土壌中のカリウム濃度の差を反映したものと考えられる。中干後の灌水直後のポット水中のカリウム濃度は両群とも低値を示していたが、追肥後の水中濃度は高まる傾向にあった。セシウムを添加したY-I群、Y-II群、O-I群およびO-II群のそれぞれを比較すると、セシウムをY-I群およびO-I群の3倍量を添加したY-II群およびO-II群のカリウムのポット水中における濃度の上昇は、より高まる傾向にあり、収穫前のそれらの濃度は、単に土壌から溶け出した、または肥料からのカリウムの供給では説明がつかないほど著しく高いものであった。他方、セシウム添加後のそのポット水中のセシウム濃度を見ると、セシウム添加から約3週間後に採水したものでは高濃度を示していたにもかかわらず、収穫前では水中の含有量は激減していた。

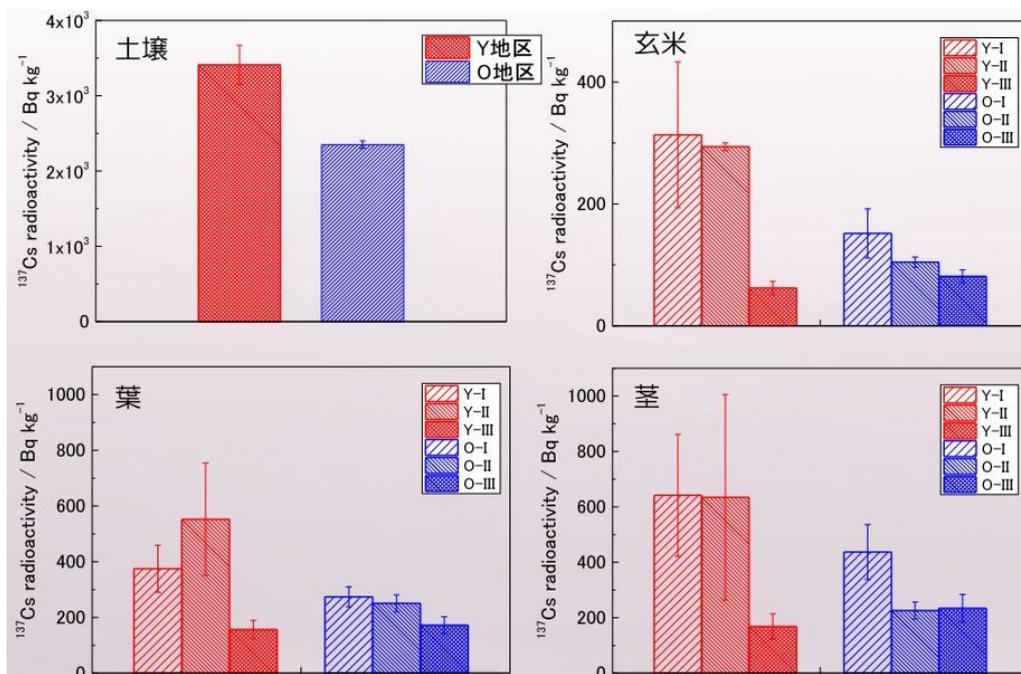


図2 土壌およびイネ（玄米・葉・茎）中の¹³⁷Cs放射能の比較（2017年4月1日基準）

図2のように、非放射性的セシウムを添加した場合には、両地区土壌のいずれの場合においてもイネによる放射性セシウムの吸収は増加する傾向が見られたが、今回行った実験では、非放射性的セシウムの添加量による違いを認めることはできない一方で、セシウムを3倍量添加した群のイネでは成長障害が認められた。また、Y地区土壌で栽培したイネでは、O地区土壌との比

較において、土壤中の放射性セシウムの濃度の差を上回る割合で吸収されているようであった。

(2) 模擬汚染土壌の作成とアルカリ金属イオン間の競合に関する検討

葉についてのPIXE分析では、K, Rb, Cs以外の元素としては、Mg, Si, P, S, Mn, Fe, CuおよびZnについて定量することができたが、これらの元素については、それらの吸収にはRbやCsの添加が影響を及ぼすことはないようであった。他方、アルカリ金属に関しては、次のような結果が得られた。RbとCsを等量添加したポットでは、葉中のRb濃度はCsの20倍程度であり、Rbイオンが吸収されやすいことと、Csイオンが土壌へ吸着することが示唆された。また、Rbを添加した群ではKの吸収が減少する傾向が見られ、RbとKの吸収が競合したことが確認された。

Cs濃度に着目すると、Csをポット内の水に添加してから1カ月以上の間、水中の濃度は保たれており、Csが直ちに土壌に吸着する傾向は認められなかった。葉中のCs濃度は、Rbを同時に添加した群に比べてCsのみを添加した群で高い濃度を示し、その傾向は根についても同様であったが、玄米中の濃度は両群とももっとも低く、また、両群間に有意な差を認めることはできなかった。

(3) セシウムによる生育阻害についての検討

種々の量のCsまたはRbイオンを添加して栽培したカイワレダイコンの葉に含まれているMgおよびMn濃度を図3に示した。Csイオンの添加量がもっとも多い群は、葉が茶色く変色し、生育障害が認められていた。この群では、他の群に比べてMn濃度が著しく低くなっている。このMn濃度の低下が単にCs添加によって吸収抑制されたためかは不明であるが、生育障害の原因を追及する手がかりとなる可能性がある。

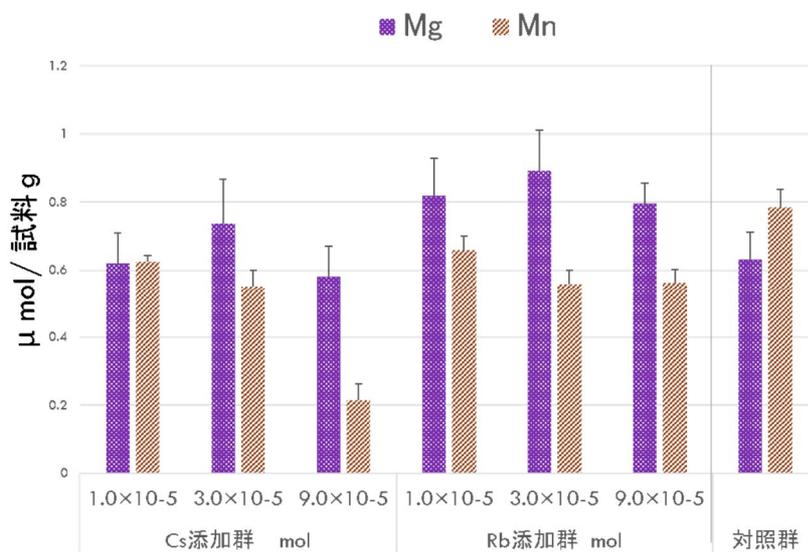


図3 葉に含まれるMgおよびMn濃度

(4) 黒ボク土の除染についての検討

CsCl水溶液を抽出剤として用いた土壌で栽培したカイワレダイコンは、残存した安定同位体のCsによる成長障害が認められた。また、カイワレダイコンが吸収した¹³⁷Csは黒ボク土で栽培したものの方がパーミキュライトで栽培したものよりもはるかに多く、黒ボク土に吸着した¹³⁷Csは安定同位体のCsイオンにより遊離されやすいことを示していた。また、Rbイオンも、黒ボク土の除染に対してはCsイオンと同じように抽出効果が確認できた。他方、Kイオンについては、除染効果はほとんど認められなかった。植物の生育への影響については、RbCl水溶液を抽出剤として用いた土壌でのカイワレダイコンの栽培試験では、外観上では生育障害が認められなかった。これらのことから、除染後の土壌が農作物の生育に与える影響を考慮すると、Rbイオンによる化学除染は実用的ではないかと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 矢永誠人, 小川晃一郎, 長倉天星, 吉永尚生, 奥村良, 飯沼勇人
2. 発表標題 カイワレダイコンの生育へのセシウム添加の影響
3. 学会等名 日本放射線安全管理学会第19回学術大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 矢永誠人, 出沢良樹, 三好弘一, 桧垣正吾, 森一幸, 世良耕一郎
2. 発表標題 イネおよび田水中の微量元素のPIXE分析(VI)
3. 学会等名 日本放射線安全管理学会第18回学術大会（第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 出沢良樹, 三好弘一, 桧垣正吾, 森一幸, 世良耕一郎, 矢永誠人
2. 発表標題 安定同位体を用いた水田土壌の除染
3. 学会等名 2018日本放射化学会年会・第62回放射化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 矢永誠人, 出沢良樹, 三好弘一, 桧垣正吾, 森一幸, 世良耕一郎
2. 発表標題 イネおよび田水中の微量元素のPIXE分析(V)
3. 学会等名 日本放射線安全管理学会第17回学術大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 谷口大悟、出沢良樹、矢永誠人、後藤祥子、世良耕一郎
2. 発表標題 セシウム汚染土壌の除染へ向けたイネ栽培試験
3. 学会等名 2017日本放射化学会年会・第61回放射化学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 出沢良樹、谷口大悟、矢永誠人、後藤祥子、世良耕一郎
2. 発表標題 土壌および田水からの放射性セシウムのイネへの移行
3. 学会等名 2017日本放射化学会年会・第61回放射化学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 矢永誠人、出沢良樹、三好弘一、桧垣正吾、森一幸、西澤邦秀、後藤祥子、世良耕一郎
2. 発表標題 セシウムを用いた水田土壌の除染
3. 学会等名 第24回NMCC共同利用研究成果発表会
4. 発表年 2018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
---------	---------