

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：13701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K11694

研究課題名(和文) セシウムの森林樹木への移行と森林系外への流出の抑制：植生と吸着材の併用による固定

研究課題名(英文) Inhibition of cesium transfer to forest trees and outflow from forest ecosystem: cesium immobilization based on a combined use of vegetation and adsorbent

研究代表者

魏 永芬 (Wei, Yongfen)

岐阜大学・流域圏科学研究センター・准教授

研究者番号：00467218

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原子力発電所事故で放出された放射性物質による環境汚染がもたらした。福島県地域の70%以上が森林であるため、汚染問題の解決はより一層難しくなった。セシウム137は半減期が長いほか、降雨や食物連鎖により、森林系外や樹木への移行を介する汚染問題の長期化も懸念される。本研究は、室内吸着実験・ネピアグラスポット栽培実験を通して、森林土壌-植生系における異なる産業廃棄物吸着資材によるセシウムの植生と森林土壌-植生系からの浸出水への移行抑制効果を検討した。結果としては、炭化汚泥、ココナッツ殻バイオ炭、下水汚泥焼却灰のいずれも抑制効果があり、特にココナッツ殻バイオ炭の効果は顕著であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

バイオ炭は保温性、保水性、通気性に優れ、土壌改良材として古くから使用されているが、バイオ炭によるセシウムの汚染土壌からの移行抑制効果に関する研究事例はほとんどなかった。そのため、本研究で得られた結果は、バイオ炭の応用普及・拡大に資するのみでなく、バイオ炭の新たな価値の創出にも繋がる。また、産業廃棄物バイオ炭の添加により、セシウムの汚染森林土壌から植生、及び土壌浸出水への移行が抑制されることにより、降雨や食物連鎖により、懸念されているセシウムの森林系外や樹木への移行をした二次汚染または汚染長期化のリスクが減らされ、森林域のセシウム汚染問題の早期解決に寄与する。

研究成果の概要(英文)：Radioactive materials discharged from Fukushima nuclear accident has long been an issue of great concern. Among the released radionuclides, ^{137}Cs is especially concerned since it not only has a long half-life but also is highly water soluble. The high solubility of ^{137}Cs results in its pollution in water sources via its release and transfer from contaminated soil during rainfall and snow melting seasons, as well as its pollution in the food chain through its transfer to vegetation due to its physicochemical similarity with potassium. In this study, to examine the inhibition effects of different industrial waste-based sorbents on cesium transfer from contaminated forest soil to vegetation and water penetrated from the forested soil, sorption and pot cultivation experiments were conducted. As a result, the coconut shell biochar was clarified to be the most effective one among the studied sorbents to inhibit Cs transfer from contaminated forest soil to vegetation and water.

研究分野：環境科学

キーワード：セシウムの固定 産業廃棄物添加材 吸着実験 ネピアグラス ゼオライト 汚染森林域 ポット実験
バイオ炭

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

福島第一原発の事故による放射性セシウムの拡散は、とりわけ福島県の広範囲にわたって森林土壌の汚染をもたらし、林地機能の活性が長期的に失われた。事故発生以来、森林でのセシウムの影響を低減するため、落葉の除去や伐採、木材チップを用いた林床被覆などが福島の一部の地域で実施されたが、期待通りの効果が得られず、その上で、降雨・融雪によるセシウムの水を介した森林系外への流出による二次汚染も懸念される。

2. 研究の目的

食物連鎖・二次汚染によるセシウム汚染問題の更なる長期化・広域化を回避するため、本研究の目的、室内吸着実験、ポット栽培実験を通して、異なる産業廃棄物吸着資材と林床植生の併用により、セシウムの汚染森林土壌から樹木への移行及び水の流出を介したセシウムの森林系外への移行を抑制する効果のある吸着材と植生を選出し、その効果を福島県の林地で検証することであった。しかしながら、新型コロナウイルス感染症拡大の影響により、当初予定していた福島県の林地での検証の実施が困難となり、やむをえず、一部内容を変更して実施した。

3. 研究の方法

本研究の目的を達成するために、安定セシウム¹³³をサロゲートとして、1) 室内吸着実験、フロイントリッヒ等温線解析、SEM/EDX (走査型電子顕微鏡/エネルギー分散型 X 線分光法) に基づいて、異なる森林土壌におけるセシウムの吸着能力、及び土壌物理化学特性との関連性について検討する。2) 異なる産業廃棄物系吸着資材としてのセシウムの吸着能力の比較評価、および吸着資材の物理化学特性との関連性について、室内吸着実験、フロイントリッヒ等温線解析、SEM/EDX 分析などに基づいて検討する。3) セシウムの高吸収植生のポット栽培実験に基づき、2) で選出した高セシウム吸着能力をもつ異なる産業廃棄物吸着資材の添加により、セシウムの汚染土壌から植生への移行、セシウムの植生の異なる部分での蓄積状況、および、セシウムの森林汚染土壌—植生系から浸出する土壌水への移行量を定量的に評価することによって、セシウムの汚染土壌から植生と土壌浸出水への移行に対する産業廃棄物添加剤の抑制効果の比較評価を行う。4) セシウムの高吸収植生のポット栽培実験に基づき、2) で選出した廃棄物系吸着資材と天然吸着剤をそれぞれ添加することにより、セシウムの汚染土壌から植生と土壌浸出水への移行に対する抑制効果の比較評価を行う。

4. 研究成果

1) 異なる森林土壌におけるセシウムの吸着能力について検討するために、岐阜県伊自良湖周辺で採取した6タイプの森林土壌(常緑針葉樹(2タイプ)、落葉広葉樹、混合林(2タイプ)、竹林)を用いて室内吸着実験を行った。また、比較のため、農地畑(稲、キャベツ、大根、ほうれん草など)から12種類の土壌サンプルを採取した。フロイントリッヒ吸着等温線解析やSEM/EDX分析に基づいて、異なる森林土壌のセシウムの吸着能力、および土壌物理化学特性との関連性を検討した。その結果、セシウムの吸着能力は土壌タイプによって大きく異なっているが、全体としては、森林土壌に比べて農地土壌の方が高かった。また、セシウムの吸着能力は土壌の陽イオン交換容量(CEC)との間に、強い正の相関があることも明らかになった。

2) 異なる産業廃棄物系吸着資材としてのセシウムの吸着能力の比較評価のため、下水汚泥焼却灰(P回収済)、炭化汚泥、鋼鉄スラグ、籾殻バイオ炭、ココナッツ殻バイオ炭、土壌、および、

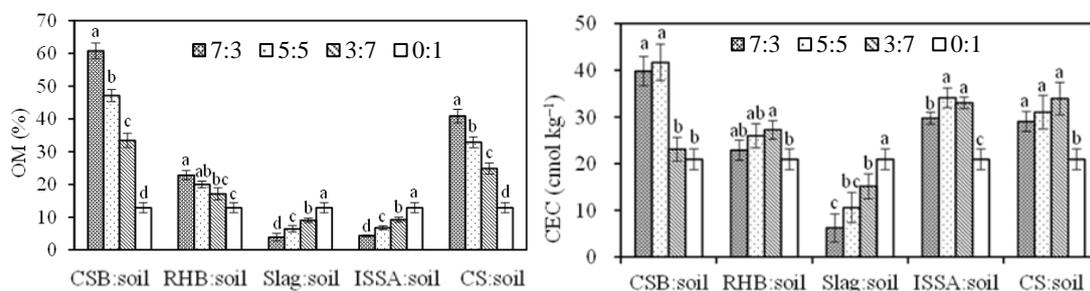


図1 土壌と異なる産業廃棄物吸着資材で異なる混合割合で得た土壌混合物の有機物の含有量(OM)、陽イオン交換容量(CEC)の値(混合割合は乾燥重量の比である)。バーの上にある異なる文字(a-d)は、 $p < 0.05$ の有意水準で差の有意性を表している。CSB:ココナッツ殻バイオ炭, RHB:籾殻バイオ炭, ISSA:下水汚泥焼却灰, CS:炭化汚泥

各々の産業廃棄物吸着材と土壌を混合したもの(廃棄物吸着材と土壌の重量混合割合をそれぞれ7:3, 5:5, 3:7とした)をそれぞれ対象として、室内吸着実験を行った(吸着実験において、セシウムの初期濃度はそれぞれ0, 10, 50, 100, 500と1000 $\mu\text{g L}^{-1}$ と設定)。結果としては、フロイントリッヒ吸着定数とSEM/EDX分析による吸着材に吸着されたセシウムの分布状況から、炭化汚泥、ココナッツ殻バイオ炭、下水汚泥焼却灰のいずれも森林土壌よりセシウムに対する高い吸着能力を有しており(炭化汚泥>ココナッツ殻バイオ炭>下水汚泥焼却灰>森林土

壤> 籾殻バイオ炭> 鋼鉄スラグ), 特に炭化汚泥の吸着効果が最も優れていることが分かった(図2, 3)。また, セシウム吸着能力は, これら吸着資材の陽イオン交換容量 CEC, 有機物含有量, カリウム濃度などのパラメータとの間に, 正の強い相関関係があることが明らかになった。

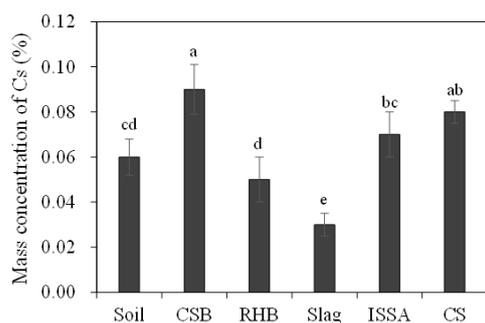


図2 産業廃棄物吸着材・土壌に吸着されたセシウムの質量濃度 (セシウムの初期濃度は $1000 \mu\text{g L}^{-1}$ と設定)。バーの上の異なる文字 (a-e) は, $p < 0.05$ の有意水準で差の有意性を表している。CSB: ココナッツ殻バイオ炭, RHB: 籾殻バイオ炭, ISSA: 下水汚泥焼却灰, CS: 炭化汚泥

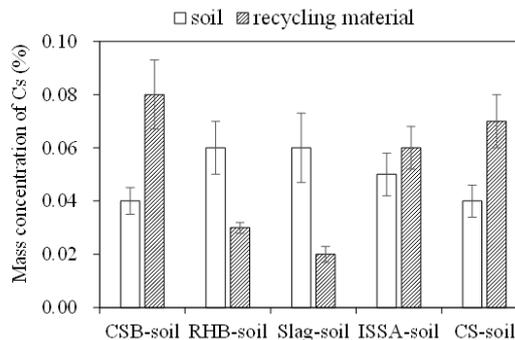


図3 土壌・産業廃棄物からなる混合物における産業廃棄物, 土壌にそれぞれ吸着されたセシウムの質量濃度 (セシウムの初期濃度は $1000 \mu\text{g L}^{-1}$ と設定)。CSB: ココナッツ殻バイオ炭, RHB: 籾殻バイオ炭, ISSA: 下水汚泥焼却灰, CS: 炭化汚泥

3) 森林土壌-植生系におけるセシウムの植生と土壌浸出水への移行抑制効果の比較検討のため, 上記2) で選出した産業廃棄物吸着資材のココナッツ殻バイオ炭, 下水汚泥焼却灰 (P 回収済), 炭化汚泥をセシウム汚染レベルの異なる3種類 ($0, 25, 50 \text{ mg kg}^{-1}$) の森林土壌にそれぞれ添加し (添加量 $0, 5\%, 10\%$), セシウム高吸収植物のネピアグラスを対象とした室内ポット栽培実験を行った (図4)。

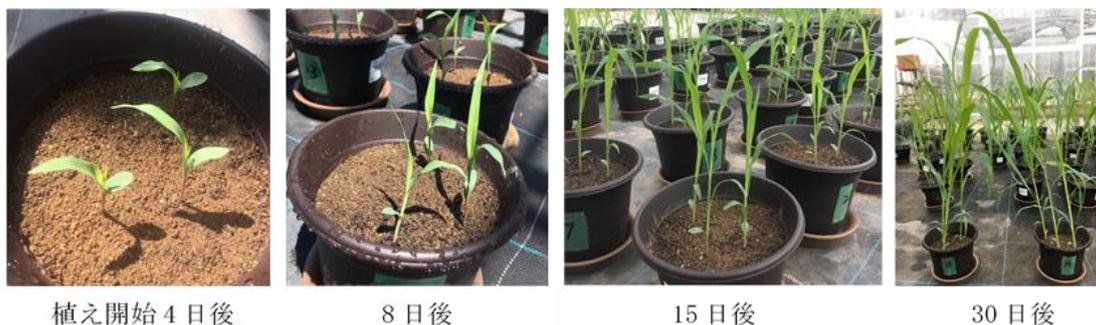


図4 ネピアグラスの異なる時期の成長の様子

結果として, ①図5に示すように, いずれの土壌汚染レベルにおいても, 吸着資材の添加によってセシウムの汚染土壌から植生への移行が抑制された。具体的には, 添加材量 5% に比べて, 添加材量 10% の場合の方がネピアグラス中のセシウム濃度が低く, その度合は特に土壌セシウム汚染レベルの 50 mg kg^{-1} の実験系の方でより明瞭であり, 3種類の添加材のうち, 特にココナッツ殻バイオ炭 (BC) を添加した実験系の方の効果が顕著であった。その理由の一つとしては, ネピアグラスを栽培している間, 水をやることによって土壌から脱着したセシウムの一部が土壌より固定能力の高い吸着資材に固定されたと考えられる。このことは実際にも, SEM/EDX 分析の

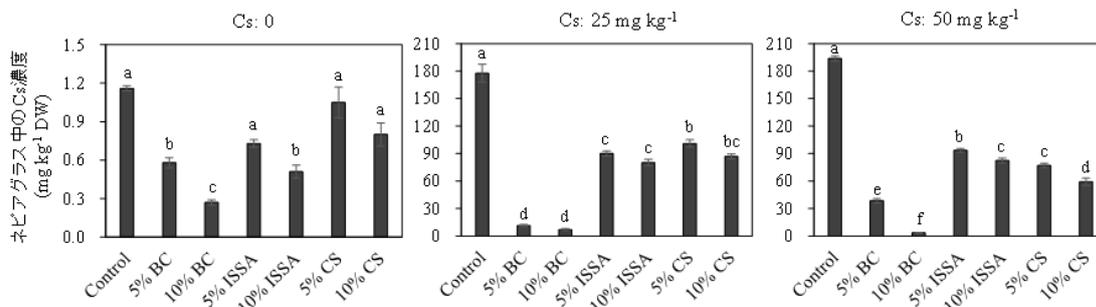


図5 ネピアグラス中のセシウム(Cs)の濃度 (バーの上にある異なる文字 (a-f) は異なる実験間での有意差 ($p < 0.01$) を表している。BC: ココナッツ殻バイオ炭, ISSA: 下水汚泥焼却灰, CS: 炭化汚泥)

結果から, 実験後の吸着資材の表面にセシウムが分布していることが確認された (土壌より検討した吸着資材によるセシウムの固定能力が高いのは, これらの吸着資材の陽イオン交換容量や

比表面積が土壌より高いことと関連していると考えられる)。もう一つの理由は、土壌より高いカリウム含有率をもつこれらの資材を添加したことによって、培養土全体のカリウム含有量が高くなったことが関与していると推測される。セシウムはカリウムと物理化学的な性質が類似し、土壌-植生系においては両者が競合関係にあると既往の報告を踏まえて、間隙水中のカリウムの濃度が高くなったことにより、カリウムが優先的にネピアグラスに吸収され、それによってセシウムの同植生への移行が抑えられたと考えられる。

②土壌から浸出水に移行したセシウムの量（単位土壌重量当たりの移行量とした）については、図6に示した通り、吸着資材の添加量が高いほど浸出水へのセシウム移行量が小さくなる傾向が確認された。例えば、セシウムの汚染レベル 25 mg kg^{-1} の場合、添加剤無しの control に比べ

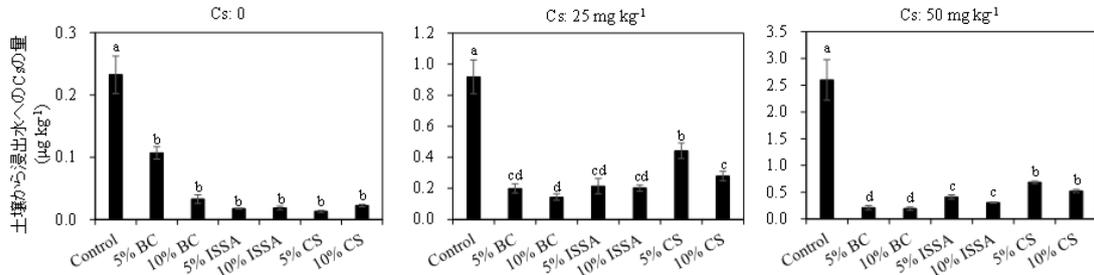


図6 土壌から浸出水へのセシウム(Cs)の移行量（浸出水に移行したCsの量を土壌重量で割ったもの）（バーの上にある異なる文字（a-d）は異なる実験間での有意差（ $p < 0.01$ ）を表す。BC：ココナッツ殻バイオ炭，ISSA：下水汚泥焼却灰，CS：炭化汚泥）

て、ココナッツ殻バイオ炭（BC）をそれぞれ5%と10%加えたポットの方で浸出水への移行量がそれぞれ73%と93%減少した。同様に、下水汚泥焼却灰（ISSA）と炭化汚泥（CS）を加えたポットにおいても、移送量はそれぞれ64%と90%、34%と80%と減少した。その理由については、土壌に吸着されたセシウムの一部は水をやることにより土壌から脱着するが、脱着したものは土壌より固定能力の高い吸着資材に固定されたと考えられる。

このように、ココナッツ殻バイオ炭、下水汚泥焼却灰、炭化汚泥の3種類の産業廃棄物系吸着資材を添加した室内ポット実験を通じて、セシウムの汚染土壌から植生ネピアグラスと土壌浸出水への移行に対する抑制効果を定量的に検討した結果、いずれの吸着資材についても、汚染レベルの異なる実験系において、セシウムの土壌から植生と水への移行に対する抑制効果が確認された。また、全ての実験においては、ココナッツ殻バイオ炭のセシウムの移行抑制効果が最も高いことが明らかになった。

4) 2) で選出した廃棄物系吸着資材と天然吸着剤によるセシウムの植生と土壌浸出水への移行抑制効果の比較検討のため、ココナッツ殻バイオ炭、下水汚泥焼却灰と天然ゼオライト各10%をセシウム汚染レベルの異なる森林土壌に（0, 100 mg kg^{-1} ）添加し、11月から翌年6月にかけて、ネピアグラスを対象とした室内ポット栽培実験を行った（ネピアグラスは播種後1か月収穫と7か月収穫の二段階に分け、また、栽培用水のpHは5, 7, 9の3段階と設定し、合計で120

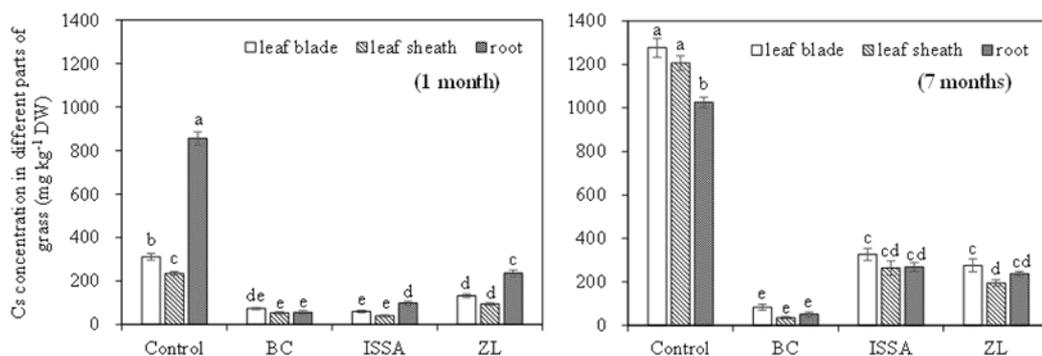


図7 セシウム濃度 100 mg kg^{-1} の汚染土壌に栽培したネピアグラスの異なる成長段階における異なる部分でのセシウムの濃度（DW：乾燥重量；BC：ココナッツ殻バイオ炭；ISSA：下水汚泥焼却灰；ZL：ゼオライト。バーの上にある異なる文字（a-e）は、異なる実験間での有意差（ $p < 0.01$ ）を表す）

ポットを用意した。結果としては、図7のように、生育期間の長さによって、セシウムの主な蓄積部位が異なった。植えてから1カ月で収穫した場合には、植生の葉や茎に比べて、セシウムは主に根に蓄積する傾向があった。一方、植えてから7カ月で収穫した場合においては、セシウムの葉、茎、根のそれぞれの部分での蓄積量に差があまりなかった。また、図8のように、セシウムの土壌から植生への移行に対して、いずれの吸着剤も抑制効果が確認され、特に、ココナッツ殻バイオ炭の方が最も顕著であることが再確認された。

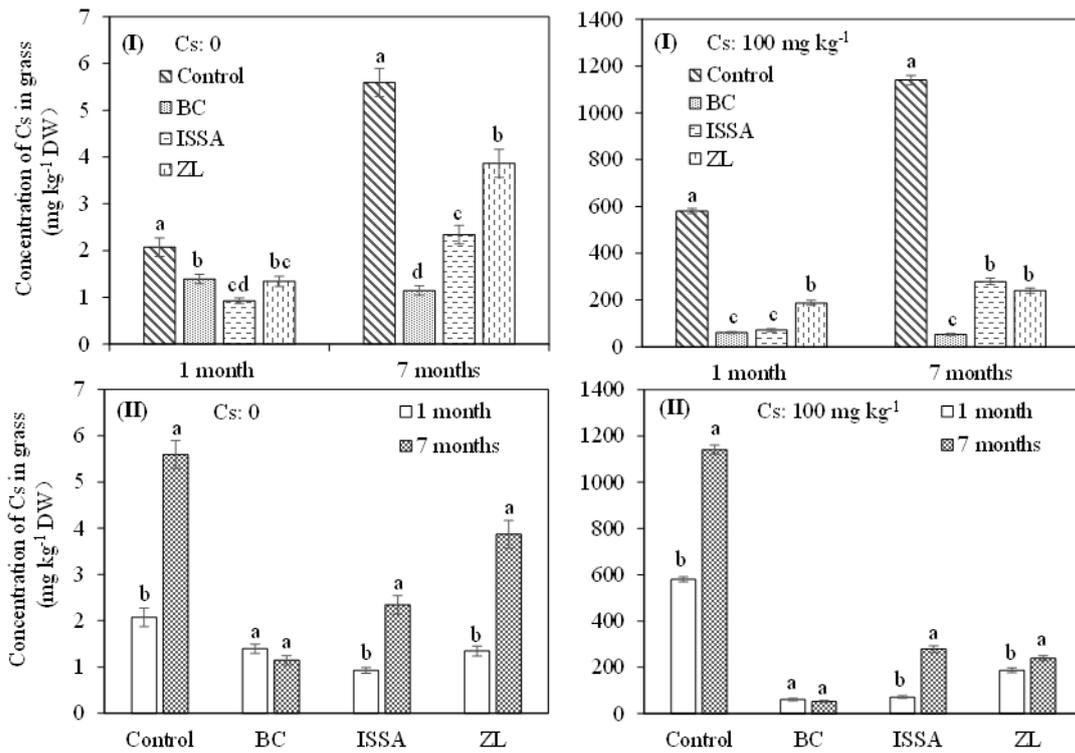


図8 異なる栽培期間における植生中のCsの濃度 (DW:乾燥重量;BC:ココナッツ殻バイオ炭;ISSA:下水汚泥焼却灰;ZL:ゼオライト。異なる文字(a-d)は異なる実験系間での有意差(p<0.01)を表している)

本研究は、室内吸着実験・ポット栽培実験を通して、森林土壌-植生系における異なる産業廃棄物吸着資材によるセシウムの植生と土壌浸出水への移行抑制効果を検討した。得られた成果は、有益な情報として森林域でのセシウムの汚染問題の早期解決に寄与するのみでなく、バイオ炭の応用普及・拡大、ならびに、バイオ炭の新たな価値の創出にも寄与する。今後は、可能であれば、その実用性を福島で確認したい。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Huijuan Shao, Yongfen Wei, Fusheng Li	4. 巻 317(3)
2. 論文標題 Sorption capacity of cesium on different forest and agricultural soils	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 1429-1438
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10967-018-6017-8	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 該当する
1. 著者名 Huijuan Shao, Yongfen Wei, Fusheng Li	4. 巻 319(1)
2. 論文標題 Fixation capability of recycling materials as potential additives for cesium immobilization in contaminated forest soil.	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 315-326
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10967-018-6353-8	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 該当する
1. 著者名 Huijuan SHAO, 魏永芬, 李富生	4. 巻 32(1)
2. 論文標題 産業廃棄物系吸着資材のセシウムの植生と土壌浸出水への移行に対する抑制効果	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 環境科学会誌	6. 最初と最後の頁 1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11353/sesj.32.1	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 該当する
1. 著者名 Shao Huijuan, Wei Yongfen, Zhang Fuping, Li Fusheng	4. 巻 231
2. 論文標題 Effects of Biochars Produced from Coconut Shell and Sewage Sludge on Reducing the Uptake of Cesium by Plant from Contaminated Soil	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Water, Air, & Soil Pollution	6. 最初と最後の頁 1~12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11270-020-04922-2	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 該当する

1. 著者名 Shao Huijuan, Wei Yongfen, Wei Changjie, Zhang Fuping, Li Fusheng	4. 巻 23
2. 論文標題 Insight into cesium immobilization in contaminated soil amended with biochar, incinerated sewage sludge ash and zeolite	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Technology & Innovation	6. 最初と最後の頁 101587 ~ 101587
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.eti.2021.101587	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 該当する

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Zaw Min Han, Wenjiao Li, Haoning Su, Toshiro Yamada, Yongfen Wei, Fusheng Li
2. 発表標題 Immobilization of heavy metals in polluted agricultural soils using sorbents from waste materials
3. 学会等名 The 10th forum on studies of environmental and public health issue in Asian Mega-cities (EPAM 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sartaj Ahmad Bhat, Guangyu Cui, Wenjiao Li, Yongfen Wei and Fusheng Li
2. 発表標題 Performance evaluation and bacterial communities of activated sludge in a semi-continuous reactor under heavy metal stress
3. 学会等名 The 10th forum on studies of environmental and public health issue in Asian Mega-cities (EPAM 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yongfen Wei, Huijuan Shao
2. 発表標題 Examination of inhibiting effects of different additive materials on cesium transfer from contaminated forest soil to vegetation and water
3. 学会等名 The 10th forum on studies of environmental and public health issue in Asian Mega-cities (EPAM 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 Shiamita Kusuma Dewi, Huijuan Shao, Mitsunaga Sunichiro, Yongfen Wei
2 . 発表標題 Inhibition Effect of Wood Ash on Arsenic Transfer from Contaminated Soil to Vegetation
3 . 学会等名 The 10th forum on studies of environmental and public health issue in Asian Mega-cities (EPAM 2019) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Huijuan Shao, Shiori Kondoh, Yongfen Wei, Fusheng Li
2 . 発表標題 Inhibition of transfer of cesium from contaminated forest soil to vegetation by different sorbent materials
3 . 学会等名 日本水環境学会
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 Huijuan Shao, Shiori Kondoh, Yongfen Wei, Fusheng Li
2 . 発表標題 Effects of different low-cost additives on inhibiting cesium transfer from contaminated soil to Napier grass
3 . 学会等名 Proceedings of 2nd International symposium of river basin studies -towards the interdisciplinary study of the sustainable utilization and management of river basin systems (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 Huijuan Shao and Yongfen Wei
2 . 発表標題 Immobilization of cesium in contaminated forest soil using various additives: evaluation based on the inhibition effect on its transfer to grass
3 . 学会等名 Proceedings of international symposium on animal production and conservation for sustainable development 2018 (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1. 発表者名 Huijuan Shao, Yongfen Wei, Fusheng Li
2. 発表標題 Inhibition effects of different sorbent materials on cesium transfer from contaminated forest soil to vegetation and water
3. 学会等名 日本水環境学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shiamita Kusuma Dewi, Huijuan Shao, Yongfen Wei
2. 発表標題 Assessment of Wood ash for the Remediation of As-Contaminated Soil,
3. 学会等名 UGSAS-GU & BWEL Joint Poster Session on Agricultural and Basin Water Environmental Sciences 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shiamita Kusuma Dewi, Yongfen Wei
2. 発表標題 Evaluation of arsenic uptake by Mustard Spinach from contaminated soil mixed with wood ash.
3. 学会等名 Joint International Seminar of Xiangtan University and Gifu University on Environmental Science and Engineering 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020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
研究分担者	李 富生 (Li Fusheng) (10332686)	岐阜大学・流域圏科学研究センター・教授 (13701)	

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			
中国	山東農業大学			