

令和 3 年 6 月 28 日現在

機関番号：82626

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22916

研究課題名（和文）農業・環境分野での環境媒体中の各種イオンの生物利用可能量の次世代型評価方法の開発

研究課題名（英文）Development of a next-generation evaluation method for bioavailability of various ions in environmental media in the agricultural and environmental fields

研究代表者

保高 徹生（Yasutaka, Tetsuo）

国立研究開発法人産業技術総合研究所・地質調査総合センター・研究グループ長

研究者番号：60610417

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：近年、福島第一原発事故の事後環境評価等により、農業・環境分野において、放射性セシウムやカリウムイオンの植物/生物利用可能量の評価の重要性が増している。本研究では、放射性セシウムやカリウムを対象に、生物利用可能量の測定方法の高度化を目的として、申請者らが開発した放射性セシウムを特異的に吸着する吸着剤（プルシアンブルー）等を活用した土壌・底質中の可給態/生物利用可能イオンの迅速かつ高精度の測定法の確立、フィールドにおける妥当性確認試験（開発法と植物・生物への移行量の比較）の実施、各種媒体の生物利用可能量の迅速判定法の構築、を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の研究成果の学術的意義は、簡便な土壌・リター・底質等の異なる媒体から有害物質の生物利用可能量の評価法の確立である。土壌においては土壌の物理化学性の違いや、共存イオンの影響等により複雑な状況があり、これまでチャレンジした事例は極めて限定的であった。についても事例は少ない。社会的意義は、室内試験から原位置試験への土壌試験法のパラダイムシフトを目指す点である。従来型試験法は、現場で土壌を採取後、実験室で乾燥等の前処理・抽出工程を行っていた。本研究の試験方法は、現場設置・吸着を前提としており、より現実状態に近い結果が得られることは社会的意義が大きい。

研究成果の概要（英文）：In recent years, due to the environmental assessment of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, the evaluation of plant/biological availability of radiocesium and potassium ions has become increasingly important in the agricultural and environmental fields. In this study, we aimed to improve the measurement method of bioavailability of radiocesium and potassium by using adsorbent.

研究分野：リスク評価

キーワード：放射性セシウム カリウム 生物利用可能量 プルシアンブルー

1. 研究開始当初の背景

近年、新たな環境汚染や基準値変更に伴う土壌経由の農作物のリスクへの懸念が高まっている。例えば、東京電力福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性セシウム（以下放射性 Cs）により影響を受けた地域の農作物の安全性確認のため、100 Bq/kg の基準値に対するモニタリング検査の実施および結果に基づく作付・出荷制限や、米の放射性 Cs 吸収量抑制のためのカリウム（以下、K）施肥等の多大な社会的コストを生じさせている。これらの問題は、食の安心・安全を脅かし、国産農産物の輸出拡大を阻害する要因にもなり得るため、対策が求められている。このような、農業作物中の放射性 Cs は主に土壌経由で作物に移行するため、事前に作物への移行リスクを評価する手法が求められている。

これまで、作物中の放射性 Cs 濃度を土壌から推定する場合、①水抽出法、②酸抽出法、③全含有量のいずれかが指標として利用されてきた。しかしながら、①水抽出法は、固液比 1:10 程度の水で抽出する方法であり、水に溶け出す汚染物質量は得られるが、6-24 時間で 10 倍量の水に溶け出す濃度（スナッフショット）しか表せないため、土壌から徐々に放出される元素を評価できない（過小評価）。②酸抽出法は、酢酸アンモニウム等の酸を使用する方法であるが、抽出時の環境（含水率、pH、塩の濃度と種類）が土壌環境と大きく異なる。また、適用土壌の有機物含有量等が多い場合、有機物分解に酸が消費されるなどの課題があった。③全含有量は過大評価であることが指摘されている。また全ての方法が、土壌採取後、ラボに輸送し、乾燥等の前処理工程を経ており、原位置にある状態とは全く異なる状態で試験がされている、という課題もあった。

2. 研究の目的

本研究では、福島第一原子力発電所により環境中に放出された放射性 Cs およびその吸収に大きな影響を与える K イオンの生物利用可能性を迅速に測定する方法の開発を目的とした。具体的には、実土壌での間隙水濃度や放射性 Cs、K の化学形態のまま、微細粒子を通過させずイオンを通過させるためのフィルターおよび放射性 Cs と K を吸着させる材（銅置換体プルシアンブルー（以下、CuPB）、マンガン酸化物）を組合せた装置を開発する。さらに、農用地土壌／リター／底質に適用し、吸着材中の放射性 Cs、K を分析し、生物利用可能性の推定方法を構築、農作物及びその周辺環境の安全性評価に寄与する。

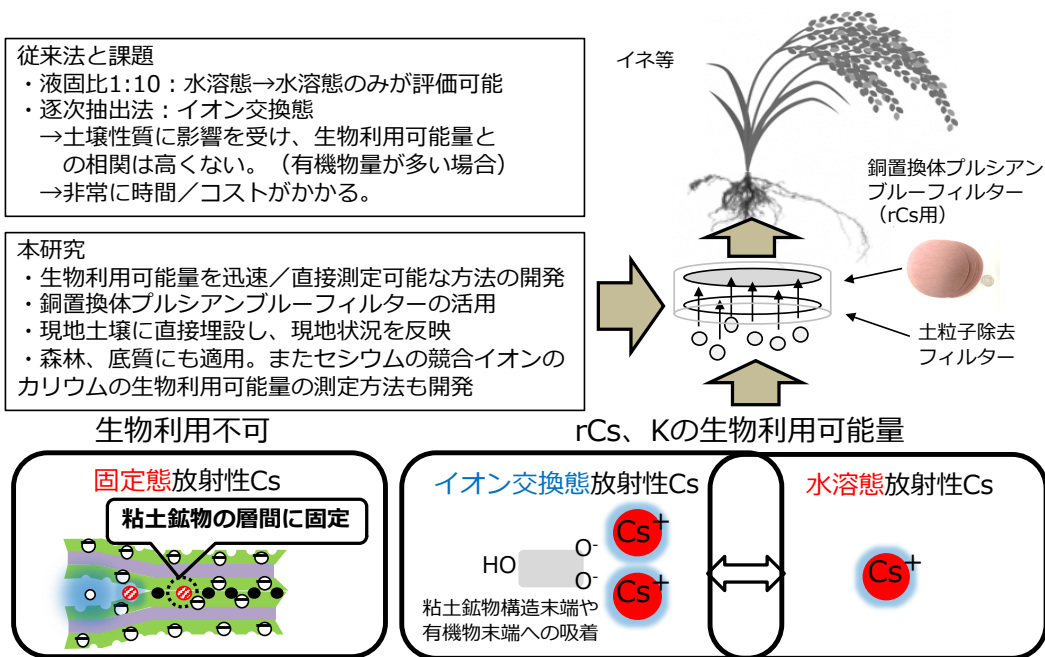


図1 本研究のフレームワーク

3. 研究の方法

本研究では、放射性 Cs、K を対象として実土壌での間隙水濃度や対象元素の化学形態のまま、移動性を評価する方法として、微細粒子を通過させずイオンを通過させるためのフィルター（プレフィルター）および有害物質を吸着させる材（研究者らが開発した Cu-PB、マンガン酸化物等）を組合せた装置を土壌に密着させ、一定期間接着後、吸着材中の有害物質を分析することで、生物利用可能性を推定する方法を構築する。表 1 に対象媒体・物質・作物、使用材、評価フィールドを示す。

表 1 本研究の対象媒体・物質・作物等

評価媒体	農用地	森林リター	底質	農用地
対象物質	rCs	rCs	rCs	K
対象作物	米、大豆	林産物	水草・魚	農作物
吸着材	Cu-PB	Cu-PB	Cu-PB	Mn酸化物
担当者	武田・矢ヶ崎	保高	辻	森

(1) 農用地土壌の放射性セシウム の生物利用可能性評価

Cu-PB 不織布を土壌試料に接触させ一定期間静置、吸着材に移行した放射性 Cs 量を測定し、放射性 Cs の生物利用可能量を評価した (図 2)。生物利用可能量と水稲玄米中 ¹³⁷Cs 濃度の関係性を定式化する数理モデルを探索した。また、セシウム固定能の異なる 2 つの土壌を混合し、従来の化学抽出法 (酢酸アンモニウム) と本法でそれぞれ定量して両者の特性を比較した。サンプルは、申請者らが日常的に調査を実施している福島県内農地の土壌を用いた。

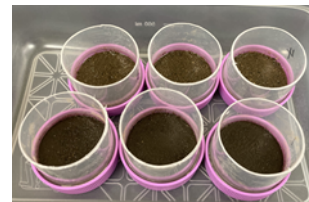


図 2 セシウム吸着量定量装置

(2) 底質中の放射性セシウム の生物利用可能性評価

Cu-PB 不織布をフィルターを介して底質試料に接触させ一定期間静置し、吸着材に移行した放射性 Cs 量から、放射性 Cs の生物利用可能量を評価した。まず、この不織布の Cs 吸着容量を ¹³³Cs 溶液を用いて評価し、内径 47mm の円形不織布 1 枚で土壌中の放射性 Cs を十分回収可能であることを確認した。また放射性 Cs 移行に関してプレフィルターの影響を比較する試験を実施した。選定したフィルターと不織布を用いて、ダム湖底の原位置で放射性 Cs 移行速度を観測する装置を開発し、福島県内のダム湖において現地適用性の確認を行った。

(3) 森林リター中の放射性セシウム の生物利用可能性評価

Cu-PB 不織布をリター試料に接触させ一定期間静置、吸着材に移行した放射性 Cs 量を経時的に測定、その時間変化から、放射性 Cs の生物利用可能量を評価した。また、野外において、CuPB 不織布をリターとともに埋設試験を実施し、実際の堆肥化プロセスにおけるリターの生物利用可能性評価量を推定する試験を実施した。

(4) 農用地土壌を対象としたカリウムの生物利用可能性評価

放射性 Cs の吸収を抑える K の生物利用可能性を評価するため、プレフィルターとカリウム選択性の高いマンガン酸化物吸着材を、水分調整した土壌試料と接触させて放置し、吸着材への K 移行量を、既存の分析法である酢酸アンモニウム等による化学抽出法と比較した。

4. 研究成果

(1) 農用地土壌の放射性セシウム の生物利用可能性評価

Cu-PB 不織布を土壌に密着させる装置を開発した。実土壌に適用した結果、化学抽出法と比較して、土壌中の放射性 Cs の脱着と再吸着を評価可能な事を示した (図 3)。また、得られた放射性 Cs 吸着量をパラメータとして玄米中放射性 Cs 濃度を推定する 2 変数非線形回帰モデルを構築し、計 14 の農地土壌で検証した結果、モデル推定値は玄米中放射性 Cs 濃度を良く説明できた (図 4)。さらに、放射性 Cs の土壌中の生物利用可能量の評価のため、CuPB 不織布に捕捉された放射性 Cs をイメージングプレートで評価する手法を検討したが放射性 Cs の偏在性は評価できなかった。

図 3 セシウム固定能の異なる 2 土壌を混合した際の ¹³⁷Cs の CuPB 不織布吸着量および化学抽出量の変化割合

赤: CuPB 吸着量
黒: 化学抽出 (実測値)

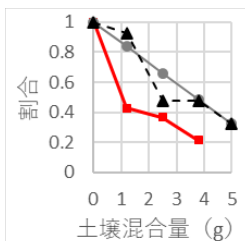
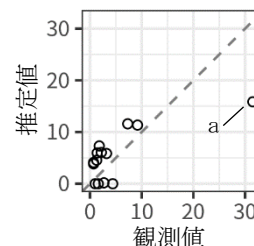


図 4 CuPB 不織布吸着量に基づく玄米中 ¹³⁷Cs 濃度推定モデル

単位: Bq kg⁻¹.
a: 酸性灌漑水の影響が疑われる地点



(2) 底質中の放射性セシウム の生物利用可能性評価

ダム湖底からの放射性 Cs の溶出速度を測定するため、CuPB 不織布を用いた現場設置型装置の開発を行い、現地(2020 年 10 月)および不攪乱底質を用いた 20°C・嫌気環境での培養試験での ¹³⁷Cs フラックスの測定を行った。底質からの放射性 Cs 溶出フラックスは現地試験で 0.058-0.12 Bq m⁻² d⁻¹、培養試験で 0.85 Bq m⁻² d⁻¹ と算定された。これらの値はダム湖の溶存態放射性 Cs の年間収支から推察される内部発生フラックスと比較して 1 オーダー低く、ダム湖では底質

直上水の攪乱等による底質からの放射性 Cs 溶出促進効果が大きいことが示唆された。

図 5 不攪乱底質を用いた静置培養試験による不織布(CuPB)と直上水への ¹³⁷Cs 移行量の比較

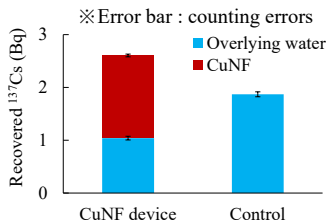
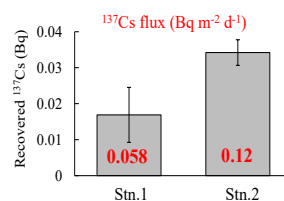


図 6 福島県横川ダムにおける湖底からの ¹³⁷Cs 溶出フラックスの現地観測値



(4) 森林リター中の放射性セシウム の生物利用可能性評価

リター中の放射性 Cs の生物利用可能量を推定するため、放射性 Cs、K のタンクリーチング試験の結果を用いて、拡散律速モデルに基づく生物利用可能量の推定方法を構築した。また、CuPB 不織布のリター埋設試験を室内・野外で実施し、CuPB 不織布の埋設によりリター中の放射性 Cs が一定程度 CuPB 不織布に移動することを確認し、リター中の放射性 Cs の迅速回収可能性が示された。

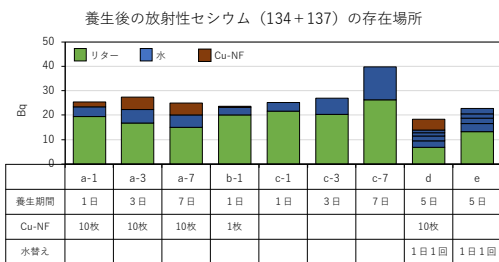


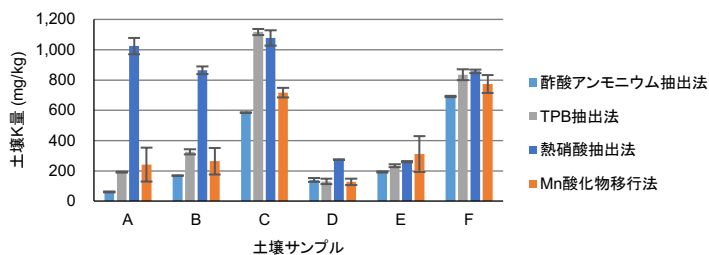
図 7 リターへの Cu-PB 不織布の室内混合試験結果

図 8 リターへの Cu-PB 不織布の野外試験写真

(4) 農用地土壌を対象としたカリウムの生物利用可能性評価

農用地土壌の K の生物利用可能評価法開発のため、フィルターを挟んで土壌から K 選択性の高い Mn 酸化物に移行してくる K 量の測定を、複数土壌に適用、化学抽出方法と比較した。土壌から抽出された K 量は、大部分の土壌で 1 M 酢酸アンモニウム抽出 K < Mn 酸化物移行 K、TPB 抽出 K < 1 M 熱硝酸抽出 K の順となった (図 X)。Mn 酸化物移行法と TPB 抽出法で評価された K 量が大きく異なる土壌があり、Mn 酸化物移行法が土壌中の K 移動性を反映している可能性が示唆された。

図 9 異なる評価法による土壌カリウム抽出または移行量。エラーバーは標準偏差を表す(n=3)。



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 辻 英樹, 武地 誠一
2. 発表標題 銅置換体ブルシアンプルー担持不織布によるダム湖底質中の水溶性放射性セシウム量の評価
3. 学会等名 第54回 日本水環境学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takeda, A., H. Tsukada, Y. Takaku
2. 発表標題 Speciation of spiked iodine in solid and liquid phase of forest soil.
3. 学会等名 The 2nd online-hosted meeting of the Society for Environmental Geochemistry and Health. February (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 辻 英樹, 保高 徹生, 矢ヶ崎 泰海, 舟木 泰智
2. 発表標題 銅置換体ブルシアンプルー担持不織布を用いたダム湖底質中の可溶性 ¹³⁷ Cs量およびダム湖底からの ¹³⁷ Cs溶出速度の評価
3. 学会等名 第7回 福島大学 放射能研究所 成果報告会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 栗原モモ、恩田裕一、保高徹生、
2. 発表標題 福島県の落葉広葉樹林およびスギ人工林における リターからの溶存態放射性セシウムの溶出特性
3. 学会等名 環境放射能除染学会 第9回研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 辻 英樹, 武地 誠一
2. 発表標題 銅置換体ブルシアンプルー担持不織布によるダム湖底質中の水溶性放射性セシウム量の評価
3. 学会等名 第54回 日本水環境学会年会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Takeda A.	4. 発行年 2021年
2. 出版社 Springer-Nature	5. 総ページ数 10
3. 書名 Soil Properties Affecting Soil-to-Crop Transfer of Fukushima-Derived Radiocesium. Chapter 17, In: Behavior of Radionuclides in the Environment. Volume III; Fukushima (Eds, Nanba K, Konoplev A. and Wada T.)	

〔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	武田 晃 (Takeda Akira) (10715501)	公益財団法人環境科学技術研究所・環境影響研究部・主任研究員 (81103)	
研究分担者	辻 英樹 (Tsuji Hideki) (50719599)	国立研究開発法人国立環境研究所・福島支部・主任研究員 (82101)	
研究分担者	矢ヶ崎 泰海 (Yagasaki Yasumi) (70446392)	国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・東北農業研究センター・研究員 (82111)	

6. 研究組織（つづき）

	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	森 裕樹 (Mori Yuki) (90404061)	九州大学・農学研究院・助教 (17102)	

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