



Title	土壤中の交換態放射性セシウムの園芸用バーミキュライトによる固定
Author(s)	高木, 悠輝, 市田, 知子, 登尾, 浩助
Citation	明治大学農学部研究報告, 71(1): 1-9
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10291/22486">http://hdl.handle.net/10291/22486</a>
Rights	
Issue Date	2022-03-20
Text version	publisher
Type	Departmental Bulletin Paper
DOI	

<https://m-repo.lib.meiji.ac.jp/>

〔研究論文〕

## 土壌中の交換態放射性セシウムの園芸用バーミキュライトによる固定

高木 悠輝<sup>1</sup>・市田 知子<sup>2</sup>・登尾 浩助<sup>2\*</sup>

(2019年12月16日受理)

## Fixing exchangeable radiocesium in soil using expanded vermiculite clay

Yuki TAKAGI<sup>1</sup>, Tomoko ICHIDA<sup>2</sup>, and Kosuke NOBORIO<sup>2\*</sup>

### Abstract

The Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, caused by the tsunami in March 2011, released a large amount of several radionuclides into the atmosphere. Among them, radiocesium <sup>137</sup>Cs, a vital substance that will affect human activities in the future, has a long half-life of about 30 years. The objective of this study was to investigate how the mixing ratio of vermiculite, a clay mineral that is capable of fixing <sup>137</sup>Cs, and standing time affect the degree of <sup>137</sup>Cs fixation. In this experiment, six treatments, comprising loamy soils from Fukushima with low (4.9 kBq/kg) and high (27.8 kBq/kg) concentrations of <sup>137</sup>Cs mixed with various readily and commercially available expanded vermiculite ratios, were used. Distilled water, as rainfall, or one mol/L of KCl solution, as soil water after potassium fertilization, was added to the soil mixtures to extract <sup>137</sup>Cs adsorbed after 3 min of agitation. The residual <sup>137</sup>Cs concentration in the extracts and soil samples obtained via vacuum extraction was measured to determine the amount of <sup>137</sup>Cs fixed by the vermiculite. The mixtures of soils with low (4.9 kBq/kg) and high (27.8 kBq/kg) concentrations of <sup>137</sup>Cs hardly fixed <sup>137</sup>Cs after 3 min of agitation. In contrast, the high <sup>137</sup>Cs concentration soils mixed with vermiculite in a 1 : 1 ratio fixed about half of the <sup>137</sup>Cs after standing for five days.

**Key words:** clay mineral, cation exchange, hexagonal array of Si-tetrahedrons, cesium transport

**要 旨** 2011年3月に起きた東北地方太平洋沖地震に伴う津波に起因した福島第一原子力発電所事故によって放射性セシウム (<sup>134</sup>Cs と <sup>137</sup>Cs) を含む大量の放射性物質が大気中に放出された。中でも <sup>137</sup>Cs は、半減期が約30年と長く今後の人間活動に影響を及ぼす重要な物質である。本研究では、<sup>137</sup>Cs を固定する能力をもつ粘土鉱物であるバーミキュライトの混合割合と静置時間によって土壌中の <sup>137</sup>Cs 固定がどの程度変化するかを実験的に調査することを目的とした。実験では福島県飯舘村で採取した放射性セシウムに汚染された水田土壌に入手が容易な園芸用バーミキュライトを様々な割合で混合した。降雨を模した蒸留水またはカリウム施肥後の土壌水を模した KCl 溶液を水田土壌と園芸用バーミキュライトの混合物に加えて3分間振動攪拌した。減圧抽出して得られた抽出液と土壌試料に残留した <sup>137</sup>Cs 濃度を測定して園芸用バーミキュライトへの固定量を調査した。低濃度 (4.9 kBq/kg) と高濃度 (27.8 kBq/kg) の <sup>137</sup>Cs を含む土壌において3分間の振動攪拌

<sup>1</sup> 明治大学農学研究科 214-8571 神奈川県川崎市多摩区東三田 1-1-1

Formerly Graduate School of Agriculture, Meiji University Higashi-mita 1-1-1, Tama-ku, Kawasaki, Kanagawa, 214-8571 Japan

<sup>2</sup> 明治大学農学部 214-8571 神奈川県川崎市多摩区東三田 1-1-1

School of Agriculture, Meiji University Higashi-mita 1-1-1, Tama-ku, Kawasaki, Kanagawa, 214-8571 Japan

\* Corresponding author : 登尾浩助 Email: noboriok@meiji.ac.jp Phone/Fax: 044-934-7156

では園芸用バーミキュライトが $^{137}\text{Cs}$ をほとんど固定しなかったが、園芸用バーミキュライトを1:1で混合した高濃度土壌試料では、振動攪拌後5日間静置すると静置直後に存在する $^{137}\text{Cs}$ の約半分を固定できる可能性があることがわかった。

キーワード：粘土鉱物，陽イオン交換，シリカ4面体の六員環，セシウム移動

## 1. はじめに

2011年3月に発生した東北地方太平洋沖地震により津波が発生し、福島県双葉郡大熊町に位置する東京電力福島第一原子力発電所（以下福一原発）が損壊した。この損壊により大気中に大量の放射性物質が放出され、大規模な土壌汚染を引き起こした（農林水産省2012）。福一原発の40-55 km北西部に位置する飯舘村においては、海から内陸に向かって吹く風によって放射性物質が運び込まれた結果、放射能汚染が引き起こされた。その後、福島県相馬郡飯舘村は2012年7月以来3つの避難指示区域（避難指示解除区域・移住制限区域・帰還困難区域）に区分され、「帰宅困難区域」に区分された長泥地区を除いて国直轄の除染が実施された。この間、福島県内外に避難した農業者の一部は、避難先で花卉、繁殖牛などの営農を再開していた。また、NPO法人との「協働」に活路を見出す動きも現れた（福田・市田2016）。国直轄の除染は2016年12月31日の時点で100%完了し（環境省2019）、2017年3月末に避難指示が長泥地区を除いて解除され、避難先から帰村して農業に従事する人々も徐々に増えている。飯舘村はこのような営農再開者に物心両面での支援を行い、2019年10月の時点では帰村者約1,300名のうち、約1割が農業者である<sup>1</sup>。

福一原発事故により放出された放射性物質のうち特にセシウム134 ( $^{134}\text{Cs}$ )とセシウム137 ( $^{137}\text{Cs}$ )は放出量の多さと半減期 ( $^{134}\text{Cs}$ は2.06年、 $^{137}\text{Cs}$ は30.2年)の長さ（国立天文台2012）を考えると、帰村後に農業を再開する際には、土壌に含まれるこれら放射性Csの根から作物への移行が懸念される（登尾ら2020）。帰村後の長期的な営農計画の中で半減期の長

い $^{137}\text{Cs}$ は特に重要な物質である。

土壌表面に降下した $^{137}\text{Cs}$ の約70%は土壌に含まれる粘土鉱物に固定され、20%は有機物との結合態として存在し、残りの10%が交換態として存在することが報告されている（Tsukadaら2008）。一旦粘土鉱物に固定されると、Csは容易には脱離しないが、粘土鉱物に固定されず交換態として存在する一部のCsは植物に吸収される（山口ら2012）。有機物に吸着した $^{137}\text{Cs}$ は農地に移動し、有機物の分解に伴って交換態となって水稲に吸収されることが報告されている（塩沢2012）。

土壌に含まれる粘土鉱物の中でも2:1型粘土鉱物はCsを固定する能力があり、特にバーミキュライト（以下Vrm）は強く固定する性質がある（Nakaoら2008）。Vrmは天然に産出するスメクタイト系の2:1型層状ケイ酸塩鉱物で日本名を蛭石（ひるいし）といい、1枚のアルミナ8面体シートとこれを挟み込む2枚のケイ素4面体シートで構成される。このケイ素4面体シートには、六員環と呼ばれる6個のシリカ4面体で構成された直径0.26 nmの規則的な穴が存在する（山口ら2012；松中2018）。この穴に入り込めるのは、水和力の小さい $\text{Cs}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ のみであるが、フレイド・エッジ・サイト（frayed edge site）と呼ばれる非膨潤層と膨潤層の境界にあるくさび形に開いた部分では吸着選択性が高い $\text{Cs}^+$ が入り込んで固定される（山口ら2012）。実際に小暮ら（2012）は電子顕微鏡を使ってVrmが層間にCsを固定することを確認している。

このような性質を持つVrmを施用した土壌で玄米中の $^{137}\text{Cs}$ 濃度を低減できたが、Vrmによる $^{137}\text{Cs}$ の吸着や固定によるものではなく、Vrmに含まれているカリウムによると考えられている（斉藤ら2013）。セシウムと同じアルカリ金属に属する1価の陽イオンであるカリウムを土壌に多量施与することで植物は

<sup>1</sup> 飯舘村役場の杉岡誠氏からのヒアリング（2019年10月8日）に基づく。

セシウムを吸収しにくくなる（山口ら 2012）。飯館村での水稲栽培実験からカリウム施肥量が多いほど水稲玄米中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が低くなる傾向がある（伊井ら 2015）。従って、Vrm を施用した場合の土壌における  $^{137}\text{Cs}$  固定効果を明らかにすることは、長期的な放射性セシウム対策技術を構築するために必要である（太田 2014）。

従来の研究では、既に存在している粘土鉱物に Cs が固定される現象を報告しているが、新たに Vrm を加えることで Cs をどの程度固定できるは明らかではない。土壌を剥ぎ取らず Vrm を地表面に散布することで Cs を固定して植物に移行させないことが可能となれば、大きな Cs 汚染土壌対策となる。農業や園芸用の土壌改良剤として利用される「バーミキュライト」は、 $800^{\circ}\text{C}$  程度で加熱して膨張させた天然の Vrm であるが、加熱温度を上げるほど層構造が破壊されるので、天然の Vrm に比べてイオン交換能が下がることが報告されている（鈴木ら 2015）。

本研究では、低濃度と高濃度に放射性セシウムで汚染された土壌を使って、土壌と Vrm の混合割合が与える  $^{137}\text{Cs}$  の Vrm への固定度合いへの影響を実験的に調査した。この実験によって  $^{137}\text{Cs}$  固定に対する Vrm の混合割合と時間的な効果を明らかにすることを目的とした。

## 2. 実験材料と実験方法

### 2.1 土壌試料の採取

土壌試料は福島県相馬郡飯館村佐須の水田において表層から 5 cm 以深で採土し、低濃度（ $4.9 \text{ kBq/kg}$ ）汚染土壌と呼ぶことにした。また、同村小宮の水田において採取した表土を高濃度（ $27.8 \text{ kBq/kg}$ ）汚染土壌と呼ぶことにした。土壌試料の採取場所と福島第一原子力発電所の位置関係を Fig. 1 に示す。福一原発から佐須までの距離は約 55 km で、小宮までの距離は約 42 km であった。両方の土壌試料は風乾後、2 mm ふるい通過分を実験に用いた。また園芸用バーミキュライト（あかぎ園芸）は 2 mm ふるい通過分を使用した。

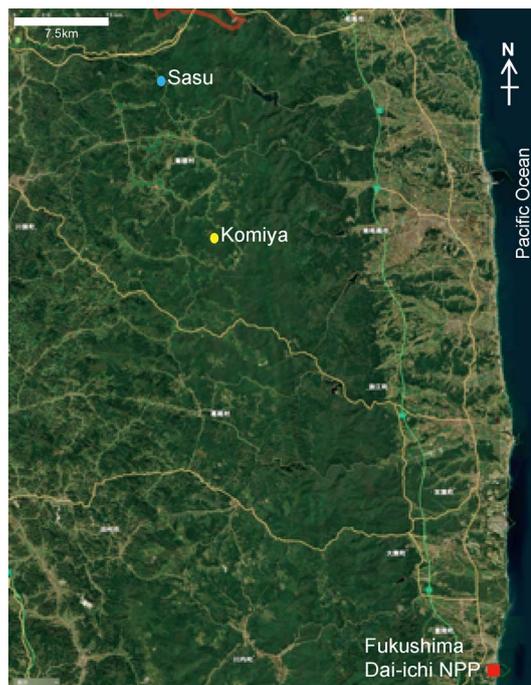


Fig. 1. Location of soil sampling sites and Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (based on Apple Map ver. 2.1). 土壌採取場所と福島第一原子力発電所の位置関係

### 2.2 汚染土壌の蒸留水・KCl 溶液洗浄実験

降雨による Cs イオンの溶出とカリ肥料の施肥による Cs イオンの陽イオン交換による溶出の度合いを蒸留水と 1 mol/L KCl 溶液を使った洗浄実験によって調査した。高濃度と低濃度汚染土壌試料をそれぞれ 3 個ずつ用意して実験した。土壌試料 6 g に対して蒸留水または 1.0 mol/L KCl 溶液 100 mL を混合して攪拌装置で 3 分間攪拌した。攪拌後、真空ろ過装置（VT-2000, ADVANTEC 社）を用いる過した。ろ過の際、吸引ポンプを用いて容器内を 33 kPa に減圧して固形試料と溶液試料に分離した。ろ紙は ADVANTEC 社の 5C（ $1 \mu\text{m}$ ）を用いた。固形試料は  $110^{\circ}\text{C}$  の炉乾庫で 24 時間以上乾燥し、Cs 濃度を測定した。また、溶液試料の Cs 濃度も測定した。

### 2.3 バーミキュライト添加実験

高濃度と低濃度汚染土壌のそれぞれに Vrm を体積比 1 : 0.5, 1 : 1, 1 : 1.5, 1 : 2 で加えた 4 種類の混合試料をそれぞれ 3 個ずつ用意した。混合試料 6 g に対して 1.0 mol/L KCl 溶液 100 mL を混合して攪拌装置で 3 分間攪拌した。攪拌後は、上述の汚染土壌の

蒸留水・KCl 溶液洗浄実験と同様の処理をした。全ての実験は、各土壌ごとに6処理区（蒸留水洗浄、KCl 溶液洗浄、Vrm 混合 1 : 0.5, 1 : 1, 1 : 1.5, 1 : 2）を比較した。

#### 2.4 高濃度汚染土壌の静置実験

体積比 1 : 1 に調整した高濃度汚染土壌とバーミキュライトの混合試料 6 g に 1.0 mol/L KCl 溶液を 100 mL を加え、3 分間攪拌した後、1 日、2 日、3 日、4 日、5 日間静置した。所定の静置日数に達した試料は、減圧ろ過後、上述の汚染土壌の蒸留水・KCl 溶液洗浄実験と同様に処理した。各日の混合試料は 3 個ずつ、合計 15 個用意した。

#### 2.5 汚染土壌と溶液の Cs 濃度測定

<sup>137</sup>Cs 濃度 (Bq/kg または Bq/L) は Ge 半導体  $\gamma$  線検出装置 (Princeton Gamma-tech Instruments 社製, U.S.A.) で測定した。炉乾固形試料および溶液試料は内径 50 mm, 容積 100 mL のポリスチレン製円筒容器 (アズワン株式会社製) に一定量入れて測定した。

#### 2.6 土壌中の Cs 濃度の残存割合

本実験では土壌試料と Vrm の混合割合によって試料の Cs 濃度が異なっていたため、(1) 式のように洗浄後の Cs 濃度を洗浄前の Cs 濃度で割ることで残存率 % を算出した。

$$\text{残存率 (\%)} = \frac{\text{洗浄後の試料中の Cs 濃度}}{\text{洗浄前の試料中の Cs 濃度}} \times 100 \quad (1)$$

実験結果の統計解析には Tukey 検定を適用した (Abdi・Williams 2010)。

#### 2.7 X 線回析

ろ過後のろ紙に付着した微量な Cs を検出するために、未使用ろ紙、低濃度土壌を蒸留水洗浄・ろ過した後のろ紙、および KCl 洗浄液をろ過した後のろ紙に対して X 線回析を行った。X 線回析は、X 線回析装置 (リガク社製, Geiger flex RAD-B) を使った (納富ら 2005)。

**Table 1** Physical properties of the soils. 供試土壌の物理特性

	Komiya (high conc.)	Sasu (low conc.)
bulk density (Mg m <sup>-3</sup> )	1.11	0.92
particle density (Mg m <sup>-3</sup> )	2.52	2.72
soil texture	sandy loam	sandy loam
clay (%)	12	12
silt (%)	15	12
sand (%)	73	76

### 3. 実験結果

#### 3.1 蒸留水・KCl 溶液洗浄実験

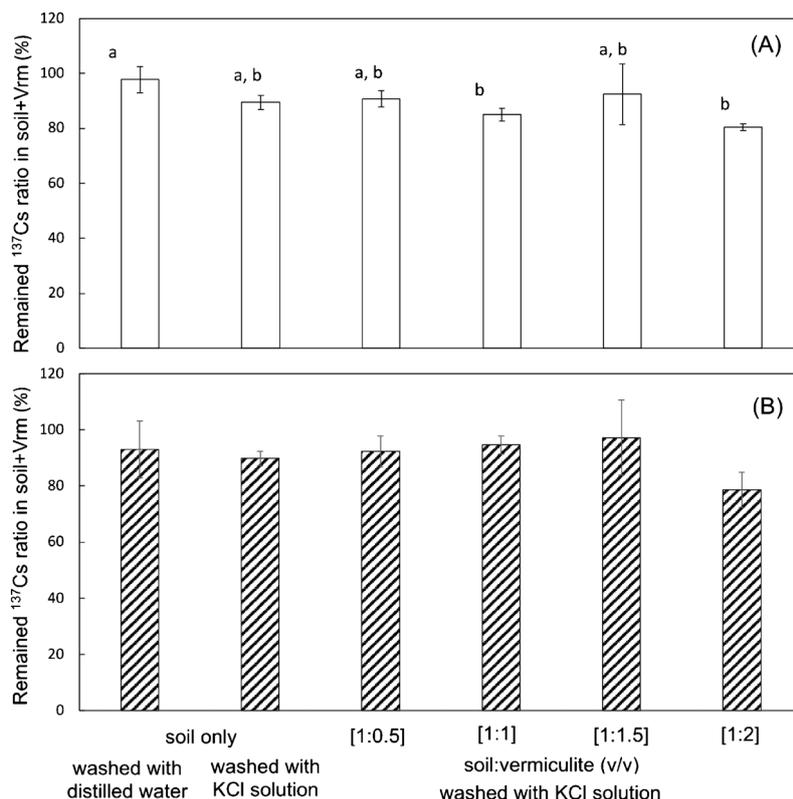
2 つの土壌試料の基本的な物理性を Table 1 に示す。実験に供した土壌試料の物理性に大きな違いはなかった。

低濃度と高濃度の汚染土壌を蒸留水で洗浄したときの土壌中における <sup>137</sup>Cs の残存率は、低濃度土壌も高濃度土壌も残存率はそれぞれ 98%, 93% とほとんどの <sup>137</sup>Cs は洗脱することなく残存していた (Fig. 2A, B)。また、洗浄後の蒸留水濃度は、低濃度土壌と高濃度土壌ではそれぞれ 11 Bq/L と 30 Bq/L であった (Fig. 3A, B ; Table 2)。

次に 1.0 mol/L KCl 溶液で洗浄したときの低濃度と高濃度土壌試料中の <sup>137</sup>Cs の残存率は、どちらの土壌においても蒸留水よりも KCl 溶液で洗浄したときのほうが小さくなったが、蒸留水と比べて有意な差異ではなかった (Fig. 2A, B ; p > 0.10)。洗浄後の溶液中の Cs 濃度では (Fig. 3A, B), どちらの土壌においても蒸留水よりも KCl 溶液のほうが Cs が有意に多く溶出した (p < 0.01)。

#### 3.2 バーミキュライト添加実験

土壌に園芸用バーミキュライト (Vrm) を 1 : 0.5, 1 : 1, 1 : 1.5, 1 : 2 (体積比) の割合で混合し 1.0 mol/L KCl 溶液で洗浄したとき、低濃度土壌試料中の <sup>137</sup>Cs の残存率は 1 : 1 と 1 : 2 の混合割合で蒸留水での洗浄に対して有意差が認められたが、KCl 溶液洗浄と全ての混合割合での有意差は認められなかった (Fig. 2A ; p > 0.10)。一方、高濃度土壌試料中の



**Fig. 2.** <sup>137</sup>Cs concentrations in soil samples after washing with distilled water or 1 mol/L KCl solution relative to before washing for low-concentration soil (A) and high-concentration soil (B). Error bars represent  $\pm$  one standard deviation, and the number of samples for each treatment was 3. Letters “a” and “b” indicate that there were significant differences among low-concentration soil samples ( $p < 0.01$ ) (A). However, there was no significant differences among high-concentration soil samples ( $p > 0.10$ ) (B).

低濃度土壌 (A) と高濃度土壌 (B) の洗浄前に対する洗浄後の土壌試料中の <sup>137</sup>Cs 濃度割合。エラーバーは  $\pm 1$  標準偏差を表し、各区試料数 3 である。a と b は低濃度土壌の試料間に有意差があったことを示し ( $p < 0.01$ ) (A)、高濃度土壌の試料間では有意差はなかった ( $p > 0.10$ ) (B)。

<sup>137</sup>Cs の残存率に有意な差異はなかった (Fig. 2B ;  $p > 0.10$ )。洗浄後の溶液中の Cs 濃度は (Fig. 3)、低濃度土壌と高濃度土壌どちらにおいても土壌 + Vrm が 1 : 0.5 のとき Cs の溶出量は汚染土壌のみを KCl 溶液洗浄したときの値と変わらなかった ( $p > 0.10$ )。土壌に Vrm を 1 : 0.5 の割合で加えただけでは Vrm への Cs の固定はほとんど起こらなかった。しかし、低濃度土壌では土壌 + Vrm の割合が 1 : 1 より大きいときに (Fig. 3A)、また高濃度土壌では土壌 + Vrm の割合が 1 : 1.5 より大きいときに (Fig. 3B)、洗浄後のろ過溶液中の Cs 濃度が有意に減少した ( $p < 0.01$ )。

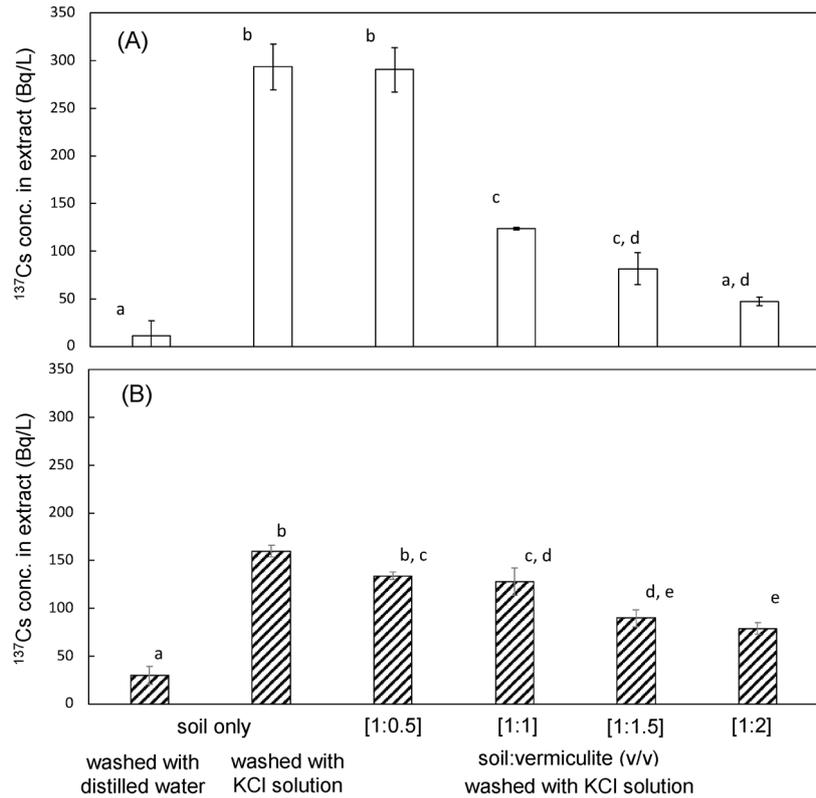
浸出溶液の Cs 濃度の詳細を Table 2 に、土壌中の残留 Cs 濃度の詳細を Table 3 にまとめた。

### 3.3 静置実験

静置実験の結果を Fig. 4 に示した。1.0 mol/L KCl 溶液で洗浄前後の残存率を見ると、静置日数が長くなるに従って残存率が大きくなった (Fig. 4A)。洗浄処理後のろ過溶液中の Cs 濃度は静置 1~4 日後の間ではほとんど差がなかった (Fig. 4B)。しかし、5 日後の Cs 濃度は 1~4 日後の濃度と比較して有意な差異が生じ ( $p < 0.01$ )、約半分となった。

### 3.4 ろ紙の X 線回折

ろ紙に対する X 線回折結果を Fig. 5 に示す。Fig. 5A はろ紙のみ、Fig. 5B は低濃度土壌を蒸留水洗浄した後のろ紙、そして Fig. 5C は KCl 洗浄液をろ過した後のろ紙の結果である。いずれの場合も、Cs の存在を示す 6 度と 20 度付近に見られる波形 (渡邊ら



**Fig. 3.** <sup>137</sup>Cs concentrations in solutions of the low-concentration soil (A) and high-concentration soil (B) after washing soils with distilled water or 1 mol/L KCl solution. Error bars represent ± one standard deviation, and the number of samples for each treatment was 3. Letters “a” to “d” indicate that there were significant differences among samples of the low-concentration soil ( $p < 0.01$ ) (A). Letters “a” to “e” indicate that there were significant differences among samples of the high-concentration soil ( $p < 0.01$ ) (B).

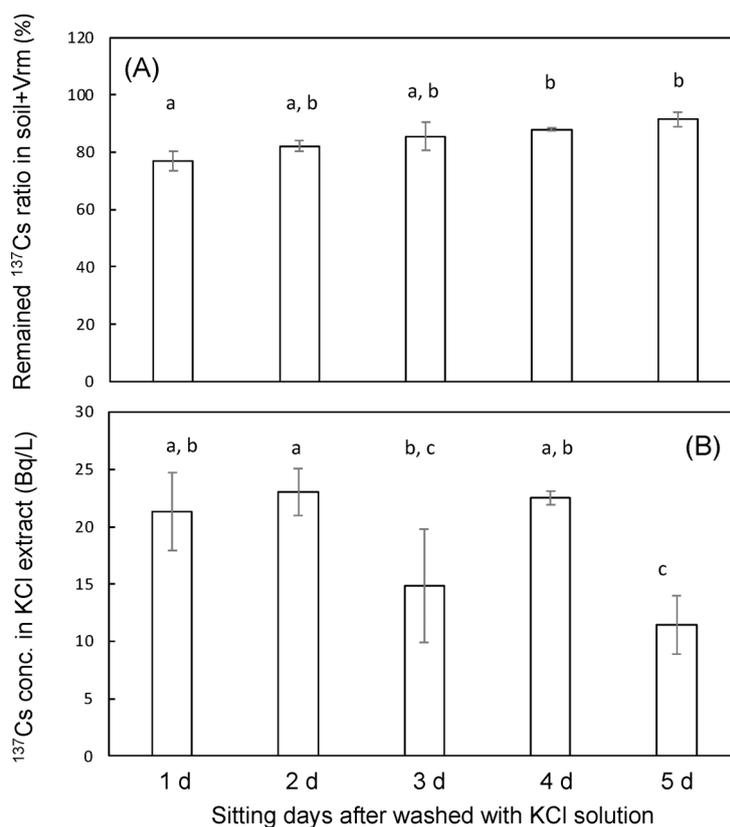
低濃度土壌 (A) と高濃度土壌 (B) の土壌洗浄後の溶液中の <sup>137</sup>Cs 濃度。エラーバーは ±1 標準偏差を表し、各区試料数 3 である。a-d は低濃度土壌の試料間に有意差があったことを示し ( $p < 0.01$ ) (A), a-e は高濃度土壌の試料間に有意差があったことを示す ( $p < 0.01$ ) (B)。

**Table 2** Average <sup>137</sup>Cs concentration in liquid before and after washing ( $n=3$  for each treatment). The S.D. indicates a standard deviation. ND indicates not-detected.  
土壌洗浄溶液中の <sup>137</sup>Cs 濃度。S.D. は ±1 標準偏差を表し、各区試料数 3 である。ND は検出されずを表す。

soil	washing liquid	treatment	average <sup>137</sup> Cs conc. (Bq/kg) in liquid ± 1 S.D.	
			before washing	after washing
Komiya (high conc.)	distilled water	soil only	ND	30 ± 9
		soil only	ND	160 ± 6
	1.0 mol/L KCl solution	soil + Vrm (1 : 0.5)	ND	134 ± 4
		soil + Vrm (1 : 1)	ND	128 ± 14
		soil + Vrm (1 : 1.5)	ND	90 ± 9
		soil + Vrm (1 : 2)	ND	79 ± 6
	Sasu (low conc.)	distilled water	soil only	ND
soil only			ND	294 ± 24
1.0 mol/L KCl solution		soil + Vrm (1 : 0.5)	ND	291 ± 23
		soil + Vrm (1 : 1)	ND	124 ± 2
		soil + Vrm (1 : 1.5)	ND	82 ± 17
		soil + Vrm (1 : 2)	ND	47 ± 5

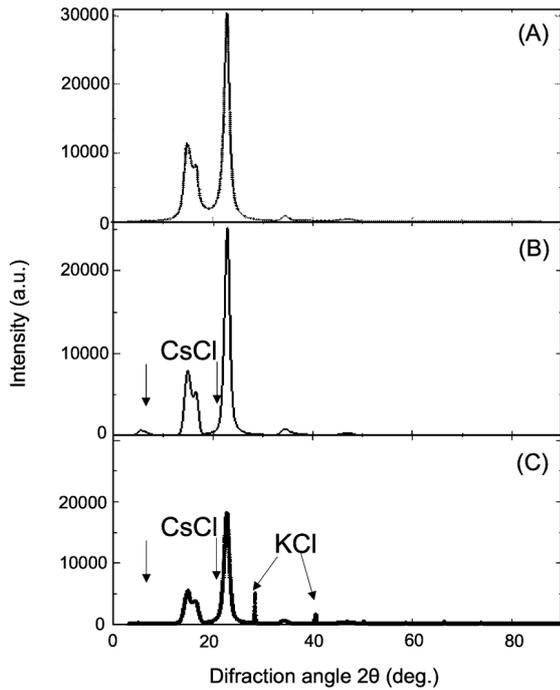
**Table 3** Average  $^{137}\text{Cs}$  concentration in soil and vermiculite before and after washing ( $n=3$  for each treatment). The S.D. indicates a standard deviation.  
 洗浄後土壌試料中残留  $^{137}\text{Cs}$  濃度。S.D. は  $\pm 1$  標準偏差を表し、各区試料数 3 である。

soil	washing liquid	treatment	average $^{137}\text{Cs}$ conc. (Bq/kg) in soil + Vrm $\pm 1$ S.D.	
			before washing	after washing
Komiya (high conc.)	distilled water	soil only	27,864 $\pm$ 560	25,884 $\pm$ 2,274
		soil only	27,805 $\pm$ 564	25,089 $\pm$ 460
	1.0 mol/L KCl solution	soil + Vrm (1 : 0.5)	20,996 $\pm$ 1,007	19,360 $\pm$ 227
		soil + Vrm (1 : 1)	18,574 $\pm$ 952	17,569 $\pm$ 383
		soil + Vrm (1 : 1.5)	17,709 $\pm$ 919	17,147 $\pm$ 1,542
		soil + Vrm (1 : 2)	18,384 $\pm$ 906	14,462 $\pm$ 1,465
Sasu (low conc.)	distilled water	soil only	4,883 $\pm$ 131	4,773 $\pm$ 146
		soil only	4,956 $\pm$ 138	4,430 $\pm$ 31
	1.0 mol/L KCl solution	soil + Vrm (1 : 0.5)	4,105 $\pm$ 167	3,725 $\pm$ 174
		soil + Vrm (1 : 1)	3,086 $\pm$ 12	2,621 $\pm$ 77
		soil + Vrm (1 : 1.5)	2,554 $\pm$ 306	2,336 $\pm$ 24
		soil + Vrm (1 : 2)	1,970 $\pm$ 169	1,584 $\pm$ 138



**Fig. 4.** Remained  $^{137}\text{Cs}$  ratios in high concentration soil samples (A) and  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in KCl washing extract (B) on sitting days after washing high concentration soil, added a 1 : 1 ratio vermiculite, with KCl solution. Error bars represent  $\pm$  one standard deviation, and the number of samples for each treatment was three. Letters “a” and “b” indicate that there were significant differences among samples in  $^{137}\text{Cs}$  concentration ratio in high concentration soil samples ( $p < 0.01$ ) (A), and “a” to “c” in  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in KCl washing extract ( $p < 0.01$ ) (B).

バーミキュライトを 1 : 1 で添加した高濃度土壌の静置経過後の高濃度土壌試料中の  $^{137}\text{Cs}$  残存率 (A) と KCl 洗浄後抽出中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度 (B)。エラーバーは  $\pm 1$  標準偏差を表し、各区試料数 3 である。a と b は高濃度土壌試料中  $^{137}\text{Cs}$  濃度比の試料間に有意差があったことを示し ( $p < 0.01$ ) (A), a-c は KCl 洗浄後抽出中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の試料間に有意差があったことを示す ( $p < 0.01$ ) (B)。



**Fig. 5.** X-ray diffraction results: filter paper only (A), filter paper used to treat soil with distilled water (B), and filter paper used to treat soil with KCl solution (C). The presence of CsCl may increase the waveforms around 8 and 21 degrees (indicated by downward arrows) (Watanabe et al. 2014).  
X線回折の結果：ろ紙のみ (A)；土壌の蒸留水処理に用いたろ紙 (B)；土壌のKCl溶液処理に用いたろ紙 (C)。CsClが存在すると8度と21度付近 (下向矢印で表示) で波形が大きくなる (渡邊ら, 2014)。

2014) が観測されなかった。

#### 4. 考察

蒸留水で洗浄した場合、低濃度土壌と高濃度土壌の洗浄水にはそれぞれ11 Bq/kg と30 Bq/kg 程度しかCsが溶出しなかったことから、土壌のろ過に用いたろ紙にCsが付着したのではないかと考えた。しかし、ろ紙のCs濃度はγ線検出装置の検出限界以下であったこととX線回折でCsを示す波形が観察されなかったため、ろ過後のろ紙にはCsが付着していないと考えられる。水はガンマ線の透過力を弱めるので(加藤ら 2004)、溶液のCs濃度が低くなった一因と考えられるが、詳細は不明である。

低濃度土壌の方が高濃度土壌よりも溶液へのCs溶出量が多いのは、土壌に含まれている粘土鉱物の種類が影響するのではないかと考えた。勝田ら (2016)

の研究によれば本実験で用いた低濃度土壌(佐須水田)には、高濃度土壌(小宮水田に近い蕨平)に含まれているAl-パーミキュライトとイライトが含まれていない。従って、高濃度土壌中のCsはAl-パーミキュライトやイライトに固定されていたため陽イオン交換量が少なかったが、低濃度土壌中のCsはそうではなかったため、Cs溶出量が多くなったと考えられる。

静置実験では、日数が経つほどCs残存率が減少し、溶液中のCs濃度が増加すると考えられたがそうはならなかった。時間が経つにつれて土壌中のCs残存率が増加したことから、陽イオン交換によってKCl溶液中に溶出した<sup>137</sup>Csは添加したVrmに固定されたと考えられる。

Csイオンと他の陽イオンの交換には時間をそれほど要さないため、5日経過後に溶液中のCs濃度が下がったのは、Vrmの構造変化に要する時間に関係したと考えられる。Vrmは層状構造を持っているため層間は膨潤収縮し、この層間にCsが入り込み固定される(山口ら 2012)。従って、Csを固定するためのVrmの構造変化には時間が必要であり、そのためには5日以上が必要であったのではないかと考えられる。

#### 5. まとめ

本実験ではCs濃度が異なる二種類の土壌を使った。低濃度土壌においては蒸留水で洗浄しても<sup>137</sup>Csはほとんど溶出しなかったが、高濃度土壌においては蒸留水で洗浄すると、<sup>137</sup>Csがわずかに溶出した。土壌のみをKCl溶液処理した場合、土壌に含まれる粘土鉱物の違いによりCsの溶出に差が出たと考えられる。また、KCl溶液で洗浄したとき低濃度・高濃度土壌において添加Vrmの割合を変えても<sup>137</sup>CsがVrmに固定されたかどうかはわからなかったが、高濃度土壌を使った静置実験の結果から、静置直後に存在する<sup>137</sup>Csの約半分をVrmが静置5日後には固定できる可能性があることがわかった。Cs汚染土壌からCsを効果的に取り除いてVrmに固定するためには、水ではなくKCl溶液で汚染土壌を洗浄して陽イオン交換によってCsを溶液中に解離させる必要があ

る。土壌に含まれる粘土鉱物の種類によって KCl 溶液濃度を変える必要があると考えられるが、適正な濃度決定法に関する研究は今後の課題である。

## 謝辞

放射線量の測定にあたり、竹迫紘元明治大学教授及び研究室生にご指導いただいた。ろ紙の X 線回折については明治大学大学院農学研究科の佐藤道夫特任講師に助言を頂き、ろ紙の X 線回折を行うにあたり明治大学理工学部材料強度研究室の納富充雄教授と廣瀬翔太氏にご指導いただいた。土壌採取にあたっては飯館村農業委員会の菅野宗夫氏と特定 NPO 法人ふくしま再生の会の皆様にご協力いただいた。なお本研究の一部は、2014年度明治大学大学院研究科間共同研究（代表：市田知子）及び科研費挑戦的萌芽研究（課題番号：26550067；代表：森也寸志）の助成により実施した。ここに感謝の意を表します。

## 引用文献

- Abdi H, and Williams LJ. (2010): Newman-Keuls and Tukey test. pp. 897-902. In NL Salkind (ed) Encyclopedia of research design. Vol 3, SAGE Publications, Inc., Thousand Oaks, CA.
- 福田恭礼・市田知子 (2017)：原発事故避難者による営農再開と展望—福島県相馬郡飯館村の事例分析—, 明治大学農学部研究報告, 66: 1-21.
- 伊井一夫・田野井慶太郎・宇野義雄・登達也・廣瀬 農・小林奈通子・二瓶直登・小川唯史・田尾陽一・菅野宗夫・西脇淳子・溝口 勝 (2015)：飯館村除染圃場で試験栽培した水稲の放射性セシウム濃度. *Radioisotopes*, 64(5): 299-310.
- 加藤秀起・土屋卓義・内藤 敦・山下浩司・下原定次郎 (2004)：放射線遮蔽材に対する消滅 $\gamma$ 線の実効線量透過率. *日本放射線安全管理学会誌*, 3: 15-20.
- 小暮敏博・藤井英子・吉田英人・田村堅志・山田裕久・八田珠郎 (2012)：福島県水田土壌中への Cs 吸着実験. *日本鉱物科学会2012年会講演要旨集*.
- 環境省 (2019)：国直轄除染の完了報告（平成29年9月30日時点）, [http://josen.env.go.jp/material/pdf/josen\\_gareki\\_progress\\_201904.pdf](http://josen.env.go.jp/material/pdf/josen_gareki_progress_201904.pdf) (2019年12月15日 付)
- 勝田洋平・木村叡人・市田知子・森也寸志・登尾浩助 (2016)：福島県飯館村における水田土壌の物理性. *土壌の物理性*, 133: 29-36.
- 国立天文台 (2012)：理科年表. 丸善.
- 松中照夫 (2018)：新版土壌学の基礎 生成・機能・肥沃度・環境. 農文協.
- Nakao A, Thiry Y, Funakawa S and Kosaki T. (2008): Characterization of the frayed edge site of micaceous minerals in soil clays influenced by different pedogenetic conditions in Japan and northern Thailand. *Soil Science and Plant Nutrition*, 54: 479-489.
- 登尾浩助・伊東雄樹・本所靖博・小沢 聖・小清水正美・竹迫紘・菅野宗夫 (2020)：福島県飯館村における農業復興支援の大学による取組み. *水土の知*, 88(2): 111-114.
- 農林水産省 (2012)：平成23年度 食料・農業・農村白書. 第2章東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故の影響と対応. [http://www.maff.go.jp/j/wpaper/w\\_maff/h23/pdf/z\\_1\\_toku2\\_1.pdf](http://www.maff.go.jp/j/wpaper/w_maff/h23/pdf/z_1_toku2_1.pdf) (2019年12月14日付)
- 納富充雄・萱野 肇・長谷川久夫・下坂陽雄・江原信郎 (2005)：X線回折と回折パターンシミュレーションによる Ni-Ti 形状記憶合金の結晶学的検討. *材料*, 54(6): 601-606.
- 太田 健 (2014)：水稲の放射性セシウム吸収抑制対策. *日本土壌肥科学雑誌*, 85(2): 90-93.
- 齋藤 隆・高橋和平・吉岡邦雄・牧野知之・太田 健 (2013)：福島県内の農地における放射性物質に関する研究（第11報）—各種吸着資材施用による玄米中放射性セシウムの吸収抑制効果—, *土肥要旨集*, 59: 152.
- 塩沢 昌 (2012)：土壌汚染の新知見—放射性セシウムの土壌中の挙動と水稲への移行—. *学術の動向*, 17(10): 28-35.
- 鈴木憲子・天野裕理・越智耕太郎・知久馬俊幸 (2015)：天然バーミキュライトによるセシウム回収～粒子径と吸着能の関係, およびカラム法への応用—. *日本イオン交換学会誌*, 26(3): 29-33.
- Tsukada H, Takeda A, Hisamatsu S, Inaba J. (2008): Concentration and specific activity of fallout  $^{137}\text{Cs}$  in extracted and particle-size fractions of cultivated soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99: 875-881.
- 渡邊優香・Saffarzadeh A・東條安匡・島岡隆行 (2014)：都市ひごみ焼却残渣中セシウムの存在形態の同定. *SPring-8 利用研究成果集, Section B*: 89-93.
- 山口紀子・高田裕介・林健太郎・石川 覚・倉俣正人・江口定夫・吉川省子・坂口 敦・朝田 景・和穎朗太・牧野知之・赤羽幾子・平館俊太郎 (2012)：土壌-植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因. *農業環境技術研究報告*, 31: 75-129.