

## 放射性物質沈着初期の農地土壌からの放射性セシウムの抽出

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 公開日: 2019-12-20 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 山口, 紀子, 江口, 定夫, 池羽, 正晴, 藤原, 英司, 牧野, 知之, 谷山, 一郎 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="https://doi.org/10.24514/00003008">https://doi.org/10.24514/00003008</a>

## 放射性物質沈着初期の農地土壌からの 放射性セシウムの抽出

### Radiocesium extraction from arable soils at the initial stage after deposition of radionuclides

山口紀子\*・江口定夫\*\*・池羽正晴\*\*\*・藤原英司\*・牧野知之\*・谷山一郎\*\*\*\*

(平成26年12月2日受理)

#### Synopsis:

Ion exchangeable fractions of radiocesium in the arable soils, which were collected within the initial stage after deposition of radionuclides, were analyzed. The percentage of extracted  $^{137}\text{Cs}$  by  $1 \text{ mol L}^{-1}$  ammonium acetate solution was 36% in average for the soils taken from Ibaraki prefecture.

#### I はじめに

つくば市では、土壌中の東京電力福島第一原子力発電所事故由来放射性核種の大部分は、2011年3月21日から23日および26日の降雨に伴って負荷された(佐波ら, 2011)。土壌中の放射性セシウムが溶脱や植物吸収によって土壌から失われていくのか、あるいは長期にわたり土壌中に存在し続けるのかは、抽出性の違いにより評価できる。水で溶出される画分(水溶性画分)、酢酸カリウムや酢酸アンモニウムなど中性の塩類水溶液によるイオン交換反応で抽出される画分(交換態画分)、中性の塩類水溶液によっても容易に交換・溶出されない画分(固定態画分)に便宜的に大別すると、水溶性→交換態→固定態の順に土壌中で動きにくい画分となる。一般に、交換性陽イオンを抽出するための溶液としては、十分に高濃度の中性塩類溶液を用いれば、交換抽出量に大きな差

はない。ところが土壌中のセシウムイオン( $\text{Cs}^+$ )は、カルシウム塩やナトリウム塩などではほとんど抽出されず、抽出するためにはカリウム塩あるいはアンモニウム塩が必要である。アンモニウム塩による抽出効率が格段に高いのは、 $\text{Cs}^+$ の特徴である(Takeda et al., 2006)。これは、土壌中にフレイド・エッジ・サイトとよばれる $\text{Cs}^+$ を保持する能力がきわめて高い負電荷が存在するためである。過剰のカルシウムイオンやナトリウムイオンによるイオン交換反応で抽出された $\text{Cs}^+$ は、抽出操作の過程でフレイド・エッジ・サイトに再吸着されてしまう。アンモニウムイオンおよびカリウムイオンは、フレイド・エッジ・サイトへの $\text{Cs}^+$ の吸着を阻害することができるため、中性塩のなかでも $\text{Cs}^+$ の抽出効率が低いものと考えられる(山口ら, 2012)。土壌に沈着した放射性セシウムは、時間とともに水溶性→交換態→固定態の順に推移していく(Roig et al., 2007; Takeda et al., 2013)。このよ

\* 土壌環境研究領域

\*\* 物質循環研究領域

\*\*\* 茨城県農業総合センター

\*\*\*\* 元 研究コーディネータ

うな推移はトレーサー実験では確認されているものの、放射性セシウムが沈着した現場土壌でのデータは少ない。

本調査は、放射性物質の沈着初期段階の土壌で、どの程度の放射性セシウムがイオン交換反応による抽出が可能な画分として存在するかを把握することを目的としておこなった。

## II 試料および方法

農業環境技術研究所（農環研）内畑圃場（D1、D2圃場）、農環研内および茨城県農業総合センター内水田圃場の土壌を、最表層0～0.5 cmは、プラスチック製スクレーパーで、0～5 cmは、ステンレス製の100 cm<sup>3</sup> コアサンプラーで圃場内5地点より採取し、混合した。これらの圃場では、放射性物質の沈着以後、耕起などの土壌攪乱はされていなかった。各圃場の土壌分類は、表1に示した。D1圃場では、事故以前より毎年トウモロコシおよび緑肥用の冬小麦が栽培されていた。つくば市の土壌に原発事故由来の放射性物質が降雨により沈着した2011年3月21時点では、冬小麦が栽培されており、小麦の地上部高さは約15 cm、被覆率は60～70%であった。D2圃場はD1圃場の南に隣接した3要素連用試験圃場である。カリウム肥料を15年以上施用していなかった

無カリ区および慣行区より土壌を採取した。D2圃場では2001年以降は作物を栽培せず、雑草管理のみがおこなわれていた。放射性物質の沈着時は裸地であった。D1圃場では耕起前後にサンプルを採取した。土壌は乾燥せず、2 mm篩を通過させ、混合した。乾土12 g相当の未風乾土にpH 7に調整したイオン交換水、pH 7に調整した1 mol/Lの酢酸アンモニウム溶液、酢酸カリウム溶液および酢酸カルシウム溶液120 mLを添加し、1時間往復振とうした。遠心分離後、ポアサイズ0.2 μmのボトルトップフィルター（Thermo Scientific Nalgene）で濾過した。ろ液をプラスチック製円筒容器（V3型、直径7.5 cm、高さ4 cm）に2 cmの高さになるように満たし（約90 mL）、<sup>137</sup>Cs濃度をゲルマニウム半導体検出器（GCW2523S、キャンベラ）で10,000～80,000秒測定した。土壌は2 mm篩を通過後、乾燥させずにプラスチック製円筒容器（V2型、直径7.5 cm、高さ2 cm）に充填し、ゲルマニウム半導体検出器で1,000～5,000秒測定した。各種抽出液による抽出された<sup>137</sup>Cs量を抽出前の土壌中<sup>137</sup>Cs量で除し、抽出率を計算した。また、保存による抽出率変化について検討するため、2 mm篩を通過後に風乾状態で保管してあった一部試料（農環研D2圃場慣行区および農環研黒ボク土水田）については、2年度の2013年10月18日に酢酸アンモニウム抽出率を再測定した。

表1 土壌と抽出液中の放射性セシウム濃度および抽出率

採取地	土壌分類	土地利用・3月下旬の 土地被覆状況	採取深度	採取日	<sup>137</sup> Cs濃度 (Bq/kg)		抽出率 (%)		
					1 mol/L酢酸 アンモニウム 抽出態	1 mol/L酢酸 カリウム 抽出態	1 mol/L酢酸 アンモニウム 抽出態	1 mol/L酢酸 カリウム 抽出態	
茨城県つくば市 農環研内D1	黒ボク土	畑・小麦被覆・耕起前	0～0.5 cm	2011.4.7	4,050	1,520	38		
			0～5 cm		368	178	48		
		畑・小麦被覆・耕起後	0～0.5 cm	2011.4.20	410	136	33		
			0～5 cm		307	74.6	24		
茨城県つくば市 農環研内D2	黒ボク土	畑・無カリ・植被なし	0～0.5 cm	2011.5.6	5,280	1,670	1,390	32	26
			0～5 cm		797	360	257	45	32
		畑・慣行・植被なし	0～0.5 cm	2011.5.6	5,320*	1,700*	32		
			0～5 cm		1,170	282	327	24	28
茨城県つくば市 農環研内	黒ボク土	水田・慣行・植被なし	0～0.5 cm	2011.4.14	4,453	1,657	37		
			0～0.5 cm		4,790*	2,140*	45		
茨城県つくば市 農環研内	低地土	水田・慣行・植被なし	0～0.5 cm	2011.4.14	2,810	1,030	37		
			0～0.5 cm		1,260	407	32		
茨城県水戸市 農総センター内	黒ボク土	水田・無カリ・植被なし	0～0.5 cm	2011.4.26	451	103	23		
			0～0.5 cm		1,370	427	31		
		水田・慣行・植被なし	0～0.5 cm	2011.4.26	360	138	38		
			0～0.5 cm		360	138	38		

\* 風乾状態で保管してあった試料を2013年10月18日に再測定

### Ⅲ 結果と考察

1 mol/L酢酸カルシウム溶液およびイオン交換水によって抽出された<sup>137</sup>Cs濃度は、いずれの土壌においても検出限界(10 Bq/kg乾土)以下だった。<sup>137</sup>Csの酢酸アンモニウム、酢酸カリウム溶液による抽出実験結果を表1に示す。耕起前の土壌では、最表層0~0.5 cmの方が表層0~5 cmよりも<sup>137</sup>Cs濃度が高かった。放射性物質の沈着後、攪乱されていなかった土壌では、<sup>137</sup>Csが表層ほど高濃度で蓄積されていたためである。(山口ら, 2015)。土壌表面から0~0.5 cmと0~5 cmで、酢酸アンモニウム溶液および酢酸カリウム溶液による<sup>137</sup>Cs抽出率に顕著な差がなかった。黒ボク土では、単に土壌と混合するだけでは、固定化が進行しない可能性がある。青森県の黒ボク土では、大気圏内核実験由来の<sup>137</sup>Csは、交換態10%、有機物結合態が20%、固定態が70%の割合で分配していたとの報告がある(Tsukada et al., 2008)。D2圃場0~5 cmより採取した土壌酢酸アンモニウム抽出率は、陸稲を1作栽培した後、35%から10%まで減少した(山口ら, 2013)。また、2012年に福島県近隣から採取した土壌の調査でも酢酸アンモニウムによる抽出率が30%を超える地点は数点しかなかった(農林水産省, 2013)。セシウムは沈着から時間が経過するにつれ、抽出率が減少する(Roig et al., 2007; Takeda et al., 2013)。しかし、農環研内D2圃場の慣行区および黒ボク土水田土壌を風乾状態で2年半保存しても、酢酸アンモニウム抽出率に変化がなかった(表1)。

酢酸カリウム溶液による抽出率は、酢酸アンモニウムによる抽出率よりも低い傾向があった。放射性セシウムを固定するフレイド・エッジ・サイトへのアンモニウムイオン親和性は、カリウムイオンの5倍であると見積もられている(Wauters et al., 1994)。しかし、酢酸アンモニウム、酢酸カリウム溶液による抽出率の差は小さく、抽出された<sup>137</sup>Csの大部分は、フレイド・エッジ・サイト以外の負電荷に保持されている画分であったと考えられた。

### Ⅳ 結論

茨城県内の黒ボク土では、平均36%の放射性セシウムが1 mol/L酢酸アンモニウム溶液により抽出された。茨城県内の土壌では、沈着初期は、放射性セシウムの抽出率が比較的高かったことが示された。

### 謝 辞

サンプリングに協力いただいた研究技術支援室の山口弘氏、荒貴裕氏に感謝の意を表します。

### 引用文献

- 1) 農林水産省 (2013) : ほ場環境に応じた農作物への放射性物質移行低減対策確立のための緊急調査研究の成果について. 報道発表資料. <http://www.saffrc.go.jp/docs/press/130709.htm>. (accessed 2015-03-04)
- 2) Roig, M., M. Vidal, G. Rauret and A. Rigol. (2007) : Prediction of radionuclide aging in soils from the Chernobyl and Mediterranean areas. *Journal of Environmental Quality*, **36**, 943-952
- 3) 佐波俊哉・佐々木慎一・飯島和彦・岸本祐二・齋藤究 (2011) : 茨城県つくば市における福島第一原子力発電所の事故由来の線量率とガンマ線スペクトルの経時変化. *日本原子力学会和文論文誌*, **10**, 163-169
- 4) Takeda, A., H. Tsukada, Y. Takaku, S. Hisamatsu, J. Inaba and M. Nanzyo. (2006) : Extractability of major and trace elements from agricultural soils using chemical extraction methods: Application for phytoavailability assessment. *Soil Science and Plant Nutrition*, **52**, 406-417
- 5) Takeda A, Tsukada H, Nakao A, Takaku Y & Hisamatsu S (2013) : Time-dependent changes of phytoavailability of Cs added to allophanic Andosols in laboratory cultivations and extraction tests. *Journal of Environmental Radioactivity*, **122**, 29-36
- 6) Tsukada, H., A. Takeda, S. Hisamatsu and J. Inaba. (2008) : Concentration and specific activity of fallout Cs-137 in extracted and particle-size fractions of cultivated soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99**, 875-881
- 7) Wauters, J., L. Sweeck, E. Valcke, A. Elsen and A. Cremers (1994) : Availability of radiocesium in soils - A new methodology. *Science of the Total Environment*, **157**, 239-248
- 8) 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. 農業環境技術研究所報告, **31**, 75-129

- 9) 山口紀子・Shahriari Fereshteh・江口定夫・林健太郎・(2013) : イネへの放射性セシウム移行におよぼす窒素施肥の影響. 第50回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集, 165
- 10) 山口紀子・江口定夫・林健太郎・藤原英司・塚田祥文 (2015) : 農業環境技術研究所畑圃場における農作業に伴い巻き上がる土壤粒子に含まれる放射性物質 農業環境技術研究所報告, **34**, 33-41

### 摘 要

放射性物質の沈着初期段階の土壤において、放射性セシウムがイオン交換反応による抽出可能な画分としてどの程度存在するかを調査した。茨城県内の黒ボク土では、平均36%が1 mol/L酢酸アンモニウム溶液により抽出された。