放射性セシウムの農耕地土壌への収着・固定能について

Sorption and fixation of radiocesium in agricultural soils

〇石川奈緒 内田滋夫 田上恵子

OIshikawa Nao, Uchida Shigeo, Tagami Keiko

1. はじめに

セシウム(Cs)の放射性同位体である 135 Cs, 137 Csは,放射性廃棄物の処理・処分に伴い今後環境中に放出される可能性がある。環境中においてこれらの放射性核種が農耕地土壌から作物に移行し, さらに作物を摂取することにより人体へと移行する経路が考えられる。したがって,放射性Csの土壌環境中での挙動を明らかにしなければならない。一般にCsは土壌中に強く収着することが知られており,特にイライトのような 2:1 型の非膨潤性粘土鉱物は選択的にCs⁺やK⁺を固定するサイトを持っている。一度固定されたCsはほとんど土壌溶液中に出てくることはないと考えられる。したがって,新たに添加されたCsがどのくらい土壌に固定するのかを知ることは,植物へのCsの移行や,固定化されない部分,すなわちCsの土壌中における易動性についての知見を得ることにつながり,長期的な評価を行う場合に有益である。これまで,土壌へのCsの収着・固定量と高い相関のある土壌特性は報告されていない。そこで本研究では,農耕地土壌へのCsの収着・固定能についてバッチ収着実験と逐次抽出実験を行い,さらに土壌特性との関係についても検討した。

2. 実験方法

• 試料採取

日本全国の水田 30 地点、畑 29 地点(Andosol 21、Cambisol 12、Flubisol 26)から表層土壌(地表 0-20 cm)を採取し、風乾後 2 mm のふるいを通して実験に使用した。土壌群毎の pH、粘土含量、全炭素含量の幾何平均値について**表 1** に示す。また、和田ら*による X 線回折法を用いて、土壌中の粘土鉱物組成の分析を行った。その際、イライトを示す回折ピークの強度について、ある土壌を 1 とした場合の相対イライト含量を、各土壌中のイライト含量を示すものとして求めた。

・ バッチ収着実験

30 mLのポリ瓶に風乾土壌 1 gと超純水 10 mLを加え, 120 rpm, 23°C条件下で 24 時間振とうした。その後,約 20 kBqの 137 CsをCsClとして添加した。さらに 7 日間,予備振とう時と同様の条件で振とうし、収着平衡に達した後,3000 rpmで 10 分間遠心分離し、上澄み液を 0.45 μ mのメンブランフィルターでろ過した。ろ液の 137 Csの放射能濃度をNaIシンチレーションカウンターで測定し、土壌一土壌溶液分配係数 (K_d) を次式から求めた。

$$K_{\rm d} = \frac{\left(C_i - C_e\right)}{C_e} \cdot \frac{W_l}{W_s}$$

ここで C_i は 137 Csの初期濃度(Bq/L), C_e は収着平衡後のろ液中の 137 Cs濃度(Bq/L), W_l , W_s はそれぞれ溶液の容量(L)と風乾土壌質量(kg)である。

放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences

• 逐次抽出実験

Csの土壌への固定の程度を調べるため、バッチ収着実験後の固相を用いて、逐次抽出実験を行った。 ^{137}Cs 収着後の土壌が入っているポリ瓶に 0.05 M $CaCl_2$ を 10 mL入れ、24 時間振とうし、Ca交換態画分を抽出した。さらにその後、残った固相に 1.6 M $Na_4P_2O_7$ を 10 mL加え、24 時間振とうし、ピロリン酸抽出画分を抽出した。最終的な残渣に含まれるCsは、土壌中の粘土鉱物により土壌に固定した画分であると考えた。土壌へのCs固定率(Fix.Cs)は、次式から求めた。

$$Fix.Cs = \left(1 - \frac{Q_{Ca} + Q_{P}}{Q_{i}}\right) \cdot 100 \quad (\%)$$

ここで、 Q_i はバッチ収着実験の固液分離の際の固相中 137 Cs量(Bq)、 Q_{Ca} はカルシウム交換画分 137 Cs量(Bq)、 Q_p はピロリン酸抽出画分 137 Cs量(Bq)である。

3. 実験結果と考察

 $CsO(K_d)$ 値はAndosolが 550~35730 L/kg(幾何平均値 2910 L/kg), Cambisolが 380~16640 L/kg(幾何平均値 3580 L/kg), Fluvisolが 270~21700 L/kg(幾何平均値 3030 L/kg)であり(**図**1), 土壌群による K_d 値の差はなかった(t検定より)。また,**表 2** に示すように,土壌群ごとに K_d , Fix.Csと粘土含量,相対イライト含量との関係についてSpearmanの順位相関を用いて検討した。その結果,どの土壌群でも相関が見られたのは K_d と相対イライト含量であったが,Fluvisolでは相関が非常に低い。さらに,CambisolではFix.Csと相対イライト

含量の相関が非常に高く、イライト含量が Cs 固定の重要な影響因子であることがわかった。一方 Andosol では、粘土含量、相対イライト含量がともに Fix.Cs と相関が見られないが、これは Andosol が他の 2 土壌群より多くの土壌有機物を含んでおり、この土壌有機物が粘土鉱物への Cs の接触を妨げていると考えられる。

謝辞:本研究は,資源エネルギー庁放射線廃棄物共通技術開発調査費の予算により行われた。 *和田光史,粘土鉱物の同定および定量法, 土肥誌,37,9-17 (1966)

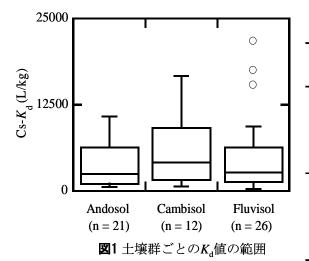


表1 土壌の理化学特性

	22 1	1 工表の在旧于10 正			
土壤分類		рН	粘土含量	全炭素含量	
			(%)	(%)	
Andosol (n = 21)	GM^\dagger	6.1	17.3	4.6	
	Min	5.0	8.9	1.3	
	Max	7.4	47.2	10.8	
Cambisol (n = 12)	GM^\dagger	5.8	30.1	2.1	
	Min	4.8	20.1	0.8	
	Max	7.2	50.6	4.1	
Fluvisol (n = 26)	GM^\dagger	5.9	27.1	2.4	
	Min	5.0	13.5	1.6	
	Max	6.9	50.8	4.7	
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·					

† GM: Geometric Mean

表2 K_d , Fix.Csと土壌特性の順位相関係数 (R_s)

	(b)				
		$R_{\rm s}$			
		Andosol	Cambisol	Fluvisol	
K _d (L/kg)	粘土含量	-	-	0.58 (<i>p</i> < 0.005)	
	相対 イライト含量	0.66 (<i>p</i> < 0.001)	0.80 ($p < 0.005$)	0.41 (<i>p</i> < 0.05)	
Fix.Cs (%)	粘土含量	-	-0.76 (<i>p</i> < 0.005)	-	
	相対 行仆含量	-	0.88 (<i>p</i> < 0.001)	0.68 (<i>p</i> < 0.001)	