

溶存有機物が吸着選択性の異なるサイトの Cs に与える影響

Effects of DOM on the movement of Cs adsorbed to sites with different affinities in the soil

○辰野宇大 濱本昌一郎 二瓶直登 西村拓

○Tatsuno Takahiro, Hamamoto Shoichiro, Nihei Naoto and Nishimura Taku

1. 背景・目的

溶存有機物 (DOM : Dissolved organic matter) は放射性セシウム (Cs) と複合体 (Cs-DOM 複合体) を形成したり, 粘土鉱物への Cs の固定を阻害したりすることで土壤中の Cs 移動を促進させる可能性がある (Weng et al., 2002 ; Qiu & Flury et al., 2008 ; Fan et al., 2014). しかし, 実際に Cs の移動が考えられる流水条件下において DOM が Cs の移動に与える影響を評価した報告はない. また, Cs は土壤中の粘土鉱物に強く吸着する (Comans et al., 1991). 粘土鉱物における Cs の吸着において, 粘土平面部のような吸着選択性の弱いサイトに吸着した Cs は他のイオンによる置換を受けやすい一方で, フレイド・エッジサイト (FES : Frayed Edge Site) や六員環 (SDC : Siloxane Ditrigronal Cavity) といった選択性の高いサイトでは Cs は強く固定される (Sawhney, 1972). Cs の土壤中の移動において, 吸着選択性の異なる吸着サイトを分けて DOM の影響を評価する必要がある. Fan et al. (2014) は Cs の吸着サイトが土壤溶液中の Cs 濃度に依存し, 土壤溶液の Cs 濃度が高い場合, 吸着選択性の低いサイトに Cs が吸着し, Cs 濃度が低い場合では吸着選択性の高いサイトに Cs が吸着できることを示した.

本研究は DOM が吸着選択性の異なるサイトに吸着しうる Cs の土壤中の移動に与える影響を評価することを目的に, 2 つの異なる濃度の Cs 溶液を用いてカラム通水実験を行った

2. 試料

(1) 土壤試料 2015 年に福島県相馬郡飯舘村 F 地区の放棄林地で深さ 30~60 cm から採取したマサ土土壤を供試土壤として使用した.

(2) 有機物試料 2008 年に埼玉県秩父の東京大学演習林内で採取したリターを破砕, 純水と混合して 24 時間振とうした. 懸濁液の孔径 0.45 μm フィルター通過分を DOM 溶液として用いた.

(3) Cs 試料 a) 高濃度 Cs 溶液 ; CsCl 高純度試薬 (関東化学) に加水, Cs 濃度 $1.5 \times 10^{-4} \text{ mol L}^{-1}$ の高濃度 Cs 溶液として使用した. b) 低濃度 Cs 溶液 ; ^{137}Cs 原液に加水, $4.5 \times 10^{-17} \text{ mol L}^{-1}$ の低濃度 Cs 溶液として使用した. また, 各 Cs 溶液に対し溶存有機炭素 (DOC) 濃度 20 mg-C L^{-1} となるように DOM を混合, 72 時間振とうした試料 DOM 混合 Cs 溶液 (Cs+DOM 混合溶液) として使用した. 実験に用いた溶液は, NaOH 溶液と NaBr 溶液を用いて pH6, イオン強度 1.0 mmol L^{-1} に調整した.

3. 実験方法

(1) 土壤カラム 内径, 高さ各 3 cm のアクリル円筒カラムに供試土壤を高さ 1 cm となるよう充填, カラム下端から pH6, イオン強度 1.0 mmol L^{-1} の NaCl 溶液を湛水深 1 cm となるまで通水した.

(2) 通水条件 湛水後, カラム土壤調整段階, Cs 供給段階, Cs 脱離段階の 3 段階に分けて溶液を供給した (Table 1). また, 各段階で DOM 溶液 (DOC 濃度 ; 20 mg-C L^{-1}), もしくは Cs+DOM 混合溶液を適宜供給し, 4 つの異なる実験条件のカラム通水実験を行った.

東京大学大学院農学生命科学研究科 Graduate School Agricultural and life Sciences, The University of Tokyo
キーワード セシウム, 溶存有機物, カラム通水実験

(3) 測定 カラム下端から流出液を 20 PV 毎に回収し, Cs 濃度の測定を行った. また, DOM 混合 Cs 溶液と流出液の一部に対して限外ろ過を行い, 溶液中の Cs-DOM 複合体の濃度を測定した. 更に, 通水後の供試土壌に対し逐次抽出を行い, 吸着態別の Cs 量を測定した (F1: 易交換性, F2: 難交換性, F3: 炭酸塩結合態, F4: 易還元性, F5: 有機物結合態, F6: 固定態, Fan et al., 2014).

4. 結果

供給した Cs 量に対する Cs 供給, 脱離段階でカラムから流出した Cs 量と, 土壌への吸着面別の Cs 吸着量の割合を Fig.1 に示す. 高濃度 Cs 溶液を通水した場合, 限外ろ過の結果から, Cs+DOM 混合溶液や DOM 溶液を供給した時に流出した Cs の一部が Cs-DOM 複合体であることが示された. しかし, DOM を添加しなかった実験条件 (column (i)) と DOM を添加した実験条件 (column (ii), (iii), (iv)) の Cs の流出量, 吸着面別の吸着量には大きな違いは見られなかった (Fig.1-a). つまり, DOM は粘土平面部に吸着する Cs の移動にあまり影響を与えないと考えられる. 一方, Cs 低濃度溶液を通水した場合

Table 1 カラム通水実験の実験条件
Sequence of Column Experiments

		供給段階 ※ () 内は溶液の供給量		
		1.カラム土壌調整	2.Cs供給	3.Cs脱離
実験条件	Column (i)	NaCl (240 PVs)	Cs (240 PVs)	NaCl (240 PVs)
	Column (ii)		Cs+DOM (240 PVs)	NaCl (240 PVs)
	Column (iii)		Cs (240 PVs)	DOM (240 PVs)
	Column (iv)	NaCl(20 PVs) →DOM(240 PVs) →NaCl(20 PVs)	Cs (240 PVs)	NaCl (240 PVs)

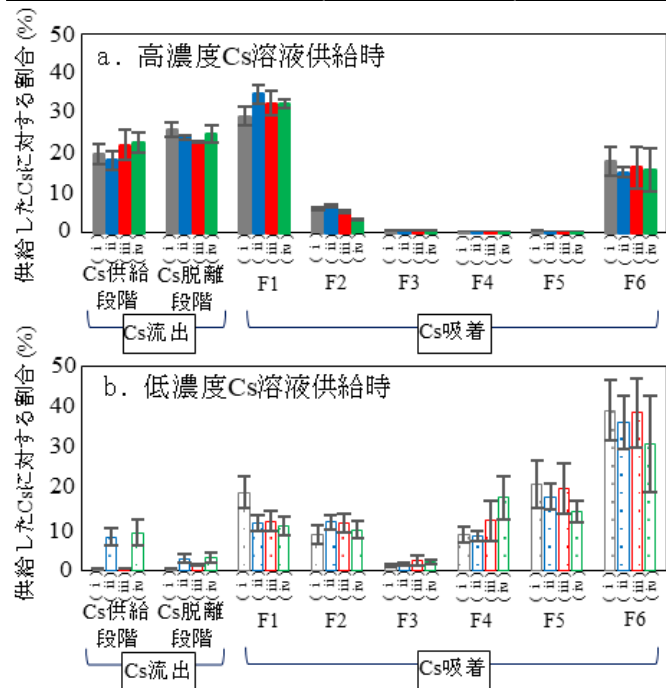


Fig.1 供給した Cs 量に対する流出量と吸着量の割合
(a. 高濃度 Cs 供給時 b. 低濃度 Cs 供給時)
Ratios of Cs discharge & adsorption to total applied

(Fig.1-b), Cs 供給段階で Cs+DOM 混合溶液を通水した実験 (Fig. 1-column (ii)) とカラム土壌調整段階で DOM 溶液を供給した実験 (Fig.1-column (iv)) において Cs 供給段階における Cs 流出が DOM を供給していない実験 (Fig.1-column (i)) よりも大きくなった. また, 限外ろ過を行った Cs+DOM 混合溶液とカラムからの流出液から Cs-DOM 複合体が検出されなかった. 以上より, DOM は Cs の移動媒体としてではなく, Cs との吸着選択性の高いサイトに吸着することで Cs の吸着, 固定を阻害し移動を促進させていることが示された.

4. まとめ

本実験では, Cs 濃度の異なる溶液を用いて DOM が土壌中の吸着選択性の異なるサイトに吸着しうる Cs の移動に与える影響について評価した. Cs が選択性の低いサイトに吸着する場合, DOM による Cs の移動への影響は特にみられなかった. しかし, Cs が選択性の高いサイトに吸着する場合, DOM が土壌に吸着することで Cs の固定を阻害し, Cs の移動を促進していることが示された.

謝辞 この研究は科研費 (15H02467) の助成を受けて行った. ここに記して感謝する.

参考文献 Comans et al.,1991, Geochim. Cosmochim. Acta, 55, 433-440. Fan et al.,2014, Geochim Cosmochim Acta,135:49-65. Sawhney, 1972, Clay Clay Miner., 20,93-100.Qiu and Flury, 2008, Vadose Zone J., 7 :682-697. Weng et al., 2002, Environ. Sci. Technol., 36 : 1699-1704.