

真砂土と黒ボク土に含まれる粘土鉱物の層間距離と放射性セシウムの吸着関係 Interlayer Distances of Clay Minerals in Masado and Andosol Soils and Their Relationship with Radiocesium Adsorption

○鎌田紫帆 *・藤田優樹 **・橋井一樹 ***・登尾浩助 *

Shiho Kamada, Yuki Fujita, Kazuki Hashii, and Kosuke Noborio

1. 背景

2011年に発生した福島第一原子力発電所の事故により¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Csなどの放射性物質が大気中に放出され、環境を汚染した。その中でも¹³⁷Csは半減期が30.2年と比較的長く、環境中に長期にわたり存在し、体内に侵入することで内部被ばくなど人体への影響が問題視されている。そのため、Csの土壤中における挙動を把握することが重要である。

2:1型粘土鉱物のうち、イライトとバーミキュライトといった雲母鉱物は層間にCs⁺を強く固定する(Sawhney, 1964; 小暮ら, 2015)。雲母鉱物の層間に存在するフレイド・エッジ・サイト(Frayed Edge Site; FES)が膨潤している時、Cs⁺がFESに侵入すると層間が崩壊してCs⁺が層間に固定される。

既往研究では、土壤に交換性陽イオン(例えば酢酸アンモニウム)を添加して一定時間振とうし、土壤から抽出できなかった画分を固定態Csとして扱うものが多く存在する。しかし、抽出後の試料に含まれる粘土鉱物の層間距離を調べた例は見当たらず、層間が崩壊した(Csは固定された)のか、一部のCsはまだ抽出可能な状態なのかどうかを断定できない。

菅野(2025)は、¹³⁷Csを含む落葉抽出液を福島県相馬郡飯館村明神岳で採取した真砂土と、岩手大学下台圃場で採取した黒ボク土に吸着させ、1M酢酸アンモニウム溶液で¹³⁷Csを脱着した。そこで、この脱着試験後の試料を用いて粘土鉱物の層間距離を測定することで、Csの吸着と固定、および粘土鉱物の層間距離との関係を明らかにすることを本研究の目的とした。

2. 方法

菅野(2025)の脱着後の試料の有機物を30%過酸化水素水で分解した。その後、超純水を加えて1Lメスシリンダーに移した。式(1)に示すStokesの法則(日本粘土学会, 2009)により粘土画分(0.002 mm以下)を分離した。

$$x = \frac{2r^2(\rho - \rho_w)g}{9\eta} t \quad (1)$$

ここで x は沈降距離(m)、 r は粒子半径(m)であり、粘土粒子の最大直径を $2 \mu\text{m} = 0.002 \text{ mm}$ とした。 η は水の粘性係数(N s m^{-2})、 ρ は土粒子密度(kg m^{-3})、 ρ_w は水の密度(kg m^{-3})、 g は重力加速度(m s^{-2})、 t は静止時間(s)である。水の密度は理科年表(2013)の換算表から算出した。

* 明治大学農学部 School of Agriculture, Meiji University

** 株式会社オリエンタルコンサルタンツグローバル Oriental Consultants Global

*** 京都府立大学生命環境科学研究科 Graduate School of Life and Environmental Sciences, Kyoto Prefectural University

キーワード [土壌鉱物、Csの吸着と固定能力]

液面から、式(1)より算出した粘土粒子の沈降距離間に存在する懸濁液を、サイフォンで回収してコニカルチューブに移し替え、遠心分離機(LC-200, TOMY 社製)に挿入した。回転数を 3000 rpm に設定し、遠心分離を 15 分行い、上澄み液を捨てた。この操作で得た試料 50 mg に超純水を 2 mL 加えて懸濁液にした後、ガラス板に広げて風乾した。その後、X 線回析装置 (SmartLab, Rigaku 社製) による粘土鉱物の同定を行った。CuK α 線を使用し、管球設定 40 kV/30 mA、 $2\theta / \theta = 5^\circ$ から 30° で測定した。

3. 結果と考察

真砂土の X 線回析図を図 1 に示す。 6.3° ($14.0 \text{ \AA}$) のピークはバーミキュライト、 12.4° ($7.13 \text{ \AA}$) のピークはカオリナイトまたはハロイサイトであると考えられる。海老澤と小暮ら(2021)によれば、このバーミキュライトはヒドロキシ層間バーミキュライト (HIV) であり、 $14 \text{ \AA}$ から $10 \text{ \AA}$ への層間収縮に耐性があることが知られる。黒ボク土の X 線回析図を図 2 に示す。黒ボク土は 12.4° のピークが大きく見られた。真砂土と黒ボク土の双方で、 ^{137}Cs の固定を示す層間距離の収縮は確認されなかった。膨潤した HIV を示す $14 \text{ \AA}$ のピークは、0.5 h または 12 h 経過時点で明瞭であり、以降変化は見られなかった。同様に、 $^{137}\text{Cs}^+$ または K^+ による層間収縮を示す高角側へのピークシフトは観察されなかった。層間が収縮も膨潤もしていなかったとすると Cs^+ は表面上で吸着が行われ、移動性が高いと考える。菅野(2025)は、 ^{137}Cs は 0.5 h 経過時点で時間依存性収着に移行していた可能性を指摘した。本研究の結果は、 ^{137}Cs の固定進行を捉えるには至らなかったが、膨潤した HIV 表面上で K^+ がただちに平衡に達し、律速がすみやかに時間依存性収着へと移行したとする菅野(2025)の説明に矛盾しない。

今後は 168 h 経過以降の試料について測定し、ピークシフトの有無を確認する。また、全ての試料に対して 300°C 加熱処理を行い、 K^+ に交換されたものの崩壊しなかった層間を示すピークを分離し、交換態 Cs から固定態 Cs への移行について検討する。

4. 参考文献

- B.L.Sawhney (1964), Sorption and Fixation of Microquantities of Cesium by Clay Minerals: Effect of Saturating Cations, Soil Science Society of America Journal Volume 28, Issue 2 p. 183-186
- 小暮敏博, 向井広樹, 饗聡子(2015), 福島で放射性セシウムを吸着・固定している鉱物は何か, 地球科学, 49, 195-201
- 菅野弘暲, (2025), バッチ吸着実験による ^{137}Cs の分配係数の経時変化と共存イオンの影響. 明治大学農学部農学科 (未公開)
- 海老澤駿, 小暮敏博 (2021), 福島県東部に分布する粘土鉱物の種類とその起源. 第 64 回粘土科学討論会講演要旨集, 127-128

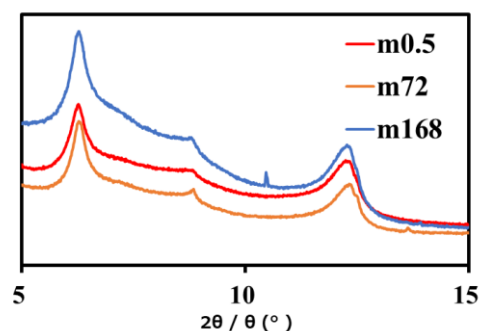


図 1 固液接触時間が異なる真砂土試料における X 線回析図

凡例に付した数値は、固液接触時間 (h) を示す。

Fig1. X-Ray Diffraction Diagrams of Masado at each solid-liquid contact time. Numbers in the legend indicate solid-liquid contact time (hours).

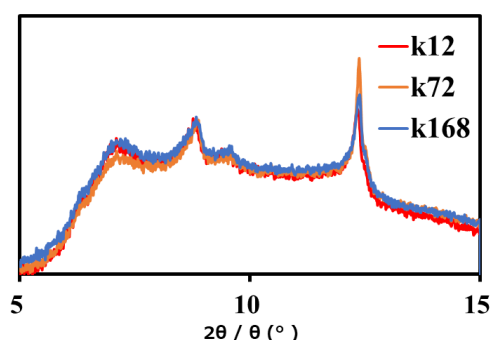


図 2 固液接触時間が異なる黒ボク土試料における X 線回析図

凡例に付した数値は、固液接触時間 (h) を示す。

Fig2. X-Ray Diffraction Diagrams of Andosol Soils at each solid-liquid contact time. Numbers in the legend indicate solid-liquid contact time (hours).