

論文の内容の要旨

生物・環境工学専攻
平成 28 年度博士課程進学
氏名 辰野宇大
指導教員 西村拓

溶存有機物が風化花崗岩土中の放射性セシウム移動に与える影響

2011 年の福島第一原子力発電所事故により、環境中に大量の放射性セシウム (Cs) が飛散した。福島県では県面積の 71 %が森林であり、森林流域からの地下水や河川、大気を通じた Cs の流域外への流出はごくわずかであることが報告されている。そのため、福島第一原子力発電所事故以降に森林流域に沈着した Cs のほとんどは流域中に留まっており、森林流域中の Cs 動態把握が課題となっている。土壌において Cs は粘土鉱物、特に、イライトなどの 2:1 型粘土鉱物に強く吸着される。2:1 型粘土鉱物は Cs を静電的に吸着する粘土平面部や、脱水和した Cs を固定する六員環 (SDC ; Siloxane Ditrigonal Cavity) やフレイド・エッジ・サイト (FES ; Frayed Edge Site) をもち、Cs が粘土鉱物に強く吸着されるため、土壌に沈着した Cs のほとんどは土壌表層に分布している。しかし、福島県内の森林では同県内の畑地や草地と比べ、土壌中の Cs が方移動しやすい可能性が指摘されている。また、樹木等の地上植生に吸着していた Cs や土壌層の上に堆積した落葉等の有機物層の Cs が降雨によって土壌層へ移動し、土壌浸透水とともに Cs が土壌中を移動することが報告されている。

森林土壌中の土壌浸透水に関する既往の報告から、地上植生や有機物層由来の粒径が 0.45 μm 以下の微小な有機物である溶存有機物 (DOM ; Dissolved organic matter) は土壌浸透水と共に土壌を移動したり、土壌に吸着したりすることで、土壌中の Cs の移動に影響を与える可能性が指摘されている。DOM が Cs の移動に影響を与えるメカニズムとしては、土壌に吸着した DOM が土壌への Cs の静電的な吸着を増加させたり、SDC や FES への Cs の吸着を阻害したりすることで Cs の移動に影響を与える可能性や、Cs を吸着した Cs-DOM 複合体が Cs の移動媒体として働く可能性、土壌浸透水中の DOM が土壌に吸着した Cs を脱離させることで Cs の移動を促進する可能性が考えられる。しかし、森林土壌中において DOM がどのようなメカニズムで Cs の移動に影響を与えるのかは明らかになっていない。本研究

では、室内実験を中心に、バッチ実験やカラム通水実験において DOM 試料や Cs 試料の土壌への供給手順を変えることで DOM が Cs の移動に影響するメカニズムの再現を試み、福島県内の森林から採取した風化花崗岩土壌を用いて土壌浸透水の移動に伴う Cs 移動に DOM が与える影響について検討した。

1 章では、本研究の背景と目的について述べた。2 書では既往の研究のレビューを行い、粘土鉱物への Cs 吸着や DOM が Cs の移動に与える影響について整理し、土壌中の Cs 移動に DOM が与える影響を明かにするうえで解決すべき課題と本研究のアプローチに行いて述べた。

3 章では濃度の異なる Cs 溶液を用いて Cs 吸着選択性の異なるサイトへの Cs 吸着の評価を試みた。また、既往の研究で用いられる有機物溶液より低く、実際の土壌浸透水中の DOC 濃度に近い条件の DOM 溶液を土壌試料に与えることで、土壌の Cs 吸着や土壌からの Cs の脱離に与える影響についても検討した。高濃度 Cs 条件のバッチ吸着実験では、土壌試料中の Cs 吸着選択性の低い粘土平面部へ Cs 吸着の寄与が大きいことが考えられ、土壌に吸着した DOM によって土壌への Cs 吸着が増加することが示された。また、低濃度 Cs 条件のバッチ吸着実験は高濃度 Cs 条件よりも SDC や FES といった Cs 吸着選択性の高いサイトへの Cs の吸着の寄与が大きいと考えられ、土壌に DOM が吸着することにより Cs 吸着が減少することが確認された。また、Cs 脱離実験において Cs 吸着土壌から NaCl 溶液や DOM 溶液を用いて Cs が脱離したことから、低濃度 Cs 条件でも土壌に吸着した Cs の一部は粘土平面部に吸着すると考えられる。

4 章では粘土平面部へ吸着する Cs の土壌中の移動を対象に、高濃度 Cs 条件下のカラム通水実験による Cs の移動と、DOM が Cs の移動に与える影響について検討した。DOM を Cs 供給前に与えたカラム実験では土壌に DOM が吸着することで土壌の負電荷が増加し、供給された Cs を交換態 Cs として静電的に土壌に吸着、結果的に土壌からの Cs 流出を減少させることが示された。また、土壌に Cs-DOM 混合液を供給した場合、Cs-DOM 複合体は Cs の移動に影響を与えなかったが、混合液中の DOM が土壌に吸着することで、結果的に Cs が土壌に吸着しやすくなり、土壌カラムからの Cs 流出が減少することが示された。一方、Cs を吸着させた土壌カラムに DOM を供給したカラム実験では、DOM 供給開始直後に DOM が土壌に吸着した交換態 Cs を脱離させ、土壌カラムからの Cs 流出の増加が確認された。また、土壌から流出した Cs の一部が Cs-DOM 複合体として流出することが確認された。

5 章では低濃度 Cs 条件と高濃度 Cs 条件のカラム通水実験を行い、濃度の異なる溶液を用いたカラム通水実験における土壌中の Cs 吸着や Cs 移動、Cs 濃度が異なるカラム通水実験において DOM が Cs 移動に与える影響の違いについて検討した。低濃度 Cs 条件では、土壌カラムに供給した Cs はほとんど土壌に吸着し、高濃度 Cs 条件よりも固定態 Cs の吸着割合が多いことから、低濃度 Cs 条件のカラム通水実験では高濃度条件のカラム通水実験よりも Cs が吸着選択性の高いサイトに吸着する寄与が大きいと考察された。一方、高濃度条件カラム通水実験では高濃度 Cs 条件よりも交換態の吸着割合が高く、Cs 吸着選択性の低いサ

イトへの吸着の寄与が大きいと考察された。また、低濃度 Cs 条件では DOM を Cs 溶液の前に事前に供給したカラム実験や、Cs-DOM 混合液を供給したカラム実験において、DOM が土壤に少量吸着するだけでも土壤カラムからの Cs 流出が増加することが示された。これは、土壤に吸着した DOM が Cs 吸着選択性の高いサイトへの Cs 吸着を阻害したためであると考えられる。一方、高濃度 Cs 条件では 4 章のカラム実験と同様に土壤に DOM が吸着することで土壤カラムからの Cs 流出が減少することが確認された。また、低濃度 Cs 条件、および高濃度 Cs 条件の Cs 溶液を供給後に DOM を供給したカラム実験では、DOM 溶液に切り替えた直後に Cs 流出が増加した。これに対して、SDC や FES に吸着した Cs はイオン交換や有機物による脱離は受けづらいと考えられるため、4 章のカラム通水実験と同様に粘土平面部に吸着した Cs が DOM によって脱離され、土壤カラムからの Cs 流出が増加したと考察した。

6 章では、5 章のカラム通水実験の結果を対象に、飽和・不飽和多孔質体中の溶質移動計算シミュレータである Hydrous-1D を用いて土壤中の Cs 移動の数値実験を行い、土壤中の Cs 移動に対して最適なモデルの検討と土壤固相に吸着した DOM が Cs の移動に与える影響について検討した。高濃度 Cs 条件の DOM を供給していないカラム通水実験を対象に、平衡吸着や非平衡吸着を含む 6 つの吸着モデルの数値実験を行った結果、可逆的な吸着サイト Site1 と FES のような不可逆な吸着サイトである Site2 の 2 つの非平衡吸着サイトを持つモデルで土壤カラムからの Cs 流出を精度良く再現できた。高濃度 Cs 条件において、土壤に DOM が吸着することで Site1 と Site2 の吸着定数が増加し、土壤への Cs が吸着しやすくなることが示された。また、低濃度 Cs 条件では不可逆吸着サイトである Site2 への吸着定数が減少するとともに、可逆吸着のサイトである Site1 の脱離定数が増加した。低濃度 Cs 条件では DOM が土壤に吸着することで、FES のような不可逆的な吸着を示すサイトにおける Cs 吸着が減少するだけでなく、粘土平面部のような可逆的な吸着サイトにおいて Cs が脱離しやすい状態で吸着されるために土壤カラムからの Cs 流出が増加したと考えられる。

7 章では総合考察として、3 章のバッチ実験と 5 章のカラム通水実験の結果をもとに、室内実験の結果をもとに異なる濃度の Cs 溶液を用いたカラム通水実験における吸着選択性の異なるサイトへの Cs 吸着の寄与についてまとめ、高濃度 Cs 条件では粘土平面部のような Cs 吸着選択性の低いサイトへの吸着の寄与が大きく、低濃度 Cs 条件では SDC や FES のような吸着選択性の高いサイトへの起用が大きくなるとまとめた。また、土壤に供給される DOM 溶液の濃度について考察した。既往の研究のような 100 mg-C L^{-1} を超えるような高い溶存有機炭素 (DOC ; Dissolved organic carbon) 濃度の溶液を与えなくとも、実際の森林土壤における土壤浸透水の DOC 濃度と同じくらいの濃度の DOM 溶液でも土壤への Cs 吸着や土壤中の Cs 移動に影響を与えたことから、汚染地域の森林土壤を流れる土壤浸透水中の DOM が Cs の移動に影響を与える可能性があることを示した。

最後に 8 章では本研究の結論についてまとめた。本研究は福島県内の森林土壤から採取した風化花崗岩土壤を用いて、土壤浸透水の移動に伴う Cs 移動に DOM が与える影響につ

いて検討した。また濃度の異なる Cs 溶液を用いて Cs 吸着選択性の異なるサイトへの Cs 吸着や吸着選択性の異なるサイトに吸着する Cs に DOM が与える影響についての検討した。高濃度 Cs 条件では低濃度 Cs 条件と比べ、粘土平面部のような Cs 吸着選択性の低いサイトへの Cs 吸着の寄与が大きくなることが示された。また高濃度 Cs 条件下では、DOM が土壤に吸着することで土壤の負電荷が増加、Cs 吸着も増加することで、結果的に土壤中の Cs 移動量が減少することや、土壤液相の DOM が土壤に吸着した Cs を脱離させることで Cs の移動を促進させることを示した。一方、低濃度 Cs 条件では高濃度 Cs 条件と比べ、SDC や FES のような Cs 吸着選択性の高いサイトへの Cs 吸着の寄与が大きくなる可能性が示された。さらに、土壤に DOM を吸着した場合、土壤への Cs 吸着が減少し、Cs 移動が促進されることが示された。また、Cs 溶液の条件にかかわらず、DOC 濃度 20 mg-CL^{-1} 程度の DOM 溶液を供給することで土壤中の Cs 移動に影響をうけたことから、実際の汚染地域の森林土壤においても土壤浸透水中の DOM が Cs の移動に影響を与える可能性が示された。