

博士学位論文審査等報告書

審査委員 主査 矢内 純太

副査 石田 昭人

副査 細矢 憲

副査 中尾 淳

1 氏名： 小笠原 翔

2 学位の種類： 博士（農学）

3 学位授与の要件： 学位規程第3条第3項該当

4 学位論文題目

Geological and mineralogical factors controlling radiocesium mobility in agricultural soil in Fukushima, Japan.

（福島県農耕地土壌において放射性セシウムの移動性を制御する地質学的・鉱物学的要因）

5 学位論文の要旨および審査結果の要旨

【学位論文の要旨】 別紙に記載

【論文目録】 別紙に記載

【審査結果の要旨】

本論文は、放射性セシウム（RCs）の土壌から植物への移動性を制御する要因を、特に福島県農耕地土壌における雲母鉱物の種類や量に注目して、地質学的・鉱物学的観点から解明した研究を取り纏めたものである。

第1章では、2011年の福島第一原子力発電所の事故による土壌のRCs汚染に端を発して、土壌から農作物へのRCsの移行を規定する土壌特性の解明が求められているという認識をまず述べた上で、土壌のRCs固定能と土壌に偏在する雲母鉱物の構造との関係性について、基礎的知見を幅広く概説している。続いて、雲母鉱物の膨潤化の程度とRCs固定能の定量的関係や、地質（雲母鉱物の種類）と土壌のRCs固定能やK供給能の関連については十分な知見がないことを指摘している。その上で

本研究が、土壤に一般的に含まれる鉱物の RCs 固定能を規定する鉱物学的要因を明らかにするとともに、特に福島県における地質的な地域性と農耕地土壤の RCs 固定能および K 供給能との関係解析により、RCs の土壤から植物への移動性を制御する要因を解明することを目的としていることを明示している。

第 2 章では、雲母以外の主要な粘土鉱物の RCs 固定能の由来を検討するために、スメクタイトおよびカオリン鉱物計 13 試料を用い、X 線回折法 (XRD) による粘土鉱物組成の分析とともに、RCs 固定能の指標である RCs 捕捉ポテンシャル (RIP) の測定を行った結果を論じている。すなわち、XRD ではこれら試料中に雲母鉱物の存在は認められず、概ねスメクタイト、カオリン鉱物に特徴的な回折図が得られた一方、RIP は鉱物の種類によらず幅広い値域を示し、各試料に混在する雲母鉱物由来であると見なせる全 K 量と有意な正の相関を持つことを示した。これにより、スメクタイトおよびカオリン鉱物の RIP は不純物として含まれるわずかな雲母鉱物の量に規定されることを明らかにし、RCs 固定能を持つ粘土鉱物の実態を正確に把握するためには、XRD と全 K 量の測定を組み合わせることが必要であると結論づけている。

第 3 章では、黒雲母からの K 放出に伴う層の膨潤化の程度と、その RCs 固定能を規定するフレイドエッジサイト (FES) 量との定量的関係を調べた結果を論じている。すなわち、粉碎・篩別して調製した黒雲母試料から、テトラフェニルホウ酸四ナトリウムを用いて層間の K を段階的に抽出し、K の抽出量、FES 量とともに、黒雲母の膨潤化程度の指標であるバーミキュライト性電荷量 (Vt charge) を調べた結果、K 放出の初期においては、FES 量および Vt charge は K の放出量に比例して変化したが、K 放出が進行しバーミキュライト構造が XRD 分析で検出される段階においては、K 放出に伴い Vt charge は増加したが、FES 量はほぼ一定の値で推移することを示した。従って、雲母鉱物の RCs 固定能は、K 放出の程度に依存することを明らかにした。

第 4 章では、表層地質の地域間差が、土壤の K 供給能および RCs 固定能に及ぼす影響について論じている。福島県内の花崗岩帯の土壤 (G 土壤) および堆積岩帯の土壤 (S 土壤) 各 14 試料について XRD 分析により鉱物組成を調べるとともに、強度の異なる 4 種の化学抽出を行い、抽出された K と RCs を定量した。その結果、G 土壤は黒雲母等の三八面体型の 2:1 型層状ケイ酸塩鉱物 (三八型鉱物) が主体で、S 土壤はイライト等の二八面体型のもの (二八型鉱物) と三八型鉱物が混合していることを明らかにした。また、1 M 硝酸による K 抽出率は、G 土壤において S 土壤より有意に高い、すなわち K 供給能が高い一方で、RCs 抽出率は、統計的有意差はなかったものの S 土壤より比較的低い値を持つことを示した。これを踏まえて、RCs の農作物への潜在的移行リスクの指標として算出した RCs と K の抽出率比 (RCs/K 比) は、G 土壤の方が S 土壤よりも有意に低く、さらに XRD 分析から求めた三八型鉱物の存在比の値と有意な負の相関を持つことを示した。従って、G 土壤の潜在的な RCs の農作物への移行リスクが S 土壤よりも低いことを化学抽出性の面から解明

した。

第5章では、第4章の化学抽出性の結果を受けて実施した、G 土壌および S 土壌各 4 試料を培地としてイネの栽培試験の結果について論じている。すなわち、土壌の全 ^{137}Cs 濃度に対するイネ地上部の全 ^{137}Cs 濃度の比である ^{137}Cs の移行係数 (TF- ^{137}Cs) を算出し、あわせて土壌の交換態 K (exK) 量、可給態 K (paK) 量、交換態 ^{137}Cs (ex ^{137}Cs) 濃度を定量した。その結果、G 土壌での S 土壌よりも有意に低い TF- ^{137}Cs とともに、高い paK 量、低い ex ^{137}Cs 抽出率 (全 ^{137}Cs 量に占める ex ^{137}Cs の割合)、高い RIP 値を持つことを明らかにした。また全試料を対象とした相関分析によって、TF- ^{137}Cs が paK 量と負の相関を、ex ^{137}Cs の割合と正の相関を示すことを明らかにした。すなわち、G 土壌の比較的低い TF- ^{137}Cs は、この土壌の RCs 固定能だけでなく K 供給能が高いことに起因するという新たな視点を導くとともに、表層地質の情報が RCs の農作物への移行リスクの予測に有用であることを、植物栽培試験においても実証した。

第6章では、本研究の成果をまとめ、RCs の土壌による保持と作物への移行における雲母鉱物やそれを規定する地質の重要性を総括的に述べている。その上で、花崗岩帯の地域では、K の追肥を削減してもコメの RCs 濃度上昇は抑制されると予想されたのに対し、堆積岩帯の地域では、K の追肥がなければコメの RCs 濃度が上昇しやすいという判断を示し、地質情報が福島県内の農耕地における K 施肥量を適切に設定する上で有用であると結論している。

以上、本論文は、これまで十分解明されていなかった、土壌の RCs 保持能における雲母鉱物の機能について重要な基礎的知見を明らかにするとともに、特に福島県における土壌の雲母鉱物の種類や量を規定する地質の影響を実証的に提示しており、土壌学・環境科学・放射性科学の発展に大きく寄与するものである。本委員会はこれらを高く評価し、本論文が博士（農学）の学位論文として十分価値があるものと認める。

6 最終試験の結果の要旨

本論文の内容は、令和3年2月10日午後3時から4時30分まで稲盛記念会館視聴覚室において開催された、公開の博士学位論文発表会で発表された。口頭発表の後、質疑応答が行われた。質問の内容は、K 放出に伴う雲母鉱物の構造変化、RCs と K とのイオン交換における対イオンの影響、土壌中での RCs と K の存在割合と移行係数の関係性、水田で得られた結果の畑地への適用可能性など、多岐にわたる内容であったが、いずれの質問に対しても、的確に回答した。最終試験の結果としては、審査委員全員一致で合格とした。

以上

第5章：異なる表層地質上に生成した福島県農耕地土壌における放射性セシウム および安定同位体セシウムの植物可給度

第5章では、第4章の化学抽出性の結果に関して、実際にこれらの土壌を用いてイネの栽培試験を行い、RCsの移行程度の違いを調べた。G土壌およびS土壌は福島県内の各地質エリアから採取したものを各4試料用い、これらを培地としてイネ（北陸193号）を栽培した。 ^{137}Cs の移行係数（ $\text{TF}^{-137}\text{Cs}$ ）を、土壌の全 ^{137}Cs 濃度に対するイネ地上部の全 ^{137}Cs 濃度の比として算出し、あわせて土壌の交換態K（exK）量、可給態K（paK）量、交換態 ^{137}Cs （ ex^{137}Cs ）濃度を定量した。

G土壌の $\text{TF}^{-137}\text{Cs}$ はS土壌よりも有意に低かった。また、G土壌はS土壌に比べ、高いpaK量、全量に占める ex^{137}Cs の低い割合、高いRIP値を示した。これらの結果から、G土壌の方が低いRCs移行リスクを持つことが確認された。さらに、 $\text{TF}^{-137}\text{Cs}$ はpaK量と負の相関を、 ex^{137}Cs の割合と正の相関を示し、K供給能が高くRCs固定能の高い土壌で $\text{TF}^{-137}\text{Cs}$ が低くなることが実証された。以上の結果から、G土壌の $\text{TF}^{-137}\text{Cs}$ が比較的低いのは、可給態Kの供給能とRCs固定能がいずれも高いためであることが明らかとなった。以上より、表層地質の情報は、RCsの農作物への移行リスクの予測に有用であることが植物栽培試験においても実証された。

第6章：まとめと総論

本研究の結果から、土壌中でのRCsの移動性に関する地質学的・鉱物学的な制御機構の実態を明らかにすることができた。すなわち、第2章・第3章では、膨潤化した雲母鉱物が高いRCs固定能を示すことを実証し、第4章・第5章では雲母鉱物のうち特に黒雲母が高いRCs固定能とK供給能を持つことにより、花崗岩帯の地域におけるRCsの土壌—植物間移行が、堆積岩帯の地域より抑制されることを明らかにした。従って、花崗岩帯の地域では、Kの追肥を中止してもコメのRCs濃度への影響は小さいと考えられるが、堆積岩帯の地域では、Kの追肥がなければ植物が利用可能なK量が不足し、コメのRCs濃度が上昇するおそれがあると判断された。これらの知見は、福島県内の農耕地におけるK施肥量を適切に設定する上で有用であると結論された。