

オートラジオグラフィーおよび温酸抽出による放射性微粒子の土壌内分布における検討-福島県内の帰還困難区域の森林を例に-

Study on distribution of radioactive cesium-bearing microparticles in soils using autoradiography and hot acid extraction

-Case study of forests in difficult-to-return zones in Fukushima Prefecture-

脇嘉理¹ ○辰野宇大² 角間海七渡¹ 佐山葉¹ 二瓶直登³ 大手信人¹

Hiromichi Waki, ○Takahiro Tatsuno, Minato Kakuma, Yo Sayama, Naoto Nihei, and Nobuhito Ohte

1. はじめに

2011年の東京電力福島第一原発事故により、大量の放射性セシウム(Cs; ^{134}Cs および ^{137}Cs) が環境中に飛散し、土壌、河川、周辺の動植物が汚染された。原子炉内の構造物等に ^{137}Cs が取り込まれたガラス質状の不溶性微粒子を放射性微粒子 (CsMPs ; Radioactive cesium bearing microparticles) といい、粒子内 Cs は比較的長期間環境中に存在する可能性が指摘されている[1]。CsMPs は比較的高濃度の Cs を内包し、土壌や河川水、稲、水生昆虫などに付着・混入することで局所的に ^{137}Cs 濃度を上昇させた事例や[2][3][4]、水系の見かけの分配係数の値を増加させ、固相-液相間の Cs 移行を過大評価する要因となることが指摘されている[5][6]。また、CsMPs は降雨時の土砂流出と共に河川を通じて下流へ移動するが[6]、そもそも上流の土壌環境中に CsMPs がどのような傾向で分布しているかは明らかにされていない。CsMPs の簡易的な定量方法として、イメージングプレート (IP) を用いたオートラジオグラフィー法を応用した QCP 法 (quantification of CsMPs) が提案されているが[7]、当該法では原理上 CsMPs 以外に高濃度の Cs 吸着態粘土粒子を検出する可能性や、低濃度の CsMPs を検出できないことが指摘されている。一方、近年の調査では温酸溶液中で Cs を溶出させる Cs 吸着態粘土粒子と、Cs をほとんど溶出させない CsMPs の Cs 溶出特性の違いを利用した定量法も新たに提案され始めている[8]。本研究は、福島県浪江町の帰還困難区域の森林土壌を対象に、QCP 法と温酸処理法を用いた CsMPs の定量結果の比較、および、土壌中 CsMPs の分布調査を行った。

2. 試料及び実験方法

2.1 実験試料

福島県浪江町の帰還困難区域内の森林において試料採取を行った。森林域の溪流が流れる谷間地形において3つの斜面を採取地として設け、溪流の河床付近から斜面上方に向かって各斜面5か所ずつ表層0-5 cm および0-30 cm の土壌試料を採取した。

2.2 QCP 法 (Fig.1-(a))

採取土壌のうち孔径 125 μm の篩を通過したものをジップ付袋に入れ、標準試料とともに IP に一定時間接触させた。IP に蓄積された放射線エネルギーを IP 読み取り機を用いて画像化し、画像処理ソフトを用いて1点当たり 0.06 Bq 以上の点を CsMPs として扱い、試料中の CsMPs 由来の Cs 濃度 (以下、CsMPs 濃度) を求めた。

1 京都大学 大学院情報学研究科 Graduate school of Informatics, Kyoto University, 2 北海道大学大学院 農学研究院 Research Faculty of Agriculture, Hokkaido University, 3 福島大学 食農学類 Faculty of Food and Agricultural Science, Fukushima University

キーワード セシウム, 放射性微粒子, 森林土壌, 福島

2.3 温酸処理法 (Fig.1-(b))

ガラス製メジューム瓶内で土壌試料と塩酸溶液を混合した後、オーブンに入れて 90 度で 24 時間過熱した。加熱後、孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いてろ液を回収し、Cs 吸着態粘土由来の Cs が溶出したろ液の Cs 濃度を測定した。元の土壌の Cs 濃度からろ液の Cs 濃度を差し引き、CsMPs 由来の Cs 濃度を算出した。

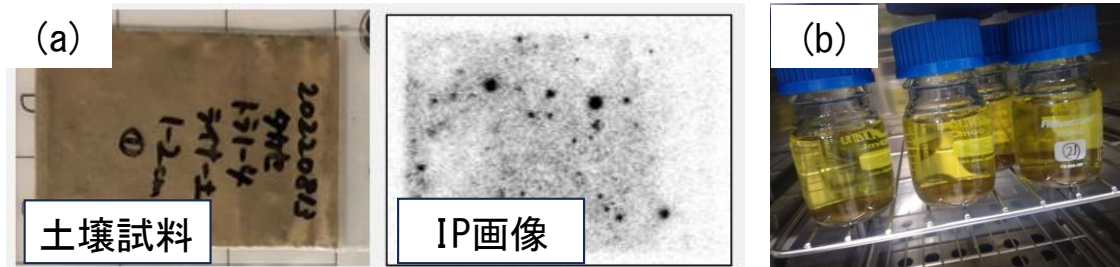


Fig.1 (a)QCP 法および(b)温酸処理法による土壌中の CsMPs の定量
Quantification of CsMPs in soils using (a) QCP method and (b) hot acid extraction

3. 結果と考察

Fig.2 に調査地全 15 地点で採取した表層 0-5 cm 深さの土壌の Cs 濃度 ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$) における CsMPs 濃度の割合を示す。QCP 法では数%程度であった CsMPs の割合が、温酸処理で 10%以上と高くなり、温酸処理によって QCP 法では切り捨てられる低濃度の CsMPs が土壌中に多量に存在することが示唆された。

Fig.3 に調査地の斜面上部における土壌中の ^{137}Cs 濃度、温酸処理と QCP 法で求められた CsMPs 濃度の土壌内鉛直分布を示す。 ^{137}Cs 濃度の分布は土壌表層に集中しており、採取地点の土壌は土砂流出や野生動物による土壌の攪乱の影響が少ないと考えられる。また、温酸処理と QCP 法の CsMPs はともに土壌深さ 10 cm 以深でも確認され、CsMPs が土壌表層に堆積した後、土壌深さ方向に再分布していることが確認された。特に、温酸処理では比較的少量の CsMPs が土壌深くにも分布しており、QCP 法では検出が難しい、低濃度で小さな CsMPs (おそらく数 μm 以下) が土壌深くまで移動していることが示唆された。CsMPs の移動はコロイド様物質の移動原理やミミズなどの土壌中の生物による土壌の攪乱が考えられるが、これら移動メカニズムの把握については今後の課題である。

謝辞 この研究は下記の助成を受けて行った。ここに記して感謝する。

(1. 科研費(20H00435) 2. 放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点 2022 年度および 2023 年度重点共同研究(F-22-31, P-23-23) 3. 令和4年度および例話5年度福島大学環境放射能研究所 学内プロジェクト)

参考文献 [1] Igarashi et al., 2019. J. Environ. Radioact., 205–206, pp.101–118 [2] Ikehara et al., 2020. Chemosphere, 241, 125019. [3] Ishii et al., 2022. PLoS One, 17(5), pp. 1–17. [4] Nihei et al., 2018. J. Radioanal. Nucl. Chem., 318(1), pp. 341–346 [5] Miura et al., 2018. Geochem. J. 52, 145–154. [6] Tatsuno et al., 2023. J. Environ. Manag. 329, 116983. [7] Ikehara et al., 2018. Environ. Sci. Tech., 52(11), 6390–6398. [10] 小暮他, 土壌中放射性セシウムの 深度分布における放射性微粒子の寄与の推定. 日本放射化学会第 66 回討論会, 2022 年 9 月 16 日発表.

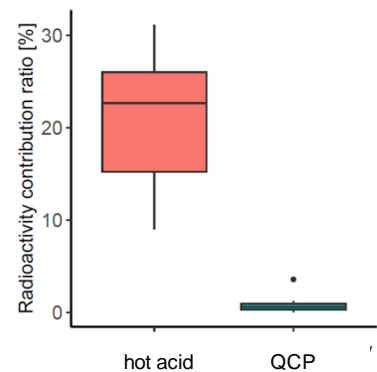


Fig.2 土壌中の Cs 濃度に対する CsMPs の割合
Proportion of CsMPs to Cs conc. in the soil

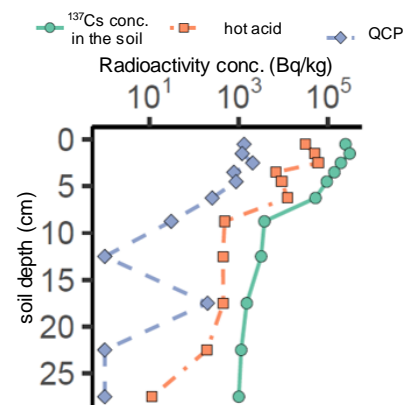


Fig.3 土壌中 CsMPs 鉛直分布
Vertical distribution of CsMPs