

平成30年6月6日現在

機関番号：82110

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K12206

研究課題名(和文) 森林に沈着した強放射能粒子の探索及び樹葉による葉面吸収機構の解明

研究課題名(英文) Fallout of radiocesium-bearing particles and their foliar uptake

研究代表者

田中 万也 (TANAKA, Kazuya)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究副主幹

研究者番号：60377992

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原子力発電所で起きた事故に由来する放射性セシウムが樹木中に取り込まれた後にどのような化学形態として存在しているのかを調べた。常緑樹であるスギ・アカマツ及び落葉広葉樹であるコナラ・コシアブラをそれぞれ実験対象とした。その結果、樹種による違いは認められず、すべての樹種においてセシウムは樹木組織に静電的に吸着(外圏錯体)し、強く固定されないことが分かった。このことは放射性セシウムが樹体内において水に溶けた状態で動きやすいことを意味しており、スギ樹葉において放射性セシウムが生長点に向かって転流していることと調和的な結果であった。

研究成果の概要(英文)：Chemical state of Fukushima-derived radiocesium in trees was investigated. Cesium was weakly adsorbed as an outer-sphere complex on tree tissues, indicating that radiocesium is soluble species and translocated inside tree bodies. This is consistent with the fact that radiocesium is accumulated in growing parts.

研究分野：地球化学

キーワード：放射性セシウム 森林 福島

1. 研究開始当初の背景

2011年3月に東京電力福島第一原子力発電所(以下、福島原発)で起きた事故により大量の放射性物質が環境中に放出された。放出量と半減期の観点から、放出された放射性核種の中でも放射性セシウム(^{134}Cs , ^{137}Cs)の環境挙動に関心が集まっていた。特に、福島県の約7割が森林などの植生に覆われていることから、その汚染状況を調べるのが重要である。そこで、研究代表者である田中は、スギ人工林やコナラ・アカマツ混交林において樹冠から直接生葉試料を採取し、オートラジオグラフ分析により放射性セシウムの分布を調べた(Tanaka et al., 2013a)。その結果、スギ樹葉には粒子状の放射性セシウムが沈着している様子が観察された。さらに、この樹葉試料を純水、洗剤、アセトンを用いて順に洗浄処理を行ったが、50%以上の放射性セシウムが取り除かれず、樹葉に残っていた。アカマツの生葉試料についても同様の処理を行いスギ試料と同様の結果を得た。これらの観測事実は放射性セシウムが何らかの形で樹葉中に安定に取り込まれている可能性を示している。しかし、樹葉中のセシウムの化学形態を明らかにした研究例は福島第一原発事故以前の文献に遡ってみても見当たらない。以上のような背景から、本研究を実施するに至った。

2. 研究の目的

福島原発事故後初期の大気エアロゾル中に含まれる放射性セシウムの半分以上が水に溶けやすい化学形態であったことが分かっている(Tanaka et al., 2013b)。そこで、本研究では、こうした水溶性の放射性セシウムが樹葉や樹皮の表面から吸収された場合に樹体中でどのような化学状態であるのかを明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) EXAFS スペクトル測定

福島原発事故により汚染された樹葉中の放射性セシウムは放射能濃度としては高いが、重量濃度としてはかなり低レベルであるためその化学状態を直接的に明らかにするのは非常に困難である。そのため、本研究では安定セシウム(^{133}Cs)を添加した試料のEXAFS(広域X線吸収微細構造)スペクトル測定を行った。常緑樹であるスギ・アカマツ及び落葉広葉樹であるコナラ・コシアブラをそれぞれ実験対象とした。樹木試料は福島県川俣町山木屋地区の森林において採取した。各樹木を葉、樹皮、心材、辺材の部位ごとに切り分けた後、粉碎した。ただし、コナラ・コシアブラについては、事故時において樹冠は未着葉であったことを考慮して葉試料を用いなかった。粉碎した試料は各々1M塩化セシウム溶液に浸し、室温で三日間振とうしてセシウムを吸着させた。その後、フィルター上に回収し、表面に残った塩化セシウム溶

液を純水で洗い流した。各試料はポリエチレンバッグに封入した後、測定に供した。これらの試料のCs-L_{III}吸収端EXAFSスペクトルの測定を高エネルギー加速器研究機構 Photon FactoryのBL9A及び12Cにおいて行った。市販のセルロース粉末に同様の手順でセシウムを吸着させ、参照試料(樹木の主要成分)として測定した。また、50mM塩化セシウム溶液を調製し、セシウム水和イオンの標準試料として測定した。

(2) セルロースへのセシウム吸着実験

樹木の主要成分であるセルロースへのセシウム吸着実験を行った。純水、NaCl溶液、KCl溶液に安定セシウム(初期濃度1μg/ml)及び市販のセルロース粉末(固液比0.1g/ml)を添加して、室温で24時間振とうした。孔径0.2μmのメンブレンフィルターでろ過した後、溶液中に残存する ^{133}Cs 濃度をICP-MSにより定量した。

(3) 樹葉試料分析

樹木中での放射性セシウムの転流の様子を調べるために2013年11月に福島県川俣町山木屋地区の森林で採取したスギ樹葉の分析を行った。放射性セシウムの分布及び濃度は、オートラジオグラフ分析及びGe半導体検出器を用いて調べた。まず、オートラジオグラフ分析により樹葉中の放射能分布を調べた。その後、放射能の分布をもとに試料を分割してGe半導体検出器でセシウム137の放射能濃度を定量した。

4. 研究成果

(1) セシウム吸着構造

アカマツ試料のCs-L_{III}吸収端EXAFSスペクトルの測定結果を図1に示した。樹葉、心材、辺材、樹皮及びセルロース試料はすべて同様のEXAFS振動スペクトルを示した(左図)。対応する動径構造関数にはセシウムの周囲に配位する酸素原子に由来するピークが認められる(右図)。また、これらのスペクトル

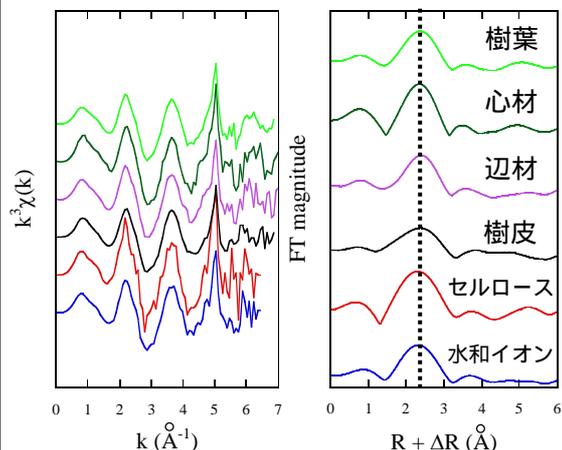


図1. アカマツ試料のCs-L_{III}吸収端スペクトル(左図)EXAFS振動スペクトル(右図)動径構造関数。

ルは水和イオンと類似していた。このことは、樹木の各部位及びセルロースに吸着したセシウムが外圏錯体を形成していることを示している。外圏錯体は静電的な吸着のため、セシウムが樹木中の組織に吸着したとしてもそれほど強く固定されるわけではなく、比較的移行しやすい化学形態であることが示された。落葉広葉樹であるコシアブラも同様に水和イオンと類似した EXAFS スペクトルを示した。また、ここでは示さないがスギ、コナラについても同様の結果であった。すべての樹木が同様の EXAFS スペクトルを示したことから、こうした傾向は樹種による大きな違いはないと考えられる。

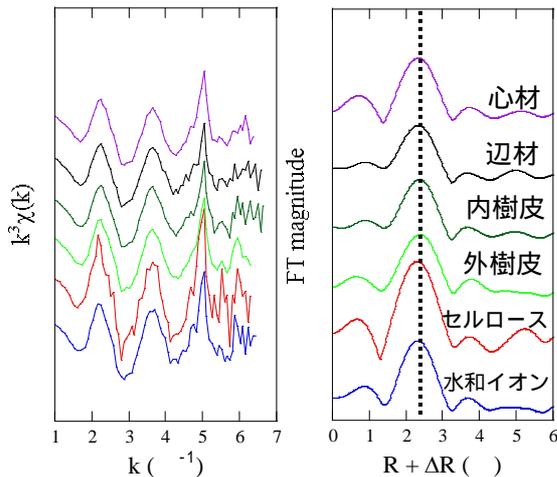


図2 . コシアブラ試料の Cs-L_{III} 吸収端スペクトル。(左図) EXAFS 振動スペクトル。(右図) 動径構造関数 .

(2) セルロースへのセシウム吸着

セルロースへのセシウム分配係数を図3に示した。水溶液の pH の低下とともに K_d が低下し、明瞭な pH 依存性が認められた。NaCl 及び KCl 溶液では塩濃度の上昇とともに K_d 値が低下した。すなわち、セルロースへのセ

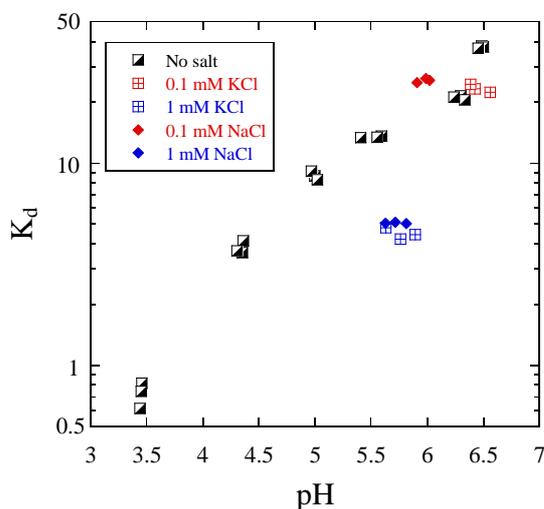


図3 .セルロースへのセシウム分配係数 K_d . K_d (ml/g) は固相 (セルロース) と液相の濃度比で定義した .

シウム吸着では共存する陽イオンの影響を受けやすいことを意味している。こうした K_d の塩濃度依存性は、EXAFS スペクトルの解析結果が外圏錯体を示したことと調和的な結果であると言える。樹液中の K 濃度は 1~3 mM であることが先行研究により報告されており (Smith and Shortle, 2001)、本研究で得られた K_d 値からは樹液に含まれるセシウムが樹木組織に強く吸着されることは期待されない。こうした吸着実験の結果もやはりセシウムが樹体内で動きやすいことを示唆している。

(3) 樹葉中の放射性セシウムの転流

図4にスギ樹葉のオートラジオグラフ分析結果を示した。その結果から、樹葉の先端に向かって放射能が強くなっていく様子が観察された。図中の赤線、黄線、青線で囲まれた部位ごとにセシウム 137 の放射能濃度を測定した結果、それぞれ 4422 Bq/kg、1368 Bq/kg、554 Bq/kg であった。放射能濃度の測定結果も同様に放射性セシウムが先端に向かって濃集していくことを示した。同様の分析を雄花試料に対しても行った (図5)。オートラジオグラフ像から先端の雄花 (赤線で囲まれた部分) の放射能が高いことが分かる。雄花と根元の枝葉のセシウム 137 放射能濃度はそれぞれ 4431 Bq/kg 及び 987 Bq/kg であった。以上のように、スギ樹葉において放射性セシウムが生長点に向かって転流している様子が観察された。上記のとおり、EXAFS スペクトルの解析結果は、セシウムが樹体内において移行しやすい化学形態 (外圏錯体) であることを示した (図1及び図2)。また、セルロースへのセシウム吸着実験で得られた K_d 値から (図3) 放射性セシウムは樹木組織へ強く吸着し固定されるとは考えにくい。EXAFS スペクトルや分配実験の結果は、こうした放射性セシウムが樹葉中で転流している観測事実と調和的であると言える。



図4 .(上図)スギ樹葉の光学写真像。(下図) オートラジオグラフ像 . 赤線、黄線、青線で囲われた部位ごとに切り分けてセシウム 137 放射能濃度の測定を行った。

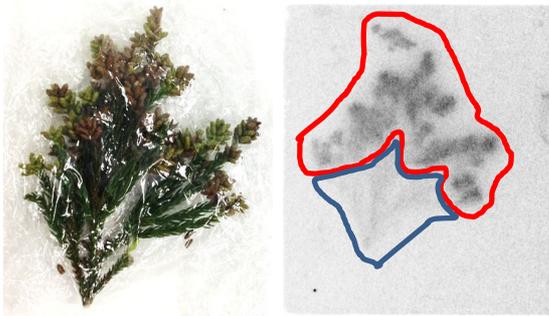


図5 (左図)スギ樹葉の光学写真像。(右図)オートラジオグラフ像。赤線、青線で囲われた部位ごとに切り分けてセシウム137放射能濃度の測定を行った。

<引用文献>

- Tanaka, K., Iwatani, H., Sakaguchi, A., Takahashi, Y. and Onda, Y. (2013a) Local distribution of radioactivity in tree leaves contaminated by fallout of the radionuclides emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295, 2007-2014.
- Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kanai, Y., Tsuruta, H., Shinohara, A. and Takahashi, Y. (2013b) Heterogeneous distribution of radiocesium in aerosols, soil and particulate matters emitted by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: Retention of micro-scale heterogeneity during the migration of radiocesium from the air into ground and river systems. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295, 1927-1935.
- Smith, K.T. and Shortle, W.C. (2001) Conservation of element concentration in xylem sap of red spruce. *Trees* 15, 148-153.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

- Miura, H., Kurihara, Y., Sakaguchi, A., Tanaka, K., Yamaguchi, N., Higaki, S. and Takahashi, Y. (2018) Discovery of radiocesium-bearing microparticles in river water and their influence on the solid-water distribution coefficient (K_d) of radiocesium in the Kuchibuto River in Fukushima. *Geochem. J.* 52, 145-154. 査読有
DOI:10.2343/geochemj.2.0517
- Sakaguchi, A., Chiga, H., Tanaka, K., Tsuruta, H. and Takahashi, Y. (2018) Estimation of desorption ratios of radio/stable caesium from environmental samples (aerosols and soils) leached with seawater, diluted seawater and ultrapure water. *Geochem. J.* 52, 186-199.

査読有

- DOI:10.2343/geochemj.2.0496
- Tanaka, K., Watanabe, N., Yamasaki, S., Sakaguchi, A., Fan, Q. and Takahashi, Y. (2018) Mineralogical control of the size distribution of stable Cs and radiocesium in riverbed sediments. *Geochem. J.* 52, 173-185. 査読有
DOI:10.2343/geochemj.2.0501
- Tanaka, K., Sakaguchi, A., Takeichi, Y., Ono, K., Mase, K., Kato, K. and Kanivets, V.V. (2017) Comparison of Solid-Water Partitions of Radiocesium in River Waters in Fukushima and Chernobyl Areas. *Scientific reports* 7, 12407. 査読有
DOI:10.1038/s41598-017-12391-7
- 田中 万也, 高橋 嘉夫, 福土 圭介, 宇都宮 聡 (2015) 福島原発事故の地球化学: 放射性核種の生成・飛散・移行. *地球化学* 49, 169-171. 査読無
DOI:10.14934/chikyukagaku.49.169

[学会発表](計4件)

- Tanaka K., Yamasaki S. and Takahashi Y. Contamination of forests by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident and chemical species of radiocesium in trees. *Migration2017*
- Tanaka K. and Yamasaki S. Mineralogical control of stable Cs and radiocesium in riverbed sediment in Fukushima. *ICOBTE2017*
- Tanaka K., Fan Q., Sakaguchi A. and Takahashi, Y. Micro to macro-scale observation of radiocesium released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Pacificchem2015*, Honolulu, Hawaii, USA December 15 - 20, 2015. (招待講演)
- 田中 万也, 高橋 嘉夫, 樹皮からのセシウム吸収およびその化学形態, 2015年度地球化学会年会, 横浜国立大学(神奈川県横浜市), 2015/9/16~18.

6. 研究組織

(1)研究代表者

- 田中 万也 (TANAKA, Kazuya)
日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究副主幹
研究者番号: 60377992