

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：82105

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K14495

研究課題名（和文）森林土壌中の放射性セシウム（¹³⁷Cs）の存在形態：事故後6年間の変動と樹木の汚染過程の解明

研究課題名（英文）Six-year trends in radiocesium forms in Fukushima forest soils and implications for mechanisms of the heterogeneous contamination of trees

研究代表者

眞中 卓也（Manaka, Takuya）

国立研究開発法人森林研究・整備機構・森林総合研究所・研究員

研究者番号：00784703

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、福島県の森林において、樹木の放射性セシウム（¹³⁷Cs）汚染のメカニズムの解明や将来予測を行うために、土壌中の¹³⁷Csの存在形態（特に樹木に取り込まれやすい「交換態」）およびその時空間変動を明らかにすることを目的とする。事故以来6年間に渡って採取してきた土壌試料などに対する分析の結果、全¹³⁷Csに占める交換態¹³⁷Csの割合は、時間とともに減少傾向にあることが明らかになった。また落葉層における有機物の種類（葉や樹皮など）によって、¹³⁷Csの保持能が異なることが示唆された。その一方で、一部の¹³⁷Csが難分解性の有機物によって強く保持されている可能性も明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原発事故によって、福島県の森林は大きな被害を受けている。特に樹木の¹³⁷Cs濃度は、¹³⁷Cs沈着量が同じ場所でも大きな変動を示していることが知られており、利用可能な樹木の選定の手間などから、利用再開への足かせとなっている。本研究は、樹木の¹³⁷Csの吸収源の一つである土壌に注目している。土壌中で¹³⁷Csがどのような形態で存在しているのかを、特に化学的な「動きやすさ」の観点から明らかにすることで、樹木の¹³⁷Cs汚染のメカニズムの解明や将来予測に資する内容である。

研究成果の概要（英文）：Following the FDNPP accident in 2011, a large amount of radiocesium (mainly ¹³⁷Cs) was released and deposited in forested areas in Fukushima. I focused on various forms of ¹³⁷Cs (exchangeable form, in particular) in forest soils and their spatiotemporal variation, to elucidate mechanisms of heterogeneous ¹³⁷Cs contamination of trees and to predict the future dynamics of ¹³⁷Cs.

In this study, I used and analyzed soil samples collected over the 6-years observation period after the accident, at several forest sites in Fukushima. I observed decreasing trends in the proportion of exchangeable ¹³⁷Cs in the total ¹³⁷Cs, over the observation period. In addition, different retention capacity of ¹³⁷Cs was suggested for different fresh plant residues (e.g., leaves/needles and bark) in the O horizon. In contrast, my chemical sequential extraction experiments highlighted potentially strong retention of some ¹³⁷Cs by complex organic matter in forest soils.

研究分野：生物地球化学、森林科学、土壌学、地球化学

キーワード：放射性セシウム 福島第一原子力発電所事故 森林土壌 存在形態 物質循環 安定セシウム 土壌有機物

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2011年の原発事故により、放射性物質のセシウム¹³⁷Csが福島県の森林に大量に飛散・沈着した。樹木の¹³⁷Cs濃度は、¹³⁷Cs沈着量が同じ場所でも大きな変動を示していることが知られており、その汚染メカニズムは不明瞭である。

ここで森林土壌は、樹木の¹³⁷Csの吸収源の一つである。そして土壌中の¹³⁷Csの大部分は、粘土鉱物の立体構造に取り込まれ、極めて強く固定されている(固定態)ことが知られている。またこれ以外にも、土壌有機物や粘土鉱物の負電荷に静電的に吸着した「交換態」の¹³⁷Csなどが存在する。交換態の¹³⁷Csは、量は少ないものの、比較的樹木に取り込まれやすい。ただしこれまでの福島の森林土壌に関する研究は、全量での¹³⁷Cs測定などから安定・多量な固定態に注目したものが多く、交換態などの他の存在形態に関する情報は限られる。

2. 研究の目的

本研究では、樹木の¹³⁷Cs汚染のメカニズムの解明や将来予測を行うために、土壌中の¹³⁷Csの存在形態(特に交換態)およびその時空間変動を明らかにすることを目的とする。

研究に当たっては、これまでに所属研究所が、事故後6年間もの長期に渡って定期的に採取してきた、貴重な土壌試料(福島県川内村のスギ・コナラ林の落葉層・鉱質土層(表層0~5cm))のアーカイブを利用する。この試料に対して、酢酸アンモニウム溶液による抽出を行うことにより、交換態の¹³⁷Cs量・割合の変動を明らかにする(実験1、2018年度実施)。

また、特に落葉層の¹³⁷Cs濃度の空間的なばらつきの一因としては、様々な種類(葉や樹皮など)や分解度の有機物が混在しており、それぞれが異なる¹³⁷Csの吸着特性を示す可能性が挙げられる。本研究では、このうち落葉層最表層(L層)に存在する新鮮有機物に注目する。種類別の有機物に、¹³⁷Csと同じ化学的性質を持つ安定セシウム(¹³³Cs)を添加・吸着させることによって、各有機物の¹³⁷Cs保持能を評価する(実験2、2020年度実施)。

さらに土壌有機物には、酢酸アンモニウムでも抽出されないような、化学的に動きにくい形態の¹³⁷Csも一部残存していることが知られており、より長期的な樹木への吸収・森林の¹³⁷Cs循環を理解する上で重要である。そこで落葉層試料に対して、有機溶媒や酸などを利用した逐次抽出試験を実施することによって、これらの¹³⁷Csの評価を行う(実験3、2019年度実施)。

3. 研究の方法

(実験1・土壌中の交換態の¹³⁷Csの時空間変動解析)

事故後6年間に渡って採取してきた各土壌試料と、1 mol kg⁻¹、pH 7.0に調整した酢酸アンモニウム溶液を、落葉層については1:20、鉱質土層については1:10の重量比で混合し、振とう器を用いて2時間振とうした。その後、孔径0.45 μmのフィルターを通してろ液を回収し、ろ液中の¹³⁷Cs濃度をゲルマニウム半導体検出器によって測定した。

(実験2・種類別の有機物に対する¹³³Cs添加実験)

リタートラップや生立木からの剥ぎ取りなどで回収したスギの葉・材・樹皮、およびそれらの主成分である有機化合物(セルロース・タンニン)の試料に対して、¹³³Cs溶液(塩化セシウム)を1:20の割合で添加した。実験開始時の¹³³Cs溶液の濃度は1×10⁻³・10⁻⁴・10⁻⁵・10⁻⁶・10⁻⁷ mol kg⁻¹の5段階に設定し、2・24・48時間の3段階の振とう時間を試みた。振とう後、溶液をろ過して回収し、誘導結合プラズマ質量分析によって¹³³Cs濃度を測定した。

また、実際の森林土壌に混在する粘土鉱物の影響を調べるために、実験1と同様の落葉層・鉱質土層試料、市販の粘土鉱物標準試料(パーミキュライト)などに対しても、同様の実験を行った。さらに一部の実験系においては、¹³³Cs吸着後の新鮮有機物の残渣を回収した。これに対して純水や酢酸アンモニウム溶液による再抽出(方法は実験1に準ずる)を行うことによって、一度吸着した¹³³Csの動きやすさの評価を行った。

(実験3・より動きにくい形態で存在する¹³⁷Csの評価)

実験1にて使用した落葉層の試料に対して、TAPPI法による逐次抽出試験を試みた。有機溶媒(ベンゼン・エタノール混合溶液)を使ったソックスレー抽出によって、試料中の脂肪成分と共に動きうる¹³⁷Csの画分を回収した。さらに脱脂後の残渣に対して、硫酸による加水分解を行うことで、糖やタンパクなどの加水分解されやすい有機物と共に動きうる画分、酸分解を受けないリグニンなどの難分解性の有機物と挙動を同じにする画分に分け、それぞれの¹³⁷Cs濃度をゲルマニウム半導体検出器にて測定した。

4. 研究成果

(実験1・土壤中の交換態の¹³⁷Csの時空間変動解析)

全¹³⁷Csに対する交換態¹³⁷Csの割合は、事故後初期の試料(2011年8月に採取)においても、10%(落葉層)・6.1%(鉍質土層)と小さかった(図1)。福島森林域に放出された¹³⁷Csは、まずは樹冠に捕捉された後に、主に林内雨などに溶存した状態で林床へと移行すると考えられている。この結果は、溶存態の¹³⁷Csの大部分が、事故後数ヶ月という比較的短時間で、土壤中の粘土鉍物などに固定されてしまう可能性を示唆している。

さらにその後6年間にわたって、落葉層・鉍質土層共に、交換態¹³⁷Csの割合は指数関数的に減少していくことが明らかになった(図1)。この結果は、樹木が吸収しやすい¹³⁷Csが徐々に少なくなっているという可能性を示しており、今後の樹木の汚染状況を予測する上で重要な知見となる。

(実験2・種類別の有機物に対する¹³³Cs添加実験)

有機物による¹³³Csの吸着量は Freundlich の吸着等温式で表すことができた。¹³³Csの吸着率は特に樹皮やタンニンで相対的に高く、材やセルロースで低い値を示した(図2)。また、試料に粘土鉍物が含まれると、吸着率が急増することが明らかになった。この傾向は、特に低濃度の¹³³Cs溶液を使った実験で顕著であった。

一方でこれらの有機物に吸着した¹³³Csは、純水や酢酸アンモニウム溶液によって容易に再抽出することができ、比較的動きやすい形態であることが明らかになった。このことから、特に新鮮な有機物による¹³⁷Csの吸着は、事故後の一時的なものであることが示唆される。

ただし、上記の結果はあくまで¹³³Csによる室内実験で得られたものである。環境中における¹³⁷Csと今回の実験で使用した¹³³Csの濃度差による挙動の違い、L層以深のより分解の進んだ有機物の吸着特性などについて、今後も引き続き検証が必要である。

(実験3・より動きにくい形態で存在する¹³⁷Csの評価)

実験1によって、樹木に吸収されやすい交換態の¹³⁷Csの量・割合やその時間変動が明らかになった。一方で落葉層試料中には、酢酸アンモニウムでも抽出されないような動きにくい形態の¹³⁷Csも一部残存していることが示唆された。そこでこの試料に対して、TAPPI法による逐次抽出試験を実施した結果、¹³⁷Csの画分に多くの¹³⁷Csが含まれていることが明らかになった(図3)。セシウムはアルカリ金属元素のひとつであり、基本的には酸に溶けやすい性質を示す。ゆえにこの結果は、難分解性の有機物によって、一部の¹³⁷Csが強固に保持され、動きにくくなっている可能性を示唆している。

一方で、各画分の¹³⁷Cs割合については、明確な時間変化を示さなかった。このことは、有機物の分解によって¹³⁷Csが放出されると同時に、樹冠からの新たな¹³⁷Csの供給や微生物による¹³⁷Csの取り込みなどが起きるなど、¹³⁷Csの形態が落葉層中で平衡状態に近づいている可能性を示す結果である。森林内の長期的な¹³⁷Cs循環を理解する上でも、今後さらなる検証が必要である。

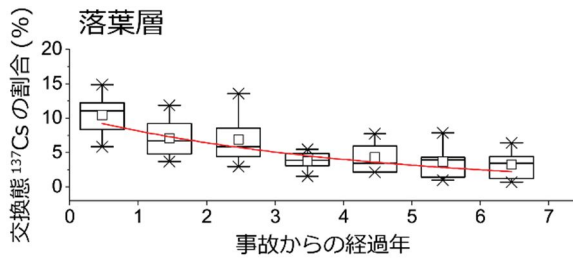


図 1 川内村スギ林の落葉層・鉍質土層試料における、全 ^{137}Cs に対する交換態 ^{137}Cs の割合

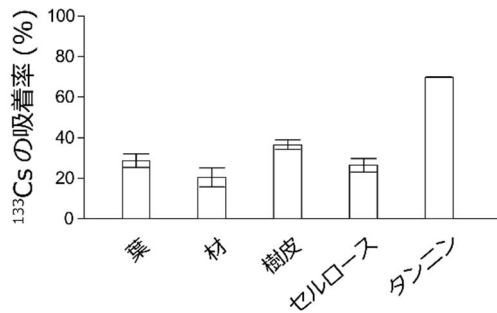
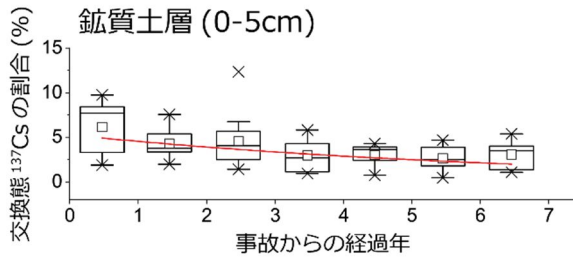


図 2 各種有機物試料に対する ^{133}Cs の吸着率 (^{133}Cs 溶液の濃度 $1 \times 10^{-5} \text{ mol kg}^{-1}$ 、24 時間振とうの例)

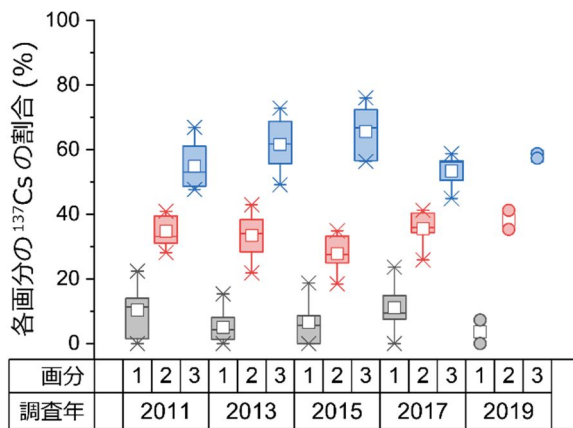


図 3 川内村スギ林落葉層試料における、全 ^{137}Cs に対する各画分 (1: 有機溶媒可溶、2: 酸可溶、3: 酸不溶) の ^{137}Cs の割合

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Manaka Takuya, Ono Kenji, Furusawa Hitomi, Ogo Sumika, Miura Satoru	4. 巻 220-221
2. 論文標題 Chemical sequential extraction of O horizon samples from Fukushima forests: Assessment for degradability and radiocesium retention capacity of organic matters	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 106306 ~ 106306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2020.106306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Manaka Takuya, Ohashi Shinta, Ogo Sumika, Otsuka Yuichiro, Furusawa Hitomi	4. 巻 -
2. 論文標題 Sorption and desorption experiments using stable cesium: considerations for radiocesium retention by fresh plant residues in Fukushima forest soils	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10967-021-07749-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Manaka Takuya, Imamura Naohiro, Kaneko Shinji, Miura Satoru, Furusawa Hitomi, Kanasashi Tsutomu	4. 巻 203
2. 論文標題 Six-year trends in exchangeable radiocesium in Fukushima forest soils	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 84 ~ 92
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2019.02.014	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 眞中卓也、大橋伸太、小河澄香、大塚祐一郎、古澤仁美
2. 発表標題 安定セシウムの吸着試験による新鮮落葉などの有機物のセシウム保持能の評価
3. 学会等名 日本土壌肥科学会2020年度岡山大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 眞中卓也、小野賢二、古澤仁美、小河澄香、三浦覚
2. 発表標題 福島の森林の堆積有機物層において放射性セシウムはどの画分に保持されているのか
3. 学会等名 2019年度日本地球化学会第66回年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Manaka Takuya、Imamura Naohiro、Kaneko Shinji、Miura Satoru、Furusawa Hitomi、Kanasashi Tsutomu
2. 発表標題 Six-year trends in exchangeable and organic matter-bound radiocesium in Fukushima forest soils
3. 学会等名 XXV IUFRO World Congress (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 眞中卓也、大橋伸太、小河澄香、古澤仁美
2. 発表標題 添加実験による森林土壌有機物のセシウム保持能の評価
3. 学会等名 第21回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 眞中卓也、今村直広、金子真司、三浦覚、古澤仁美、金指努
2. 発表標題 福島県の森林土壌における交換態放射性セシウムの割合とその経年変動
3. 学会等名 日本土壌肥料学会2018年度神奈川大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 今村直広、渡邊未来、眞中卓也、大橋伸太
2. 発表標題 137Cs/133Cs比を用いたスギの経根吸収137Cs量の推定2
3. 学会等名 第130回日本森林学会大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 眞中卓也、大橋伸太、小河澄香、大塚祐一郎、古澤仁美
2. 発表標題 安定セシウムの吸着試験による新鮮落葉などの有機物のセシウム保持能の評価
3. 学会等名 日本土壌肥料学会2020年度岡山大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>植物に吸収されやすい放射性セシウムは土壌から急速に減少していた https://www.ffpri.affrc.go.jp/research/saizensen/2019/20190624-01.html</p> <p>森に降った放射性セシウムの一部は落葉層の有機物に強く保持されている https://www.ffpri.affrc.go.jp/research/saizensen/2020/20200807-01.html</p>

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------