

令和 5 年 5 月 19 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K15215

研究課題名（和文）ミクロな物質科学に基づく山岳湖底環境中の放射性セシウム担持体の全容解明

研究課題名（英文）Elucidation of radiocesium-bearing particles in mountain lake sediments based on microscopic material science

研究代表者

菊池 亮佑（Kikuchi, Ryosuke）

北海道大学・工学研究院・助教

研究者番号：50832854

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,400,000円

研究成果の概要（和文）：福島での原子力発電所事故後の地表での放射性核種の移行挙動を理解するためには、放射性セシウム（Cs）の存在形態の多様性や周辺地質を反映した地域依存性についての検証が必要となる。本研究は、福島県東部の花崗岩地域とそれとは母岩の異なる山岳湖環境を対比しながら、土壌や湖底堆積物中で何が放射性Csの担持体となっているのかをナノ・マイクロ分析技術を駆使して明らかにした。さらに、堆積物とそこに含まれる放射性微粒子の両方を定量的に評価することで、放射性Csの担持体の地域依存性の解明を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原発事故後の継続的なモニタリング調査によって水や土壌中、湖底堆積物、水棲生物の放射線量の変遷は明らかになっているものの、どうしてそのような値になっているのかは十分に説明できていない。これは反応に関与する微小な物質の正体が不明確であることに由来しており、本研究は、土壌中や湖底堆積物中で放射性Csを固定しているミクロな物質を直接的に検出・分析を行ったことで、土壌中あるいは湖底での堆積物と水、あるいは周辺の生物との間での反応過程をより明確化することが出来る。

研究成果の概要（英文）：In order to understand the migration behavior of radionuclides at the ground surface after the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, it is necessary to examine the characteristics of radiocesium (RCs) bearing particles and their regional dependences on local geology. In this study, host minerals of RCs in soil and lake sediments collected from several sites of Fukushima Prefecture and an isolated mountain lake were examined by using nano & micro analytical techniques (IP-autoradiography, SEM, FIB-TEM). Furthermore, by quantitatively evaluating both the sediments and the radioactive particles contained in them, the regional dependence of the RCs host materials was elucidated.

研究分野：鉱物学

キーワード：放射性セシウム 粘土鉱物 土壌 湖底堆積物 放射能 汚染土壌 XRD TEM

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

放射性核種の拡散による表層環境への影響については、特に2011年の事故後に大きく注目されるようになり、環境化学・生態学・地球化学などの広い学術領域にまたがって研究が進められている。放出された放射性核種の内、特に長期にわたって高線量を生み出しているのはセシウム-137 (^{137}Cs)であり、担持体として花崗岩土壤に含まれる「風化黒雲母」や、所謂「セシウムボール」と呼ばれる球状ガラス質微粒子(CsMP)といった複数のタイプが報告されている。

実際の放射能汚染地域をフィールドとした研究は、その社会的意義に加えて、「放射性核種の表層環境における拡散・固定に関わる様々なプロセスを室内実験のみならず、天然環境において実証的に調べられる」という点で学術的意義が高い。実際の天然環境での放射性核種の挙動を十分に調べる機会は限られており、また野外調査の機会の面で優位性を持つことから、国内の研究者によって研究成果を積極的に発信することが求められている。

放射性Csの担持体に関する近年の知見は、福島県内を中心に、各地の農地や土壤から微細な放射性微粒子を単離・分析することで進められ、それぞれの放射性微粒子の特性について検証が進められているが、一方で様々な地質環境・土地利用の場所において各タイプの放射性微粒子の存在割合については良く分かっておらず、現在検討されている汚染土壤の地下処分や建設材としての再生利用の際の安全性を評価する上での不確定要素となっている。

比較的福島県から離れた、大沼(群馬県赤城山)や榛名湖(同県榛名山)などの山岳湖においても放射性Csの濃度の高い淡水魚やプランクトンなどの淡水性生物が報告されており、同時に採取された湖底堆積物はさらに高い放射能を示すことから、堆積物中に放射性Csを担持している物質が含まれており、それと周囲に生息する生物との相互作用によって山岳湖中での放射性Csの挙動が支配されていると考えられる。一方で、地質学的な視点によると、花崗岩の風化土壤が広がる福島県東部と、流紋岩・安山岩質の火山の中に位置する山岳湖では放射性Csの担持体となりうる堆積物の組成が大きく異なることが容易に想定される。したがって、既存研究とは異なるタイプの担持体や存在割合が見いだされる可能性が高く、様々な地質学的条件での放射性核種の動態を理解する上で研究を進めるべき対象である。

2. 研究の目的

本研究の主目的は「福島県東部の花崗岩地域とそれとは母岩の異なる山岳湖環境を対比しながら、土壤や湖底堆積物中で何が放射性Csの担持体となっているのかを明らかにし、その地域・母岩依存性を検証すること」である。本研究は、後述するマイクロな分析技術を用いて天然環境中の放射性Csの担持体の正体を直接的に解明することで、堆積物-水-生物間の移行を支配している物理化学的な反応過程について検証する。これは、放射線量のモニタリングといったマクロな既存研究に対して相補的な役割を担っている。

3. 研究の方法

土壤および湖底堆積物に含まれる放射性Csの担持微粒子を特定するために、放射線によって感光する媒体であるイメージングプレート(以下、IP)を用いたオートラジオグラフィ技術と鏡下で鉱物粒子を選別・運搬するマイクロマニピュレータ技術の組み合わせによって放射性Csの担持微粒子の単離を行う。単離した粒子については走査電子顕微鏡(SEM)による観察・化学組成分析を行う他、典型的な粒子に対して集束イオンビーム装置(FIB-SEM)で断面を薄膜化し、透過電子顕微鏡(TEM)による観察を行う。また微粒子の単離と併せて、土壤あるいは湖底堆積物の鉱物学的特徴について、粉末X線回折(XRD)の測定(全岩および粘土画分)とSEMによる観察を行う。最終的に、集計した放射性微粒子の数・比率をそれぞれの地域や既存の報告と比較することで担持体の地域依存性について検証する。

4. 研究成果

(1) 福島県東部地域の複数箇所から採取された土壤試料のキャラクタリゼーションを行った。全岩および0.2-2 μm の粘土画分の粉末XRDの結果から、花崗岩由来の石英・長石・角閃石・黒雲母に相当する鉱物相が結晶性鉱物として全てに含まれており、粘土画分はパーミキュライト・カオリナイトを主として、一部の試料でスメクタイトや黒雲母-パーミキュライト混合層鉱物も含まれる結果を示した。これらの粘土鉱物は花崗岩の風化で主に生じていると考えられる。

(2) (1)で分析した試料中から、IPオートラジオグラフィとマイクロマニピュレータで単離した粒子の計測とタイプ分けを行った結果、先行研究(参考文献)とほぼ類似した3タイプ(OM:有機物と粘土鉱物が集合した粒子, AM:粘土鉱物の集合した粒子, WB:風化した黒雲母の平板状粒子)が主な担持体であることが分かった(図1および図2)。森林土壤を除けば、AMとWBが最も主要であり、森林土壤でのみ有機物に富んだ粒子が他の2タイプと同程度の個数、存在することが読み取れる。一方で、CsMPに相当する粒子は $<45 \mu\text{m}$ あるいは $<25 \mu\text{m}$ の粒径画分のいずれでも確認することが出来なかった。このことからCsMPは土壤粒子全体に

含まれる放射性微粒子の中での比率が非常に限られるか、分布している地域に偏りが存在することが示唆される。また、IP オートラジオグラフィにおいて感光させた粒子数を粒子密度と面積から凡そ算出し、それに対する放射性微粒子の数の比率を算出した所、最も多いものでも0.1%に留まることから、汚染土壤中において放射性 Cs を担持している微粒子は極一部に著しく偏っていることが分かる（表1）。

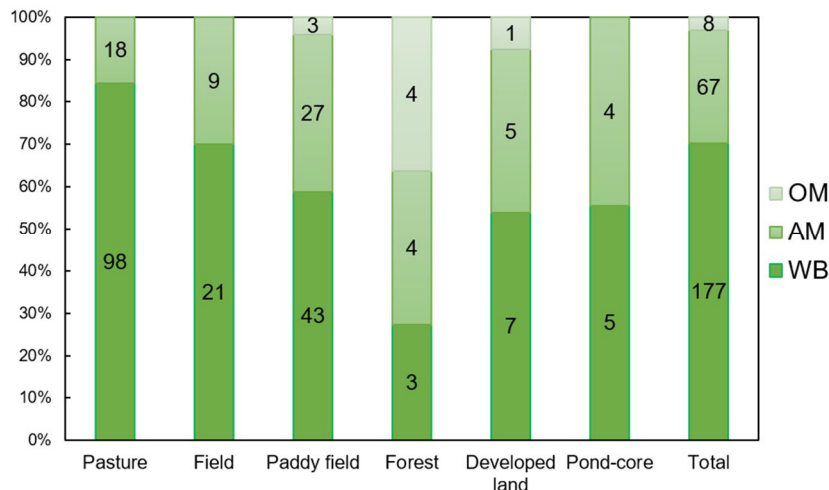


図1. 土地利用別の放射性微粒子のタイプの比率（数値は単離した粒子数）

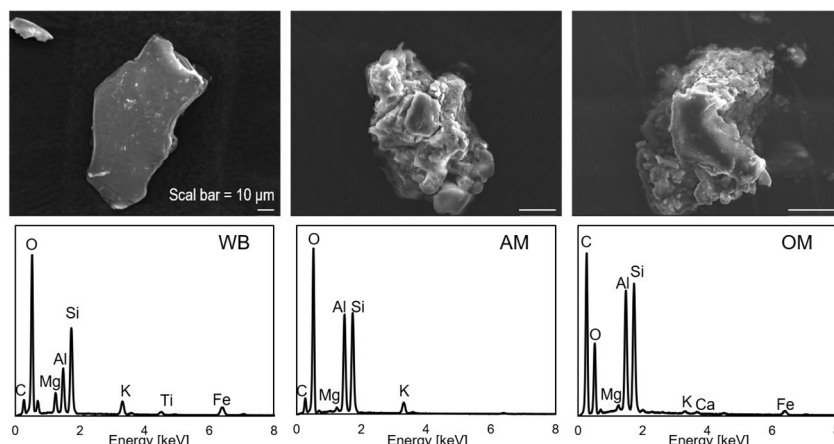


図2. 図1でタイプ分けした典型的粒子の形態（上段）と化学組成（下段）

表1. 45 μm以下の粒径画分における放射性微粒子の存在数と推定割合

	Radioactive particles	Total exposed particles	Abundance probability [%]
N3	80	80,000	0.1
N5-1	56	140,000	0.04
Y1	2	60,000	0.003
P2	9	120,000	0.0075

(3) 未風化の輝石安山岩も含め、群馬県赤城山周辺で採取された土壤試料および湖底堆積物の分析を行った。湖底堆積物の構成鉱物には結晶性鉱物としてクリスタル石や石英、長石が主体として含まれる他、粘土鉱物としてスメクタイト・イライトの存在が確認された。また、全ての試料でXRDおよび電子顕微鏡による観察からAlやSiに富む非晶質物質の存在が示唆された。同様に、土壤試料中にはスメクタイト・イライトが広く観察されるが、これらは母岩中の雲母鉱物に由来するというよりは、土壤中で自生した、あるいは風成塵起源と考えられる。また、AlやSiに富む非晶質物質の寄与が大きいことも特徴であることが分かった。

(4) 山岳湖周辺の土壌試料および湖底堆積物から直径数~20 μm程度の大きさの放射性微粒子を単離するために、オートラジオグラフィとマイクロマンピュレータによる単離を行った。SEMによる観察ではいずれも微細な粘土鉱物が凝集した形態が見られる一方で、福島県東部の土壌で普遍的に観察されたような平板状の風化黒雲母粒子はほとんど確認されなかった。この凝集体について、FIB-SEMによる断面・薄膜化を行い、TEMを用いて観察した(図3)。微細構造観察から、イライトやスメクタイトなどの結晶性粘土鉱物に加えて、SiとAlに富んだより低結晶の粒子(アロフェン・イモゴライトに相当すると考えられる)が担持体となっていることが考えられる。

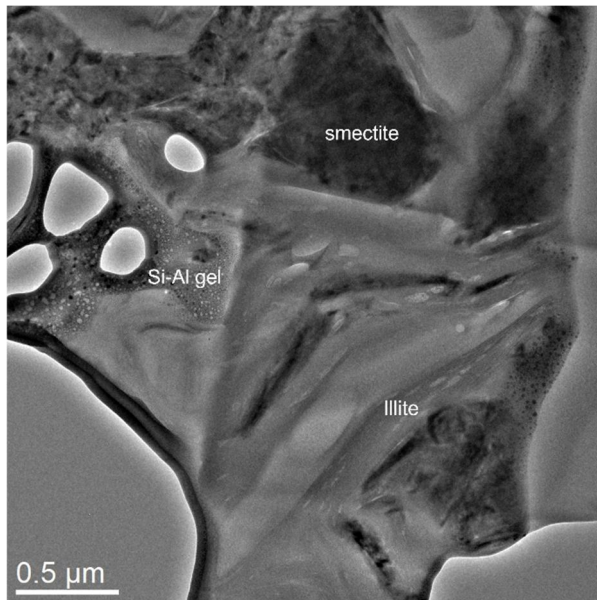


図3. 湖底堆積物中の放射性微粒子のTEM観察像

(5) 一方で、母岩に雲母成分をあまり含まない地質環境で見出されるイライトなどは風成塵由来の可能性も指摘されており(参考文献)、酸素同位体比の測定がその起源推定に有効と考えられる。しかしながら、ケイ酸塩鉱物に対する酸素同位体比の測定方法は液体や有機物・炭酸塩鉱物の測定などとは異なり、効率的なCOガス化の方法を確立する必要がある。そこで、上記の微粒子の単離・解析と平行して、熱分解型元素分析 質量分析計による粘土鉱物の酸素同位体比の簡便な測定方法について進めた。従来法ではフッ化物と混合した状態でレーザーフッ化処理を行う方法が用いられているが、フッ化物と試料、グラファイト粉末の混合物を1450の高温で熱分解することでもCOガス化させることが可能であること、反応性・酸素収率・作業性の観点からフッ化物としてNaFが妥当であることが分かった。代表的な粘土であるSWy-1(米国粘土学会が配布するスメクタイト標準試料)について酸素同位体比 $^{18}\text{O}_{\text{VPDB}} = 16-22 \text{ ‰}$ (文献値は18.6 ‰)を示した。今後、多数の天然試料に対する応用につなげることで、土壌中でCs担持体となりうる鉱物相が現地の母岩由来なのか、風成塵由来かを判別できることが期待される。

(6) 結論として、黒雲母を豊富に母岩に含む福島県東部の花崗岩類(新期・古期阿武隈花崗岩および北上花崗岩)を母岩とする土壌においては風化した黒雲母やそれを含む粘土凝集体が土地利用の種類に因らず最も主体的な放射性Csの担持体である一方で、これをあまり含まない母岩を後背地とする山岳湖環境においてはイライトやSi-Al非晶質物質が主な担持体になると考えられる。前者においては、土壌粒子全体中の極一部の粒子に放射性Csが集中する傾向を明確に示すのに対して、後者は粒子間の差が小さくかつ線量自体の低下の傾向を示すことが分かった。

<引用文献>

Mukai et al. (2014) Speciation of radioactive soil particles in the Fukushima contaminated area by IP autoradiography and microanalyses. *Environmental science & technology*, 48(22), 13053-13059.

Nakao et al. (2019) Asian dust increases radiocesium retention ability of serpentine soils in Japan. *Journal of environmental radioactivity*, 204, 86-94.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 菊池亮佑, 藤井直樹, 木村志照, 佐藤努
2. 発表標題 フィリピンパラワン島ナラ地区における高アルカリ地下水と共存する火山ガラスの特徴
3. 学会等名 第64回粘土科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浅井 春菜, 菊池 亮佑, 大竹 翼, 佐藤 努
2. 発表標題 瀬戸地域における堆積性カオリン鉱床下部のカオリン質サブロライト構成鉱物の産状
3. 学会等名 JpGU2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 菊池 亮佑, 小暮 敏博, 海老澤 駿, 森本 和也
2. 発表標題 混合層鉱物に対するX線および電子回折パターン のシミュレーションによるキャラクタリゼーション
3. 学会等名 第65回粘土科学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 菊池 亮佑, 石渡 翔丸
2. 発表標題 熱分解型元素分析/同位体比質量分析計 (TCEA/IRMS) を用いたケイ酸塩鉱物の 水素・酸素安定同位体比の測定方法の確立とその応用
3. 学会等名 第12回同位体環境学シンポジウム
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------	---------