

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K16112

研究課題名(和文)放射性セシウムの初期沈着直後の土壌深度分布の決定因子と浸透・拡散プロセスの解明

研究課題名(英文) Determinants of initial distribution and penetrant diffusion of the deposited radiocesium

研究代表者

高橋 純子 (TAKAHASHI, Junko)

筑波大学・生命環境系・助教

研究者番号：30714844

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：福島原発事故により放出された放射性セシウムについて、沈着直後の土壌中の初期深度分布がどのように決定するのかは未だ明らかにされていない。そこで、2011年から日本原子力開発機構(JAEA)主導で実施されている広域的な深度分布モニタリング調査地60地点を中心に、土壌の詳細な分析を行い、その拡散・浸透プロセスを検討した。その結果、放射性セシウムの平均移動距離Half depth (cm)と飽和透水係数の間に弱い正の相関が認められた。一方、化学的な諸性質との間には明確な傾向は認められず、初期分布は、セシウムの吸着能を左右する化学性よりも水の浸透性などの物理性の影響が大きいことが示された。

研究成果の概要(英文)：A massive amount of radiocesium was released into the atmosphere and deposited on soils by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident on March 2011. However, determinant of initial distribution of the deposited radiocesium in soils was still unclear. Therefore, the physical and chemical properties of soils in 50 monitoring sites by Japan Atomic Energy Agency (JAEA) were measured to clarify the determinants of initial distribution. As a result, the half depth (cm) of radiocesium was weakly and positively correlated with saturated hydraulic conductivity, but not correlated with any chemical properties such as total carbon contents, radiocesium interception potential (RIP). It indicated that initial distribution of radiocesium was affected by the physical properties that determine the penetration of water rather than the chemical properties that determine the adsorption ability of radiocesium.

研究分野：環境動態解析学

キーワード：放射性セシウム 初期深度分布 透水性 セシウム吸着 下方浸透 Half depth

1. 研究開始当初の背景

放射性セシウムの土壌中の挙動、とりわけその強固な吸着については、核実験が開始された 1940 年代から関心を集め続けた研究課題である。福島原発事故においても、最先端の分析技術と、異分野の研究者たちが集結することによって、その吸着形態に関する研究は大きく進展した。しかしながら、実際に沈着した放射性セシウムが土壌に吸着するまでのプロセスは未だ謎に包まれている。Schimmack et al. (1989) によると、沈着後最初の降雨によりその放射性セシウム濃度は深さに対して指数関数的に減少する分布を示し、その後の雨によってその分布は大きく変化しないことが報告されているが、この沈着直後の初期深度分布がどのように決定されるのかについては、未だ明らかにされていない。これは、フィールドで実証できる機会が事故直後のみと限られているためであり、土壌カラムを用いた添加実験（降雨強度が強いほど下方に浸透；Schimmack et al., 1994）や、経年変化傾向と土壌の性質との関係（有機質や砂質な土壌ほど下方移行する；Rosén et al., 1999）などはあるものの、フィールドレベルで初期深度分布を決める要因についての報告は見当たらない。土壌中の放射性セシウムの深度分布は、土壌自身の遮蔽効果によりわずかな違いでその周辺の空間線量率に大きく影響を及ぼすことが知られている。その深度分布を正確に評価することは、除染の政策決定をはじめ、被ばくのリスク管理などにも重要であるが、沈着初期の深度分布のデータは、その後の深度分布の長期予測をする上で精度向上に大きく寄与する重要なデータである。

これに関し、申請者らは、福島原発事故直後から計画的避難区域である川俣町山木屋地区内の 8 地点の土壌中の放射性セシウムについて、スクレーパープレートを用いた詳細な深度分布モニタリングと種々の土壌分析を行い、沈着初期の深度分布は、土壌の粗孔隙率と関係があることを示した（Takahashi et al., 2015）。この関係は、雨水が速やかに浸透できる土壌ほど、放射性セシウムも下方まで移行していることを表している。一見当たり前の結果であるが、粗孔隙率という簡易な土壌の因子で深度分布を示せる可能性があり、その意味は大きい。しかし、これは 8 地点（内 1 地点は攪乱が認められ、実質 7 地点）のみの結果であり、一般化のためには、さらなる調査が必要である。

2. 研究の目的

福島原発事故後の 2011 年より日本原子力研究開発機構（JAEA）の主導で実施されている 100km 圏内を対象とした広域調査地（全 85 地点）では、スクレーパープレートを用いた土壌中の放射性セシウムの詳細な深度分布調査が行われている。本研究では、放射性セシウムの初期深度分布の情報を有するこれ

らの調査地点において、土壌の物理・化学性の分析を行い、初期深度分布を決定する土壌の因子を明らかにする。とくに、これまでの研究で示唆された放射性セシウムの初期深度分布と粗孔隙率との関係を実証することを目的とする。さらに、深度分布のモニタリング調査により、その下方移行量や移行速度の評価を行い、放射性セシウムが浸透・拡散するプロセスとその要因についても検討を行う。

また、土壌の薄片をイメージングプレートを用いたオートラジオグラフィーにかけ、微細形態写真と重ね合わせた画像解析を行うことで、土壌構造（団粒、孔隙、植物根、菌糸等）のどこに放射性セシウムが存在しているのか特定することを試みる。

3. 研究の方法

データおよび現地調査に基づき、JAEA の全 85 地点のモニタリング調査地（図 1）のうち、除染や土壌の攪乱がなく、現在でも事故直後と同じ土壌の物理性を有していると考えられる地点の選定を行う。

選定した地点において表層土壌（0-5 cm）を 100mL のコアサンプラーで採取し、粗孔隙率をはじめとする土壌の物理性（三相分布、孔隙率、飽和透水係数、粒径組成等）・化学性（pH、有機物含量、溶存有機炭素量、陽イオン交換容量、放射性セシウム補足ポテンシャル、選択可溶性 Al, Fe, Si 等）・生物性（酵素活性量）の分析を行う。沈着初期およびその後の経年別の放射性セシウムの深度分布を指数関数式でフィッティングし、その種々のパラメータと土壌の諸性質との関係を解析することで初期深度分布や、下方移行量を決定する土壌の因子を明らかにする。



図 1 JAEA の深度分布モニタリング調査地

また、100mL コアを用いた不攪乱土壌を固化し、薄片化したものをイメージングプレートを用いたオートラジオグラフィーにかけ放射性セシウムを検出する。その放射性セシウムが土壌の微細形態上のどこに位置するか判別するため、微細形態とイメージングプレートの画像を重ね合わせた解析を行う(図 2)。土壌中の放射性セシウム沈着部位を明らかにすることで、沈着した放射性セシウムの浸透・拡散プロセスの解明を図る。

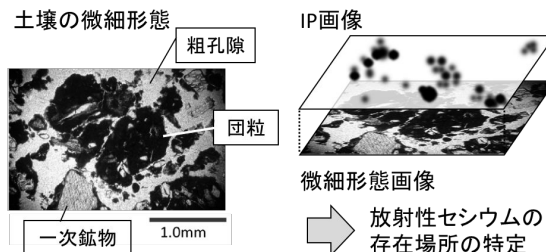


図2 土壌微細形態と IP 画像の重ね合わせ

4. 研究成果

JAEA の深度分布モニタリング調査地点のうち、攪乱がないと考えられる 60 地点を選定した。これらの地点について、2011 年 12 月に実施された放射性セシウムの深度分布調査結果を初期沈着を最も反映したデータとみなし、その存在量が 50%となる深さを Half depth (cm) として評価した。これは、放射性セシウムが平均的に移動した距離とみなすことができる。

Half depth と粗孔隙率の間には有意な相関関係は得られなかったものの、飽和透水係数とは弱い正の相関が得られた(図 3)。このことから、放射性セシウムの土壌中の初期分布は、当初の仮説の通り、水の浸透性が影響していることが示唆された。化学的な諸性質との間にはいずれも明確な傾向は認められず、放射性セシウムの土壌中の初期分布は、放射性セシウムの吸着や阻害に影響を与えらる化学性よりも、水の浸透性という物理性の影響が大きいことが示された。

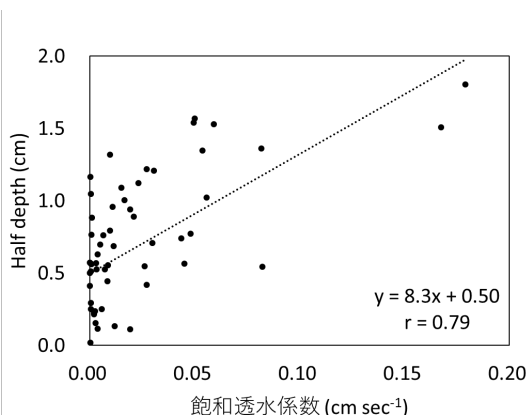


図3 飽和透水係数と沈着初期のHalf depth との関係

さらに、土壌薄片のオートラジオグラフィー分析の結果、放射性セシウムは土壌中に極めて不均一に分布していることが明らかとなった。とくに、粗孔隙周辺や有機物片の上で高濃度の放射性セシウムが検出され(図 4)、沈着初期に水の浸透とともに放射性セシウムが粗孔隙を通過して下方へ集積したこと、沈着後にリターの分解とともに土壌内部へ放射性セシウムが移動していることが示唆された。

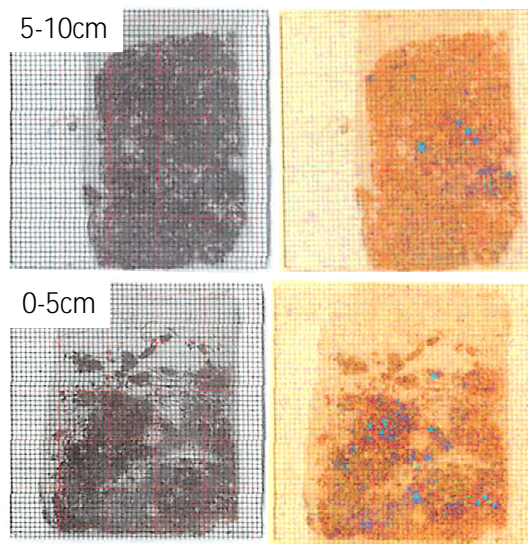


図4 土壌薄片(左)と IP 画像(右)
(青が放射性セシウムを示す。)

また、本研究では、沈着後の初期分布から顕著な深度分布の変化(下方移行)が認められた放棄水田について、より詳細な調査・解析を行った。2011 年から経時的なモニタリングの結果によると、2012 年の調査までは最表層に濃度のピークを持つ典型的な指数関数分布を示したものの、その後は顕著に下方移行が進行している傾向が認められた。2014 年 10 月の時点では、0-10 cm の濃度がほぼ均一化された。Half depth は年々増加しており、調査期間を通じておよそ 1.3 cm/y のほぼ一定の速度で下方移行が進行していると推定された(図 5)。これは、鉍質土壌における移動速度の既存報告と比較すると極めて速い。

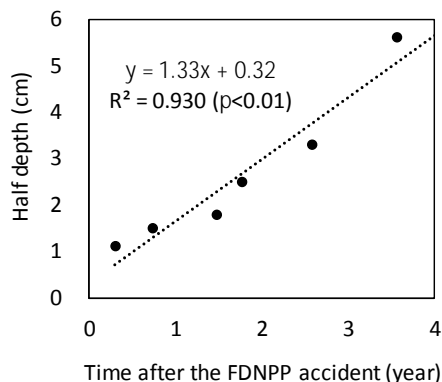


図5 放棄水田における Half depth の時間変化

その移行メカニズムについては、完全には明らかにできなかったものの、動きやすい画分である交換態セシウムの割合は低く、時間とともにわずかではあるが減少していること(2012年2.5% 2013年2.0% 2014年1.8%)、粘土粒子中の放射性セシウム濃度が高いこと(表1)、砂質だが水はけが非常に悪い水田であることなどから、粘土粒子の混和により放射性セシウムが下方へ移行したものと推測された。一方で、透水性の悪いすき床層より下層では放射性セシウムは検出されず、地下水汚染等のリスクは低いことが予想された。放棄水田全般についても同様の傾向が認められるかについては、さらなる検証が必要であるが、このように砂質で透水性の悪いといった性質をもつ放棄水田については、時間とともに放射性セシウムの下方移行が顕著に進行し、除染の効率が低下することから、優先的に除染を進めることが望まれる。

表1 粒径別の放射性セシウム濃度

	粗砂	細砂	シルト	粘土
粒径組成 (%)	38.7 %	32.3 %	12.9 %	16.1 %
¹³⁷ Cs濃度 (Bq kg ⁻¹)	55	318	1404	3574
¹³⁷ Cs存在量 (%)	2.4 %	11.7 %	20.5 %	65.4 %

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

- (1) Takahashi, J., Wakabayashi, S., Tamura, K., & Onda, Y. (2018). Downward migration of radiocesium in an abandoned paddy soil after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 182, 157-164. (査読有)
doi:10.1016/j.jenvrad.2017.11.034
- (2) López-Vicente, M., Onda, Y., Takahashi, J., Kato, H., Chayama, S., & Hisadome, K. (2018). Radiocesium concentrations in soil and leaf after decontamination practices in a forest plantation highly polluted by the Fukushima accident. *Environmental Pollution*, 239, 448-456. (査読有)
doi:10.1016/j.envpol.2018.04.045
- (3) Yang, B., Onda, Y., Ohmori, Y., Sekimoto, H., Fujiwara, T., Wakiyama, Y., Yoshimura, K., Takahashi, J., Sun, X. (2017). Effect of topsoil removal and selective countermeasures on radiocesium accumulation in rice plants in Fukushima paddy field. *Science of the Total Environment*,

603-604.49-56. (査読有)

doi:10.1016/j.scitotenv.2017.06.026

- (4) 田村憲司 & 高橋純子. (2016). 学校及び社会における土壤教育実践講座 6. 土壤教育における放射能教育. *日本土壤肥料学雑誌*, 87(1), 49-53. (査読有)
doi:10.20710/dojo.87.1_49

〔学会発表〕(計6件)

- (1) 高橋純子・日原大智・加藤弘亮・田村憲司・恩田裕一、福島原発事故後6年間のモニタリングに基づく森林土壤中放射性セシウムの経年変化と将来予測、第57回日本ペドロロジー学会、2018年
- (2) 高橋純子・日原大智・須田智也・田村憲司・恩田裕一、土壤中の放射性セシウムの形態と深度分布の経年変化、日本土壤肥料学会2017年度仙台大会、2017年
- (3) Junko Takahashi, Tomoya Suda, Ryo Matsumura, Kenji Tamura, Yuichi Onda, Downward migration of radiocesium in a paddy soil after the FDNPP accident, II international conference on radioecological concentration processes, 2016
- (4) 高橋純子・須田智也・田村憲司・恩田裕一、放棄水田における放射性Csの深度分布と下方移行-事故直後から除染後までの経時変化-、日本土壤肥料学会2016年度佐賀大会、2016年
- (5) 高橋純子・須田智也・松村亮・田村憲司・恩田裕一、福島第一原子力発電所事故後の放棄水田における放射性セシウムの下方移行とその要因、第56回日本ペドロロジー学会、2016年
- (6) Junko Takahashi, Yuichi Onda, Kenji Tamura, Norihiro Matsuda, Effects of soil physico-chemical properties on the depth distribution of radiocesium in soils around the Fukushima NPP, IV international conference MODERN PROBLEMS OF GENETICS, RADIOBIOLOGY AND EVOLUTION, 2015,

〔その他〕

本研究課題を通じて得られた成果の一部を日本科学未来館主催「Lesson #3.11 プロジェクト 原発事故から7年、放射能汚染の状況はどこまで改善したのか」のポスターセッションにおいて発表した。

参考URL

<http://www.miraikan.jst.go.jp/event/1801311422532.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 純子 (TAKAHASHI, Junko)

筑波大学・生命環境系・助教

研究者番号：30714844