

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 22 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24550176

研究課題名(和文)放射性同位体の土壌から水圏への移行に及ぼす共存微量元素と微生物の影響

研究課題名(英文) Effects of Coexistent Trace Elements and Microorganisms on Migration of Radioactive Isotopes from Soil to Hydrosphere

研究代表者

中島 覚 (Nakashima, Satoru)

広島大学・自然科学研究支援開発センター・教授

研究者番号：00192667

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)：環境中の天然放射性核種の土壌から水圏への移行を他の微量元素の移行との関係で明らかにするとともに、水中の化学的環境や微生物との関係で明らかにした。

広島大学東広島キャンパス内の河川中に存在するバイオマットを使ったモデル実験を行い、放射性核種の吸脱着について明らかにした。また、バイオマットを電子顕微鏡で観察し、EDXによりバイオマットの元素組成を調べた。

これまでの知見を基に福島第一原子力発電所事故で汚染された福島の支援に関する研究へと展開した。具体的には、福島市の森林下流水域の水田から基準値超の汚染米が出たが、その原因を探った。

研究成果の概要(英文)：The relation between environmental radioactivity concentration and microbial mat activity in the water samples of Higashi-Hiroshima Campus, Hiroshima University was investigated. EDX revealed that microbial mat contains iron, aluminum, silicon and phosphorus. Model experiment revealed that the potassium was adsorbed by living microorganism in the microbial mats, while it was not adsorbed by dead microbial mat. Iron was adsorbed by both living and dead microbial mats. The present results explained the increase in the total beta-radioactivity of water sample in summer and the decrease in winter.

Contaminated rice was observed in the rice from the paddy field in Fukushima City. We investigated four paddy fields (A, B, C and D) in Fukushima city. The fields are close to mountains. The radioactivity of rice in the husk from B was higher than those from A, C and D. The transfer rate of radioactive cesium from soil to rice was compared with the rate of potassium.

研究分野：放射化学

キーワード：環境放射能 微生物影響 福島土壌 移行 放射性セシウム カリウム 共存元素

1. 研究開始当初の背景

広島大学東広島キャンパスの環境水の放射能測定を長年続けてきた。その結果、全放射能に季節変化が認められた。大気中の環境放射能に季節変化が認められることはよく知られているのに対し、環境水中の放射能に関しては珍しい例である。これまでその原因について研究してきたが、東広島市及び広島大学東広島キャンパスの環境水の全放射能は、核種別線測定の結果より、 ^{214}Pb の放射能が支配的な場所と ^{40}K の放射能が支配的な場所があることが分かっている。また、下水の全放射能が高く、これはカリウム濃度が高いためであることが分かっている。さらに、トリウム系列核種の放射能濃度が微生物の影響を受けることを予備的に確認している。

2. 研究の目的

(1) 本研究では、環境中の天然放射性核種の土壌から水圏への移行を他の微量元素の移行との関係で明らかにするとともに、水中の化学的環境や微生物との関係で明らかにする。

(2) 広島大学東広島キャンパス内の河川中に存在するバイオマットを使ったモデル実験を行い、放射性核種の吸脱着について詳細に調べる。

(3) これまでの知見を基に福島第一原子力発電所事故で汚染された福島の支援に関する研究へと展開する。具体的には、福島市の森林下流水域の水田から基準値超の汚染米が出たが、その原因を探る。

3. 研究の方法

(1) 広島大学東広島キャンパス内の環境水は毎月、東広島市内の11か所の環境水は2か月に一度サンプリングを行う。このサンプルの全放射能濃度、核種別線測定、ICP発光分析を用いた共存元素の測定、COD測定、BOD測定を行い、環境水中の全放射能に及ぼす因子について検討する。

(2) 広島大学東広島キャンパス内の河川中でバイオマットと呼ばれる微生物がつくる金属鉱物が分布している河川の状況を調査する。このバイオマットを電子顕微鏡で観察する。そしてこのバイオマットを使って水中の鉄、マンガン、カリウムの吸脱着実験を行い、 ^{40}K の土壌から水への移行に及ぼす微生物の影響を検討する。

(3) 福島市の森林下流水域の水田から土壌、水、稲をサンプリングする。それらの放射能をGe半導体検出器で測定する。そして ^{40}K 濃度と放射性セシウム濃度との相関を検討することにより汚染米発現の原因を探る。

4. 研究成果

(1) まず、環境水中の全放射能濃度は水中のカリウム濃度で決定されることが分かっていたが、それを確認することができた。さらに、カリウム濃度とナトリウム濃度の相関をとることにより、二つの相関があることが分かった。二つの相関は、地層などの土壌圏の違いを反映している可能性が示唆された。東広島キャンパス内の環境水の鉄濃度、マンガン濃度は夏季に低く、冬季に高くなることが観測された。この結果は、夏季の水温が高い時期はバイオマットが活発に活動して水中から鉄、マンガンが取り込まれ、水中の鉄濃度、マンガン濃度が下がると説明された。これを確かめるためにモデル実験を行い、バイオマットが存在する場合、鉄濃度は室温では時間とともに下がっていくのに対し、低温では減少するものの室温ほど大きくは減少しないことが分かり、上記の考えが支持された。

キャンパス内の環境水の全放射能濃度は夏季に高く、冬季に低くなるように見えたが、その変化は顕著ではなかった。鉄濃度、マンガン濃度が下がると放出核種が溶け出すようでもあるが、もともと全放射能濃度が低い地点であるため、今後さらに検討する必要がある。COD測定の結果と全放射能濃度の結果に相関がみられ、有機物量の増加とともにカリウムが溶出しやすくなり、全放射能濃度が増加することが考えられた。

(2) 広島大学東広島キャンパス内の河川中でバイオマットと呼ばれる微生物がつくる金属鉱物が分布している河川の状況を調査した。その結果、同じ河川中でもバイオマットの存在量に違いがみられた。それぞれの場所の鉄、マンガンなどの重金属、カリウムなどのアルカリ金属の水中濃度をICP発光分析により求めた。その結果、バイオマットがたくさん存在する場所の水には鉄、マンガンの存在量が高いことが分かった。

バイオマットを使って水中の鉄、マンガン、カリウムの吸脱着実験を行った。この吸脱着実験では水温を変えて実験を行った。さらに、バイオマットをオートクレーブ処理して同様の実験を行い、バイオマットの活動との関係を明らかにした。カリウムに関しては、採取したままのバイオマットでは吸着するのに対し、オートクレーブ処理すると脱着がみられることが分かった。水中の全放射能は主として ^{40}K に起因することをすでに明らかにしているが、その季節変化はバイオマットによるカリウムの吸脱着に起因することが分かった。

バイオマットの顕微鏡写真を撮れるように試料調製条件を検討した。エポキシ樹脂を用いたり、カーボンテープを用いたりして電子顕微鏡写真が撮れるようになった。電子顕微鏡写真は、キャンパス内のバイオマットだけでなく、東広島市内の別の河川から採取し

たバイオマットについても観察した。

バイオマットのエネルギー分散型X線分析を行った。その結果、バイオマット中の元素組成が分かった。いずれのバイオマットからも鉄、アルミニウムは観測された。また、採取場所の違いにより、マンガンの存在量に変化があった。これらはバイオマット中、均一に分布していることが分かった。

(3) これまでに得られた結果をもとに、福島市の森林下流水域の水田から基準値超の汚染米が出た原因を探った。

調査した田は4枚あり、森林側からA,B,C,Dとした。土の放射能濃度は田に違いがみられ、¹³⁷CsではC>D>A>Bの順番、¹³⁴CsではC>D>A>Bの順番、⁴⁰KではD>C>A>Bの順番であった。Bの土は、他の田の土に比べて、放射性セシウム、⁴⁰Kとも低いことが分かった。それぞれの田の水のICP発光分析より、Bの田の水中のFe濃度が高くなっていた。これは、これまでの研究より微生物活動との関係が推測された。放射性セシウムの土から根への移行率では、A,Bの田ではC,Dの田より大きいことが分かった。根から茎への移行率では、⁴⁰Kの移行率が大きいと放射性セシウムの移行率が小さいことが分かった。さらに茎からもみへの移行率では、A,Bの田では、C,Dの田より、放射性セシウムの移行率が大きいことが分かった。BとAの田のもみの放射性セシウムが他の田よりわずかではあるが高い傾向が見られた。また、稲中の放射性セシウム濃度は時間とともに変化する可能性が推測された。以上より、もみの放射性セシウムの濃度は土の放射能濃度には無関係であること、共存するカリウム濃度と関係することが分かった。また、その前の年度と比較して、それぞれの放射性セシウムの濃度は大きく減少していた。

本研究課題では、微生物の活動状況や共存元素と環境水中の全放射能濃度との関係を明らかにしてきた。これは環境中の⁴⁰Kなどのアルカリ金属の土壌から水への移動を明らかにするものであり、土壌中の放射性セシウムの稲、もみへの移行について理解するために意義があり、汚染米発現について理解するためにも重要である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 5件)

S. Nakashima, A. Sasai, K. Koga, H. Yasuhara, A. Matsushima, K. Inada, Environmental Radioactivity of Water Samples Collected in Higashi-Hiroshima Campus, Hiroshima University, Japan, Radiation Protection, Dosimetry, 査読有、May 1, 1-4, 10.1093/rpd/ncv242 (2015).

稲田晋宣、松嶋亮人、木庭亮二、寺元浩昭、中島 覚、環境放射能動態における微生物の影響に関する研究～各種元素が微生物に与える影響の検討～、Proceedings of the 15th Workshop on Environmental Radioactivity, 査読有、2014, 58-63 (2014).

松田尚樹、中島 覚、水中、土中の放射性セシウムと稲の吸収 中間報告書、日本放射線安全管理学会誌、査読無、13, 84-91 (2014).

古賀和樹、松嶋亮人、稲田晋宣、中島 覚、東広島市の河川、池水、下水の環境放射能とアルカリ金属、希土類元素の関係、Proceedings of the 14th Workshop on Environmental Radioactivity, 査読有、2013, 222-226 (2013).

古賀和樹、河合智史、松嶋亮人、稲田晋宣、中島 覚、広島大学東広島キャンパス中の環境放射能、金属元素とバイオマットの関係、Proceedings of the 13th Workshop on Environmental Radioactivity, 査読有、2012, 138-143 (2012).

[学会発表](計17件)

Nguyen T-H, S. Nakashima, Concentration of Cesium-134 and Cesium-137 in Soil and Rice in Fukushima Prefecture, 第10回放射線モニタリングに係る国際ワークショップ、大洗(2015年3月1日).

Y. Nabae, S. Nakashima, One Consideration Concerning Pathway of Radioactive Materials Caused by Tsushima Current and Soya Current, The 4th Int. Symp. on Phenix Leader Education Program for Renaissance from Radiation Disaster, Hiroshima (2015年2月14日).

Nguyen T-H, S. Nakashima, Concentration of Cesium-134 and Cesium-137 in Soil and Rice in Fukushima Prefecture, The 4th Int. Symp. on Phenix Leader Education Program for Renaissance from Radiation Disaster, Hiroshima (2015年2月14日).

M. Tsujimoto, S. Miyashita, S. Nakashima, Measurement and Decontamination of Radioactive Cesium from Soil in Fukushima, The 4th Int. Symp. on Phenix Leader Education Program for Renaissance from Radiation Disaster, Hiroshima (2015年2月14日).

稲田晋宣、松嶋亮人、木庭亮二、寺元浩昭、中島 覚、アルカリ金属が環境中の微生物に与える影響、日本放射線安全管理学会第13回学術大会、徳島(2014年12月4日).

中島 覚、汚染米発現に関する一考察、

日本放射線安全管理学会第13回学術大会、徳島(2014年12月3日)。

難波江靖、中島 覚、福島第一原子力発電所から石狩湾への放射性物質の移動経路に関する一考察、日本放射線安全管理学会第13回学術大会、徳島(2014年12月3日)。

宮下 直、中島 覚、溶媒抽出法を用いた汚染土壌からのセシウム除染技術の開発、第3回環境放射能除染研究発表会、郡山(2014年7月4日)。

稲田晋宣、松嶋亮人、木庭亮二、寺元浩昭、中島 覚、環境放射能動態における微生物の影響に関する研究～各種元素が微生物に与える影響の検討～、第15回環境放射能研究会、つくば(2014年3月7日)。

A. Sasai, K. Koga, H. Yasuhara, S. Nakashima, Relationship between Metal Ion Concentration and Microbial Mat Activity in Higashi-Hiroshima Campus, Hiroshima University, The 3rd Int. Symp. on Phenix Leader Education Program for Renaissance from Radiation Disaster, Hiroshima (2014年2月15日)。
Y. Nabee, S. Nakashima, One Consideration Concerning Pathway of Radioactivity Materials from FDNPP to Ishikari Bay, The 3rd Int. Symp. on Phenix Leader Education Program for Renaissance from Radiation Disaster, Hiroshima (2014年2月15日)。

松嶋亮人、稲田晋宣、木庭亮二、寺元浩昭、中島 覚、広島大学東広島キャンパスに形成された赤褐色バイオマットへの人工放射性核種の取り込み、日本放射線安全管理学会第12回学術大会、札幌(2013年11月29日)。

中島 覚、桧垣正吾、廣田昌大、矢永誠人、三好弘一、木下哲一、榎本和義、森一幸、西澤邦秀、水中、土中の放射性セシウムと稲の吸収、日本放射線安全管理学会第12回学術大会、札幌(2013年11月28日)。

古賀和樹、松嶋亮人、稲田晋宣、中島 覚、東広島市の河川、池水の環境放射能とアルカリ金属、希土類元素の関係、第14回環境放射能研究会、つくば(2013年2月27日)。

K. Koga, S. Kawai, A. Matsushima, K. Inada, S. Nakashima, Relation between Environmental radioactivity and Chemical Circumstances in Higashi-Hiroshima Campus, Hiroshima University, The 2nd Int. Symp. on Phenix Leader Education Program for Renaissance from Radiation Disaster, Hiroshima (2013年2月10日)。

S. Kihara, A. Matsushima, K. Inada, M. Hirota, K. Nishizawa, S. Nakashima,

Diffusion of Radioactive Cesium into the Soil of Fukushima Prefecture, The 2nd Int. Symp. on Phenix Leader Education Program for Renaissance from Radiation Disaster, Hiroshima (2013年2月10日)。

古賀和樹、木原翔也、難波孝志、松嶋亮人、稲田晋宣、中島 覚、広島大学東広島キャンパスの環境放射能と化学的環境の関係、第56回放射化学討論会、東京(2012年10月3日)。

〔図書〕(計 1件)

宮下 直、中島 覚、溶媒抽出法を用いた汚染土壌からのセシウム除染技術(放射性物質対策技術～除染、モニタリング、装置・システム開発～)175-183、NTS (2015)。

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://home.hiroshima-u.ac.jp/radichem/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中島 覚 (NAKASHIMA, Satoru)

広島大学・自然科学研究支援開発センター・教授

研究者番号：00192667

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：