



# ERAN

Environmental Radioactivity  
Research Network Center  
放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点

## 2020 年度 成果報告書

### FY2020 Annual Report

2021 年 3 月 15 日（月）オンライン開催

March 15, 2021 @Online Meeting



筑波大学  
アイソトープ環境動態研究センター



福島大学  
環境放射能研究所



弘前大学  
被ばく医療総合研究所



日本原子力研究開発機構  
廃炉環境国際共同研究センター



国立環境研究所  
福島地域協働研究拠点



量子科学技術研究開発機構  
福島再生支援研究部

放射能環境動態・影響評価  
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

2020 年度 年次報告書

**【重点共同研究】**

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
F-20-01	横山 明彦	金沢大学	環境中ネプツニウム同位体測定法開発に関わる化学分離法の検討	坂口 綾	CRiED
F-20-02	宇都宮 聡	九州大学	高濃度放射性セシウム含有微粒子の化学的特性に基づく環境影響と炉内状態の解明	山崎 信哉	CRiED
F-20-03	松中 哲也	金沢大学	年輪中の原発事故由来C-14の分布範囲と実効線量評価	笹 公和 末木 啓介	CRiED CRiED
F-20-04	田中 万也	日本原子力研究開発機構	海洋生物性炭酸塩中のストロンチウム局所構造解析	山崎 信哉	CRiED
F-20-05	熊谷 朝臣	東京大学	森林管理が及ぼす影響のモデル計算による評価：流量及び同位体データを用いて	恩田 裕一	CRiED
F-20-06	岡田 往子	東京都市大学	内陸湖沼における放射性セシウムの動態解明	羽田野 祐子	CRiED
F-20-07	星 正治	広島大学	カザフスタンのウラン鉱山近郊の大気中のエアロゾルの収集と測定	坂口 綾	CRiED
F-20-08	猪股 弥生	金沢大学	日本海及び縁辺海における福島原子力発電所由来の放射性セシウム濃度の時定数と輸送量の推定	青山 道夫 高田 兵衛	CRiED IER
F-20-09	丸山 隼人	北海道大学	マメ科植物ルーピンの放射性セシウム吸収能の品種間比較	古川 純	CRiED
F-20-10	頼 泰樹	秋田県立大学	水稻のセシウム吸収経路の全容解明	古川 純	CRiED
F-20-11	山口 直文	茨城大学	波浪影響下での堆積物供給速度が底面地形粗度に与える影響	関口 智寛	CRiED
F-20-12	緒方 良至	名古屋大学	海水中のストロンチウムの安全で迅速な分析方法の開発	青山 道夫	CRiED
F-20-13	菅野 里美	名古屋大学	イネのNa <sup>+</sup> ・K <sup>+</sup> 輸送体変異体を用いたNa <sup>+</sup> 、K <sup>+</sup> 、Cs <sup>+</sup> の輸送比較	古川 純	CRiED
F-20-14	中野 孝教	総合地球環境学研究所	多元素同位体手法を用いた環境動態診断研究のレビュー	恩田 裕一	CRiED
F-20-15	大澤 和敏	宇都宮大学	福島県における土壌侵食に伴う放射性セシウム流出の観測および解析	恩田 裕一	CRiED
F-20-16	北 和之	茨城大学	大気と植物・菌類間の放射性セシウム移行可能性の研究	古川 純 羽田野 祐子	CRiED CRiED
F-20-17	平良 文亨	長崎大学	特定復興再生拠点区域（帰還困難区域）における除染・解体作業による放射性セシウムの再浮遊・飛散性の動態把握	平尾 茂一	IER
F-20-18	長谷川 浩	金沢大学	土壌中の放射性ストロンチウムおよびセシウムに対する新規なキレート洗浄処理技術の開発	Rahman Ismail Md. Mofizur	IER

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
F-20-19	有馬 ポシールア ハンマド	山形大学	磁性及び多孔性Fe2O3による環境汚染重金属の吸着・ 分離に関する研究	Rahman Ismail Md. Mofizur	IER
F-20-20	杉浦 広幸	福島学院大学	福島の高層湿原の植物における放射性セシウム汚染	塚田 祥文	IER
F-20-21	大手 信人	京都大学	福島県北部森林流域からの放射性セシウムの流出形態 と貯水池における堆積メカニズムに関する研究	和田 敏裕	IER
F-20-22	津田 吉晃	筑波大学	帰還困難区域に生息する溪流魚種の地域固有系統の集 団動態の解明	和田 敏裕 兼子 伸吾	IER IER
F-20-23	阪間 稔	徳島大学	PHITS計算による原子力災害に伴う被ばく線量評価で の高精細MRCPs人体ポリゴンファントムの適用拡大	赤田 尚史	IREM
F-20-24	山城 秀昭	新潟大学	被災アカネズミの凍結保存精子を用いた受精能評価と 産子作出の試み	三浦 富智	IREM
F-20-25	安岡 由美	神戸薬科大学	環境中ラドンによる放射線施設監視モニタの感度確認 2：活性炭型ラドン検出器による感度確認	床次 眞司 細田 正洋	IREM IREM
F-20-26	白井 厚太郎	東京大学	ムラサキガイを用いた放射性核種のバイオモニタリ ング手法の開発	田副 博文	IREM
F-20-27	中田 章史	北海道科学大学	小核アッセイ法による生殖細胞の放射線感受性評価	三浦 富智	IREM
F-20-28	岩岡 和輝	量子科学技術研究開 発機構	大気中放射性核種測定装置のトロンガスの影響	床次 眞司 細田 正洋	IREM IREM
F-20-29	樋口 健太	日本医療大学	ラドン及び子孫核種の移行過程の解析と放射能環境動 態の解明	床次 眞司 細田 正洋	IREM IREM
F-20-30	高橋 温	東北大学	福島第一原発事故後の環境に棲息するアライグマの歯 のESR測定を妨害する因子の除去法の開発	三浦 富智	IREM
F-20-31	飯本 武志	東京大学	環境物質を応用した教育用自然放射線源の開発	床次 眞司	IREM
F-20-32	苅部 甚一	近畿大学	貝殻を用いた海水中の放射性ストロンチウムモニタリ ング法の検討	田副 博文	IREM
F-20-33	古川 雅英	琉球大学	水中ラドン計測によるサンゴ礁海域の陸源湧水探索に 関する研究	床次 眞司 赤田 尚史	IREM IREM
F-20-34	有吉 健太郎	福島県立医科大学	野生動物への低線量放射線影響評価のためのバイスタ ンダー効果の検討	三浦 富智	IREM
F-20-35	神田 穰太	東京海洋大学	福島沿岸海域における高線量粒子の海洋生態系影響に 関する研究	田副 博文	IREM
F-20-36	箕輪 はるか	東京慈恵会医科大学	福島第一原子力発電所近傍の環境試料の核種分析によ る沈着状況の解明	田副 博文	IREM

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
F-20-37	柳澤 文孝	山形大学	山形蔵王で観測される樹氷を構成する水の同位体組成	赤田 尚史	IREM
F-20-38	Zhang Jing	富山大学	Quantification of the material transport between the Kuroshio and marginal seas using multiple tracers	田副 博文	IREM
F-20-39	木野 康志	東北大学	動物の臓器別被ばく線量率推定のための数値模型の構築	三浦 富智	IREM
F-20-40	野田 香織	弘前大学	福島県三春ダム底質の結合形態別画分の放射性セシウム濃度	赤田 尚史 田副 博文	IREM IREM
F-20-41	鈴木 正敏	東北大学	福島原発事故に被災した野生ニホンザル生体試料を用いた放射線影響解析	三浦 富智	IREM
F-20-42	則末 和宏	新潟大学	海洋における超ウランアナログ元素の存在形態変換	田副 博文	IREM
F-20-43	清水 良央	東北大学	オートラジオグラフを用いた被災動物骨組織の放射性物質局在評価	三浦 富智	IREM
F-20-44	大河内 博	早稲田大学	福島県浪江町の里山における放射性物質の長期トレンドと環境調和型除染技術開発	床次 眞司 赤田 尚史	IREM IREM
F-20-45	佐瀬 卓也	核融合科学研究所	学習指導要領改訂による小中学校検定教科書における放射線・環境・震災教育の変遷調査	赤田 尚史	IREM
F-20-46	佐々木 隆之	京都大学	多面的な分光学的手法による多価金属イオンの収着状態評価	藤原 健壯 土肥 輝美	JAEA JAEA
F-20-47	二瓶 直登	福島大学	放射性微粒子の沈殿による作物への影響	吉村 和也	JAEA
F-20-48	乙坂 重嘉	東京大学	陸域-海域間の懸濁態放射性核種の輸送過程の解明	鶴田 忠彦	JAEA
F-20-49	斉藤 拓巳	東京大学	Cs用DGTデバイスを用いた放射性Csの環境動態評価	藤原 健壯	JAEA
F-20-50	川村 秀久	九州環境管理協会	Cs保持に関わる環境試料の前処理・分析手法の確立	土肥 輝美	JAEA
F-20-51	尾崎 紀昭	秋田県立大学	生物の鋳物形成作用と核種固定化に関する研究	土肥 輝美 鶴田 忠彦	JAEA JAEA
F-20-52	落合 伸也	金沢大学	福島県および周辺地域の河川水系における放射性セシウムの移行動態	中西 貴宏 鶴田 忠彦 御園生 敏治	JAEA JAEA JAEA
F-20-53	小西 博巳	新潟大学	放射性セシウムの移動媒体についての鋳物学的研究	藤原 健壯 萩原 大樹	JAEA JAEA
F-20-54	根本 唯	東京農業大学	福島県におけるツキノワグマの遺伝的集団構造と放射性核種汚染の関係	玉置 雅紀	NIES

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
F-20-55	津旨 大輔	電力中央研究所	松川浦から海洋への溶存放射性セシウム供給過程の解明	林 誠二 青山 道夫	NIES CRIED
F-20-56	遠藤 大二	酪農学園大学	多エクソン同時増幅と次世代シーケンスによる高線量率環境下におけるアカネズミ遺伝子変化の経年調査	玉置 雅紀	NIES
F-20-57	保坂 健太郎	国立科学博物館	地下生菌（トリュフ類）と小動物を介した森林内の放射性セシウムの動態把握	石井 弓美子	NIES
F-20-58	立田 穰	電力中央研究所	沿岸ベントスにおける易分解性セシウム画分の定量と食物連鎖移行モデルによる生物可給態移行寄与の解明	青野 辰雄	QST
F-20-59	朱 彦北	産業技術総合研究所	マイルドプラズマ質量分析法による鉛同位体分析法の検討	鄭 建	QST

## 【F-20-01】

## 環境中ネプツニウム同位体測定法開発に関わる化学分離法の検討

研究代表者：横山 明彦

共同研究者：寺西 翔・森田 涼雅

受入研究者：坂口 綾

## 1. 研究成果報告

Np-237( $T_{1/2}=2.1 \times 10^6 \text{y}$ ) は天然中にわずかに存在し、環境汚染調査のために定量が必要とされている。Np-237 の定量のために加速器質量分析 (AMS) を用いることが期待されており、AMS で測定する際には収率トレーサーが必要である。トレーサーとして化学的挙動が同じで半減期の長い Np-236g( $T_{1/2}=1.5 \times 10^5 \text{y}$ ) の製造が検討されている。Np-236g の製造法として Th-232 に Li-7 を照射する方法が検討されているが、生成物はターゲット由来の多量の Th 中に含まれており質量分析の阻害になるため高純度の精製が必要である。本研究ではカラムでの分離と比較して一度に多量の試料を安価で分離することができる溶媒抽出法を、分離の手法として注目した。これまで、溶媒抽出による Th からの Np 分離は前例がないため検討の必要がある。カラム分離でカラム用樹脂に付着させる抽出剤として実績のある Aliquat336 を溶媒抽出に用い、Np-239 をトレーサーとした実験を行った。

ベンゼンに 30wt% で溶解させた Aliquat336 を抽出相に用いた Th から Np を分離する溶媒抽出実験を行った。Np の価数調整にはアスコルビン酸を用い、水相の液性を異なる濃度の塩酸で調整した。溶媒抽出後の有機相から Np を 0.5M 硝酸で逆抽出し、Np の  $\gamma$  線を Ge 半導体検出器で測定し Np 回収率を求めた。また、Th 原子数を ICP-MS 測定することにより Th 除去率を求めた。

溶媒抽出実験の結果、塩酸高濃度側で高い回収率が得られており、特に濃度 7M, 9M で 80% を超える Np 回収率が得られた。昨年の Aliquat336 を用いた樹脂での分離実験でも同様の結果が得られており、再現性があると言える。ただし、先行研究と比べると回収率が低い。100% に近づけるためには再度逆抽出を行うことで改善できると考えられる。Th 除去率は塩酸濃度に関わらず 99.9% 以上の高い値が得られた。特に塩酸濃度 7M, 9M, 10M では Th 除染係数が  $10^4$  以上の値が得られており十分に除染できていると言える。溶媒抽出の水相の液性としては塩酸濃度 7M~9M が最適であると考えられる。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Y. Hayakawa, A. Yokoyama, A. Sakaguchi, K. Teranishi, R. Morita, N. Matsumura, A. Nakajima, D. Mori, Y. Komori, T. Yokokita, Y. Wang, H. Haba, Production of Np-236 in the  $^{232}\text{Th} + ^7\text{Li}$  reaction for standard material in accelerator mass spectrometry, RIKEN Accel Prog Rep. 2020, 53: 179-179.

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## 【F-20-02】

## 高濃度放射性セシウム含有微粒子の化学的特性に基づく環境影響と

## 炉内状態の解明

研究代表者：宇都宮 聡

受入研究者：山崎 信哉

## 1. 研究成果報告

## 1. 緒言

2011年3月に福島第一原子力発電所(FDNPP)で起きた原子力災害により $\sim 10^{19}$  Bqの放射能が放出された。放出された放射性核種には核分裂生成物(Xe, I, Cs)だけでなく、微量のアクチノイド種(U, Pu, Am)も含まれていた。Puは揮発性が低いため放出量は炉内の $\sim 2.0 \times 10^{-5}$ %と微量であると考えられているが、その同位体の半減期の長さの実効線量係数の大きさから内部被ばくによる人体への影響が懸念されている。また、現在進められている燃料デブリの取り出しに際してデブリの性状把握が必要であるが、炉内の放射線量が $\sim 80$  Sv/hと依然として高く炉内へのアクセスが不可能であるため難航している。そのため、環境中に放出された燃料微粒子の直接の特性評価が重要となる。

現在、FDNPPから放出された物質からPuの検出はされているが、化学種の同定には至っていない。本研究では原子炉から放出された高濃度放射性Cs含有微粒子であるCsMPから燃料微粒子を発見し、UとPuの同位体の分析と化学種の同定に初めて成功した。これはPuの放出プロセスとデブリの性状把握に重要な貢献になる。

## 2. 実験

福島県で採取した土壌からオートラジオグラフィと走査型電子顕微鏡(SEM + EDX)を用いて2つのCsMP(AQC, OTZ)を単離した後、ゲルマニウム半導体検出器を用いて粒子の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を測定した。その後、二次イオン質量分析装置(SIMS)とシンクロトロン放射光分析装置( $\mu\text{XRF}$ )を用いてPuやUの同位体比分析と化学種の同定を行った。

## 3. 結果・考察

本研究で発見したCsMPは、その $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比がそれぞれ1.05(AQC)、1.12(OTZ)でFDNPPの2または3号機から放出されたものだと考えられる。次に、SIMSの結果から、 $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 、 $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ 、および $^{242}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ の同位体比がそれぞれ $\sim 0.0193$ 、 $\sim 0.347$ 、および $\sim 0.0660$ であることが明らかになり、ORIGEN2を基に算出され

た計算値と近い値をとっており、Pu が照射された燃料微粒子の一部である可能性を示した。一方  $^{241}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  の同位体比は ORIGEN2 を基に算出された計算値からずれる値を示した。ORIGEN2 は燃料の平均組成を算出するため、燃料棒の照射日数の差が考慮されていない。そのため短半減期である  $^{241}\text{Pu}$  には十分な精度がないと考えられる。また、Pu と U のイオン比と同位体比を比較することで U 酸化物中の Pu のイオン化効率率は U と同じであることが分かった。最後に  $\mu\text{XRF}$  の結果から、CsMP 中にサブマイクロサイズの Pu 酸化物の濃集点や被覆管の主成分である Zr の局在した濃集帯を含む  $\sim 20 \mu\text{m}$  程度の  $\text{UO}_2$  の濃集帯が確認された。使用済み燃料のふちの部分では Pu が濃集し  $\text{UO}_2$  粒子中の一部の  $\text{UO}_2$  結晶格子の U が Pu に置換される。そのため、この粒子は燃料ペレットのふちの部分が微粒子として CsMP に取り込まれたものだと考えられる。これらの結果から Pu は燃料微粒子の一部として CsMP に取り込まれて環境中に放出されたと考えられ、主な Pu の長距離輸送メカニズムと考えられる。また、デブリ中の Pu の性状は使用済み燃料中の Pu を保持していることが示唆された。最後に、今回 SIMS で分析された Pu 同位体比は ORIGEN2 や CASMO5 などのデータコード用いた計算値と近い値をとっており、デブリ中の Pu 同位体比は短半減期の  $^{241}\text{Pu}$  を除き合理的に推測できるという可能性を示した。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

K. Murota, K. Tanoi, A. Ochiai, S. Utsunomiya, & T. Saito, Desorption mechanisms of cesium from illite and vermiculite. *Applied Geochemistry*, 123 (2020) 104768. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2020.104768>

E. Kurihara, M. Takehara, M. Suetake, R. Ikehara, T. Komiya, K. Morooka, R. Takami, S. Yamasaki, T. Ohnuki, K. Horie, M. Takehara, G.T.W. Law, W. Bower, J. Frederick W. Mosselmans, P. Warnicke, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, Particulate plutonium released from the Fukushima Daiichi meltdowns. *Science of The Total Environment* 743 (2020) 140539. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.140539>

A. J. Fuller, P. Leary, N. D. Gray, H. S. Davies, J. Frederick W. Mosselmans, F. Cox, C. H. Robinson, J. K. Pittman, C. M. McCann, M. Muir, M. C. Graham, S. Utsunomiya, W. R. Bower, K. Morris, S. Shaw, P. Bots, F. R. Livens, & G.T.W. Law, Organic complexation of U (VI) in reducing soils at a natural analogue site: Implications for uranium transport.

Chemosphere 254 (2020) 126859. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.126859>.  
R. Ikehara,\* K. Morooka,\* M. Suetake, T. Komiya, E. Kurihara, M. Takehara, R. Takami, C. Kino, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, T. Ohnuki, G. T. W. Law, W. Bower, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, Abundance and distribution of radioactive cesium-rich microparticles released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the environment. Chemosphere 241(2020) 125019. \* Two authors contributed equally. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.125019>

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-03】

## 年輪中の原発事故由来 C-14 の分布範囲と実効線量評価

研究代表者：松中 哲也

共同研究者：平尾 茂一・脇山 義史

受入研究者：笹 公和・末木 啓介

## 1. 研究成果報告

## 【はじめに】

原子力発電所の稼働に伴って放出される  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2} : 5,730 \text{ yr}$ ) は、食物連鎖を通して内部被ばくに寄与する可能性のある核種として知られている[1]。原子炉内では  $^{14}\text{N}$  ( $n, p$ )  $^{14}\text{C}$ 、 $^{17}\text{O}$  ( $n, \alpha$ )  $^{14}\text{C}$ 、及び  $^{13}\text{C}$  ( $n, \gamma$ )  $^{14}\text{C}$  の誘導放射化によって  $^{14}\text{C}$  が生成される。Xu et al. (2016)[2]は、福島第一原子力発電所から通常運転時に $\sim 53 \text{ TBq}$ の  $^{14}\text{C}$  が放出され、事故時に放出された  $^{14}\text{C}$  が 2.5 km 北西地点の樹木年輪に  $42 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ C}$  寄与した事を明らかにした。しかしながら、事故によって大気中に放出された  $^{14}\text{C}$  の影響範囲や陸域生態系への移行に関する研究は不十分のままであった。本研究は、福島第一原子力発電所から北西地域を対象に、樹木年輪中  $^{14}\text{C}$  濃度を明らかにし、事故由来  $^{14}\text{C}$  の影響範囲を把握すると共に食物摂取による年輪内  $^{14}\text{C}$  の実効線量を評価する事を目的とした。

## 【試料と方法】

2014年7月、福島第一原子力発電所から北西へ9 km と 24 km の地点からヒノキとスギの年輪コアを採取した。年輪年代を決定した事故前後の期間を含む 2008–2014 年の早材と晩材、あるいは単年輪についてセルロース抽出を行った。1 mgC のセルロース試料、NIST-4990C、IAEA-C1 (操作ブランク)、IAEA-C6、及び IAEA-C8 について、元素分析計を併用した自動前処理装置でグラファイトを作製し[3]、東京大学 5 MV タンデム加速器を用いて  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比と  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比を計測した。ターミナル電圧が 4.8 MV の条件で、24 MeV の  $^{14}\text{C}^{4+}$  を固体半導体検出器でカウントした。 $^{14}\text{C}$  の測定誤差は 0.5% であり、操作ブランクは 0.08 pMC 以下であった。試料の  $^{14}\text{C}$  濃度は、同位体分別と減衰の補正を行った F14C (Fraction Modern) を算出した後、比放射能 ( $\text{Bq kg}^{-1} \text{ C}$ ) で表した。

**【結果と考察】**

2008–2014 年における年輪中  $^{14}\text{C}$  濃度は  $231\text{--}256\text{ Bq kg}^{-1}\text{ C}$  の範囲で変動した。原子力発電所事故後の期間である 2012–2014 年の年輪内  $^{14}\text{C}$  濃度が北半球の  $^{14}\text{C}$  バックグラウンドとほぼ一致するのに対し、通常運転期間である 2008–2010 年の年輪内  $^{14}\text{C}$  濃度は  $^{14}\text{C}$  バックグラウンドより  $7.8\text{--}22.7\text{ Bq kg}^{-1}\text{ C}$  高かった。事故前における平均余剰  $^{14}\text{C}$  濃度は、9 km 北西地点で  $21\text{ Bq kg}^{-1}\text{ C}$ 、及び 24 km 北西地点で  $12\text{ Bq kg}^{-1}\text{ C}$  であった。一方、事故が起こった 2011 年における年輪内の平均余剰  $^{14}\text{C}$  濃度は、24 km 北西地点で  $5.8\text{ Bq kg}^{-1}\text{ C}$  であり、9 km 北西地点 ( $10\text{ Bq kg}^{-1}\text{ C}$ ) の  $1/2$  程度であった。原子力発電所からの距離の増加に伴う余剰  $^{14}\text{C}$  濃度の減少は、北西方向へ少なくとも 24 km 地点までの樹木年輪が事故由来  $^{14}\text{C}$  を固定していた事を示唆している。また、事故由来である 2011 年の年輪内余剰  $^{14}\text{C}$  は、食物摂取による実効線量に換算すると最大で  $0.6\text{ }\mu\text{Sv yr}^{-1}$  であり、自然放射線の食物摂取による実効線量の世界平均値 ( $290\text{ }\mu\text{Sv yr}^{-1}$ ) の  $<0.21\%$  程度であった。

[1] 長里ら (2001) JNC TN8410 2001-021. [2] Xu et al. (2016) J. Environ. Radioactiv., 157, 90–96. [3] Matsunaka et al. (2019) Nucl. Instr. Meth. B, 455, 204–208.

**2. 発表論文リスト**

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文 (謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-04】

## 海洋生物性炭酸塩中のストロンチウム局所構造解析

研究代表者：田中 万也

受入研究者：山崎 信哉

## 1. 研究成果報告

## 研究背景及び目的

福島第一原子力発電所で発生した汚染水が海洋に放出された結果、様々な海洋生物が放射性核種により汚染された。中でも放射性 Sr は、同族元素である Ca と類似の挙動をするため、貝類や甲殻類の殻などの生物性炭酸カルシウムに取り込まれる。放射性 Sr は重量濃度としては微量であるものの、安定 Sr は海洋生物性炭酸カルシウムに数百～数千 mg/kg 程度含まれている。そこで本共同研究では、海洋生物性炭酸カルシウムに含まれる安定 Sr の局所構造を明らかにすることで放射性 Sr の濃縮機構を理解することを目的とした。

## 試料及び実験

炭酸カルシウムには同質多型があり、アラゴナイト及びカルサイトの殻を形成する海洋生物がそれぞれ存在する。本研究では、福島県で採取したアサリ（アラゴナイト）とマガキ（カルサイト）の貝殻を分析試料とした。貝殻試料の表面の付着物を除去するために、純水中において超音波洗浄を行った。この操作を水の濁りが出なくなるまで繰り返した。風乾した後、メノウ乳鉢を用いて粉碎して均質化したものを分析試料とした。粉末化した貝殻試料は X 線粉末回折(XRD)分析により結晶構造の同定を行った。Sr-K 吸収端広域 X 線吸収微細構造(EXAFS)スペクトルの測定は SPring-8 の BL01B1 にて行った。アラゴナイト及びカルサイトの参照試料としてシャコ貝(JCt-1：地質調査総合センター発行標準試料)と石灰岩の測定もそれぞれ行った。

## 結果及び考察

XRD 分析の結果から、アサリ貝殻はアラゴナイト、マガキ貝殻はカルサイトからなることを確認した。アラゴナイト構造を持つアサリとシャコ貝試料の EXAFS スペクトル解析結果から、いずれも  $2.56 \pm 0.03 \text{ \AA}$  の Sr-O 原子間距離が得られた。これは Ca-O 原子間距離 ( $2.52 \text{ \AA}$ ) に近い値であり、Sr がアラゴナイト構造中の Ca サイトにフィットしていることが伺えた。これに対して、カルサイト構造を持つマガキ貝殻と石灰岩試料の解析結果から、Sr-O 原子間距離は  $2.50 \pm 0.03 \text{ \AA}$  であった。これは、アラゴナイト構造中と比べるとやや短い Sr-O 原子間距離となる。しかし、カルサイト構造における Ca-O 原子間距離は  $2.36 \text{ \AA}$  であることから、Ca-O と Sr-O の原子間距離には  $0.14 \text{ \AA}$  の差があることになる。これは、アラゴナイト構造に比べるとかなり大きな違いであり、Sr はカルサイト構造にはフィットしていない様子が見て取れた。

こうした炭酸カルシウムの結晶形と Sr の局所構造の関係は、海洋生物が形成する炭酸カルシウムへの放射性 Sr の取り込みに影響すると考えられる。今後は、こうした結晶形を念頭に置いて貝類や甲殻類などの放射性 Sr 分析も検討したい。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Tanaka, K., Kanasashi, T., Takenaka, C. and Takahashi, Y. (2021) Speciation of cesium in tree tissues and its implication for uptake and translocation of radiocesium in tree bodies. *Sci. Total Environ.* 755, 142598.

Tokunaga, K., Takahashi, Y., Tanaka, K. and Kozai, N. (2021) Effective removal of iodate by coprecipitation with barite: Behavior and mechanism. *Chemosphere* 266, 129104.

Tani, Y., Kakinuma, S., Chang, J., Tanaka, K. and Miyata, N. (2021) Preferential elimination of Ba<sup>2+</sup> through irreversible biogenic manganese oxide sequestration. *Minerals* 11, 53. DOI: 10.3390/min11010053

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-05】

## 森林管理が及ぼす影響のモデル計算による評価：

## 流量及び同位体データを用いて

研究代表者：熊谷 朝臣

受入研究者：恩田 裕一

## 1. 研究成果報告

森林流域での物質循環を駆動する要因の1つである水循環過程の解明には、観測・実験を通じた現象の理解と併せて現象のモデル化が強力なツールとなり、特に森林管理による流域特性の変化が水循環に及ぼす影響の機構論的解明・予測には、現象を十分に考慮し変化を直接反映できる降雨流出モデルが必要である。

近年、降雨時に土壌で発生する鉛直浸透及び土壌-基岩間の浸透・湧出が、流出や水分分布に及ぼす強い影響が明らかになってきた。しかし従来の降雨流出モデルはこれらのプロセスを十分に反映できていない。そのため本研究は、長期流出及び土壌水分空間分布の再現に優れる既存モデルを雛形に、土壌水分の鉛直分布・鉛直浸透と基岩地下水のプロセスを組み込んだ新しい分布型降雨流出モデル K-BLADE model を開発し、森林流域（神奈川県丹沢山地大洞沢流域、49.4ha）への適用結果を基にその妥当性を検証した。なお、実際の流域特性を反映した検討のためパラメータのフィッティングは行わず観測値を入力とした。

結果、本モデルは流量・土壌水分・基岩地下水位の観測値を良好に再現できた。特に流量はパラメータをフィッティングした他の降雨流出モデルと同等かそれ以上の再現性を示し、基岩地下水位は観測地点毎に平均値の再現に成功した。また、各種モデル出力の空間分布時間変化は、観測研究で解明されつつある流域スケールでの流出動態を良好に表現できた。

以上から本モデルの妥当性が示され、今後は①最高レベルの物理的厳密性を有する水移動シミュレータとの比較検証による本モデル構造の有用性・厳密性の検証と結果に基づいたモデル改良 ②森林管理による流域特性の変化を直接反映できるモデル構造の組み込み ③他流域での検証及び同位体データを用いた検証を通して、森林管理が水循環過程に及ぼす影響の機構論的解明・予測に資する強力なモデルに発展させていく予定であり、本研究の成果はその土台となる。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## 【F-20-06】

## 内陸湖沼における放射性セシウムの動態解明

研究代表者：岡田 往子

共同研究者：熊谷 尚人・内山 孝文

受入研究者：羽田野 祐子

## 1. 研究成果報告

## 背景と目的

我々は群馬県赤城大沼の放射性セシウムの動態調査をワカサギと湖水を中心に2012年から継続的に行い、放射性セシウム濃度の下げ止まり傾向が続いている。赤城大沼は流入河川1本、流出河川1本の極めて閉鎖性の強い湖沼であり、春から夏にかけて、水温躍層を形成し、底質に近い部分では無酸素状態になる。この時期の底質に近い湖水は溶存態Csが多いことが分かっている。底質からの溶存態Csの溶出が考えられる。群馬県内の11内陸湖沼底質の放射性Cs溶出の可能性の検討を目的とする。

## 実験

試料は自然湖沼（赤城大沼、榛名湖）、農業ため池（バラキ湖、丹生湖、鳴沢湖、近藤沼）、人工ダム湖（碓氷湖、赤谷湖、草木湖、奥利根湖、梅田湖、神流湖）の底質を用いた。

中性子放射化分析による元素分析は京都大学複合原子力科学研究所にある原子炉を利用し、32元素の定量を行った。また、卓上走査型電子顕微鏡（SEM：HITACH TM3000）を用いて、11湖沼底質の観察を行った。底質に安定セシウムを添加して、セシウム錯体構造解析（EXAFS解析）を高エネルギー加速器研究機構フォトンファクトリ BL-27B を利用して行った。底質の<sup>137</sup>Cs添加吸着・脱着実験は、東京都市大学原子力研究所R I管理区域を使用して行った。<sup>137</sup>CsはR I協会から購入したものを使用し、各底質に3時間、1日、3日吸着させ、濾液と底質に分離してγ線測定を行った。

## 結果

安定Cs含有量では天然湖（赤城大沼、榛名湖）と農業用ため池（バラキ湖、丹生湖、鳴沢湖、近藤沼）は、 $2\mu\text{g/g}\sim 5\mu\text{g/g}$ の範囲であったが、人工ダム湖（赤谷湖、草木湖、奥利根湖、梅田湖、神流湖）は $7\mu\text{g/g}\sim 14\mu\text{g/g}$ と大きな違いが表れた。他の微量元素も人工ダム湖が天然湖、農業ため池を大きく上回ることが分かった。各湖沼のSEM観察を行ったところ、天然湖は植物プランクトンが多く観察され、特に赤城大沼の底質は大きな植物プランクトンの殻が多くを占めていた。EXAFS解析では人工ダム湖（梅田湖、奥利根湖、草木

湖、赤谷湖)と神流湖は Ti 含有量が多く、解析が難しかったが、他の湖沼について検討し、赤城大沼が他の湖沼(榛名湖、バラキ湖、丹生湖、近藤沼、碓氷湖)より、粘土鉱物等の Si-O との配位が弱いことが示唆された。

赤城大沼、榛名湖、近藤沼、丹生湖、赤谷湖の底質で行った  $^{137}\text{Cs}$  吸脱着実験では、吸着時間(1時間、1日、3日)に差がなく、短時間で吸着することが分かった。 $^{137}\text{Cs}$  吸着結果では、赤城大沼、榛名湖の底質が 94%、近藤沼、丹生湖、赤谷湖は 99%の吸着であった。 $^{137}\text{Cs}$  脱離率では、赤城大沼と榛名湖で 1~2%の脱離、近藤沼、丹生湖、赤谷湖は 0.4%であった。

まとめ

赤城大沼と榛名湖の底質は  $^{137}\text{Cs}$  の吸着が他の湖沼より、5%程度弱く、脱離もしやすいことが分かった。底質に含まれる元素や植物プランクトンの殻の量と関係するかについては今後の課題となる。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なし

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-07】

## カザフスタンのウラン鉱山近郊の大気中のエアロゾルの収集と測定

研究代表者：星 正治

共同研究者：恩田 裕一・遠藤 暁・藤本 成明・七條 和子・佐藤 斉・Kassym  
Zhumadilov・Nailya Chaizhunussova・Valeriy Stepanenko

受入研究者：坂口 綾

### 1. 研究成果報告

#### 1. 研究成果報告

##### 経緯と研究の概要：

本研究は、カザフスタンのウラン鉱山地帯などでの大気中の塵や水試料の収集と測定を目的としている。そしてその最終目的は、放射能を帯びた微粒子の曝露による生物影響の研究である。また、この研究はカザフスタンの国内で行う予定であった。しかしながら、カザフスタンのカウンターパートの責任者である、Prof. Kassym Zhumadilov がコロナに感染し、約 1 ヶ月ほど音信不通となった。その事でスタートが遅れ、昨年末から塵の採取を開始したところである。そのため、今回の報告では、最終目的である放射性微粒子の影響研究について、これまでの経緯を報告する。この影響研究は来年度にも実施する予定である。

##### 材料と方法：

3 $\mu$ m の二酸化マンガンの粉末に原子炉の熱中性子を照射し、Mn-56 を生成し放射化した。その粉末をラットやマウスに噴霧し 1 時間照射した。照射直後、ラットの臓器を直接測定し、それに基づいてモンテカルロ計算を行い、内部被ばく線量を詳細に求めた。その後 2 ヶ月にわたって経過観察した。その間、臓器の病理学的変化や活動量の変化、DNA/RNA の変化を調べた。放射性微粒子の曝露群の比較対象として、Co-60 の外部被ばく 2,000mGy 照射、放射化していない二酸化マンガンの粉末の曝露、コントロールの 3 群を同時に実験した。

##### 結果：

実験の一例では、ラットの肺の内部被曝線量は 100mGy であった。肺の病理組織を観察すると、肺気腫で肺胞がなくなっている場合や、出血をしている場合が観察され、その影響は大きかった。外部被ばくとの比較のため、Co-60 の 2,000mGy 照射群と比較したが、その影響はコントロールと比べて違いはなかった。また放射化していない二酸化マンガンの粉末でも同様な条件で曝露したが変化はなかったため、化学的毒性による変化は認められなかった。これらから、放射性微粒子の影響は、外部被ばくに比べて 20 倍以上大きいことが分かった。その影響のメカニズムとして、微粒子近傍での計算によると、微粒子の近傍の線量が数 10Gy と大きくなることがある。これが原因と考え研究を継続している。

まとめ：

Mn-56 を含む微粒子による内部被ばくが 100mGy の時(この時の外部被ばく:5.75mGy)と、Co-60 による外部被ばく(2000mGy)とを比較した。肺の病理組織を顕微鏡で観察したところ、内部被曝 100mGy の方が外部被ばく 2000mGy と比べてその影響が 20 倍以上大きいことが分った。ただ、その後の研究では放射性微粒子の影響が見られない場合もあり、再現性についてさらに検討を重ねる必要がある。(Stepanenko et. al., Internal exposure to neutron activated <sup>56</sup>Mn dioxide powder in Wistar rats – Part 1: Dosimetry. Radiation and Environmental Biophysics (REB), 56, 47-54 2017, DOI 10.1007/s00411-016-0678-x, Shichijo et. al., REB, 56, 55-61, 2017, DOI 10.1007/s00411-016-0676-Z. Ibid. Erratum, DOI 10.1007/s00411-017-0687-4.

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文(謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

1. Y. K. Sambayev, A.G. Zhumalina, K.Sh. Zhumadilov, A. Sakaguchi, T. Kajimoto, K. Tanaka, S. Endo, N. Kawano, M. Hoshi, M. Yamamoto, Temporal variation of atmospheric Be-7 and Pb-210 concentrations and their activity size distributions at Astana, Kazakhstan in central Asia. J. Radioanalytical Nuclear Chemistry, 323, 663-674, 2020, <https://doi.org/10.1007/s10967-019-06968-x>.
2. Nariaki Fujimoto, Arailym Baurzhan, Nailya Chaizhunusova, Gaukhar Amantayeva, Ynkar Kairkhanova, Dariya Shabdarbaeva, Yersin Zhunussov, Kassym Zhumadilov, Valeriy Stepanenko, Vyacheslav Gnyrya, Almas Azhimkhanov, Alexander Kolbayenkov, Masaharu Hoshi, Effects of internal exposure to <sup>56</sup>MnO<sub>2</sub> powder on blood parameters in rats, Eurasian J Med, 52(1), 52-56, 2020.
3. Ken Inoue, Sadayuki Hashioka, Yuri Murayama, Nailya Chaizhunusova, Madina Apbassova, Dariya Shabdarbayeva, Nursultan Seksenbaev, Moldagaliev Timur, Ospanova Nurgul, Yersin T. Zhunussov, Yoshitsugu Fujita, Naoyuki Kanki, Zarina Mendygazyeva, Haruo Takeshita, Yasuyuki Fujita, Yuji Okazaki, Yoshihiro Noso, Masaharu Hoshi, Nobuo Takeichi, Health problems need to be studied by a wider range of fields and new areas, such as psychiatry and social medicine: In light of the association between nuclear disasters and radiation. Journal of St. Marianna Medical Institute 20 (95), 27-30, 2020.
4. Kazuko Shichijo, Toshihiro Takatsuji, Zhaslan Abishev, Darkhan Uzbekov, Nailya Chaizhunusova, Dariya Shabdarbaeva, Daisuke Niino, Minako Kurisu, Yoshio Takahashi,

Valeriy Stepanenko, Almas Azhimkhanov, Masaharu Hoshi, Impact of local high doses of radiation by neutron activated Mn dioxide powder in rat lungs: protracted pathologic damage initiated by internal exposure. *Biomedicines* 2020, 8, 171;

doi:10.3390/biomedicines8060171, <https://www.mdpi.com/2227-9059/8/6/171>.

5. Nariaki Fujimoto, Gaukhar Amantayeva, Nailya Chaizhunosova, Dariya Shabdarbayeva, Zhaslan Abishev, Bakhyt Ruslanova, Yersin Zhunossov, Almas Azhimkhanov, Kassym Zhumadilov, Aleksey Petukhov, Valeriy Stepanenko, Masaharu Hoshi, Low-dose radiation exposure with  $^{56}\text{MnO}_2$  powder changes gene expressions in the testes and the prostate in rats. *Int. J. Mol. Sci.* 2020, 21, 4989; doi:10.3390/ijms21144989, <https://www.mdpi.com/1422-0067/21/14/4989>.

6. Valeriy Stepanenko, Andrey Kaprin, Sergey Ivanov, Peter Shegay, Kassym Zhumadilov, Aleksey Petukhov, Timofey Kolyzhenkov, Viktoria Bogacheva, Elena Zharova, Elena Iaskova, Nailya Chaizhunosova, Dariya Shabdarbayeva, Gaukhar Amantayeva, Arailym Baurzhan, Bakhyt Ruslanova, Zhaslan Abishev, Madina Apbassova, Ynkar Kairkhanova, Darkhan Uzbekov, Zaituna Khismetova, Yersin Zhunossov, Nariaki Fujimoto, Hitoshi Sato, Kazuko Shichijo, Masahiro Nakashima, Aya Sakaguchi, Shin Toyoda, Noriyuki Kawano, Megu Ohtaki, Keiko Otani, Satoru Endo, Masayoshi Yamamoto, Masaharu Hoshi, Internal doses in experimental mice and rats following exposure to neutron-activated  $^{56}\text{MnO}_2$  powder: results of an international, multicenter study. *Radiation and Environmental Biophysics* 59, 683-692, 2020, <https://doi.org/10.1007/s00411-020-00870-x>.

7. Masaharu Hoshi, Radiation exposure and health effects of the residents around the former Soviet Union nuclear test site in Kazakhstan -A new perspective: radioactive microparticles. *Impact*, Vol. 2020, Number 3, 2020, 70-72, <https://doi.org/10.21820/23987073.2020.3.70>.

8. Masaharu Hoshi, Radioactive microparticle effects found in animal experiments. *The Innovation Platform ISSUE 5*, Innovation News Network March, 2021, <https://www.innovationnewsnetwork.com/effects-of-radioactive-microparticles-found-in-animal-experiments/9639/>.

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-08】

## 日本海及び縁辺海における福島原子力発電所由来の 放射性セシウム濃度の時定数と輸送量の推定

研究代表者：猪股 弥生

受入研究者：青山 道夫・高田 兵衛

### 1. 研究成果報告

2011年3月の東京電力福島第1原発事故で海に放出された放射性セシウムのうち一部が北太平洋の西部亜熱帯循環域から、数年未満の短い時間スケールで東シナ海底層部を経由して日本海に到達していることが明らかになっている（Aoyama et al., 2017; Inomata et al., 2018a）。さらに、日本海における放射性セシウムの濃度が2017年以降に減少し始めており、その流入量は $0.27 \cdot 0.02$  PBqと見積もられた。これは亜熱帯モード水に取り込まれた放射性セシウムの6.4%に相当する（Inomata et al., 2019）。本研究では、モニタリングデータやデータベースを基に、太平洋から日本海へさらには日本海から太平洋への放射性セシウムの輸送の時定数及び輸送量を見積もることを目的とする。

福島原子力発電所由来の放射性セシウム（FNPP1-137Cs）の再循環を捉えるために、日本海に流入する海水の上流に位置する佐賀唐津・与那国において、年1回表層水のサンプリングを行う。これらの地点での採水・分析は、2015年以降継続しているものである。さらに、海洋環境人工放射能データベースや国や自治体等でモニタリングしている、日本海に流入する上流側に位置している沖縄、鹿児島、佐世保などにおいて、放射性セシウム濃度の変動を評価した。

これまでの解析から、日本海へ流入するFNPP1-137Csの濃度は2015/2016年に最大を示す傾向が認められていた。しかし、2015/2016年以降のデータでは、必ずしもFNPP1-137Csの濃度の減少が認められていないことが明らかになった。FNPP1-137Csの北太平洋への沈着は限られた短い時間であったが、FNPP1-137Csの亜熱帯モード水に取り込まれた地域や時間等の違いを反映しているものと考えられる。解析結果から、今後もFNPP1-137Csの日本海への流入は続く可能性が示唆された。また、日本海へ流入する海水の上流側に位置する沖縄と佐世保についての長期解析を行った。その結果、佐世保・沖縄では、FNPP1-137Cs濃度増加は下層で早く高くなっていた。さらに、佐世保では、下層の濃度は上層の濃度より高濃度であった。これはObductにより亜熱帯表層水に取り込まれたFNPP1-137Csが日本南岸の西部北太平洋を西へ輸送されて、一部は日本海に流入していることを示している。さらに、HAMデータベースGlobal version（Aoyama 2019）の解析結果から、FNPP1-137Csは北太平洋上の広範囲で観測されていたことが明らかになった。特に亜熱帯域の西部北太平

洋やインドネシア海域でも濃度の増加が認められた。また、その最大値が観測された時期は他の地域よりも遅い傾向があった。各モニタリングサイトにおける見かけの半減期は、日本海（16.4年）や東シナ海（19.3年）では西部北太平洋（15年）と比較して長い傾向が認められた。このことは、FNPP1-137Csが日本海へ流入していることを示唆しているものと考えられる。また、東シナ海における Tap は日本海の Tap と比較して長いことから、FNPP1-137Cs は東シナ海に一旦蓄積している可能性もある。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-09】

## マメ科植物ルーピンの放射性セシウム吸収能の品種間比較

研究代表者：丸山 隼人

共同研究者：久保 堅司・藤本 久恵

受入研究者：古川 純

## 1. 研究成果報告

## &lt;背景と目的&gt;

マメ科植物のルーピンは土壤中のリンの可給化能や重金属の吸収能が高いことで知られる。シロバナルーピンはクラスター根と呼ばれる特殊な根を形成し、土壤中の元素動態に大きな影響を与える。先行研究にてルーピンが高い放射性セシウム吸収能を持つことが明らかとなったが、品種間の差や高い吸収能に寄与するメカニズムの詳細は不明である。そこで本共同研究では、ルーピンの品種間による放射性セシウム吸収および体内での動態について解析し、高い放射性セシウム吸収能に寄与する要因を明らかにすることを目的とした。

## &lt;材料と方法&gt;

ルーピン 2 品種 (Kievskij および Dieta) をポットおよび圃場において栽培し、放射性セシウムの吸収および植物体内での動態を調査した。圃場は福島県内の土壤中交換性カリウム濃度が異なる区画を整備した試験圃場 2 箇所で栽培し、開花期および収穫期に植物体を収穫した。ポット栽培では圃場土壌を用い 4.5L ポットで北海道大学ガラス温室内にて実施した。土壌および収穫した植物体の放射性セシウム濃度をゲルマニウム半導体検出器で測定した。また、ICP—MS を用いて多元素分析も実施した。

## &lt;結果と考察&gt;

播種時の大雨や栽培期間中の高温等により Dieta については両圃場において生育初期で枯れてしまい、ルーピンの圃場試験では播種時期や品種の選定が重要であると考えられた。東畑圃場の Kievskij では種子が収穫できたことから、子実への放射性セシウムの移行係数をダイズと比較したところ、ルーピンは土壤中のカリウム濃度が低い区で 4 倍以上ダイズと比べて高い移行係数を示した。また、植物体への放射性セシウムの移行を同じ土壤中の交換性カリウム濃度で比べると東畑圃場で高く、土壌の違いが放射性セシウム吸収に影響を与えることが示された。ポット試験の結果、ルーピン 2 品種の放射性セシウム吸収能は Kievskij の方が Dieta と比べて高かった。さらに、植物体内のアルカリ金属元素と放射性セシウム濃度の関係を比較したところ、ナトリウムと放射性セシウム濃度の関係が 2 品種間で大きく異なることが示され、ルーピンの放射性セシウムの吸収にナトリウムの吸収量が関連していると考えられた。今後、カリウムおよびナトリウムの輸送体遺伝子発現量の詳細な調査を実施し、2 品種の放射性セシウム吸収能の違いの要因を明らかにしていきたい。



## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。  
なし

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-10】

## 水稻のセシウム吸収経路の全容解明

研究代表者：頼 泰樹

共同研究者：河端 美玖・佐藤 奈美子

受入研究者：古川 純

### 1. 研究成果報告

2011 年の福島第一原発の事故による放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ ) の土壤汚染が大きな問題となった。土壤中の放射性 Cs はわずかではあるが植物に吸収され、農作物の放射能汚染を引き起こす。

我々はイネでは K 輸送体である OsHAK1 からほとんどの Cs を吸収することを明らかにした。そして、次のターゲットとしてイネの OsHAK 1 以外の Cs の吸収・輸送を担う輸送体の特定を目指している。

OsHAK 1 以外で根への Cs の取り込み、根に吸収された後の Cs の地上部への移行経路に関与していると考えていた oshak5 と osakt1 のノックアウト系統はいずれも Cs 吸収の大幅な低下を示さなかった。

Cs 吸収には K 以外の他のイオン輸送体の関与も指摘されていることから、oshak1 変異体 (マイナーな Cs の輸送経路のみを持つ) を用いたイオンの吸収競合解析を進めてきた。

今年度は oshak1 変異体と野生型のイネを用いて、Cs および K 吸収に及ぼす K 以外のイオンの競合作用を調べた。oshak 1 変異体は K と競合するメインの Cs 吸収経路が破壊されているため、他の輸送体へのイオンの競合作用が明確に示されるはずである。

$\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{Na}^+$ といったイオンを水耕液に添加し、 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{42.43}\text{K}$  をトレーサーとした実験を実施したが、Cs 吸収を競合作用により大幅に低減させられるイオンは見出すことはできなかった。

現在、キャリアとなる Cs 濃度、水耕液のイオン組成を土壤条件に近いものに変更して実験を進めている。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Rai,H., Kawabata,M., 2020, The dynamics of radio-caesium in soils and mechanism of caesium uptake into higher plants: Newly elucidated mechanism of caesium uptake into rice plants, *Frontiers in Plant Science*, Vol.11, Article 528

頼 泰樹, 河端 美玖 土壤, そして植物への放射性セシウムの動態 化学と生物 vol.58(6), 333-342, 2020

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-11】

**波浪影響下での堆積物供給速度が底面地形粗度に与える影響**

研究代表者：山口 直文

受入研究者：関口 智寛

## 1. 研究成果報告

沿岸域における放射性物質の動態を考える上で、放射性物質を吸着しやすい泥質堆積物の挙動の理解が求められる。2019年度までに実施してきた申請者の共同研究によって、波浪作用下での泥の堆積を考える際に、砂質底面に形成されるウェーブリップルのような粗度となる微小な地形の存在が影響することが示唆された。こうした底面の微小な地形の形成条件については調べられているが、堆積物供給下においてどの程度その形状が維持されるかについては明らかになっていない。そこで本研究では、堆積物供給速度が異なる条件での微小地形の形状について、水路実験によって調べた。

実験は、筑波大学アイソトープ環境動態研究センター環境動態予測部門の二次元造波水路を用いて行った。実験区間には水路内に入れ子型の仕切りを設置し、波浪を作用させた状態で、実験区間内上方から砂を供給した。この砂の供給速度をパラメータとして変えて実験を行い、底面地形の形状と底面近傍の現象を観察した。水路実験では粒径 0.2 mm の豊浦標準砂を使用した。実験は以下のような条件で計 13 試行実施した：周期 1 秒，初期水深 0.3 m，波高 0.07–0.13 m，堆積物供給に伴う砂床上昇速度 2–51 mm/min。

実験の結果、砂の供給速度依存して、リップルとそれに伴う底面粗度が減少または消失することが明らかになった。堆積物供給に伴う砂床の上昇速度が 45 mm/min を超えると、砂床表面のリップルは消失した。また、砂床の上昇速度が 25–45 mm/min の実験では、砂床表面のリップルによる凹凸は維持されるが、その波高は小さくなった。砂床の上昇速度が 25 mm/min 以下の場合には、堆積物供給によるリップルの形状への影響は見られなかった。

今回の結果は、波浪作用下で重要となるリップルによる底面粗度を考える際に、堆積物供給による影響を無視できないことを示唆している。大量の堆積物が供給される状況では、リップルによる底面粗度が減少し、それに伴い泥質堆積物などの巻き上げ効果も抑制されることが考えられる。今後はより広い波浪条件で実験を行うことで、定量的かつ一般的なリップル消失条件を明らかにすることが課題となる。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

Shinozaki, T., Yamaguchi, N. and Sekiguchi, T. (2020), Flume experiments test grain-size distribution of onshore tsunami deposits, *Sedimentary Geology*, 407, 105750.

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-12】

## 海水中のストロンチウムの安全で迅速な分析方法の開発

研究代表者：緒方 良至

共同研究者：小島 貞男・箕輪 はるか

受入研究者：青山 道夫

## 1. 研究成果報告

1. イオン交換法+PSB法による<sup>90</sup>Srの分析

簡略化したイオン交換法で、数時間で<sup>90</sup>Srを炭酸塩沈殿としてメンブランフィルタ上に収集することができることを示した。測定試料は、Plastic Scintillator Bottle(PSB)に入れ、低BG液体シンチレーションカウンタで測定した(PSB法)。IAEA443海水試料、測定当時の公称放射能は $0.0802 \pm 0.0040$  Bq/kg、を1L用い、本法で分析した結果、試料作成直後で $0.083 \pm 0.017$  Bq/kg、<sup>90</sup>Yが成長した後で $0.0782 \pm 0.014$  Bq/kgと評価され、公称値と一致した。図1にIAEA443の<sup>90</sup>Y成長曲線を示す。

## 2. PSB法の計数効率の改良

メンブランフィルタ上の測定試料は測定器の汚染防止のため、100・m厚のポリエチレンフィルムでカバーしていた。その結果、<sup>90</sup>Srに対する計数効率は、40%であった。このフィルムを25・m厚のOriented PolyPropylene(OPP)フィルムに変えたところ、計数効率が98%に上がった。<sup>3</sup>H、<sup>63</sup>Ni、<sup>14</sup>Cなどのより低エネルギーの核種の場合、Plastic Scintillation Film(PSF)に直接滴下、乾燥することによって、計数効率が、それぞれ、14.4%、37%、83.7%と評価され、スペクトルの観察も可能であった。

## 3. ストロンチウム吸着剤

ストロンチウム吸着剤(商品名ピュアセラムMAq、日本化学工業)は、100mgで海水100mL中のSrを吸着できることが分かった。また、Na、K、Mn、CaおよびCsを吸着しないことが分かり、海水中のSr分析に有用であることを示した。一方、Pb、Ra、Acなどを吸着することも分かった。これらの核種は、天然の放射性アイソトープも含まれるため、大量の海水へ適用する場合には注意する必要があることが分かった。

#### 4. PSB 法の Sr Rad Disk への応用

海水中の  $^{90}\text{Sr}$  を Sr Rad Disk へ吸着させ、PSB 法で測定した。非常に簡単な操作で Sr を Rad Disk 上に収集できた。Rad Disk 上の  $^{90}\text{Sr}$  および  $^{90}\text{Y}$  に対する計数効率は、40%および 80%であった。Rad Disk は、少し厚みがあるため、メンブランフィルタ上の炭酸塩沈殿より、多少計数効率が低いことが分かった。

#### まとめ

イオン交換法で、IAEA443 を測定し、公称値との一致を確認した。25・m 厚の OPP フィルムを用い、計数効率が上がった。PSF を使うことにより 3H などの低エネルギー核種へ PSB 法が適用できることが分かった。Sr 吸着剤が Sr 分析に有用であることを示した。PSB 法は Sr-Rad Disk を用いた分析にも有用であることを示した。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-13】

## イネの Na<sup>+</sup>・K<sup>+</sup>輸送体変異体を用いた Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Cs<sup>+</sup> の輸送比較

研究代表者：菅野 里美

受入研究者：古川 純

## 1. 研究成果報告

Cs は、主に植物のカリウム (K) 輸送機構により植物体内へ吸収・移行すると考えられているが、複数存在する K 輸送体のうちいずれにより制御されるのか全貌は明らかではない。私たちは、低 K 環境下でナトリウム (Na)・K 共輸送を行うイネ輸送体遺伝子 OsHKT2;1 の欠損株について、福島圃場栽培試験からそれらが Cs 吸収を増加させることを確認し、OsHKT2;1 の欠損による Na・K の体内量の変化が Cs 吸収へ影響する可能性を示すデータを得ている。そのため、本共同研究では、実験室での水耕栽培により、培地中の Na・K・Cs 濃度をコントロールした条件下での、Na・K・Cs 吸収についてイネ野生型株および変異体株 (oshkt2;1) について調べ、oshkt2;1 での Cs 輸送制御機構を明らかにすることを目的としている。

本年度の研究から得られた結果は以下の 3 点である。

## (1) 遺伝子発現解析

まず、水耕栽培においても、低カリウム条件下で発現量が上昇する遺伝子 (OsHAK1, OsHKT2;1, OsAKT1) が発現することを確認した。その結果、7 日間 K100 μM の栽培の後、K0 μM へ移植し 5 日後にはそれら発現量が 2~10 倍に増加することを確認し、吸収実験のための栽培条件を確立した。

## (2) Na・K・Cs 競合による吸収変化

Na・K・Cs 濃度比の異なる水耕液比条件下でのイネ野生型株および変異体株 (oshkt2;1) の吸収実験を行った。その結果、Na 吸収量は水耕液条件によらず常に oshkt2;1 で著しく低下するのに対し、K・Cs 吸収は、イネ野生型株と oshkt2;1 での有意な差はみられなかった。

## (3) Na による Cs 吸収変化

Cs 吸収は、培地中の Na 濃度上昇に伴いイネ野生型株での吸収が抑制された。一方で、oshkt2;1 の Cs 吸収は培地中の Na 濃度上昇に影響されなかった。

上記の結果を受けて、今後は、主に次の 2 つの点について研究を進める。

- ・植物体内外の Na 濃度により遺伝子発現変動する輸送体の探索を行う。
- ・植物体内外の Na 濃度による輸送体タンパク質量の変動を調べる。

さらに輸送体に限らず、高 Na 濃度において WT と oshkt2;1 で発現量が異なる遺伝子を網



羅的に調べ、Na による Cs 吸収変動の分子メカニズムを明らかにしたい。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-15】

## 福島県における土壌侵食に伴う放射性セシウム流出の

## 観測および解析

研究代表者：大澤 和敏

受入研究者：恩田 裕一

## 1. 研究成果報告

山間地における除染前後での水系を通じた放射性核種の移行量を定量的に評価し、除染シナリオごとに水系を通じて下流域へ運搬される放射性核種の将来予測モデルを構築するために、土壌侵食に伴う放射性物質の流出過程の河川観測を行うとともに、米国農務省で開発された土壌侵食・土砂流出モデルである WEPP (Water Erosion Prediction Project) を用いた土砂・セシウム流出解析を行った。これらによって、森林域における放射性セシウム動態、農地における除染による放射性セシウム流出の低減効果の定量的な解析が行われ、除染が山間地の水系を通じた放射性核種の動態に及ぼす影響評価が可能になることが期待できる。また、除染が未実施の森林域における土砂・セシウムの侵食・堆積過程の経年変化が解析可能となり、将来的なセシウムの流出動向が予測可能になる。

福島県飯舘村における真野川および比曾川を対象流域として、河川上流域における土砂流出に伴う放射性セシウムの流出の現地観測を行った。観測は、流量、懸濁物質濃度 (SS 濃度) を 10 分間隔という短い時間間隔で測定するとともに、出水時のセシウム濃度を採水試料から測定し、セシウム流出量を算出した。定点観測の結果、 $^{137}\text{Cs}$  流出量は 2015 年以降大きく減少し、2019 年まで少量であることが確認できた。今後も流出した土砂に含まれる  $^{137}\text{Cs}$  線量は小さいことが予想される。また、森林斜面における土壌の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、水路周辺および急斜面では低く、緩斜面で高い傾向にあることが確認された。多地点観測の結果、帰還困難区域である比曾川流域における長泥地区から  $^{137}\text{Cs}$  は多く流出することが示された。

上記の流域を対象として、GIS データや気象データを整備した上で、WEPP モデル (GIS 環境で実行可能な GeoWEPP) を用いた解析を行い、降雨・流出に伴う放射性セシウムの侵食・流出過程を検討した。解析の結果、比曾川と真野川の自然減衰と除染活動の影響を考慮した  $^{137}\text{Cs}$  流出量マップを示すことができた。比曾川流域における解析によって得られた流出量の分布は、長泥地区からの流出量が多い傾向にあり、多地点観測の結果と同様の結果が得られた。また、 $^{137}\text{Cs}$  流出が顕著な集水域で、より詳細な土砂動態解析を行った結果、 $^{137}\text{Cs}$  の流出や堆積する場所を評価することが可能であった。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-16】

## 大気と植物・菌類間の放射性セシウム移行可能性の研究

研究代表者：北 和之

共同研究者：五十嵐 康人・保坂 健太郎

受入研究者：古川 純・羽田野 祐子

## 1. 研究成果報告

株)東京電力福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性セシウムは地表や植生に沈着したあと、何らかの形で一部が再飛散により大気中に放出され、拡散・移行している。観測により、森林の近傍では大気中の放射性セシウムが夏季にかけて増加し、この時期に大気中に浮遊する粒子の多くは植生から放出されたと思われる粗大有機物粒子であり、それを純水抽出すると 50-90%の放射性セシウムが水中に脱離することが分かった。

本共同研究では、この大気粒子から純水中に脱離する放射性セシウムが、菌類胞子など生物起源であるのか検討し、またそれが植物に吸収され植物—大気での循環が起こりうるのか、実験によりその可能性を明らかにすることを目的としている。

下記の実験により目的にアプローチした。

1) 福島県浪江町サイトにおいて、大気粒子を連続的に捕集した試料を得る。

2) 1) で捕集した粒子試料を純水抽出し、その前後での放射能を測定し、大気中の放射性セシウムが純水に脱離する割合を理解する。

3) 2) の抽出液でイネなど適切な植物を栽培し、放射性セシウムが植物体内に移行するか実験する。

4) 同様に、浪江などで採取したきのこ胞子の放射性セシウムについて、純水での脱離割合の測定および植物体内に移行するか実験する。

5) 浪江サイトで汚染土壌と非汚染土壌で植物を栽培し、植物が吸収する放射性セシウムを比較し、大気・降水起源の寄与を推定する

まず 2018 年の 1 年を通し、福島県浪江町サイトにおいて大気粒子を連続的に捕集した試料を純水抽出し大気中の放射性セシウムが純水に脱離する割合を調べたところ、6 月から 10 月にかけて 33~95%と水溶性の割合が高いが、1 月と 4 月にも例外的に水溶性の高いサンプルがあった。他は 20%未満であった。この抽出液でイネを栽培したところ、6 月から 10 月のサンプルについては、おおむね純水抽出液中の Cs-137 放射能に比例する形で、イネの地上部に Cs-137 が検出された。その量は栽培開始 48 時間後と 144 時間後では、144 時間後で多くなり、吸収が時間とともに進む様子がわかる。水溶性の割合が高い 4 月のサンプルでもイネへの吸収が見られたが、1 月のサンプルでは検知できなかった。今後、このイネへの吸収割合について、抽出液中の K イオンの量などとの関係を調べる予定である。

また、浪江サイトで汚染土壌と非汚染土壌で植物を栽培し、植物が吸収する放射性セシウムを比較し、大気・降水起源の寄与を推定する実験も実施したが、今回は栽培がうまくいかず十分な量の植物サンプルが得られなかった。栽培条件を整え、再度トライする予定である。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Kazuyuki Kita, Yasuhito Igarashi, Takeshi Kinase, Naho Hayashi, Masahide Ishizuka, Kouji Adachi, Motoo Koitabashi, Tsuyoshi Thomas Sekiyama and Yuichi Onda, Rain-induced bioecological resuspension of radiocaesium in a polluted forest in Japan, Scientific Reports, 10:15330, doi.org/10.1038/s41598-020-72029-z, 2020.

南 光太郎, 堅田 元喜, 北 和之, 反町 篤行, 保坂 健太郎, 五十嵐 康人  
温帯落葉広葉樹林から放出されたバイオエアロゾルの輸送過程の数値解析, エアロゾル研究, 35 巻 3 号 p. 208-218, <https://doi.org/10.11203/jar.35.208>, 2020

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-17】

**特定復興再生拠点区域（帰還困難区域）における除染・解体作業による放射性セシウムの再浮遊・飛散性の動態把握**

研究代表者：平良 文亨

共同研究者：松尾 政彦

受入研究者：平尾 茂一

## 1. 研究成果報告

福島県富岡町では、2023年春頃までに帰還困難区域全域の避難指示解除を目指しており、現在「特定復興再生拠点区域」である夜の森地区を中心に先行除染している中で、建屋の除染・解体作業に伴う福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの再浮遊（舞い上がり）の影響が懸念されている。そこで、当該地区で除染・解体作業が実施された対象建屋敷地内で大気浮遊塵を捕集し核種分析した結果、Cs-137は<0.10-0.62 mBq/m<sup>3</sup>の範囲であった（2020年5-8月）。なお、対照となる避難指示解除区域（富岡町役場）におけるCs-137は、<0.15mBq/m<sup>3</sup>であった。今回の結果は、福島県が実施している大気浮遊じんモニタリング結果（Cs-137：0.035-0.071 mBq/m<sup>3</sup>、夜の森地区、2020年5-8月）と大きく異なり概ね高値を示したことから、除染・解体作業に伴うCs-137の再浮遊が示唆された。しかしながら、解体作業に伴い発生する粉塵量とCs-137濃度との関連性については不明瞭な点も多く、大気の流れの中では、家屋の解体作業に伴うCs-137の再浮遊・飛散性は限定的であると考えられるものの、今後より詳細な調査・解析が期待される。具体的には、PM2.5等の大気汚染物質の把握を含め、さらに詳細な解析が必要である。特に、特定復興再生拠点区域内のより大きな単位で考える視点から、例えば、モニタリング範囲を拡大し、一定程度の雰囲気（エリア）において、工事車両の往来に伴う大気浮遊塵の舞い上がりに伴うCs-137の動態把握等について検討中である。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

1) Cui L, Taira Y, Matsuo M, Orita M, Yamada Y, Takamura N. Environmental Remediation of the difficult-to-return zone in Tomioka Town, Fukushima Prefecture. Sci Rep 10 (1): 10165, 2020.

2) Taira Y, Matsuo M, Yamaguchi T, Yamada Y, Orita M, Takamura N. Radiocesium levels in contaminated forests has remained stable, even after heavy rains due to typhoons and localized downpours. Sci Rep 10 (1): 19215, 2020.

3) Yamaguchi T, Taira Y, Matsuo M, Orita M, Yamada Y, Takamura N. Local Levels of Radiation Exposure Doses due to Radiocesium for Returned Residents in Tomioka Town, Fukushima Prefecture. Radiat Prot Dosimetry in press.

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-18】

## 土壤中の放射性ストロンチウムおよびセシウムに対する新規なキレート洗浄処理技術の開発

研究代表者：長谷川 浩

共同研究者：Begum Zinnat Ara

受入研究者：Rahman Ismail Md. Mofizur

### 1. 研究成果報告

【背景・目的】汚染土壌や廃棄物における有害金属の除去技術では、水による洗浄や土壌粒子の物理的分級が主流であるが、汚染除去率の向上には化学的洗浄法の導入が不可欠である。土壌中においてセシウムは粘土鉱物層へ強く吸着することから、従来の除染技術を放射性セシウム汚染土壌に適用しても除染効果は限定的である。そこで本研究では、ヘキサメタリン酸ナトリウムを用いて土壌粒子を細分化して、土壌粒子の粒径分布と  $^{137}\text{Cs}$  の付着挙動を求め、 $^{137}\text{Cs}$  汚染土壌に対する分級に基づく減容化技術について検討した。

【方法】土壌表面から深さ 10 cm までの土壌試料を採取した。風乾した土壌を自動乳鉢で粉碎後、 $500\ \mu\text{m}$  のふるいを通して均質化した。次に、フローチャート（成果報告会で発表）の手順に従って、精製(Milli-Q)水またはヘキサメタリン酸ナトリウム (5%( $\text{NaPO}_3$ )<sub>6</sub>, Na-HMP) 溶液中で土壌を振とうした後、50 及び  $200\ \mu\text{m}$  のふるいおよび  $0.45\ \mu\text{m}$  フィルターにより粒子サイズで分画し、各画分における放射性セシウム量 ( $^{137}\text{Cs}$ ) を測定した。

【結果】Milli-Q 水（対照試験）と分散剤（ヘキサメタリン酸ナトリウム、Na-HMP）を用いた湿式ふるい分級により得られた土壌の粒度分布を Fig. 1（成果報告会で発表）にそれぞれ示す。分散剤を用いた系では Milli-Q 水の系と比較して土壌粒子は細粒化し、同時に  $^{137}\text{Cs}$  は  $50\ \mu\text{m}$  以下のシルト・粘土画分に濃縮されることを見出した。土壌有機物(OM)に対する Na-HMP の影響を Fig. 2（成果報告会で発表）に示す。分散剤による湿式分級処理により、3 つの土壌試料すべてについて、土壌に含まれる全有機物量(TOM)に対して 1/4 から 1/3 程度の土壌有機物が減少した。土壌中の放射性セシウムについては、土壌有機物に結合した  $^{137}\text{Cs}$  の約 20% が減少した。以上のように、分散剤の利用により土壌有機物が除去され、 $^{137}\text{Cs}$  を微細な土壌画分に移行させることにより、汚染土壌の総量を減容化することが可能であることが分かった。



## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

- [1] Z.A. Begum, K. Ishii, I.M.M. Rahman, H. Tsukada, H. Hasegawa, Dynamics of strontium and geochemically correlated elements in soil during washing remediation with eco-complaint chelators, *J. Environ. Manage.*, 259, 110018, 2020.04, DOI: 10.1016/j.jenvman.2019.110018
- [2] H. Sawai, I.M.M. Rahman, N. Jii, Y. Egawa, S. Mizutani, H. Hasegawa, Thermodynamic study of the acid-induced decontamination of waste green sand generated in a brass foundry, *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 27, 20149-20159, 2020.04, DOI: 10.1007/s11356-020-08512-x
- [3] R.I. Papry, Y. Omori, S. Fujisawa, M.A.A. Mamun, S. Miah, A.S. Mashio, T. Maki, H. Hasegawa, Arsenic biotransformation potential of marine phytoplankton under a salinity gradient, *Algal Research*, 47, 101842, 2020.05, DOI: 10.1016/j.algal.2020.101842.
- [4] R.I. Papry, S. Fujisawa, Y. Zai, O. Akhyar, M.A.A. Mamun, A.S. Mashio, H. Hasegawa, Integrated effects of important environmental factors on arsenic biotransformation and photosynthetic efficiency by marine microalgae, *Ecotoxicol Environ. Safety*, 201, 110797, 2020.05.
- [5] F. Morita, K. Nakakubo, K. Yunoshita, M. Endo, F.B. Biswas, T. Nishimura, A.S. Mashio, H. Hasegawa, T. Taniguchi, K. Maeda, Dithiocarbamate-modified cellulose-based sorbents with high storage stability for selective removal of arsenite and hazardous heavy metals, *RSC Advances*, 10, 30238-30244, 2020.08. DOI: 10.1039/d0ra05573e
- [6] S. Barua, I.M.M. Rahman, M. Miyaguchi, K. Yunoshita, P. Ruengpirasiri, Y. Takamura, A.S. Mashio, H. Hasegawa, Speciation of inorganic selenium in wastewater using liquid electrode plasma-optical emission spectrometry combined with supramolecule-equipped solid-phase extraction system, *Microchem. J.*, 159, 105490, 2020.12. DOI: 10.1016/j.microc.2020.105490.
- [7] S. Miah, S. Fukiage, Z.A. Begum, T. Murakami, A.S. Mashio, I.M.M. Rahman, H. Hasegawa, A technique for the speciation analysis of metal-chelator complexes in aqueous matrices using ultra-performance liquid chromatography-quadrupole/time-of-flight mass spectrometry, *J. Chromatogr. A*, 1630, 461528, 2020.10, DOI: 10.1016/j.chroma.2020.461528

[8] R.I. Papry, S. Fujisawa, Y. Zai, O. Akhyar, A.S. Mashio, H. Hasegawa, Freshwater phytoplankton: salinity stress on arsenic biotransformation, *Environ. Pollut.*, 270, 116090, 2021.02. DOI: 10.1016/j.envpol.2020.116090.

[9] F.B. Biswas, I.M.M. Rahman, K.Nakakubo, K. Yunoshita, M. Endo, K. Nagai, A. S. Mashio, T. Taniguchi, T. Nishimura, K. Maeda, H. Hasegawa, Selective recovery of silver and palladium from acidic waste solutions using dithiocarbamate-functionalized cellulose, *Chem. Eng. J.*, 407, 127225, 2021.03, DOI: 10.1016/j.cej.2020.127225

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-19】

## 磁性及び多孔性 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> による環境汚染重金属の吸着・分離

### に関する研究

研究代表者：有馬 ボシールアハンマド

共同研究者：Begum Zinnat Ara

受入研究者：Rahman Ismail Md. Mofizur

#### 1. 研究成果報告

東日本大震災後に放射線を発生する金属イオンが水の汚染の大きな問題となっている。現在使われている水汚染金属イオンの吸着量が低い、吸着後の分離が難しい、後処分が困難などの問題がある。そこで、吸着量が高い、分離や処分が簡単な吸着材が求められている。本研究では、安価な酸化鉄系の新規材料合成及び重金属イオンの吸着・分離評価を目標とした。以前の研究では我々が開発した合成法で多孔性 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の合成し、As と Cr イオンんの吸着に成功した。今回の研究の前半では多孔性 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いて Cs 及び Sr の吸着実験を行った。pH10 で Cs イオンと pH7 で Sr イオンの吸着量は最大となったが、吸着量は非常に少ない事が分かった (~0.6 mg/g)。期待通りの結果を得られなかつたので、本研究の後半では材料を少し変えて実験を行った。

研究後半では水熱合成法を使って FeOOH ナノ粒子を合成した。合成した試料の SEM 測定結果から粒子サイズは約 100 nm 以下である事が分かった。また、XRD 測定結果から FeOOH の結晶を確認した。

Cs と Sr イオンの吸着実験したところ、室温と pH10 では Cs の吸着量は 0.0 mg/g であったが、Sr イオンの吸着量は 98 mg/g であり、多孔性 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> より約 100 倍になった。FeOOH ナノ材料を用いて今後は pH や温度を変化して Cs と Sr イオンの吸着実験を行う予定である。また、Co, Ni イオンなどの吸着実験も行う予定である。

#### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-20】

## 福島の高層湿原の植物における放射性セシウム汚染

研究代表者：杉浦 広幸

共同研究者：塚田 祥文

受入研究者：塚田 祥文

### 1. 研究成果報告

2011年の原発事故約10年目の福島の高層湿原における野生のブルーベリー‘クロマメノキ’ (*Accinium uliginosum*)果実の放射性セシウム汚染について調査した。2020年10月における磐梯朝日国立公園の景場平湿原に自生のクロマメノキ果実の<sup>137</sup>Cs濃度は、140～524 Bq/kgであったが、福島市内で栽培のブルーベリー (*Vaccinium corymbosum*)果実は6.3 Bq/kgであった。また、2020年10月における尾瀬国立公園の田代山湿原に自生のクロマメノキ果実の<sup>137</sup>Cs濃度は、 $24.4 \pm 5.1$  Bq/kgであった。景場平湿原のクロマメノキ果実における<sup>137</sup>Csの移行係数は、0.134～0.435 (n=3)、田代山湿原では0.206 (n=3)であった。また、福島市瀬上のブルーベリー果実における移行係数は、0.0050 (n=3)であり、湿原の移行係数に比べ1～2桁低く、土壌から植物に移行する放射性セシウムの可給態画分の割合が異なると考えられた。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-21】

福島県北部森林流域からの放射性セシウムの流出形態と貯水池における堆積メカニズムに関する研究

研究代表者：大手 信人

共同研究者：二瓶 直登・川井 拓弥

受入研究者：和田 敏裕

1. 研究成果報告

研究の目的

2011年の福島第一原発事故によって県北部の森林地帯に沈着した放射性セシウム(Cs)は、現在、林床の有機物層、土壌表層などに放射性Csに集中して蓄積し、一部は植生との間で循環している。今後、除染がされない森林からは、これら静的・動的に貯留されている放射性Csが降雨イベント時に流出し、中流に位置する多くの貯水池に一部は土砂とともに堆積する。貯水池の水は周辺の農業用水に用いられており、堆積物からの放射性Csの再負荷の実態も明らかにする必要がある。本研究は森林からの水系を通じた放射性Csの流出と中流域の貯水池における堆積のメカニズムを定量的に明らかにすることを目的とする。

方法

対象地は福島県北部阿武隈川水系上小国川の最上流部に位置し、大半が落葉紅葉樹の二次林である。この森林流域からの浮遊土砂による放射性Csの流出量を経時的に推定するために、降雨イベントにおける集中サンプリング、下流部の貯水池における堆積物の採取・分析を実施した。また、2019年度に観測した台風による大規模降雨イベントの影響を明らかにするため、試料分析とデータの解析を行った。

結果と考察

1. 森林からの<sup>137</sup>Csの流出特性

2019/9/9の台風15号通過時の雨量、流量と渓流水中の<sup>137</sup>Cs濃度の観測結果から、<sup>137</sup>Cs濃度のピークは2回あり、雨量のピークとそれに遅れて生じる流量のピークに呼応していることがわかった。1回目のピークは溪流周辺の土壌表面での雨滴浸食の結果、懸濁物質の流出生じ、<sup>137</sup>Csが流出していることが推測され、2度目のピークは急激な流量の増加による溪岸土壌の侵食で多量の<sup>137</sup>Csの流出が生じたと考えられた。

台風15号の際の河川流量—Cs濃度と河川流量—懸濁物質(SS)濃度の関係については2013年に観測された関係とほとんど変わらなかった。またSS濃度—Cs濃度の関係については

2013年と数値の大きさは似ていたが、2019年の方がより線形に近い関係を示した。SS濃度-137Cs濃度のヒステリシスはほぼ時計回りで、流量が大きくなるとSS中の137Cs濃度が小さくなった。

## 2. 貯水池の堆積物中の137Cs

2018年と2019年に実施した貯水池における堆積物のサーベイの結果を比較し、2019年までのSSのトラップ率を推定したところ8.13-13.96%であった。2018年までのトラップ率は4.6-8.0%であったことから、2019年の上記のイベントによる堆積の影響が大きかったことがわかった。上記のような日雨量100mmを越す降雨イベントは、事故後4回あったが、これらによる出水でのSS、土砂流出量が池底の堆積物のほとんどを占めると推測できた。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-22】

## 帰還困難区域に生息する溪流魚種の地域固有系統の集団動態の解明

研究代表者：津田 吉晃

共同研究者：Fauks Leanne Kay

受入研究者：和田 敏裕・兼子 伸吾

## 1. 研究成果報告

はじめに

帰還困難区域が位置する阿武隈高地は福島県から茨城県北部の沿岸域と福島県中通り地方の中間に位置する、比較的なだらかな山間地域であり（藤川 2018）、多くの冷温帯、亜高山帯生物種の集団遺伝研究において南方系統と北方系統の境界が福島県周辺に位置する傾向が認められる（Tsuda and Ide 2005, Tsuda et al. 2015）。特に帰還困難区域およびその周辺の生物集団に地域固有性がみられる場合には、これら地域の長期的な環境回復策を考慮する上でも重要な情報となる。実際に我々のグループでは 2019 年度の研究でイワナについては地域固有の可能性のある系統が帰還困難区域周辺に分布していることを明らかにした。本年度はこのパターンをより詳細に調べることを目的に、これら地域に生息する溪流魚 4 種（イワナ、ヤマメ、ウグイおよびエゾウグイ）対象にした。

材料および方法

阿武隈高地を流域とし太平洋に注ぐ河川を中心に、福島県内 13 地点において 2017 年から 2020 年にかけて採捕された 4 種、383 個体を遺伝解析に供試した。各魚種の全国規模の系統地理、集団遺伝研究（e.g. Yamamoto et al. 2004, 2019, Watanabe et al. 2018）では母性遺伝するミトコンドリア DNA のシトクロム b 領域を対象としており、これら先行研究の結果と比較統合し、帰還困難区域を含む阿武隈高地周辺地域の集団の地域固有性について評価するためにも本研究では同領域を対象に塩基配列の解読を行った。

結果および考察

イワナでは既報 52 ハプロタイプ（e.g. Yamamoto et al. 2004）のうち 12 ハプロタイプが検出されたのに加え、昨年度検出した新規ハプロタイプ 2 つに加え、さらに 2 つの新規ハプロタイプが検出された。ヤマメにおいても既報 27 ハプロタイプ（Yamamoto et al. 2019）のうち 5 つが検出され、新規ハプロタイプも 3 つ検出された。イワナとは対照的にヤマメでは河川間で遺伝構造が比較的類似しており、集団間の遺伝的分化程度を示す  $F_{ST}$ （0~1 の値をとり、値が高い方が遺伝的分化が強い）はイワナ集団（0.590）よりも明らかに低い 0.239 であった。ウグイでも先行研究の Watanabe et al. (2018) で報告されている 6 ハプロタイプおよび 5 つの新規ハプロタイプが検出された。申請者グループで浜通り地域の分布を再評価、整理したエゾウグイ（和田ら 2021）ではほぼ全ての個体が新規ハプロタイプを示した。

新規ハプロタイプは1塩基違いで2種類見いだされたが、既報の集団から10塩基程度も離れており、他3種での新規ハプロタイプに比べ、より地域固有性が強いことがわかった。特にウグイ属の中での系統関係から、これら地域のエゾウグイ集団は祖先系統がエゾウグイに種分化した後のかなり早い段階でこれら地域に分化したことが示唆された。Watanabe et al(2018)にならいウグイ属の平均塩基置換率を0.76%/100万年とすると、約170万年前に分化した集団であり、氷期と間氷期の繰り返しの耐え現在まで残存した遺存集団である可能性がある。これらの結果について阿武隈高地の地史、各魚種の放流などの影響をより詳細に評価する必要はあるが、対象とした4種全てで帰還困難区域を含む周辺地域から地域固有系統が検出された。これらのことから阿武隈高地およびその周辺は未だ知られていない生物地理のホットスポットである可能性が示された。これらのことから、このような希少な地域系統の維持に配慮した長期的な生物多様性保全・管理が帰還困難区域の環境回復には重要であることが示された。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## 【F-20-23】

## PHITS 計算による原子力災害に伴う被ばく線量評価での高精細

## MRCPs 人体ポリゴンファントムの適用拡大

研究代表者：阪間 稔

共同研究者：佐瀬卓也

受入研究者：赤田 尚史

## 1. 研究成果報告

原子力災害起因の放射性セシウム（セシウムボールも含む）を捕捉した SPM, PM による内部被ばく線量の推定、さらに地面に沈降した成分からの外部被ばく線量の推定が研究目的である。放射能環境動態調査による実データを人体ボクセルファントムとモンテカルロシミュレーション計算による放射線輸送による線量評価への入力パラメータとして適用させることで、外部被ばくや内部被ばくの推定影響を網羅的に行うことができ、原子力災害前の現存被ばく状況よりどの程度が線量影響として加算される可能性があるかを数値的に提供することができる。そのための計算環境整備を実施することができた。この線量評価を行うために、モンテカルロシミュレーション計算コード PHITS の計算空間へ、人体ボクセルファントムを配置して、その莫大なデータによる計算負荷の少ない放射線輸送計算設定が可能な環境整備に繋げることができた。最新の PHITS は version 3.23（2021 年 3 月現在）となり、近年、医用放射線分野への広がりが高まっている。本研究室には 3 台 WS を整備済みで、加えて複数 WS でのメモリ分散型並列計算環境構築を視野に入れて、巨大な人体ファントムデータを柔軟に扱える環境を整える。また、模擬住居生活環境を再現するために 3D CAD（Fusion 360 と Rhinoceros）描画設計と SuperMC の CAD 変換を行い、精密な計算体系を確立することができた。高精細なポリゴン Mesh-type リファレンス人体ファントム MRCPs を人体モデルを計算空間へ取り込むことができた。四面体ポリゴンによる高精細な人体ファントムが、近年、漢陽大学（KOREA）チームによって開発され、これまでの人体各種臓器を高精細に再現できるようになったので、このファントムを PHITS 計算空間に配置し、原子力災害事故直後の避難時から中長期の居住で推定される被ばく状況を推定評価しつつある。

PHITS 計算機能におけるマイクロジメトリー（[t-sed]タリー）と Track Structure を組み込み、それらが有効的に作用していることを確認することができた。モンテカルロシミュレーション計算では、放射線一つ一つの振る舞いを順に、物理的な現象をモデル化条件に合わせて、膨大な計算を実行するため、計算時間が長いことが欠点となっている。そこに人体ボクセルファントムデータが加わると、計算時間がいっそう長くなる。この問題点を解決する

ために、計算機の並列化（メニーコア化）での計算が必須となる。本研究では、既存の計算機環境だけではなく、Fusion360 から MeshLab へ経由させメッシュデータを自由自在に加工することができ、その加工から STL ファイルを生成し、TetGen にメッシュ構造記述のベースとなる .ele（要素）と .node（ノード）ファイルを生成し、MC 計算の phits への取り込みが問題なく実践できることを確認した。四面体構造メッシュ化によるジオメトリ検証（四面体の修復など）と、四面体メッシュでない、例えば三角メッシュなどのデータ構造から T-スプライン記述への変換によるワークフローを構築できた。これによりメッシュ構造（人体や構造体）の編集が可能で、人体特徴（太めや細めなど）を操作できるようになって、現実の体系に近い状況を計算空間上に生み出すことができるようになった。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

松本（川口）絵里佳，阪間稔，濱邊大，神谷慶和，横田健斗，佐瀬卓也，桑原義典，若林源一郎，稲垣昌代，医療用リニアック中性子場を模擬した水晶体サイズでの中性子束密度及び線量評価，近畿大学原子炉等利用共同研究経過報告書 2019 年度，17-24（2020）

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-24】

## 被災アカネズミの凍結保存精子を用いた受精能評価と

### 産子作出の試み

研究代表者：山城 秀昭

共同研究者：中田 章史

受入研究者：三浦 富智

#### 1. 研究成果報告

【目的】生殖巣は放射線高感受性組織の一つであるが、精子形成過程および初期発生過程の生殖・発生における放射線影響は不明な点が多い。従って、個体より得られる生体試料の解析に加え、自然の環境に制御されない、生殖工学技術を用いた評価も必要不可欠である。そこで本研究では、2012年から福島原発旧警戒区域内で継続して採取・凍結保存している被災アカネズミ精子の体外受精能を評価することを目的として、先体の正常性の評価、透明帯を除去したマウス卵子にアカネズミの異種精子の侵入能の評価および同種卵子に対する体外受精能を評価した。

【材料及び方法】野生雄アカネズミは、2012年から2014年、2016年および2018年に福島原発旧警戒区域内にてシャーマントラップを用いて捕獲した。精子は、精巣上体尾部から採取し、マウス精子凍結保存液にて希釈した後、ストローに充填し、液体窒素にて凍結保存した。先体の正常性は、凍結精子を融解し FITC-PNA および DAPI にて先体と核を染色し、蛍光顕微鏡にて観察した。異種間体外受精による被災アカネズミ精子の卵子への侵入能の評価は、透明帯を除去したマウス卵子を用いて行った。同種間体外受精における野生雌アカネズミは、新潟県角田山にて捕獲し、過排卵誘起処理に IASe (抗インヒビン血清+eCG) を投与して採卵し、体外受精後の2細胞期までの胚の発生率を評価した。

【結果】被災アカネズミにおいて、凍結融解後の生存率が60%以上で精子を凍結保存することができた。精子の先体の形態は、80%以上が正常であり、異常は認められなかった。異種間体外受精の結果、対照区と比較して、マウス透明帯除去卵子への侵入能に有意な差は認められなかった。凍結融解後の被災アカネズミ精子を体外受精した場合、現在、実験は継続中であるが、21~45%の割合で2細胞期胚まで体外発生した。以上の結果より、被災アカネズミへの放射線影響、特に精子の継時的な受精能は維持されていたことを明らかにした。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Komatsu K, Iwasaki T, Murata K, Yamashiro H, Goh VST, Nakayama R, Fujishima Y, Ono T, Kino Y, Shimizu Y, Takahashi A, Shinoda H, Ariyoshi K, Kasai K, Suzuki M, Palmerini MG, Belli M, Macchiarelli G, Oka T, Fukumoto M, Yoshida MA, Nakata A, Miura T. Morphological reproductive characteristics of testes and fertilization capacity of cryopreserved sperm after the Fukushima accident in raccoon (*Procyon lotor*). *Reproduction in Domestic Animals*, 56 (3), 484-497, 2021. DOI: 10.1111/rda.13887

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-25】

## 環境中ラドンによる放射線施設監視モニタの感度確認 2

## ：活性炭型ラドン検出器による感度確認

研究代表者：安岡 由美

共同研究者：飯本 武志・向 高弘

受入研究者：床次 眞司・細田 正洋

## 1. 研究成果報告

【緒言】 全国の密封されていない放射性同位元素取扱施設（RI 取扱施設：約 2000 施設）における気体状 RI の漏えい監視のモニタ（大型通気式電離箱）が全国で稼働している。今後の原子力発電所事故対策として平常時及び事故時の大気中放射能レベルの測定のために、RI の監視モニタ利用できないかについて研究を進めてきた。現在、本研究チームでは、天然放射性同位元素のラドン変動が測定できることは確認してきた。しかし、この監視モニタの感度確認は、放射線の外部照射によって実施しており不十分である。監視モニタの整備を確実にを行う方法論を、天然放射性同位元素のラドン( $^{222}\text{Rn}$ )を用いて確立することを目的とする。2020 年度はラドンモニタを標準として、活性炭ラドン捕集器が室内ラドンレベルを用いた監視モニタの感度確認に有効かどうか決定するため、定量性が保持できる湿度について検討した。

【方法】 自家製ラドンケース（12L）に活性炭ラドン捕集器としてピコラド検出器 4 本を設置し、ラドンを 48 時間曝露した。同時に AlphaGUARD (Bertin Instruments) で、ピコラド検出器回収前 6 時間の平均ラドン濃度[1]を求め、基準値 CS ( $\text{Bq m}^{-3}$ ) とした。また、温度と相対湿度についてもピコラド検出器回収前 6 時間の平均値を求めた。ピコラド検出器は曝露後、液体シンチレータ（インスタフロープラス、PerkinElmer Inc.）を 15mL 添加し、1.8 日放置後、液体シンチレーションカウンタ（Tri-Carb2300TR、PerkinElmer Inc.）で測定した。ピコラド検出器 4 本から平均ラドン濃度を求め検証値 C（1 立方メートル当たりの Bq 数）とした。同時に AlphaGUARD で測定した基準値と比較することで、ピコラド検出器への相対湿度の影響について検討した。ピコラド検出器の校正は弘前大学のラドン校正場で実施した。

【結果・考察】 ラドン濃度（1立方メートル当たり20～33kBq）の場に、相対湿度（30～90%）において48時間ピコラド検出器を曝露した。検証値について、基準値との測定差D%を求め、95%信頼区間を決定した。

相対湿度と測定差において、各測定差の95%信頼区間が±25%以内[2]であれば、測定を有効とした。以上より、ピコラド検出器で48時間曝露した場合、相対湿度26%と74%において、ピコラド検出器で測定したラドン濃度が有効範囲内であることが示された。24時間曝露の実験では相対湿度90%で感度が15%減少すると報告されているが[3]、48時間曝露の本実験では相対湿度が75%を超えると大きく感度が低下する可能性が示された。

【参考文献】. [1] Wakabayashi et al., 2019. Radioisotopes 68, 317-329. [2] The American Association of Radon Scientists and Technologists and the American National Standards Institute, 2015. MAH-2015. [3] Iimoto et al., 2005. J. Environ. Radioact. 78, 69-76. .

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

Shunya Nakasone, Akinobu Ishimine, Shuhei Shiroma, Natsumi Masuda, Kaori Nakamura, Yoshitaka Shiroma, Sohei Ooka, Masahiro Tanaka, Akemi Kato, Masahiro Hosoda, Naofumi Akata, Yumi Yasuoka, Masahide Furukawa, 2021. Temporal and Spatial Variation of Radon Concentrations in Environmental Water from Okinawa Island, Southwestern Part of Japan. International Journal of Environmental Research and Public Health, 18(3), 998. <https://doi.org/10.3390/ijerph18030998>

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-26】

## ムラサキイガイを用いた放射性核種のバイオモニタリング

### 手法の開発

研究代表者：白井 厚太郎

共同研究者：杉原 奈央子

受入研究者：田副 博文

#### 1. 研究成果報告

2011年3月に発生した福島第一原発の事故によって環境中に放出された放射性セシウムは未だ環境中に残留している。特に沿岸域では、福島第一原発からの継続的な漏洩や、放射性セシウムを吸着した土壌の流入、堆積物の再懸濁が懸念されているため、効率的なモニタリング手法が必要とされている。本研究では、沿岸域の放射性セシウムの時空間変動を把握することを目的として、2011年から2015年に東北太平洋沿岸から採取したイガイ類軟体部中の放射性セシウムを測定した。結果、2011年に採取した試料からは岩手から福島の広い範囲で $^{137}\text{Cs}$ が検出されたが、2012年以降仙台以北の地点で検出限界以下であった。それに対して福島県の多くの地点では2012以降2015年に採取した試料まで $^{137}\text{Cs}$ が検出され続けた。また、事故からの時間経過によって多くの地点では $^{137}\text{Cs}$ 濃度が低下していったものの、四倉から採取した試料の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は、低下速度が他の地点の試料と比較して遅かった。今年度はさらに海水や堆積物の $^{137}\text{Cs}$ 濃度のモニタリング結果と比較し、イガイ軟体部の $^{137}\text{Cs}$ 濃度の変動は堆積物濃度の変動パターンと似ていたことがわかった。これはイガイの $^{137}\text{Cs}$ が海水中の懸濁態粒子の $^{137}\text{Cs}$ 濃度を反映していると考えられ、土壌の流入や海底堆積物の再懸濁があったことを示唆している。

#### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-27】

## 小核アッセイ法による生殖細胞の放射線感受性評価

研究代表者：中田 章史

共同研究者：山城 秀昭

受入研究者：三浦 富智

## 1. 研究成果報告

放射線汚染地域においては、精力的な除染・復興活動により環境中の空間線量率が低下してきている。しかしながら、将来の帰還住民において、低線量慢性被ばくによる発がんや継世代影響が最も関心の高い人体影響であると考えられる。放射線による生物影響において、体細胞に関しては歴史的にも多くの研究がなされ、急性障害や晩発障害が生じる線量が明らかとなってきている。一方、次世代への影響が関与する生殖細胞においては、生殖・発生に関する知見が乏しいのが実情である。しかしながら、生殖細胞で起こる減数分裂で観察される染色体は、体細胞分裂と比べ染色体構造が不明瞭であり、減数分裂の様々なステージを経るため染色体形態も多様であることから、異常の検出が困難である。

昨年度の年次報告で申請者らは、緊急被ばく医療等で利用されるヒト末梢血リンパ球における細胞遺伝学的線量評価法の1つである細胞質分裂阻害微小核（CBMN）法が生殖細胞に対しても適用可能であることを明らかにしたが、十分な観察細胞を得ることができなかった。

本年度は、マウスの精細胞に対して、CBMN法に適した細胞質が明瞭な二核細胞を回収する方法の改良を試みた。また、その方法を用いて放射線を照射したマウス性細胞における放射線影響の解析結果について報告する。

6週齢のC57BL/6Jマウスに0.5～3 GyのX線を照射し、0～72時間後に精巣を摘出した。その後、酵素的に精細管内の細胞を分散させた。精細管内の細胞浮遊にCytochalasin-Bを添加して培養を行なった。その後、細胞浮遊液から標本を作成し、蛍光染色を行った。顕微鏡下で微小核の解析・画像撮影を行った。また、ヒト末梢血リンパ球を対象とした従来法を精巣に対して行いギムザ染色で観察した。

その結果、ヒト末梢血リンパ球を対象とした手法よりも、細胞質の損傷が少なく、細胞質が明瞭な二核細胞が回収することが可能となった。また、精細管内細胞では、細胞質内に顆粒があり、ギムザ染色では微小核の識別が困難だが、アクリジンオレンジ染色により識別が容易になった。

改良した方法を用いて放射線照射後における精細管内細胞の微小核の頻度を算出したところ、72時間後まで経時的に微小核頻度が増加し、線量依存的に増加することが明らかになった。



## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-28】

## 大気中放射性核種測定装置のトロンガスの影響

研究代表者：岩岡 和輝

共同研究者：玉熊 佑紀

受入研究者：床次 眞司・細田 正洋

## 1. 研究成果報告

事故による追加の被ばくを評価するために、全体の被ばくから自然核種を分けて評価する必要がある。全体の被ばくから自然核種の影響を分けて正しく評価するには、自然核種の測定機器の品質を担保する必要がある。本研究では、自然核種の影響の主要因であるラドンについて、その測定装置の弁別性を確認するために、弘前大学のトロンガス曝露施設を用いてラドン測定装置にトロンを曝露した。トロンガス 12000 Bqm-3 の曝露によって、それぞれのラドン測定装置のラドン濃度の指示値が上昇した。これは、トロンガスがラドンガスと誤って計測されていることを意味し、今回使用したラドン測定装置はトロンの影響を受けることが分かった。

今後、トロン弁別のための技術開発を検討する。これにより、福島原発事故の影響を受けた地域において信頼性の高いラドンデータを取得して、全体の被ばくのうちのラドンの影響分(自然核種の影響分)を評価できるようになる。この情報は福島原発事故による放射線影響に不安を感じる地域住民に対してのリスクコミュニケーションに役立つものとなる。例えば、全体の被ばく量に占める自然核種の割合が非常に大きい場合、事故によって追加で受ける被ばく量が非常に小さいこと認識することになり、地域住民の被ばくに対する不安解消につながる可能性を秘めている。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Kazuki Iwaoka, Ryoju Negami, Yuki Tamakuma, Masahiro Hosoda, Lorna Jean H. Palad, Shinji Tokonami, Chitho P. Feliciano, Reiko Kanda. Evaluation of the Influence of Thoron on Portable Radon Measurement Devices, *Philippine Journal of Science*, 150, 257-261 (2021).

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-29】

## ラドン及び子孫核種の移行過程の解析と放射能環境動態の解明

研究代表者：樋口 健太

共同研究者：玉熊 佑紀・秋葉 澄伯

受入研究者：床次 眞司・細田 正洋

### 1. 研究成果報告

桜島は現在も噴火を繰り返し火山灰や二酸化硫黄,放射性核種などを大気へ放出している。そこで、桜島近郊でラドン子孫核種を計測したデータを用いて環境放射能の動態について解析することを目的とした。測定方法と対象核種は、ラドン子孫核種測定器 S-2336（応用光研）を用いて RaA (218Po), RaB (214Pb), RaC (214Bi)を測定した。場所と期間は、鹿児島市が2001年3月-2002年1月(N=5,995), 垂水市が2002年1月~6月, 2002年10月~2004年9月 (N=12,893)である。ラドン子孫核種である RaA,RaB,RaC の放射能濃度を比較したところ、桜島に隣接する垂水市の方が桜島より 10km 離れた鹿児島市よりも有意に高い濃度であった。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-30】

## 福島第一原発事故後の環境に棲息するアライグマの歯の ESR 測定を

## 妨害する因子の除去法の開発

研究代表者：高橋 温

受入研究者：三浦 富智

## 1. 研究成果報告

## 【緒言】

歯は形成されたのち代謝されない特徴的な器官である。歯への放射線照射は、歯質中に炭酸ラジカルを発生させ、それらの炭酸ラジカルは、歯質中に長く保持されることが知られている。放射線照射量と歯質中に発生する炭酸ラジカル量には比例関係があるので、ESR 計測により歯質中の炭酸ラジカル量を測定することにより、個体の外部被ばく量の推定が可能である。ESR 測定のためには測定プログラム上でスペクトルがフィッティングすることが重要であるが、ヒトやサルではフィッティングできるがアライグマにおいてはフィッティングに至っていない。本研究ではこのトラブルを解消するためにアライグマの歯のエナメル分離を行う前に歯の表層の不純物を徹底的に除去し、フィッティングを試みた。

## 【方法】

ESR 計測を妨げる何らかの妨害物質が、歯の表層に外界から蓄積したと仮定し、従来の前処理に、物理的な組織の剥離を行い、スペクトルの変化を検討した。比重 2.5 の重液で分離した分画からでは十分量のエナメルサンプルを得ることが困難であったため①、象牙質の損失が大きくなるが比重 2.2 で分離した分画からエナメルサンプルを調製したのもも検討した②。(①PL-027-1 (44 mg), ②PL-027-2 (130 mg))

## 【結果と考察】

上記①②のスペクトルは同じ個体由来であるので同様のスペクトルカーブを得たが質量の大きい②のスペクトルはブレが少なく、いわゆる S/N 比の向上によりきれいなスペクトルを得ることができたと癌が得られた。重液の比重に関係なく、適切な化学処理により重液の比重に関係なく、同質のサンプルが得られたと考えられる。スペクトルは炭酸ラジカル量に依存するので、サンプル量の多いほうがきれいなスペクトルを得ることができた。しかしながら、基線の傾きは依然認められたため、妨害物質は完全に除去できていないものと思われた。アライグマにおける妨害物質の除去は歯質の構造に取り込まれた物質によるものであると考えられ、未照射の状態での非常に少ない炭酸シグナル量ではフィッティングを可能にすることは相当困難であるものと考えられた。したがって、本検討で明らかになったよ

うに炭酸シグナルの絶対量を確保する手法を用いて検討する必要がある。そのためには、サンプル量の確保のほかに人工照射により炭酸シグナルを人為的に増加させることも必要で、それにより炭酸ラジカルを増加させ、妨害物質由来のシグナルによる影響を減少させるような手法の検討が必要と考えられた。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-31】

## 環境物質を応用した教育用自然放射線源の開発

研究代表者：飯本 武志

共同研究者：小池 弘美

受入研究者：床次 眞司

## 1. 研究成果報告

本研究では、身近に存在する物質を用いた教育現場で使用できる自然放射線源の開発を行った。食品や日常の消費財を材料として利用するため、放射線規制を受けることなく人・場を問わず使用可能で、放射線教育に直接的な貢献ができる。ここでは、A 線源の特徴に関する放射線学的な検討、B 開発した自然放射線源近傍における放射線分布の評価、に分けて検討した。具体的には、A では含有核種の同定と比放射能の測定を実施した。また、B ではモンテカルロシミュレーションと実測を組み合わせ、線源からの距離別に放射線束の変化を評価した。材料素材として理科実験用の塩化カリウム、乾燥昆布、インスタントコーヒー、湯の華を選定した。

A では、粉末化した素材を U8 容器に封入し  $\gamma$  線スペクトロメトリを行った。測定器には Ge 半導体検出器を選択した。U8 容器に高さ 50 mm 重量 94g の標準となる線源を封入し、測定上のピーク効率を評価した。実際の供試試料の重量としては 60-107g と幅があり自己吸収の影響を無視できないことから、モンテカルロシミュレーションを用いて測定器と標準線源の体系を再現し、線源密度を変更して補正係数を計算した。たとえば、湯の華では 278keV、583keV などにピークが出現し、これにより  $^{212}\text{Pb}$  や  $^{208}\text{Tl}$  が含まれることが判明した。トリウム系列を含む湯の華では  $\alpha$  線を放出する核種が多いため、各線種の特徴を理解する実験に活用できる可能性があるといえる。塩化カリウムは  $^{40}\text{K}$  を多く含むため（比放射能は 23.6Bq/g）、 $\gamma$  線もしくは  $\beta$  線の特徴を学ぶ教育に適している可能性が高い。

B では単位面積当たりの放射線入射数を示すフラックスについて、 $\gamma$  線に着目し、距離別の変化を検討した。点線源が仮定できる場合、 $\gamma$  線のフラックスは距離の逆二乗則に従う。しかし、自然放射線源のように、必ずしも点線源とは仮定できず、ある程度の体積がある場合には距離の逆二乗則に従うとは限らない。ここでは距離別のフラックス変化のシミュレーション結果に、距離の逆二乗則の式をフィッティングして比較した。その結果、両者は結果的にほぼ一致し、学校実験の実施の観点では距離の逆二乗則にしたがうと考えてよいことが示された。一方、実測定では GM サーベイメータの  $\gamma$  線の検出効率が 1%以下と他の測定器に比べ低いため、今回制作した線源試料ではバックグラウンドレベルを大きく超える計数を得ることができず、現時点では  $\gamma$  線源としての利用が難しいことも判明した。

効果的な放射線教育のためには、対象者の習熟度や興味に合致した、多様な実験方法と考察のモデルを用意するが重要である。今後は自然放射線源を用いて実施可能な実験方法の整理と、文部科学省が策定した学習指導要領等と実験を結びつけ、開発された線源の具体的な活用方法の提案をする。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-32】

## 貝殻を用いた海水中の放射性ストロンチウムモニタリング法の検討

研究代表者：苅部 甚一

共同研究者：井筒 達哉・落部 一輝

受入研究者：田副 博文

## 1. 研究成果報告

2011年の福島福島第一原子力発電所事故（原発事故）により東日本太平洋沿岸に放射性ストロンチウム（Sr）が流出したことが分かっている。一方で、この放射性 Sr 分析法は作業工程が多く、時間がかかる分析法であることが知られている。そのため、この海域における放射性 Sr の長期的なモニタリングや新たな海洋汚染に備えるためにも、放射性 Sr 分析法の迅速化、簡略化は必要である。そこで本研究では、海水中の Sr を濃縮する特性を持つ貝殻を用いて、海水中の放射性 Sr 濃度を簡易的に把握する方法を検討した。

今回の研究では2019年に福島県浪江町の請戸漁港および福井県坂井市の海岸で採取したムラサキインコガイの貝殻を分析対象とした。採取した貝殻を大きさごとに分け（1-2cm, 2-3cm, 3-4cm, 5-6cm, 6cm以上）、それぞれの個体の貝殻を酸分解し、DGA レジンを用いた固相抽出法を用いた Y 分離を行った。固相抽出による溶離液から水酸化鉄の沈殿とともに放射性 Sr（Sr-90）の娘核種である放射性イットリウム（Y-90）を含む Y を回収し、ベータ線測定試料を作成した。その試料に対して低バックグラウンドガスフローカウンターを用いて  $\beta$  線を計測し、最終的に放射性 Sr（Sr-90）濃度を算出した。

両地点の放射性 Sr 濃度を比較した結果、福井県の海岸では Sr-90 は検出できなかったが（定量下限値（1.0Bq/kg）以下）、福島県で採取した個体については、小型の 1-2cm は定量下限値以下（1.0Bq/kg 以下）であったが、3-4cm では 3.2Bq/kg（n=3）、4-5cm では 3.5Bq（n=2）、5-6cm では 8.4Bq/kg（n=3）、6cm 以上では 8.4Bq/kg（n=1）となり、大型個体になるほど Sr-90 が高くなる傾向がみられた。同時に採取した海水の Sr-90 濃度は両地点ともに定量下限値以下（0.001Bq/kg 以下）である事、個体サイズが大きいことはその個体の生息期間が長いことが予測できることから、今回のような大型個体程 Sr-90 濃度が高くなる要因の一つは、請戸漁港付近の海域の Sr-90 濃度が 2019 年以前に原発事故の影響で高濃度になっており、その海水に含まれる原発事故由来の大量の Sr-90 を今回分析したような大型個体を取り込み、貝殻に蓄積していたためであることが挙げられる。今後は様々なサイズ、福島県内での複数地点で採取した個体の分析を進めるとともに、個体の年齢推定を行い、貝殻を用いた海水中の放射性 Sr 濃度モニタリング法の確立を目指す。



## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-33】

## 水中ラドン計測によるサンゴ礁海域の陸源湧水探索に関する研究

研究代表者：古川 雅英

共同研究者：城間 吉貴・細田 正洋

受入研究者：床次 眞司・赤田 尚史

## 1. 研究成果報告

一般環境に遍在するラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) は、水循環過程を知るためのトレーサーとして利用できるが、陸水の海洋環境への影響を評価する上で重要な海底や沿岸域における湧水や浸み出しに関する定量的評価への応用については、手法が十分に確立されているとはいえない状況である。本共同研究（研究組織）では、これまでに蓄積してきた様々な高精度放射能測定技術を組み合わせることにより、近年の環境変動や陸源物質による汚染などで発達が危ぶまれているサンゴ礁への陸水（発達阻害因子の一つ）の影響評価を試みる。本年度は、沿岸部のサンゴ礁面積が広い琉球列島の島々において、従来は情報が不足していた陸水流入過程の定量的把握を試みる。

本研究では、沿岸部に湧水が点在している沖縄島南部の米須海岸（ $26^{\circ} 05' 17'' \text{ N}$ 、 $127^{\circ} 42' 05'' \text{ E}$ ）をフィールドとし、計 13 地点でサンプリングを行った。水中ラドン濃度は、液体シンチレーションカウンタ（Tri-Carb2910TR, PerkinElmer）を用い、1 試料あたり 60 分間測定で定量した。また、現地では水温、塩分の測定を行った。

水中ラドン濃度は、N.D. から  $1.8 \text{ Bq/L}$  の範囲であり、湧出地点で高い濃度を示し、湧出地点から離れるに従い、濃度は減少傾向を示した。陸地から約 20 m 離れると検出下限値以下（ $<0.88 \text{ Bq/L}$ ）となり、当該地域での地下水の湧出が主に沿岸域からの流出であることが示唆される。加えて、水温も湧出地点から離れるにつれ、低くなる傾向がみられ、水中ラドンの濃度分布と同様の傾向であった。水中ラドン濃度測定により、陸域から沿岸域にかけての地下水の流出域を観測することができた。一方、塩分に関しては、各地点ともに 0% であり、湧出地点から約 80 m までは淡水の影響がみられた。以上のことから、水中ラドン濃度の測定により、沿岸域における陸源湧水地点の分布状況を把握することができた。今後、陸源湧水の湧出量を把握するため、当該地域の海岸線を中心に追加で探索を行い、湧出地点の分布を詳細に把握する必要がある。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-34】

## 野生動物への低線量放射線影響評価のための

## バイスタンダー効果の検討

研究代表者：有吉 健太郎

受入研究者：三浦 富智

## 1. 研究成果報告

## 「背景」

放射線が当たっていない細胞において、照射されたかのような反応を示す現象をバイスタンダー効果といい、照射された細胞から出される何らかのシグナルによって、非照射細胞にDNA損傷、染色体異常、アポトーシス（細胞の自殺）などが引き起こされる。

この現象は、特に照射された細胞と非照射の細胞が混在する低線量放射線被ばくの際、大きな問題を引き起こしうる。（例えば、染色体異常頻度によって被ばく線量を推定する際、バイスタンダー効果によって染色体異常がかさ上げされてしまう。）

実験的には、照射された細胞の培養培地を非照射細胞に加える方法が多用されているが、現在までに野生動物でバイスタンダー効果が確認された事例は少なく（ヨーロッパアカザエビ、ニジマス、ミジンコ、アカネズミ等）であり、バイスタンダー効果は進化上保持されているか否かは依然はっきりしていない。

そこで本研究は、野生のニホンザル、アライグマ、アカネズミから採取した細胞、およびヒトの細胞を用いて（1）野生動物由来の細胞においてバイスタンダー効果が出現するか、（2）バイスタンダーシグナルが種を超えて効果を及ぼしうるか、の2点を検討することで、種を超えて進化上保存されたバイスタンダーシグナルの存在を検討した。

## 「材料と方法」

ヒト細胞(HDFn)、ニホンザル細胞(mff441)、アライグマ細胞(PL033)およびアカネズミ細胞(N3(1))を用いて実験を行った。2 Gy (1Gy/min) の放射線を照射したHDFnを48時間培養し、培養液を回収後、0.45 μm ミリポアフィルターを通過させ、放射線を照射していないHDFn、mff441、PL033、N3(1)細胞に24時間処理した。その後、照射細胞の培地を処理した細胞において小核試験を行った。

## 「結果と考察」

照射細胞の培地を処理したHDFn、mff441、PL033、N3(1)細胞の全ての細胞株で微小核の出現頻度が有意に上昇した。HDFnの非照射細胞由来の培地では微小核の頻度に影響を与えなかったことから、照射されたヒト細胞から放出されたバイスタンダーシグナルが、種を超えて効果を及ぼしたものと考えられる。今回の結果は、バイスタンダー効果は進化上保存

された機構であることを示唆しており、今後照射されたヒト以外の細胞の培地が他の生物種細胞にバイスタンダー効果を誘導するか否かを検討する。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-35】

## 福島沿岸海域における高線量粒子の海洋生態系影響に関する研究

研究代表者：神田 穰太

共同研究者：石丸 隆・伊藤 友加里

受入研究者：田副 博文

## 1. 研究成果報告

福島沖で採集されるプランクトンネット試料（330  $\mu$ m メッシュによる）には、福島第一原発の事故から数年を経ても、しばしば高濃度の放射性セシウムが観察される。その濃度は周囲の海水に較べて著しく高いことから、プランクトンが海水から放射性セシウムを取り込んだのではなく、試料中に高セシウム含有微細粒子（CsMPs）が混在しているためと考えられ、そのような粒子はイメージングプレート（IP）によるオートラジオグラフィにより確認されている。

本研究では、2011年11月に日本海洋学会とNHKが実施した福島第一原発20km圏内海洋調査によって得られたネット試料とその後、東京電力によって同一地点で採集された試料、福島県水産海洋センターが定点において定期的に採集してきたネット試料の放射能データを整理した。原発近傍では事故直後に200 Bq/kg-wet、事故の7年後にも100 Bq/kg-wetを超える試料が散発的に見られた。また、原発から数十キロ離れた地点からも、希ではあるが数十 Bq/kg-wet を超える試料が採集されている。Cs-137濃度の高い試料を選び出してIPにより解析したところ、多くの場合、1個当たりのCs-137濃度が1 Bqを超えるCsMPsが1ないし数個見られたが、全く見られない試料もあった。CsMPsの試料全体の放射性セシウムに対する寄与率は0～56%である。長時間曝露により、粘土鉱物に吸着したと考えられる低濃度の粒子の存在も確認されたが、それらの濃度を加算してもバルク濃度を説明することはできなかった。

現在までにネット試料から単離・同定された唯一の粒子は2mm角のプラスチック片に付着して採集されたCsMPsであり、CsMPsがネットで捕集されるためには、このようにより大きい浮遊粒子への付着や、動物プランクトンの誤食による消化管内への滞留、あるいは植物プランクトンの生産する細胞外高分子、動物プランクトンの糞粒、死骸等とともに凝集してマリンスノーのような大型粒子を形成することなどが必要である。今後は、ホルマリン保存されているプランクトン試料を半乾燥状態でIPにより解析し、CsMPs等の存在形態を確認することにより試料中の放射性セシウムの起源と海洋への拡散過程を解明する予定である。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Tateda, Y., K. Misumi, D. Tsumune, M. Aoyama, Y. Hamajima, J. Kanda, T. Ishimaru, T. Aono, : Reconstruction of radiocesium levels in sediment off Fukushima: Simulation analysis of bioavailability using parameters derived from observed <sup>137</sup>Cs concentrations, Journal of Environmental Radioactivity, 214-215, 10.1016/j.jenvrad.2020.106172, 2020.

Kubo, A., K. Tanabe, Y. Ito, T. Ishimaru, M. Otsuki, H. Arakawa, Y.W. Watanabe, H. Miura, D. Tsumune, J. Kanda: Changes in radioactive cesium concentrations from 2011 to 2017 in Fukushima coastal sediments and relative contributions of radioactive cesium-bearing microparticles. Marine Pollution Bulletin, 161, 111769. 2020.

Miura, H., T. Ishimaru, Y. Ito, Y. Kurihara, S. Ootosaka, A. Sakaguchi, K. Misumi, D. Tsumune, A. Kubo, S. Higaki, J. Kanda, Y. Takahashi: First isolation and analysis of caesium-bearing microparticles from marine samples in the Pacific coastal area near Fukushima Prefecture. Scientific Reports, 11, Article number: 5664. 2021.

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-36】

## 福島第一原子力発電所近傍の環境試料の核種分析による沈着状況の

## 解明

研究代表者：箕輪 はるか

共同研究者：吉川 英樹

受入研究者：田副 博文

## 1. 研究成果報告

## 1. 背景

福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性物質の起源原子炉の判別には、Cs 同位体比を使うことが可能と考えられる。燃料の燃焼度から推定した Cs-134/Cs-137 比は、1号機 0.93、2号機 1.08、3号機 1.05 であり、1号機由来は判別できるが2号機と3号機の判別は困難である。本研究では、起源原子炉推定の指標となる元素・核種を探し、2号機と3号機の区別を Cs 以外の元素・核種の存在量の違いから推定する方法を検討した。

## 2. 目的

元素・同位体比分析により環境中試料の起源原子炉を推定する方法を検討する。

原子炉近傍の試料を分析し、原子炉での生成条件や放射性物質の放出状況を明らかにする。

## 3. 試料と分析計画

試料：原子炉近傍から採取した、室内外のダスト試料、土壌試料、放射性物質含有粒子

分析方法：ICP-MS, ICP-AES, Ge 半導体検出器、 $\alpha$  線スペクトロメトリー

分析対象核種：U-234, U-235, U-236, U-238, Pu-238, Pu-239, Pu-240

## 4. 測定核種の検討

公表されているサイト内試料分析値[1] と核燃料燃焼率からの炉内生成量比[2] とを比較したところ、2号機では、圧力容器(RPV)内試料の値は、生成量比とほぼ一致した。つまり、原子炉内と同じ元素比・同位体比で環境中に放出されたと考えられる。3号機では、タービン建屋(T/B)・格納容器(PCV)内試料の値は Pu-238/U-236 比が減少していた。水の影響により U と Pu が分別されて、Pu/U 比に変動が生じた可能性が考えられる。したがって、環境試料中の Pu-238/U-236, Pu-239/U-236 比により、放出時のウェットウェルベントの影響の有無などを推測することができる可能性がある。



## 5. 今後の計画

ICP-MSによる環境試料のU、Pu同位体比の測定を行なう。

## 6. 参考文献

- [1] 日本原子力研究開発機構、国際廃炉研究開発機構「福島第一原子力発電所事故廃棄物に関する分析データ集(FRAnDLi)」<https://frandli-db.jaea.go.jp/FRAnDLi/> (最終閲覧2021/3/1)
- [2] 西原健司、岩元大樹、須山賢也(2012)「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」JAEA-Data/Code 2012-018

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-37】

## 山形蔵王で観測される樹氷を構成する水の同位体組成

研究代表者：柳澤 文孝

共同研究者：保原 雄大・吉原 美咲

受入研究者：赤田 尚史

### 1. 研究成果報告

蔵王のアイスモンスター（樹氷）は着氷・着雪および焼結を繰り返すことで生成している。生成高度は 1550m以上の自由大気層である。樹氷を採取し、水素・酸素同位体組成を測定して水蒸気の移動経路を検討した。水蒸気の同位体比は、冬型の場合は高く、南岸低気圧の場合は低くなっていた。また、水蒸気の起源は、冬型の場合は日本海、南岸低気圧の場合は東シナ海であった。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-38】

## Quantification of the material transport between the Kuroshio and marginal seas using multiple tracers

研究代表者：Zhang Jing

受入研究者：田副 博文

### 1. 研究成果報告

The Kuroshio, as the main western boundary current in the North Pacific, plays an important role in the material transport and greatly influences the ecosystem in a large area. From previous studies, many researches about physical processes between the Kuroshio and marginal seas have been conducted, including the exchange between the atmosphere, seawater and sediment. Through these processes, materials get redistributed in some areas and are transported to other areas during the flowing of the Kuroshio. However, little quantification result using chemical tracers has been reported. In this study, samples were collected during the KH-17-5 cruise in November 2017 and the NN464 cruise in July 2017. The water originated from the subtropical mode water (WO-STMW) in the WPBCA was identified and related typical diapycnal/isopycnal water mixing processes were quantified, based on the interdisciplinary research combining the physical observations and chemical  $^{137}\text{Cs}$  tracer (deriving from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident). More than 30% of mixed water originates from the enhanced turbulent mixing in the STMW layers in the Luzon Strait. The DIN flux and transport via the WO-STMW layers in the Tsushima Strait are evaluated.

Keywords:  $^{137}\text{Cs}$ , water mixing, STMW, Kuroshio

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-39】

## 動物の臓器別被ばく線量率推定のための数値模型の構築

研究代表者：木野 康志

共同研究者：山下 琢磨・小野 拓実

受入研究者：三浦 富智

## 1. 研究成果報告

1. はじめに 2011年3月11日に福島第一原子力発電所（FNPP）事故が発生し、環境中に放射性核種が放出された。放射性核種によって汚染された地域に生息する野生動物はこれらの核種による慢性的な低線量率の被ばくを受けているが、これによる生物影響の有無は明らかになっていない。私たちの研究グループでは帰還困難区域や旧避難指示区域に生息する野生動物を対象として生物影響の解析を進めている。放射線生物影響を比較するためには被ばく線量の推定が必要不可欠であるが、従来の野生動物の被ばく線量推定法では被ばく線量を過大評価してしまい、また、臓器ごとの被ばく線量を計算することができないという課題があった。そこで本研究では福島県浪江町で捕獲された野生アライグマを対象として放射性 Cs の定量を行い、ボクセルファントムを用いてより精密な臓器ごとの被ばく線量の推定を行った。

2. 実験方法 福島県浪江町で2017年から2020年にかけて害獣駆除として捕獲された野生アライグマから筋肉、腎臓、心臓、肝臓、脾臓、肺、血液、骨を採取した。各試料は均質化した後、高純度 Ge 半導体検出器を用いて Cs-137 を定量した。アライグマの被ばく線量は放射線輸送コード PHITS (Ver.3.16) (Particle and Heavy Ion Transport code System) [1]を用いて計算した。ボクセルファントムはアライグマの X 線 CT 画像から DICOM2PHITS [2]を用いて作製した。作製したボクセルファントムを図1に示す。内部被ばく線量率は定量したアライグマの臓器ごとの Cs-137 濃度から、外部被ばく線量率はアライグマの捕獲地点で測定した空間線量率から換算した土壤中 Cs-137 濃度を計算に使用した。

3. 結果と考察 アライグマの血液と各臓器の Cs-137 濃度の関係を図2に示す。Cs-137 濃度は全ての個体で筋肉が最も高く、各臓器がその半分程度の濃度、血液が最も低かった。また、血液と各臓器の Cs-137 濃度には正の相関があったが、個体によってばらつきがあった。筋肉中 Cs-137 濃度が最も高いアライグマの各臓器の Cs-137 濃度と被ばく線量率を表1に示す。全身の Cs-137 濃度と被ばく線量率は各臓器の値を臓器の重量で重みづけして足し合わせた値である。内部被ばく線量率は各臓器の Cs-137 濃度を反映していたが、腎臓と肝臓は Cs-137 濃度を反映していたが、腎臓と肝臓は Cs-137 濃度と内部被ばく線量率の大小関係が逆転していた。これは腎臓が肝臓に比べて Cs-137 濃度が高い筋肉に近く、筋肉から放出された  $\gamma$  線による被ばくをより受けるためであると考えられる。外部被ばく線量率

は腎臓や脾臓のような背中に近い臓器ほど小さく、これは土壌から放出された放射線がアライグマの身体によって遮蔽されるためである。以上の結果のように、臓器ごとの被ばく線量率の差を精密に評価することができた。放射線感受性が高く放射線生物影響の研究対象となる脾臓は従来法では被ばく線量率は 2.8 倍過大評価されていたが（内部被ばく線量率 24.1  $\mu$ Gy/d、外部被ばく線量率 70.2  $\mu$ Gy/d）、この値を是正することができた。

#### References

- [1] T. Sato, Y. Iwamoto, S. Hashimoto, T. Ogawa, T. Furuta, S. Ichiro Abe, T. Kai, P. E. Tsai, N. Matsuda, H. Iwase, N. Shigyo, L. Sihver, and K. Niita, Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02., J. Nucl. Sci. Technol., 55, 684, (2018)
- [2] T. Furuta, S. Hashimoto, and T. Sato, Medical Applications of the PHITS Code (3): User Assistance Program for Medical Physics Computation., Jpn. J. Med. Phys., 36, 50, (2016).

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

帰還困難区域に生息するアライグマに対する個体毎の外部被ばく線量評価法の適用の検討, 光安優典, 岡壽崇, 高橋温, 小荒井一真, 木野康志, 奥津賢一, 関根勉, 山下琢磨, 清水良央, 千葉美麗, 鈴木敏彦, 小坂健, 佐々木啓一, 藤嶋洋平, Valerie Swee Ting Goh, 有吉健太郎, 中田章史, 山城秀昭, 篠田壽, 三浦富智, KEK Proceedings of the 21st Workshop on Environmental Radioactivity, 2020(4), (2020), 144-149

Transition of Radioactive Cesium Deposition in Reproductive Organs of Free-Roaming Cats in Namie Town, Fukushima, Yohei Fujishima, Yasushi Kino, Takumi Ono, Valerie Swee Ting Goh, Akifumi Nakata, Kentaro Ariyoshi, Kosuke Kasai, Tadashi Toyoda, Toru Akama, Hirofumi Tazoe, Masatoshi Yamada, Mitsuaki A. Yoshida, Tomisato Miura, International Journal of Environmental Research and Public Health, 18(4), (2021), 1772-14 pages

Morphological reproductive characteristics of testes and fertilization capacity of cryopreserved sperm after the Fukushima accident in raccoon (*Procyon lotor*), Kazuki Komatsu, Tsugumi Iwasaki, Kosuke Murata, Hideaki Yamashiro, Goh Swee Ting Valerie, Ryo Nakayama, Yohei Fujishima, Takumi Ono, Yasushi Kino, Yoshinaka Simizu, Atsushi Takahashi, Hisashi Shinoda, Kentaro Ariyoshi, Kosuke Kasai, Masatoshi Suzuki, Maria Grazia Palmerini, Manuel Belli, Guido Macchiarelli, Toshitaka Oka, Manabu Fukumoto, Mitsuaki A Yoshida, Akifumi Nakata, Tomisato Miura, Reproduction in Domestic Animals, 56, (2021), 484-497

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-40】

## 福島県三春ダム底質の結合形態別画分の放射性セシウム濃度

研究代表者：野田 香織

共同研究者：東 信行

受入研究者：赤田 尚史・田副 博文

## 1. 研究成果報告

弘前大学理工学研究科および農学生命科学部の研究グループは福島県の三春ダムにおいて重金属汚染の影響を調査するため、東京電力福島第一原子力発電所事故以前より水生生物や水質・底質の試料採取・化学分析を実施していた。本研究ではギンブナへの移行の経路を調査するため、底質や浮遊粒子試料の逐次抽出を実施し、放射性セシウムおよび微量金属元素の動態について検証した。

底質試料はエクマンバージ採泥器を用い、POM はメッシュサイズ 100 $\mu$ m のプランクトンネットを用いて採取した。これらの試料を A 酢酸、B 塩化ヒドロキシルアミン溶液、C 過酸化水素+酢酸アンモニウム溶液、D 王水で逐次抽出を行った。各段階ごとの試料をガンマ線測定チューブに充填し、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いて Cs-134, Cs-137, K-40 の計測を行った。また、抽出液については分取希釈を行い、主要元素組成および準金属元素の定量を ICP 発光分析装置および ICP 質量分析装置を用いて実施した。

三春ダムの前ダムとして位置する蛇沢川前ダムの底質中の放射性セシウムの大部分（90%）が生物利用性の低い画分に存在していた。これを除くと Fe・Mn 水和酸化物結合体の割合が多く、ダム湖の品酸素化によって還元環境になると溶出する可能性がある。

安定セシウムは POM 中では硫化物・有機物態が多い。同族元素であるカリウムやアルカリ土類金属の Mg がイオン交換態・炭酸塩態画分に存在することとも異なっている。アオコでは放射性セシウムと類似して、Fe・Mn 水和酸化物結合体として存在していた。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-41】

## 福島原発事故に被災した野生ニホンザル生体試料を用いた

## 放射線影響解析

研究代表者：鈴木 正敏

受入研究者：三浦 富智

## 1. 研究成果報告

福島第一原子力発電所事故では、過去に生じた放射線災害事例と比べると被ばく線量・線量率領域が低く、実験的に再現することは容易でない。本課題では旧警戒区域に生息する野生ニホンザルから試料を収集し、被ばく線量評価と生物学的変化を解析することで、知見が少ない低線量・低線量率長期被ばくによる生物学的変化を明らかにすることを目的として実施した。

野生ニホンザルは、福島県浜通り地域および福島県外の対照地域自治体から提供を受けた。本課題で使用する大腿筋と肝臓を採取し、目的用途ごとに調製した。ゲルマニウム半導体検出器を用いて試料中の放射性セシウム濃度を決定した。試料中の酸化ストレス状態はマロンジアルデヒド(MDA)を指標に用いた。採取した試料をステンレスビーズを用いて組織溶解液中で破碎し、試料中のMDAをチオバルビツール酸(TBA)を反応させてMDA-TBA2付加体を形成させた。ブタノール、水酸化ナトリウム処理によってヘモグロビン分画を除去した後分光光度計を用いてMDAを検出した。解析試料中に含まれるタンパク質量をBCA法によって定量し、MDA濃度の規格化に用いた。

野生ニホンザルの肝臓と大腿筋における酸化ストレス状態をMDAを指標に検討した。ゲルマニウム半導体検出器を用いた測定結果より、野生ニホンザルから採取した臓器試料の中で大腿筋に最も多く放射性セシウムが蓄積し、肝臓には大腿筋の4割程度の放射性セシウムが計測された。野生ニホンザルの体形を模した楕円体モデルを作成し、PHITSコードを用いたモンテカルロシミュレーションによってあらかじめ計算をしていた線量換算計数を用いて内部被ばく線量率を計算した。大腿筋で計測された放射性セシウム濃度が楕円体モデル内に均一に分布をしている過程で内部被ばく線量率を評価し、本課題で解析した個体では約200 $\mu$ Gy/日までの内部被ばく線量率の個体試料を用いてMDA濃度を解析した。肝臓では内部被ばく線量率に依存してMDA濃度が上昇したが、大腿筋ではMDA濃度に被ばく依存的な変化は見られなかった。本年度の結果より、低線量・低線量率被ばくによる酸化ストレス状態の変化は臓器・組織によって異なることが示された。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



【F-20-42】

## 海洋における超ウランアナログ元素の存在形態変換

研究代表者：則末 和宏

受入研究者：田副 博文

### 1. 研究成果報告

海域における超ウラン核種の動態を把握するには、超ウラン核種と類似した地球化学的性質をもつ重元素群（“超ウラン核種アナログ元素群”）に着目して研究を行うことが有用と考え、超ウラン核種アナログ元素群の分析法開発や海域における分布解明を行ってきた。

これらの動態解明には、「溶存態」および「粒子態」の変換プロセスが鍵となり、そのプロセスの理解には両態の同位体組成が有用である。

そこで、本研究ではアナログ元素の存在形態変換について理解するために、粒子態の前処理法を検討し、粒子態鉛の安定同位体比の分析法の開発を行い、さらにその海洋分布の解明を目指した。今回は粒子態 Pb 同位体の鉛直分布を明らかにし、さらに我々が得た溶存態データと比較し、変換プロセスに関する知見を得た。

本研究による成果は以下のとおりである：粒子態鉛安定同位体比分析法を新規に開発した。具体的には、大容量の外洋海水をクリーンにろ過しフィルター上に粒子状物質を集める手順を検討した。また、フィルターのブランク実験を行い、フィルターの洗浄法も入念に検討し、手順を確定させた。粒子状物質は研究室の閉鎖型分解乾固システムにより溶液に置換し、さらに得られた溶液中 Pb 同位体を陰イオン交換樹脂カラムによって精製する手順も検討した。実際にインド洋海水へ手法を適用し、粒子態 Pb 同位体比の深層鉛直分布を系統的に明らかにした。その中で、溶存-粒子の相互変換が速く起こっているという興味深い知見を導くことに成功した。今後はさらに対象海域を広げ、その相互変換の程度の地理的分布を明らかにする。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-43】

## オートラジオグラフを用いた被災動物骨組織の放射性物質局在評価

研究代表者：清水 良央

共同研究者：篠田 壽

受入研究者：三浦 富智

## 1. 研究成果報告

## 目的

本年度は、硬組織として、骨および歯に含まれる放射性物質の取り込みの局在を調査するために、オートラジオグラフを用いて検討することを目的として研究を開始した。オートラジオグラフは完成された方法ではあるが、組織内に含まれる放射性物質の量や線種によって反応が異なることが想定された。文献的には長期の検討では6カ月を要するものもあると推定され、今回、福島原発事故での様々な被災動物組織サンプルを用いて検討を行った。

## 方法

サンプルは、軟組織から硬組織まで幅広い組織での検討を行ってみることとし、アカネズミ、ウシなどの内臓（肺、心、肝、筋など）や骨、歯を用いた。様々な方法で検討が可能になるよう、パラフィン包埋標本、樹脂包埋および研磨標本、また煩雑な溶液の浸漬を行わない樹脂包埋研磨標本作製を行って検討した。標本作製過程における溶液浸漬で放射性物質の流出がないことを確認することも想定し、標本作製過程について記録した。サンプルの選定には、これまで行ってきたイメージングプレートで局在が明らかなもの、また同等の環境にあったと思われるものを選別した。

パラフィン包埋標本は、約4 $\mu\text{m}$ の厚さ、研磨標本は50~100 $\mu\text{m}$ 程度の厚さで標本サンプルを作製した。暗室内にて乳剤に漬け込んでから、乾燥剤とともに暗箱に入れて3週間反応させた。3週間後、暗室内にて停止、定着を行って乾燥後、顕微鏡観察を行った。

## 結果および考察

軟組織では、明瞭な粒子の凝集が確認できなかった。脳、硬組織サンプルでは、骨組織では、骨細管に一致して一部みられた。また歯では象牙細管に一致して粒子状のものがみられた。軟組織は局在に関するイメージングプレートのデータは採取できないため、比較は困難であるが、血管周囲などの観察を行ったが明らかな粒子を確認できなかった。一方、硬組織については、事前にイメージングプレートでの検討を行ったサンプルを用いており、すでに大まかな局在を把握できていた。今回、粒子と推定した部位は、イメージングプレートに一致するものの範囲が狭く部分的な反応にすぎない可能性が示唆された。

## 課題

現在すでにサンプルを作り直して再実験に入っている。今回の問題からサンプルの乳剤反応時間の大幅な延長を考えている。今のところ3か月から6か月を考えており、サンプルについてもイメージングプレートデータがあるもの、また今回行ったものを再調整して再実験を行う予定である。そのため1回目の組織標本データについては、2回目と再現性をもって比較ができるようにバーチャルスライドで画像データとして保存した。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-44】

## 福島県浪江町の里山における放射性物質の長期トレンドと

### 環境調和型除染技術開発

研究代表者：大河内 博

共同研究者：反町 篤行・竹内 理紗

受入研究者：床次 眞司・赤田 尚史

#### 1. 研究成果報告

##### 1. 研究目的

2011年3月に発生した東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所の事故によって、大量の放射性核種が環境中に放出された。福島県は県の総面積の約70%を森林が占めているため、大量の放射性核種は大部分が森林に捕捉されたと考えられる。しかし、森林の多くは未だに除染が行われていない。その理由は、広大な森林の除染活動には膨大な労働力と費用が必要となる上に、除染によって大量に発生する落ち葉や土壌堆積物といった放射性廃棄物の最終処分場は、現在も決定していないためである。また、除染による森林生態系への悪影響も懸念される。しかし、森林の中でも里地・里山は人の生活に密接にかかわるため、早急な除染が必要であり、より効率的な除染方法の開発が求められる。

本研究では、効率的な森林内の除染方法を提言することを目的として、浪江町南津島の里山をモデル地域として森林生態系内における放射性セシウムの分布と動態、森林系外への流出について解明を行なっている。将来的には放射性セシウムの動態解明調査によって得られた知見を基にして、環境負荷の少ない除染技術を開発し、福島県の里山再生を目指す。

##### 2. 研究成果

樹種による違いを検討するため、落葉広葉樹林とスギ針葉樹林に分けて放射性セシウムの2012年以降の長期的トレンドを解析した。落葉広葉樹は浅根性の根を持つため、経根吸収によりセシウムが内部循環していると考えられるが、表層土壌で放射性セシウム濃度の減少が見られたことから、降雨によって表層土壌とともに放射性セシウムが系外流出している可能性があり、今後流出経路・量についてさらなる調査が必要となる。一方、針葉樹は深根性の根を持つため、樹冠からのセシウムの供給により表層土壌の濃度は増加していると考えられた。

スクレーパープレートを用いた土壌深度ごとの放射性セシウム濃度の調査では、落葉広葉樹林および針葉樹林において、放射性セシウムの土壌表層から深部への浸透が見られた。しかし、土壌中に存在する放射性セシウムの化学的形態については未解明の部分が多い。

##### 3. 今後の展望

土壌及びスクレーパープレートによる深度ごとの土壌試料を、逐次抽出法によって化学的形態ごとに分離し、放射性セシウム濃度を測定することで、森林土壌中における放射性セシウムの存在形態の割合を明らかにする。また、元素分析を用いて土壌の炭素含有量を明らかにすることで、存在形態と土壌有機物量の関係性も明らかにする。

将来的には得られた知見をもとに、効率的かつ環境負荷の少ない除染方法について、プルシアンブルーや微生物などを含めて検討を行う。また、除染技術の開発も行う。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-45】

## 学習指導要領改訂による小中学校検定教科書における放射線・

### 環境・震災教育の変遷調査

研究代表者：佐瀬 卓也

共同研究者：阪間 稔・丸山 晴男

受入研究者：赤田 尚史

#### 1. 研究成果報告

はじめに：

学習指導要領は、小、中、高等学校等の各学校が各教科で教える内容を、学校教育法施行規則の規定を根拠に定めたものであり、この内容に則って各教科の検定教科書が作成される。2017年3月に戦後9度目の改訂となる新学習指導要領が公布され、小学校では2020年度から、中学校では2021年度から、高等学校では2022年度から完全施行が為される。本研究の目的は、全国の小中高等学校で使用される検定教科書および副読本において、新学習指導要領の施行により東日本大震災の環境影響や放射線に関する記載がどのように変遷するかを調査し、その学習効果を比較・検証することである。

材料および方法：

今年度中使用される検定教科書のうち、東日本大震災や放射線、原子力などの記載が予想される小学校理科・社会、中学校理科・社会、中学校道徳、高校物理・地理の計67冊において、1. 東日本大震災の概要、2. 原子力発電所事故と環境影響、3. 放射線及び放射性物質、4. 原子力発電、の4項目における記述調査を行った。そのうち完全施行となった小学校理科・社会、一部先行施行が為されている中学校地理に重点を置き分析を行った。

結果及び考察：

小学校理科：6出版社（大日本、啓林館、東京書籍、教育出版、学校図書、信濃教育）によって検定教科書が出版。そのうち、東日本大震災の概要はすべての出版社において小学6年の教科書に記載されていた。震災以降激減していた原子力発電についての記載（去年は信濃教育の1社のみ）は、今年度新たに2社（啓林館、学校図書）が記載を再開し、3社に掲載されていた。また昨年唯一小学校の時点で原発事故とその環境影響について記載のあった大日本図書は、今年度の教科書ではその記載が消失していた。記載の範囲を他社に合わせた可能性もある。

小学校社会：3出版社（東京書籍、教育出版、日本文教）によって検定教科書が出版。そのうち3社全てが小学5年及び6年次に東日本大震災の概要、原子力発電所事故と環境影響、放射線及び放射性物質についての記載があった。うち教育出版は原子力発電についての

記載もあった。3社の記載総ページは日本文教が6ページ、東京書籍が14ページ、教育出版が12ページと差が大きかったが、防災・減災の事例紹介に東日本大震災を掲げた（東京書籍、教育出版）かによって差が出ていた。

中学校地理：4出版社（東京書籍、教育出版、帝国書院、日本文教）によって検定教科書が出版。うち帝国書院を除く3社は調査4項目全てについてかなり詳細な記載（放射性物質の環境放出やチェルノブイリ事故、風評被害や放射性廃棄物の問題など）があった。帝国書院は放射線及び放射性物質の記載がなく、それ以外の項目についても簡便な記載であったが、地図の専門出版だけあり、原子力発電所の明確な立地マップが掲載されていた。各出版社の総ページは以下の通り。東京書籍16ページ、教育出版8ページ、帝国書院10ページ、日本文教15ページ。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-46】

## 多面的な分光学的手法による多価金属イオンの収着状態評価

研究代表者：佐々木 隆之

受入研究者：藤原 健壯・土肥 輝美

## 1. 研究成果報告

放射性核種の保管や廃炉工程の安全評価に資する放射性核種の地中移行挙動を検討するには、原位置あるいはそれに関連した地質環境における収着や拡散等の反応機構理解に資する基礎データやモデルが必要である。これまで、1F 近傍森林土壌中の放射性核種の収着試験を実施、モデル化を試みてきたが、収脱着核種および固相表面の状態研究は十分ではない。本研究では固相表面や 2 次鉱物の形状や元素組成・元素分布情報を集積する目的とし、電子顕微鏡などの固相分析装置を用いて固相表面における元素情報を取得、吸着現象の解明につながるデータの蓄積を試みた。昨年度実施した TEM-EELS 法を用いた Eu(III) と Zr(IV) の化合物の化学状態に関する予察的検討をもとに、今年度は TEM-EELS 法を継続して用いて Eu と Zr 化合物の化学状態を取得するとともに XPS 法も取り入れて、多価金属イオンの化学状態評価を試みた。

Zr 酸化物については、TEM-EELS 及び、XPS で測定が可能となった。しかしながら TEM-EELS 分析で得られたピークについては、強度が安定しないなどの影響が確認された。さらに Zr, Eu の有機錯体試料等の XPS 法による測定を行い、ピークのシフトを確認した。塩化物の試料については潮解性によると考えられるブロードなピークが観察され、エネルギーシフトの評価は困難であった。これらの結果を踏まえ、酸化や潮解の影響を排除できるように XPS 装置導入部の改良を行い、窒素雰囲気など環境制御下でのサンプル導入が可能となった。今後、TEM-EELS 法や XPS の測定の更なる拡充を進めるにあたり、鉱物等の固相試料調製における様々な前処理法を調査するとともに、実試料を用いてその最適化を試みる必要がある。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

T. Sasaki, D. Matoba, T. Dohi, K. Fujiwara, T. Kobayashi, K. Iijima: Vertical distribution of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soils near the Fukushima Daiichi nuclear power station. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 326 (2020) 303-314.

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## 【F-20-47】

## 放射性微粒子の沈殿による作物への影響

研究代表者：二瓶 直登

受入研究者：吉村 和也

## 1. 研究成果報告

【目的】東京電力福島第一原子力発電所の事故で放出された放射性セシウムは、除染やカリウム施肥の徹底により経根吸収による作物への汚染は大幅に低下した。一方、空間線量の高い地域では僅かであるが現在でも大気浮遊物や降下物に放射性セシウム(RCs)は含まれており、作物地上部へ直接影響する RCs への評価は殆ど行われていない。本発表では、作物地上部への直接的な RCs の降下影響の評価と要因を検討するため、未汚染土壌を用いて作物を福島県内数箇所で栽培し、作物に検出される RCs と高さや洗浄の影響、気象との関係を解析した。

【実験方法】福島県内 6 箇所（内帰還困難区域 2 箇所）にて 2017～19 年に年数回ずつ非汚染土壌を用いてコマツナを栽培した。収穫したコマツナの一部は水洗い後 RCs を測定した。また水を貯めた水盤をコマツナと同位置に設置した。

【結果】SiteA,B,C,D では全期間で 100Bq/kg 以下。SiteE,F（帰還困難区域）では 100Bq/kg を超えるサンプルもあった。同一地点でも栽培時期により RCs 濃度は異なる。水盤とコマツナの RCs の相関は下で高い。洗浄有無より、水盤に検出された RCs のおよそ 5%がコマツナに付着もしくは体内に取り込まれ、水盤のおよそ 3%が洗浄しても落ちないもしくは体内に取り込まれたと想定される。コマツナの RCs 濃度と各地点の栽培期間中の降水量、最大風速および空間線量との重回帰分析を行なった。標準偏回帰係数によると、コマツナの RCs 濃度を予測するのに下では洗浄有、無とも降水量、空間線量の寄与が高かった。また、上では降水量、空間線量に加え最大風速の寄与も高まった。

【考察】作物地上部への直接的な RCs は、まず、空間線量つまり栽培周囲の汚染状況の影響が最も強い。次に、地際（下）では雨により跳ね上がった土壌がコマツナに付着して RCs 濃度を高めていると想定された。一方、本試験で設定した地際から 120cm の高さになると、土壌の跳ね返りの影響は少なく、強い風により舞い散った RCs を含む粒子が付着する影響が高まると考えられる。帰還困難地域以外では土壌の RCs 濃度は高くないこと、作物は通常洗浄して食することから、上・洗浄有の結果を参考にすると、空間線量が高い地域では、栽培期間中の強い風を注意すべきと考えられる。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。  
なし

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-48】

## 陸域-海域間の懸濁態放射性核種の輸送過程の解明

研究代表者：乙坂 重嘉

共同研究者：鈴木 崇史

受入研究者：鶴田 忠彦

## 1. 研究成果報告

沿岸域の海底には、陸域から河川等を通じて、事故由来の放射性核種を吸着した懸濁粒子が継続的に供給されており、その沿岸域での相対量は、時間の経過とともに増加することが懸念される。2019年度の共同利用拠点事業では、福島第一原子力発電所南東の陸棚縁辺（海底水深 200 m）で採取した沈降粒子の特性分析を実施した。沿岸堆積物や懸濁粒子の数%から 50%程度は、粒子状有機物（POM）で構成されており、さらに、これらの粒子試料にはほぼ一定の割合で有機物態と考えられる放射性セシウムが存在していることが明らかになった。これらの結果は、海水中の有機物粒子が海底付近での放射性セシウムのキャリアとして働いていることや、生態系への放射性セシウムの移行を支えている可能性があること示唆した。2020年度は、浅海堆積物及び河口付近の沈降粒子試料と分析を実施し、陸棚縁辺での粒子に見られた特徴と比較することにより、河口・沿岸域の粒子態放射性核種のリザーバ効果について検討した。

本研究では、陸棚縁辺（北緯 37 度 00 分、東経 141 度 24.9 分、海底水深 210m）と、請戸川河口域（北緯 37 度 29.5 分、東経 141 度 03.0 分、海底水深 8.5m、および、北緯 37 度 29.0 分、東経 141 度 11.9 分、海底水深 58m）の沈降粒子の特性を比較した。観測は通年で実施したが、陸棚域における放射性セシウム粒子束が顕著に高かった冬季（2月）と春季（3月）に注目した。事故由来の放射性核種として2つの放射性セシウム同位体（ $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ）の粒子中の濃度を測定した。粒子試料の一部は、主要成分（有機物、陸起源ケイ酸塩、生物起源ケイ酸塩、生物起源炭酸塩）分析と、炭素・窒素の安定同位体比測定に用いた。放射性セシウムのキャリアとして働きうる POM の特徴を明らかにするため、EPMA-EDS（電子プローブマイクロアナライザ-エネルギー分散型分光器）による元素マッピングによる炭素の存在位置を観察した。

陸棚域における冬季の沈降粒子は、他の期間に比べてわずかに POM の割合が高く、POM は、タンパク質や糖酸といった、比較的分解の進んでいない海洋起源の成分で構成されていた。夏季から秋季にかけて  $^{137}\text{Cs}$  を取り込んで観測点付近の海底に蓄積した POM が、晩秋季から冬季にかけての海底付近の擾乱に伴って再移動したと推測される。一方春季には、比較的粒径の大きなアルミノケイ酸塩粒子と有機物で約 9 割を構成しており、陸起源 POM に見られる腐植物質の特徴が見られた。春季の顕著な全粒子束の増加は、主に河川を通じて

陸域から運ばれた粒子が、沿岸で再浮遊し、陸棚縁辺へと運ばれたことによると推測された。河口域および浅海域の沈降粒子の EPMA 分析により、この海域での有機物粒子の存在度は極めて低く、有機物粒子はほとんど滞留していないことが分かった。少なくとも請戸川の河口・沿岸域においては、有機物粒子をキャリアとする粒子態放射性核種のリザーバ効果は低く、陸棚縁辺域で見られた有機物態粒子は、水平輸送によって河口域から素早く除去されたか、沖合表層での生物によって生産されたものであると推測された。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

Otosaka, S., S. Kambayashi, M. Fukuda, T. Tsuruta, T. Misonou, T. Suzuki, T. Aono: Behavior of radiocesium in sediments in Fukushima coastal waters: Verification of desorption potential through the pore water. *Environmental Science and Technology* 54, 13778-13785 (2020).

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-49】

## Cs 用 DGT デバイスを用いた放射性 Cs の環境動態評価

研究代表者：齊藤 拓巳

受入研究者：藤原 健壮

## 1. 研究成果報告

当研究グループでは、実環境中での放射性 Cs ( $^{137}\text{Cs}$ ) の環境動態を評価するために、Cs に選択的な DGT (diffusive gradient in thin films) デバイスの開発を行っている。DGT は可動性で、生物学的利用能の高い置換活性な金属イオンのフラックスを求めるためのデバイスであり、Cs を強く保持している鉱物からの脱離フラックスを評価できる。2019 年度では、本共同研究の枠組みを用いて、福島県の森林土壌、あるいは、河川を対象に、置換活性成分の評価を行い、鉱物に保持された  $^{137}\text{Cs}$  の一部の脱離フラックスが存在し、Cs の動態に影響を与えていることを明らかにした。2020 年度は、河川において、 $^{137}\text{Cs}$  の脱離フラックスを引き起こす鉱物相の同定、および、土壌中で置換活性な  $^{137}\text{Cs}$  を高濃度で濃集している成分の解明を目的とした。

DGT とは環境中の微量金属イオンをその場サンプリングするために、1992 年に W. Davison ら[3]によって開発されたパッシブサンプラーの一種である。本研究で用いた Cs 用の DGT デバイスは、吸着ゲル、拡散ゲルを重ねた上に、メンブレンフィルターを設置した構造を持ち、吸着ゲルには、Cs に対して選択性の高い吸着剤であるフェロシアン化銅が担持されている。

福島県の河川の複数箇所に対して作製した DGT を適用した。デバイスの数は合計 11 個、設置期間は 2020 年 11 月 9 日から 16 日までの 7 日間とした。サンプリングした DGT の吸着ゲルに取り込まれた  $^{137}\text{Cs}$  を、Ge 半導体検出器を用いて放射能測定し、設置期間中の  $^{137}\text{Cs}$  置換活性成分濃度を算出した。また、DGT を設置した地点において懸濁態及び溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度、懸濁物質濃度を測定した。

DGT に保持された  $^{137}\text{Cs}$  置換活性成分濃度は、2019 年夏に同じ河川を対象に行われた研究と比較して 1 桁ほど低い値であった。主な理由として、設置期間中の平均水温が低かった事による拡散係数の変化の寄与等が考えられる。また、DGT で得られた置換活性成分は河川水中の懸濁物に保持された放射性セシウム濃度（懸濁態濃度）と相関を示したが、下流域で採取された試料については、懸濁態濃度対して、高い置換活性成分濃度を示し、セシウムの保持能が低い長石類の無色鉱物の寄与が下流域で高くなっている可能性が示唆された。また、リター中に設置した DGT デバイスにおける置換活性成分濃度は同地点に河川水中に設置したデバイスのものよりも有意に大きく、リターからの交換性セシウムの寄与があることが明らかになった。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-50】

## Cs 保持に関わる環境試料の前処理・分析手法の確立

研究代表者：川村 秀久

共同研究者：田籠 久也・羽倉 昌幸・藤原 健壮

受入研究者：土肥 輝美

## 1. 研究成果報告

リター中には Cs の存在形態の一つとして Cs 含有粒子 (CsMPs) を含むことが知られている。このような環境試料中に含まれる CsMPs の化学形態や Cs 同位体比率を評価することを目的として、前処理・分析手法を検討した。2019 年度は、リター中の CsMPs を有機物分解と EPMA を用いて短時間で特定・単離し、飛行時間型二次イオン質量分析法 (ToF-SIMS) で Cs 同位体を測定する一連の前処理・分析までの手法を確立した。2020 年度は、安定 Cs, Ba を含む標準物質 (NIST SRM610) (15 mm 径・円盤状ガラス) や合成した焼成物粒子 (10 $\mu$ m 径・Al, Si, O, K を含有) を対象に、ToF-SIMS でそれぞれの同位体比の測定を試みた。焼成物中の Cs, Ba 濃度は、これまでの CsMPs の EPMA 分析結果を基に、同程度の粒径および Cs, Ba 濃度となるよう調整したものである (Cs: 8.6 mass%, Ba: 1.6 mass%)。値付けされている Ba (Ba: 0.0453 %) と Cs を含むガラス標準物質では、<sup>133</sup>Cs, <sup>134-138</sup>Ba の同位体の質量スペクトルは得られたが、<sup>133</sup>Cs, <sup>138</sup>Ba 以外の質量強度は低く同位体比は評価できなかった。焼成物試料については、<sup>133</sup>Cs, <sup>134-138</sup>Ba の各質量スペクトルを得るとともに Ba 同位体比が天然存在比と近似していることを確認した。以上の結果から、ToF-SIMS で安定 Cs, Ba の同位体および同位体比の測定が可能であることが示された。また、焼成物試料について、EPMA と ToF-SIMS で得られた、Cs, Ba それぞれの濃度に対する質量強度の比を比較したところ差は見られなかったことから、今後、同手法の適用によって両元素濃度と質量強度との関係を精査していくことで、二次イオン生成量や Cs 同位体比評価へ発展させることが期待できる。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文 (謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-51】

## 生物の鉱物形成作用と核種固定化に関する研究

研究代表者：尾崎 紀昭

共同研究者：土肥 輝美

受入研究者：土肥 輝美・鶴田 忠彦

## 1. 研究成果報告

陸域に沈着した放射性核種は、河川から海域へ輸送され堆積すると考えられているが、核種循環に係る有機・無機物質への固定、輸送媒体については不明点が多い。本研究では生体内の元素動態（貯蔵・無毒化等）の一つとされる「生体鉱物化作用」に着目し、基礎知見として、炭酸塩やケイ酸塩などを形成する陸上植物や藻類を対象に、結晶形成時における核種の生体内固定化への寄与解明を目的とする。初年度の 2020 年度は、炭酸塩の殻（ココリス）を形成する円石藻に着目し、主に Sr を対象に炭酸塩等の生体鉱物化作用による生体内への核種固定化への寄与を評価するため、評価対象とする円石藻の選定、安定的な培養条件、それらの前処理法・電子顕微鏡（TEM）等を用いた分析法の検討を行った。外洋性・沿岸性の代表種として、それぞれ *Gephyrocapsa oceanica*, *Preurochrysis haptonemofera* を選定した。*G. oceanica* については、人工海水を用いた静置培養により 106 cell/mL まで藻体濃度を安定的に維持させる条件を見出した。また、TEM で多くの個体の分析が可能となるよう、孔径 0.45 μm フィルター上へ *G. oceanica* を濃縮後、1%グルタルアルデヒド固定液を通過、フィルターごと樹脂包埋した試料を TEM で観察した。その結果、5 μm 径の円石藻ココリス全体像および 100 nm 程度の微細構造観察、EDS 検出器を用いたココリス中の Ca, O の分布情報を取得できた。今後、*P. haptonemofera* についても培養条件・分析手法を検討する。さらに Sr の固定化を評価するため両種培地への Sr 添加条件・生存条件を探索し、TEM 等を用いた生体内での Sr 固定状態を調べていく。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## 【F-20-52】

## 福島県および周辺地域の河川水系における

## 放射性セシウムの移行動態

研究代表者：落合 伸也

共同研究者：長尾 誠也・渡辺峻・鈴木究真・宮原聖一

受入研究者：中西 貴宏・鶴田 忠彦・御園生 敏治

## 1. 研究成果報告

福島第一原発事故から10年が経過したが、環境中に放出されて地表環境に沈着した放射性核種は、現在でも河川流域から河川、さらに沿岸域へ降雨等により流出している。長期にわたる河川流域における生態系への影響を評価するためには、2次的な放射性核種の移行を定量的に検討する必要がある。本研究では福島県の阿武隈川、新田川、夏井川、および同様に放射性セシウムの沈着が見られた利根川上流域を対象に、各河川水系における放射性セシウムの流出挙動とそれに影響を及ぼす要因の検討を行うことを目的とし、河川水中の懸濁態および溶存態放射性セシウムの濃度の観測を行った。

本年度は2020年11月に阿武隈川（白河、本宮、伊達、岩沼）および新田川の採水を行った。夏井川においては7、10月、利根川上流に6、8、10月に採水を行った。河川水試料（60-100L）は連続遠心により懸濁粒子を捕集した後、溶存態 $^{137}\text{Cs}$ をリンモリブデン酸アンモニウムにより捕集し、懸濁態と溶存態の $^{137}\text{Cs}$ 濃度をGe半導体検出器により測定した。懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度は、阿武隈川の各観測点において1.7-12 mBq L<sup>-1</sup>、新田川においては4.2 mBq L<sup>-1</sup>、夏井川および利根川上流においては、それぞれ0.80-1.4 mBq L<sup>-1</sup>、1.2-2.1 mBq L<sup>-1</sup>の濃度範囲であった。溶存態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度は、阿武隈川の各観測点において1.9-2.7 mBq L<sup>-1</sup>、新田川、夏井川および利根川において、それぞれ11 mBq L<sup>-1</sup>、0.33-0.39 mBq L<sup>-1</sup>、1.39-2.59 mBq L<sup>-1</sup>の濃度範囲であった。

河川水中の溶存態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度を集水域内の $^{137}\text{Cs}$ 沈着量の平均値で除した、溶存態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度/ $^{137}\text{Cs}$ 沈着量比は、利根川で最も高く（ $0.86-1.5\times 10^{-4} \text{ m}^{-1}$ ）、阿武隈川の伊達（ $3.0\times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ ）、岩沼（ $2.5\times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ ）、新田川（ $1.4\times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ ）、夏井川（ $5.8-6.9\times 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ ）の順で低かった。このことから、利根川においては他の河川に比べて、流域に沈着した $^{137}\text{Cs}$ が溶存態として河川水中に流出しやすい傾向にあることを示唆している。

これまで得られている2012年以降の溶存態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の経年変化のデータと合わせて検討した結果、溶存態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度/ $^{137}\text{Cs}$ 沈着量比は、概ね指数関数的に減少していた。それぞれの河川について求めた実効半減期は、夏井川で最も短く（1.7 y）、次いで阿武隈川（2.5 y）、利根川（7.7 y）の順に長い傾向がみられた。この半減期の違いは、上述の溶存態 $^{137}\text{Cs}$

濃度/ $^{137}\text{Cs}$  沈着量比の大小と関連している可能性がある。今後、これらの河川間にみられた溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度および半減期の違いについて支配要因を検討する必要があると考えられる。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-53】

## 放射性セシウムの移動媒体についての鉱物学的研究

研究代表者：小西 博巳

受入研究者：藤原 健壯・萩原 大樹

### 1. 研究成果報告

河川水系に沈着した放射性セシウムは、土壌粒子に吸着後、水流により移動し、下流域に再分配する。河川堆積物中の放射性セシウムを吸着する鉱物種を特定することは、将来の鉱物との収脱着の観点から重要である。近年、著者らは福島県内の河川水系において、雲母鉱物だけでなく、有色鉱物にも放射性セシウムが吸着し、移動に寄与する可能性があることを報告した。本研究では、富岡川の河床土および海底土に含まれる有色鉱物のうち、特に角閃石の結晶構造を把握することを目的として、走査型電子顕微鏡 (SEM) および透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察を行った。結果、河床土、海底土いずれの角閃石の表面には、風化に伴う変質を確認した。また、TEM 分析結果から、角閃石内部には、数  $\mu\text{m}$  サイズの劈開があり、その周辺にはより細かい劈開が発達していた。さらに、劈開周辺の結晶構造や元素組成比がホストと異なることが明らかとなった。これらの結果から、角閃石の表面は、風化し、粘土鉱物に変質している可能性がある。また、劈開が角閃石内部への放射性セシウムの移動を促進させるとともに、劈開付近の変質部が比表面積を増加させ、放射性セシウムの吸着媒体としての役割を果たす可能性が示唆された。今後、風化生成物の鉱物種を同定することで、吸着機構の詳細を明らかにする。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-54】

## 福島県におけるツキノワグマの遺伝的集団構造と

### 放射性核種汚染の関係

研究代表者：根本 唯

共同研究者：斎藤 梨絵・今藤 夏子

受入研究者：玉置 雅紀

#### 1. 研究成果報告

福島県では、同じ地域で捕獲されたツキノワグマでも筋肉中放射性核種濃度が大きく異なることが知られている。その原因の一つとして、捕獲された個体が、捕獲地域とは放射性核種汚染の程度が異なる地域から移入してきた個体である可能性が考えられる。この原因の解明には、福島県において地域間の移出入がどの程度起きているのかを調べる必要がある。そこで本研究では福島県内でのツキノワグマの移出入状況を把握するために、これまで福島県において放射性核種濃度を測定してきた個体の遺伝情報を用いて、福島県のツキノワグマにおける遺伝的集団構造を明らかにすることを目的とした。福島県において捕獲したツキノワグマ 172 個体、および、福島県内における集団構造を明確にするため、交雑の可能性が少ない兵庫県のツキノワグマ 10 個体からゲノム DNA を抽出した。これらの DNA を使用し集団構造を分析した結果、ミトコンドリア DNA コントロール領域を使用した解析により、11 のハプロタイプを検出した。同領域を用いた地理的位置情報を考慮した遺伝的集団構造解析では、当地域において3つの遺伝的集団が推定されたが、捕獲個体の筋肉中<sup>137</sup>Cs濃度と捕獲場所の<sup>137</sup>Cs土壌沈着量において各遺伝的集団間で有意な差は見られなかった。

#### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-55】

## 松川浦から海洋への溶存放射性セシウム供給過程の解明

研究代表者：津旨 大輔

共同研究者：辻 英樹・三浦 輝

受入研究者：林 誠二・青山 道夫

## 1. 研究成果報告

福島第一原発事故によって陸域に降下した放射性セシウムは、河川を通じて海洋に供給され続けている。事故から10年が経過しようとしているが、継続している直接漏洩の影響によって、海洋における河川供給の影響の検出は困難であった。福島第一原発の北側で距離が遠いため直接漏洩の影響が小さい相馬沖は、松川浦を経由した河川の影響を受ける。2014年の松川浦の溶存放射性セシウム濃度は宇多川と相馬沖の濃度よりも高いことが指摘されている。これは松川浦において、溶存放射性セシウムの供給が生じていることを示唆している。松川浦から海洋への溶存放射性セシウムの供給過程の定量的な把握を目的とする。

2020年8月27日および12月15日に松川浦において、沿岸海水、沼水、泥の採取を行った。泥は容器に密封して実験室に持ち帰り、遠心分離機によって、間隙水を抽出した。海水、沼水、間隙水はろ過後、AMP法によって濃縮し、金沢大学尾小屋地下実験室で放射性セシウム濃度の測定を行った。2020年8月27日におけるCs-137濃度は、海水で2.6mBq/L、沼水で20.6-23.0mBq/L、間隙水で82.6-85.5mBq/Lであった。松川浦のCs-137濃度と交換率0.43(/day)から推定した海洋へのCs-137フラックスは $5.7E+7$ Bq/dayであった。また、間隙水のCs-137濃度から求めた間隙水から松川浦へのCs-137フラックスは $3.8E+7$ Bq/dayで同じオーダーであった。また12月15日におけるCs-137濃度は、海水で2.7mBq/L、沼水で3.9-11.6mBq/L、間隙水で84.2mBq/Lであった。海水と間隙水のCs-137濃度は8月の観測結果と違いがなかったが、松川浦のCs-137濃度は低下していた。この低下が季節変動によるものか空間変動によるものかについては、今後の検討課題となる。海底堆積物からの $^{137}\text{Cs}$ の溶出の可能性が指摘されているが、定量的な把握には至っていない。松川浦における間隙水中と水中の溶存 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の時系列変化を観測することによって、松川浦における溶存 $^{137}\text{Cs}$ フラックスを推定する。海洋に比べて半閉鎖の汽水湖の松川浦は堆積物の直上水の溶存 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の観測が有利となる。さらに河川水流出モデルに対し、松川浦における溶出による溶存放射性セシウムフラックスを与え、領域海洋モデルによって、相馬沖の放射性セシウム濃度の観測結果の再現を行う。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。  
なし

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-56】

## 多エクソン同時増幅と次世代シーケンスによる高線量率環境下

## におけるアカネズミ遺伝子変化の経年調査

研究代表者：遠藤 大二

共同研究者：石庭 寛子・中嶋 信美・田中 美沙希

受入研究者：玉置 雅紀

## 1. 研究成果報告

我々は、2019 年度にアンプリコンシーケンスによるゲノム上の塩基多型を分析可能であることを示した。当該方法では PCR 産物を混合後、アンプリコンシーケンスにより混合液に含まれる PCR 産物をすべての塩基配列を次世代シーケンスデータから選択することができる。遺伝子の塩基配列をゲノム DNA から決定する場合には、エクソンの PCR 増幅産物を混合してアンプリコンシーケンスを実施する必要がある。結果的に、多数の Exon の PCR が必要となる。2019 年度には、10 塩基程度の短いプライミング位置を持つ DOP-PCR の活用を検討したが、十分 Exon 比率の高い増幅産物は得られなかった。結果的に、Exon ごとに特異的プライマーを設計し、多数の PCR を行って増幅産物を得ることが遺伝子のアンプリコンシーケンスには必要であることが示された。多数の Exon を増幅するためのプライマーのコストは、プライマーの塩基長を短縮することで抑えられるため、100 程度の遺伝子をターゲットにする方法としては、十分に検討価値があると考えた。ただし、ゲノムの抽出コストを抑える必要もあるため、増幅感度の高い方法が必要となる。我々は、2019 年度に、PCR の感度が高く、コストの低い方法として、16 塩基という短いプライマーの活用を検討し、方法として可能性のあることを示した。

本年度は、さらに効率を高めるために、プライマー設計の人工知能による効率的設計を試みたが、実用的な結果は得られなかった。代替策として、高感度な増幅を可能にする特異パターンを探索した結果、プライマー両端が 5 塩基の弱いループを形成した場合、多くのプライマーで増幅感度が高まり、同時増幅も可能であることが予備実験において示唆された。続いて、このループ配列をゲノム上で探索するプログラムを作成し、その探索に基づいて 110 組のプライマーを設計したところ 82 組がゲノムを高効率で増幅した。この結果から、ループプライマーを用いることにより、野生動物ゲノムのランダムな領域を増幅・分析可能になることが示唆された。次に、Exon を対象とした増幅を検討したが、対象となる両端ループ配列はゲノム上の 64k 塩基に 1 回程度しか登場せず、Exon を増幅する位置に存在することは稀だった。この対策として、5'端にループ形成用の配列を追加したプライマーを試行したところ高い確率で高感度の増幅が成功した。そのため、5'端に 3'端とループ配列を形成する

プライマー(付加ループプライマー)で Exon の増幅を試みることにした。この時点で、アカネズミのゲノム DNA がすでに不足していたため、イヌのゲノムでの Exon 増幅を付加ループプライマーで実施した。イヌの GM1 ガングリオシドーシス遺伝子エクソンについて、64 組の付加ループプライマーを作成して増幅を試みたところ、63 組について、高感度での特異的増幅が認められた。

これらの結果から、アカネズミの遺伝子多型をアンプリコンシーケンスを用いて検出する方法として付加ループプライマーによる増幅の有効性が示唆された。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文(謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Kayama, Kotetsu, et al. "An improved gene synthesis method with asymmetric directions of oligonucleotides designed using a simulation program." *BioTechniques* 69.3 (2020): 211-219.

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



【F-20-57】

## 地下生菌（トリュフ類）と小動物を介した森林内の

### 放射性セシウムの動態把握

研究代表者：保坂 健太郎

共同研究者：糟谷 大河・山本 航平

受入研究者：石井 弓美子

#### 1. 研究成果報告

##### 背景と目的

陸上生態系において菌類は種多様性が最も高く、バイオマスも最大である可能性が高い。その中でも、特にきのこ類は放射性物質の蓄積特性が高いという結果も示されている。きのこ類のうちで特に高い放射能濃度を示すものとしては、主にチェルノブイリ原発事故後の一連の研究により、樹木と共生する菌根菌が挙げられている。これまで、大部分が菌根性である地下生菌（いわゆるトリュフ類）については、放射性物質の蓄積特性が全くわかっていなかったが、昨年度の調査で一部トリュフ類の高い蓄積特性が明らかとなった。本研究ではさらなるトリュフ類を森林およびげっ歯類の糞中より採集・同定し、種ごとの放射性物質の蓄積特性を明らかにすることを目的とした。

##### 当初予定

以下の予定であったが、新型コロナウイルスによる影響があり、自由な野外調査が実施できず、当初も予定は全く実行できなかった：

国立環境研究所福島支部の共同研究サイト（南相馬市太田川上流域）において、多様な地下生菌が発生すると予想される7月および10月に野外調査を実施し、げっ歯類の糞も同時に採集する。また、比較対象として地上生のきのこ類も採集する。採集したトリュフ・きのこ類はすべてサンプルごとに1) 証拠標本用、2) 放射能濃度測定用、に分割し、形態とDNAデータによる種同定および放射能濃度の測定を行う。

##### 実施事項

野外調査が実施できなかったため、国立科学博物館に保管されている約12万点のきのこ標本のうち、同じ種が以下の条件で採集されているものを抜き出し、放射性セシウム濃度を測定した：

- ・同一地点（茨城県つくば市）から複数回採集されている；
- ・チェルノブイリ原発事故前後に採集されている；
- ・福島第一原発事故前後に採集されている；
- ・その後現在に至るまで引き続き採集されている。

以上の条件に基づき、該当するきのこ類 50 種を特定した。そのうち、放射性セシウムの測定に十分量を確保できる乾燥標本という条件から、クロハツ（*Russula nigricans*：担子菌門ハラタケ綱ベニタケ目ベニタケ科）の測定を実施した。

#### 結果と考察

チェルノブイリ事故から 1 年後（1987 年）に採集された標本から 405.6 Bq/kg (DW) の  $^{137}\text{Cs}$  を検出した。一方で福島第一原発事故直後の 2011 年 7 月に採集された個体からは  $^{137}\text{Cs}$  が検出されなかった。その後 2011 年 10 月採集の個体からは 68.5 Bq/kg (DW) の  $^{137}\text{Cs}$  が検出され、より最近の個体からはさらに高濃度の  $^{137}\text{Cs}$  が検出された。このことから、以下の通り考察した：

- ①樹木との共生菌（菌根菌）であるクロハツは、セシウム飛散から吸収までのタイムラグがある；
- ②クロハツに特異的に寄生するヤグラタケは放射性セシウムをさらに高濃度に蓄積している可能性がある；
- ③他のきのこの共生・寄生・捕食系をさらに広く調べることで、菌類を介した森林内の放射性セシウムの動態把握につながる可能性がある。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【F-20-58】

## 沿岸ベントスにおける易分解性セシウム画分の定量と 食物連鎖移行モデルによる生物可給態移行寄与の解明

研究代表者：立田 穰

共同研究者：西川 淳・青山 道夫・浜島 靖典

受入研究者：青野 辰雄

### 1. 研究成果報告

【背景】福島事故以前の海洋のベントス(底生生物)におけるセシウムの濃縮係数は、15-17であった(Tateda et al., 1998)。無脊椎動物におけるセシウム代謝が速いことから、2012年以降の沿岸海水中濃度低下に伴い、無脊椎動物と海水中のセシウム濃度の関係は、事故以前の平衡状態に戻ると期待された。水産資源の甲殻類・頭足類における濃度低減は、このような知見で解釈可能であった。しかしながら、海底に生息するベントスや懸濁層を遊泳する小型甲殻類における放射性セシウム濃度は、2018年に至っても、海水濃度から期待される濃度まで低下していない。ベントスは、濃度の高い無機放射性セシウムを含む海底土層に生息していることから、観測されているベントス中濃度は、食物連鎖中を移行しない難分解性画分を含む可能性がある。そこで、本研究ではベントス中の放射性セシウムのうち生物移行への寄与分を求める。

【方法】2018年に、福島沿岸で採取分析済みのベントス試料について、過酸化水素処理し、分解後の抽出画分もしくは残渣画分における放射性セシウム濃度を、井戸型ゲルマニウム検出器ガンマ線スペクトロメータで測定した。得られた画分中濃度と、分解前試料中濃度から、易分解性画分と難分解性画分の比率を求めた。易分解性画分を有機態とみなし、食物連鎖を介して移行可能な生物可給態放射性セシウムについて、みかけの濃縮係数に対する、ベントス中有機体放射性セシウムの、海水濃度に対する濃縮比を求めた。

【試料】2018年の新青丸の研究航海KS-18-12において、福島沿岸でベントスを採取した。採取したベントスは船上培養により付着物および消化管内容物を排出させ、湿重量測定後、凍結乾燥により乾燥した。解剖可能な種は筋肉を採取し、そうでないものはベントス全体を、メノウバチで粉末化し、分析用試料とした。方法で述べた前処理作業は電力中央研究所で、測定は金沢大学低レベル放射能測定施設で、またスペクトル解析は筑波大学が行った。

【結果】測定した海水中放射性セシウム濃度に対して、2018年の福島沿岸のベントスにおける放射性セシウムのみかけの濃度比(濃縮係数CFあるいは濃縮比CR)は、福島第一原子力発電所F1NPP全面海域では、およそ20から100であった。培養前・培養後の濃度比に著しい差は認められなかった。F1NPP北部沿岸に比較して、南岸における濃度比が大き

い傾向が認められた。また、二枚貝・環形動物では濃度比が数百に達した。

試料量が十分にあったベントスについて、過酸化水素抽出画分中放射性セシウム濃度から導いた、易分解性放射性セシウムの海水中濃度に対する濃度比 CR は、培養前エビジャコでおよそ 70 であったが、培養後のエビジャコ、カニ、エビでは事故前濃縮係数と、ほぼ同オーダーであった。環形動物の易分解性放射性セシウム濃度比は 500 程度であった。

【考察】2018 年の福島沿岸のベントス中放射性セシウムは、必ずしもすべてが食物連鎖移行に寄与はしていないと考えられた。Ishimaru ら 2019 によって示されたシロメバル中放射性セシウムの濃度推移は、モデル解析において餌生物における生物可給態画分を 8 から 18% とすると、実測値を最も再現できたことから、本研究で示されたベントス中総放射性セシウムについても、エビジャコ・カニなどの甲殻類については、必ずしも食物連鎖移行に寄与しないと理解された。しかしながら、環形動物については、易分解性画分濃度を用いても、海水濃度に対して期待された濃度より高かったことから、海底環境中の供給源を想定せざるを得ないかもしれない。

【今後の課題】福島県沿岸では魚類中濃度は充分低下しているものの、ベントスを海底土とともに捕食するいくつかの種のカレイでは、その濃度低下が、海底土中の易分解成分濃度の低減に近似していたことから、濃度低減遅延への寄与の可能性があることが提起されている (Tateda et al., 2020)。このような特殊な食物連鎖における放射性セシウム移行の科学的機序を明らかにしておく必要がある。また、海底環境における放射性セシウムが、初期沈着の残存分であるか、河川による陸域流入寄与かについても定量的に解明する必要がある。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文 (謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

特になし

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【F-20-59】

## マイルドプラズマ質量分析法による鉛同位体分析法の検討

研究代表者：朱 彦北

受入研究者：鄭 建

### 1. 研究成果報告

#### 【概要】

誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）は放射性物質関連の同位体分析に有効であるが、連続運転の場合は大量なアルゴンガス（約 20 L/min）が消費される。そこで、同位体の連続モニタリングのコスト削減のために、安価なイオン化源と質量分析計を組み合わせた装置の開発が期待される。本研究は、このような装置開発のための予備検討を行った。

#### 【実験】

ICP-MS を用いて、従来の操作条件（プラズマ温度 6000～7000 K）に比べ、より低温的なプラズマ条件下（プラズマ温度約 4000～5000 K）での鉛同位体分析の感度・精度・再現性などの指標について検討し、放射性物質関連同位体分析に求められる指標が達成可能性を検証した。

#### 【結論】

タンデム四重極型 ICP-MS と鉛元素標準液（20 ppb）を用いて検討した結果、RF power の低下に伴い分析感度の低下が見られたが、鉛同位体比分析における不確かさに大きな変化は見られなかった。

窒素プラズマ温度相当条件において、分析感度に約 5%程度の低下が見られたが、<sup>206</sup>Pb/<sup>208</sup>Pb 同位体比の平均値と不確かさは、アルゴンプラズマ条件と同等であった。

以上のことから、ICP-MS と同等な分析性能を持つ窒素プラズマに基づいた鉛同位体比分析用装置と方法の開発は期待できる。

### 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

該当なし

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

放射能環境動態・影響評価  
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

2020 年度 年次報告書

**【若手共同研究】**

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
Y-20-01	田中 草太	日本原子力研究開発機構	炭素同位体分析を利用した節足動物における放射性セシウム移行経路の解明	恩田 裕一	CRiED
Y-20-02	千野 結子	Colorado State University	福島県の溪流・河畔生態系における放射性セシウム濃度の長期的予測に向けた放射性核種の生態学的半減期の把握	加藤 弘亮	CRiED
Y-20-03	本多 真紀	日本原子力研究開発機構	加速器質量分析によるCs-135及びSr-90の測定	坂口 綾 山崎 信哉 末木 啓介	CRiED CRiED CRiED
Y-20-04	榊原 厚一	信州大学	山地森林における溪流の流出過程と溶存態放射性セシウムの溶出過程の関係性	辻村 真貴	CRiED
Y-20-05	鈴木 翔太郎	福島県水産海洋研究センター	底魚類における海底土が及ぼす放射性物質移行に関する研究	和田 敏裕	IER
Y-20-06	守岡 良晃	福島県水産資源研究所	福島県松川浦における魚類の放射性セシウム濃度と栄養段階との関係	和田 敏裕	IER
Y-20-07	小槻 峻司	千葉大学	地表面過程の放射性物質輸送拡散・長期シミュレーションに向けたモデル開発	脇山 義史 五十嵐 康記	IER IER
Y-20-08	舟木 優斗	福島県内水面水産試験場	横川ダム湖及びその上流域における魚類への放射性セシウム移行特性の解明	和田 敏裕	IER
Y-20-09	城間 吉貴	琉球大学	土壌および岩石から大気へのトロン散逸に関する研究	平尾 茂一	IER
Y-20-10	野田 琢嗣	京都大学	バイオリギング技術を用いた原発周辺海域の魚類の移動生態の解明～魚類の放射能汚染のリスク評価に向けて～	和田 敏裕	IER
Y-20-11	高木 淳一	京都大学	淡水魚の移動とその放射能セシウム濃度の関係解明	和田 敏裕	IER
Y-20-12	Radhia Pradana	Center for Radiation Safety and Metrology-	Assessment of Radionuclide Content in Environmental Sample from West Borneo	床次 眞司	IREM
Y-20-13	五十嵐 悠	東京大学	原子力災害時の空气中放射性物質濃度測定へのラドン族濃度測定器の応用に関する研究	細田 正洋 玉熊 佑紀	IREM IREM
Y-20-14	Hasan Md Mahamudul	東京大学	Estimation of indoor radon behavior focusing on human lifestyles and environmental parameters: a case study of Japanese dwellings	細田 正洋 玉熊 佑紀	IREM IREM
Y-20-15	Evans Azka Fajrianshah	National Nuclear Energy Agency of Indonesia	Determination Sr-90 and Y-90 using LSC by extraction chromatography separation	床次 眞司	IREM
Y-20-16	Donovan Anderson	福島大学	Estimation of radiation exposure to wild boar using dicentric analysis	三浦 富智	IREM
Y-20-17	Sharah Nataz Shilfa	National Nuclear Energy Agency of Indonesia (BATAN)	Determination of Nuclear Fallout (241Am, 239Pu, dan 236U) in Environmental Samples derived from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident	床次 眞司	IREM
Y-20-18	山田 椋平	日本原子力研究開発機構	大気中放射性物質捕集用フィルタの選定に向けた性能評価	床次 眞司 細田 正洋	IREM IREM

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
Y-20-19	仲宗根 峻也	琉球大学	沖縄島の河川における水中ラドンを用いた地下水湧出量に関する研究	赤田 尚史	IREM
Y-20-20	三浦 輝	電力中央研究所	放射性セシウム粒子がプランクトンのセシウムの濃縮係数に与える影響	田副 博文	IREM
Y-20-21	Trilochana Shetty	Mangalore University	Preliminary characterization studies of Rn-222 progeny calibration chamber	玉熊 佑紀 Chutima Kranrod	IREM IREM
Y-20-22	Estiner Walusungu KATENGEZA	東京大学	Evaluation of accuracy of in-situ waterbed radioactivity measurement technology.	眞田 幸尚	JAEA
Y-20-23	斎藤 梨絵	福島県環境創造センター	原子力発電所事故後における福島県内及び隣接県に生息するイノシシの個体群構造の究明	玉置 雅紀	NIES
Y-20-24	漆原 佑介	東北大学	野生ニホンザルにおけるセシウム、ルビジウム、カリウム体内動態の解析	青野 辰雄	QST
Y-20-25	五十嵐 淳哉	大阪大学	福島県で採取された放射性Cs濃集粒子に含まれるSr,Puの微量分析	鄭 建	QST
Y-20-26	神林 翔太	海洋生物環境研究所	沿岸海域における放射性核種の挙動解明に関する研究	青野 辰雄	QST
Y-20-27	片境 紗希	富山大学	放射性核種を化学トレーサーに用いた海底湧水による陸域から沿岸海域への水・物質輸送状況の解明	青野 辰雄	QST



【Y-20-01】

## 炭素同位体分析を利用した節足動物における

### 放射性セシウム移行経路の解明

研究代表者：田中 草太

受入研究者：恩田 裕一

#### 1. 研究成果報告

広食性の捕食者であるジョロウグモは、生殖連鎖と腐食連鎖の双方から餌資源を捕食しているため、放射性セシウムの食物連鎖を介した動態を把握する指標となることが示唆されている。また、陸域だけではなく河川からも餌資源を捕食するクモを指標とすることで、森林生態系を移動・循環する放射性セシウムの動態を包括的に理解できる可能性がある。本研究では、福島第一原子力発電所から 11km 地点の森林内と河川沿いに生息するジョロウグモを採集し、個体ごとに  $^{137}\text{Cs}$  の定量と炭素・窒素安定同位体分析を実施した。その結果、クモすべてから  $^{137}\text{Cs}$  が検出された。このことから、事故後 6.5 年が経過した時点においても、生物が利用可能な  $^{137}\text{Cs}$  が存在し、食物連鎖を介してクモへ移行していることが明らかとなった。また、森林内と川沿いのクモにおける  $^{137}\text{Cs}$  の濃度と面移行係数 (Tag) を比較した結果、統計的有意差は認められなかった。この結果は、土壌表層の  $^{137}\text{Cs}$  の不均一分布に起因して、クモの餌資源の  $^{137}\text{Cs}$  濃度がばらついたことが要因の 1 つとして考えられる。一方、炭素・窒素安定同位体比は、森林内と川沿いで有意差が認められた。この結果から、両地点でクモが利用する餌資源が異なることが示された。今回の結果から、造網性のジョロウグモは、生物利用可能な  $^{137}\text{Cs}$  の有用な指標となることが示された。また、クモが林床部、河川、隣接する農地等から様々な餌資源を利用することが示唆され、これが  $^{137}\text{Cs}$  の移行経路の特定を困難にしていることが示された。今後、クモの餌資源となる昆虫類を含めたさらなる調査が必要である。本研究結果は、査読付き論文 (Tanaka et al., 2021) として公表した。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Tanaka, S., Kinouchi, T., Fujii, T. et al. Observation of morphological abnormalities in silkworm pupae after feeding

<sup>137</sup>CsCl-supplemented diet to evaluate the effects of low dose-rate exposure. Sci. Rep. 10, 16055 (2020). <https://doi.org/10.1038/s41598-020-72882-y>.

Tanaka S, Kakinuma H, Adati T, Atarashi-andoh M. Transfer of <sup>137</sup>Cs to web-building spiders, *Nephila clavata*, and its pathways: a preliminary study using stable carbon and nitrogen isotope analyses. J. Nucl. Sci. Technol. in press. (2021).

<https://doi.org/10.1080/00223131.2021.1894255>

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-02】

## 福島県の溪流・溪畔生態系における放射性セシウム濃度の長期的 予測に向けた放射性核種の生態学的半減期の把握

研究代表者：千野 結子

共同研究者：Thomas Johnson

受入研究者：加藤 弘亮

### 1. 研究成果報告

Radioactive cesium (Cs-137) released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident was deposited widely in the environment including headwater forest ecosystem species. In order to understand the temporal change of Cs-137 contamination for the ecosystem management, we conducted the monitoring of <sup>137</sup>Cs activity concentration in two forest-stream ecosystems with different initial deposition in 2012-13 and 2016-17. Ecosystem components such as surface soil and cedar litter, and insect and fish species were collected for four seasons during the two time periods. We were planning to conduct the same series of sampling in 2020, but we could not because of the COVID-19 pandemic. Instead, we conducted analysis of temporal change of Cs-137 activity concentration with previously collected data. Cs-137 activity concentration decreased significantly between the two sampling periods in the both ecosystems for all the ecosystem components. Significant difference was observed in the contamination level between forest and stream ecosystem in 2012-13, while it became relatively homogeneous in 2016-17. Ecological half-life calculated for the ecosystem components were between 1.5-19.3 year, demonstrating the trend that soil accumulating most of the Cs-137 in the ecosystem as previous studies. Our study results also indicated that stream insect species feeding FPOM maintain relatively high <sup>137</sup>Cs activity concentration possibly because of the Cs-137 attached to the organic or mineral particles suspended in the stream water. Comparing the difference of ecological half-lives calculated for the two ecosystems, the faster elimination of Cs-137 in the forest components in the less contaminated ecosystem was observed, associated with remarkable trend of Cs-137 accumulation by the surface soil with the longest ecological half-life. The results of this study suggests that the majority of Cs-137 in the forest environment will remain in the surface soil for the next decades, providing Cs-137 to both forest and stream ecosystems. This result suggests the importance of the forest management of the headwater ecosystem to avoid discharge of highly contaminated soil to the downstream area.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-03】

## 加速器質量分析による Cs-135 及び Sr-90 の測定

研究代表者：本多 真紀

共同研究者：Peter Steier・Martin Martschini・島田 亜佐子

受入研究者：坂口 綾・山崎 信哉・末木 啓介

## 1. 研究成果報告

Sr-90 (90Sr) の人体における実効半減期は 18 年と、70–100 日である 137Cs に比べて長い。住民の内部被ばくを評価する上で 90Sr は重要な核種の一つに位置づけられている。 $\beta$  線測定等の放射線計測法は 90Sr の環境動態研究や環境モニタリングを担ってきた。この従来法に加えて、90Sr の新規分析法として、優れた感度と同重体分離能力を有する加速器質量分析 (AMS) による 90Sr の分析手法の確立と実用化を研究代表者らは目指している。AMS 法では多様な化学組成の環境試料をより迅速に処理でき、かつ  $\beta$  線測定と同等の検出限界を達成できる可能性がある。研究代表者らは筑波大学の 6MV 加速器施設にて国内初の AMS による 90Sr の測定を成功させた[1]。本課題では新規手法の実用化に向けて、環境試料 (IAEA の放射能環境標準物質等) の測定をウィーン大学のタンデム加速器施設 (VERA Laboratory) で実施した。

放射能標準液 (IAEA)、放射能環境標準物質 (Moss-soil (IAEA-447); Beef bone (IAEA-A-12))、放射性核種測定技能試験 (IAEA TEL-2015, 2016) に用いられた試料 (Syrian soil (Sample 5); Tap water (Sample 2)) を化学処理し、VERA Laboratory の 3 MV AMS 装置で 90Sr を測定した。この加速器前段には AMS としては新しい 同重体分離システム (リアクションセル+Nd:YAG laser) が装備されているため、通常の AMS 装置よりも効率的に 90Zr を除去できる (Zr の suppression factor は  $>10^{10}$  atoms)。固体試料は 450°C で灰化し、1 mg Sr 担体を添加して 250°C で 4 時間濃硝酸抽出後、0.45  $\mu$ m PTFE でろ過した。液体試料を Sr resin (2 mL; 50–100  $\mu$ m, Eichrom) に通液して Sr を分離し、0.01M 硝酸溶液の Sr フラクシオンを濃塩酸溶液に置換して陰イオン交換樹脂 (2 mL; MCl Gel CA08P, 三菱ケミカル) に通液し Zr を分離した。濃縮した Sr 溶液に 46–48% フッ酸を添加して沈殿を生成し、エタノールで洗浄後、50°C で乾燥した。

化学分離の過程において Zr は 99–100% 分離・除去される一方で、Sr は 80–98% 回収された。この化学分離の過程において除去されなかった Zr の量は最大で 1012 atoms と見積もられ、当該 AMS システムの Zr 除去能力 (1013 atoms) より少なくなる計算である。本手法で  $\beta$  線測定に匹敵する検出限界  $<0.08$  mBq (90Sr/Sr  $<5 \times 10^{-15}$ ) を達成した。研究代表者らによる先行研究ではフッ化物沈殿の生成割合が  $\sim 30\%$  と低かったが、Ca 3 mg を添加することでフッ化物沈殿の生成割合が 99% に改善されることが明らかになったので、今後

は改良した方法でターゲットを作製し、測定を実施する予定である。AMS における  $^{90}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$  比補正に最適な標準物質 (10-14, 10-13, 10-12, 10-11) は IAEA-TEL-2016-Sample 2 (Tap water) 及び  $^{90}\text{Sr}$  放射能標準液から調製した。環境試料 (Moss-soil; Beef bone; Syrian soil) の測定精度は 6-10% で、おおむね測定値は公称値と誤差の範囲内で一致した。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文 (謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Sasa, K., Honda, M., Hosoya, S., Takahashi, T., Takano, K., Ochiai, Y., Sakaguchi, A., Kurita, S., Satou, Y., Sueki, K. (2021) A sensitive method for Sr-90 analysis by accelerator mass spectrometry. J. Nucl. Sci. Technol., 58:1, 72-79.

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-04】

## 山地森林における溪流の流出過程と溶存態放射性セシウムの

## 溶出過程の関係性

研究代表者：榊原 厚一

受入研究者：辻村 真貴

## 1. 研究成果報告

福島第一原子力発電所の事故によって放出された放射性物質の環境中での移行過程の解明は、水資源を含む環境の持続性を評価する上で重要である。溶存態  $^{137}\text{Cs}$  に着目をすれば、時間の経過とともに流出水中の濃度は低下傾向にある (Taniguchi et al., 2019)。しかしながら、流出量が増大する豪雨時においては、その濃度が短期的に上昇する例が多数報告されている (例えば Tsuji et al., 2016)。その傾向は時間的にも場所的にも異なり、特に森林源流域では、事故後数年経過しても降雨時に溶存態  $^{137}\text{Cs}$  が定常時と比較をして 1 桁以上濃度が上昇している (Iwagami et al., 2019)。多くの先行研究によれば、このことは、林床に蓄積するリターからの  $^{137}\text{Cs}$  の溶出現象が関わっているものと考えられる (Sakai et al., 2016; Kurihara et al., 2020)。しかしながら、降雨時における流出量の増大やそれに伴う飽和地表流の発生等、林床リターから流出水へ  $^{137}\text{Cs}$  の移行をもたらす現象の指摘はあるものの、実際の降雨イベントにおいて、流出水中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇過程を、関連する水文過程とリターからの溶出過程の両者を同時に考慮することで説明した研究は無く、未解明な部分が多いことが現状である。そのため、本研究では、福島第一原子力発電所事故の影響を受けた森林源流域を対象とし、降雨に伴う水文過程とリターからの  $^{137}\text{Cs}$  溶出の両面から、降雨時における  $^{137}\text{Cs}$  濃度上昇のメカニズムを明らかにすることを目的とした。この目的を達成するために、降雨時に飽和帯が形成される森林源流域のリター試料を用いて、実験室において、攪拌・無攪拌条件それぞれで  $^{137}\text{Cs}$  の溶出試験を行った。また、インターバルカメラを用いた現場状況の撮影と、ArcGIS による空間解析を実施することで、降雨時における飽和帯面積の拡大量を定量化した。そして、降雨時に流出水中の溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度が上昇する要因を、リターからの  $^{137}\text{Cs}$  溶出と水文過程の観点から考察した。

溶出試験の結果、 $^{137}\text{Cs}$  の溶出速度は試験の初期段階 (最初の 1 時間) で速く、その後は遅くなった。攪拌 (100 rpm) の場合と無攪拌 (0 rpm) の場合では、全体の結果に大きな差は見られなかった。さらに、溶出試験終了後 (開始 24 時間後) の  $^{137}\text{Cs}$  の溶出率は最大で 33.7%であった。これは、溶出試験後も  $^{137}\text{Cs}$  量の大部分がリターに残っていることを示している。降雨流出水に対する降水、土壌水、地下水の端成分混合を考慮するだけでは、

降雨時の流出水中溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度を再現することはできなかった。また、流出水中の  $^{137}\text{Cs}$  の観測値と計算値の差は、高水条件で大きくなった。これらのことから、降雨時には端成分が有する  $^{137}\text{Cs}$  に加え、リター起源の  $^{137}\text{Cs}$  が流出水に負荷されていると考えられる。また、流出量が増大するにつれて、飽和帯面積は指数関数的に拡大することが分かった。このことは、飽和地表流と林床に蓄積したリターとの接触面積が増加し、リターからの  $^{137}\text{Cs}$  の溶出が促進されることを示唆している。すなわち、降雨時に一時的に形成される飽和地表流によって多くの面積でリターから  $^{137}\text{Cs}$  が溶出することが、降雨流出時に流出水中の溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度が上昇する要因の一つであると考えられた。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



【Y-20-05】

## 底魚類における海底土が及ぼす放射性物質移行に関する研究

研究代表者：鈴木 翔太郎

共同研究者：天野 洋典・神山 享一・帰山 秀樹・高田 兵衛

受入研究者：和田 敏裕

### 1. 研究成果報告

ベントス食性であるマコガレイ (*Pseudopleuronectes yokohamae*) では、摂餌の際、海底土を消化器官に混入させる個体が存在する。本研究では、消化器官に高濃度の放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ ) を含む海底土が混入した場合、海底土の  $^{137}\text{Cs}$  が消化器官を介してマコガレイの魚体に  $^{137}\text{Cs}$  が移行するか否かについて飼育実験を行い検討した。飼育魚は、自然海水かけ流し (水温は、 $12.3\sim 19.9^{\circ}\text{C}$  の範囲で変動) で 70 日間飼育し、 $^{137}\text{Cs}$  を含む海底土を混ぜた配合飼料 ( $^{137}\text{Cs}$  濃度; 約  $25\text{ Bq/kg-dry}$ ) を与えた試験区 (R3 区) と一般配合飼料 ( $^{137}\text{Cs}$  濃度; 約  $0.156\text{ Bq/kg-dry}$ ) を与えた対照区 (C3 区) を設定した。サンプルは定期的に各区から 10 個体採取し、内臓を除く全体をまとめて凍結乾燥または灰化した後、 $^{137}\text{Cs}$  濃度の測定を行った。C3 区の飼育個体の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、飼育期間中、変化せず一定の値 ( $0.102\sim 0.162\text{ Bq/kg-wet}$ ) で推移したのに対し、R3 区では飼育 7 日目に  $0.285\text{ Bq/kg-wet}$  まで上昇した後、 $0.280\sim 0.305\text{ Bq/kg-wet}$  の範囲で推移した。また海水に対する魚体の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の比は、飼育期間を通して C3 区より R3 区の方が高い値を示した。本研究の結果から、マコガレイでは、捕食に伴い海底土を消化器官に混入させる習性が魚体の  $^{137}\text{Cs}$  濃度に少なからず影響を及ぼしていることが示唆された。今後は、海底土の  $^{137}\text{Cs}$  が消化器官を介して魚体に及ぼす影響の程度や、消化器官内で海底土の  $^{137}\text{Cs}$  が溶離するメカニズムについて検討する必要がある。

### 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文 (謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-06】

## 福島県松川浦における魚類の放射性セシウム 濃度と 栄養段階との関係

研究代表者：守岡 良晃

共同研究者：山田 学・佐藤 利幸・白土 遼輝・松本 陽・天野 洋典

受入研究者：和田 敏裕

### 1. 研究成果報告

福島県北部にある松川浦は、汽水の閉鎖性潟湖であり、多くの魚種の成育場となっている。本発表では、こうした汽水域の代表種であるボラ *Mugil cephalus* およびスズキ *Lateolabrax japonicus* に着目し、放射性セシウム（以下、 $^{137}\text{Cs}$ ）濃度と食性の関係を明らかにすることを目的とした。2019年7月～2020年11月の間に、松川浦において、ビームトロール網、刺網および投網により、ボラ、スズキを採捕した。体サイズの測定と胃内容物の観察を行った後、筋肉の  $^{137}\text{Cs}$  濃度を測定した。ボラの胃内容物はデトリタスやアマモであった。スズキの胃内容物は、小型個体（全長400mm未満）ではアミ類やヨコエビ類、大型個体（全長400mm以上）ではカニやエビであった。ボラおよびスズキの  $^{137}\text{Cs}$  濃度の範囲は、それぞれ0.97-2.07 および1.17-11.7 Bq/kg であり、有意差が確認された（ $P < 0.05$  ウィルコクソンの順位和検定）。これらの結果から、食性の違いが  $^{137}\text{Cs}$  濃度に影響を与えている可能性が考えられた。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-07】

## 地表面過程の放射性物質輸送拡散・長期シミュレーションに 向けたモデル開発

研究代表者：小槻 峻司

共同研究者：峠 嘉哉・渡部 哲史

受入研究者：脇山 義史・五十嵐 康記

### 1. 研究成果報告

[The burned area extracting in Chernobyl Exclusion Zone using Random Forest]

The Chernobyl nuclear power plant accident that happened in 1986 is the largest source of anthropogenic radionuclides released into the environment in history. In recent 20 years, the climate and land-use changes have increased the risk of large forest fires around the territory of the Chernobyl exclusion zone (CEZ). Since the precise burn area extracting is the basis and precondition of the estimation of the biomass burning emission and analysis of the second diffusion of radioactive residuals released from the nuclear accident. In this study, we established a burned area extracting method based on the random forest (RF) algorithm using the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) MOD09GA / MYD09GA and LANDSAT -7 ETM+ /-8 OLI images. The field observation in 2015 and MODIS MOD14A1 product were adopted to generate sampling points for RF. The difference reflectance of near-infrared band and difference in vegetation indices (NDVI, NBR, NDWI) between pre- and post-fire imagery were calculated to train the RF classifier. Moreover, the historical burned area in 2015 and 2020 were detected using the trained RF classifier. The preliminary results of the identified burned area show good consistency with the MODIS MCD64A1.006 product and FireCCI51product. And RF algorithm-based burned area detection can detect the relatively small fire scars compared to the two existing products. Especially the RF using LANDSAT products can detect the small fires since the fine spatial resolution.

[Development of distributed hydrological model based]

To simulate radioactive transports in CES, we first developed a distributed hydrological model that integrates a land surface model SiBUC and river routing module. The model covers the entire upstream of Kyiv, and can simulate water budget and river discharge over the entire catchment. We prepared the necessary input data for the simulation: soil properties, land

cover, leaf area index, meteorological forcing, and elevation data. The model produced long-term surface hydrological variables successfully.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

N/A

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-08】

## 横川ダム湖及びその上流域における魚類への放射性セシウム

### 移行特性の解明

研究代表者：舟木 優斗

共同研究者：寺本 航

受入研究者：和田 敏裕

#### 1. 研究成果報告

東京電力福島第一原子力発電所事故から10年が経過するが、未だに魚類から放射性セシウムが検出され、内水面においては淡水魚の生理機構により影響が顕著である。また、内水面漁業における主な漁場は河川と湖沼であり、これらは固有の生態系を有していることから、生息環境による魚類の放射性セシウムの蓄積にも差があると考えられている。そこで本研究では漁業再開の知見を得るために、同一水系内に生息する河川と湖沼におけるヤマメの $^{137}\text{Cs}$ 濃度の減少傾向を比較し、出荷制限解除における支援情報を収集した。

調査地は福島県南相馬市を流れる太田川とし、2017年から2020年にかけて太田川上流域の横川ダム(以下ダム湖)及びダム湖直上の河川でヤマメの採集を行った。ダム湖においては刺し網と釣りによりヤマメを採捕した。河川においては電気ショッカーと釣りによりヤマメを採捕した。採捕したヤマメは全長、体長、体重、胃内容物を調査し、ゲルマニウム半導体検出器により河川の試料は筋肉部(鱗、皮含む)を、ダム湖の試料は筋肉部(鱗、皮を含まず)の $^{137}\text{Cs}$ 濃度を測定した。ヤマメの $^{137}\text{Cs}$ 濃度の減少傾向を指数近似から求め、近似式から生態学的半減期を算定し、ダム湖と河川でのヤマメの $^{137}\text{Cs}$ 濃度の減少特性について検討した。

2017年から2020年にかけて採捕されたヤマメはダム湖で44尾、河川で273尾であった。これら環境別のヤマメの $^{137}\text{Cs}$ 濃度の減少傾向を求めたところ、調査を開始した2017年は河川の方がダム湖に比べ高かったが、2020年の時点ではダム湖の方で高いことが確認された。生態学的半減期はダム湖で1571日、河川で270日と算定され、ダム湖で生態学的半減期が長く、ダム湖では放射性セシウムによる影響が河川に比べ長期化する可能性が示唆された。

ダム湖と河川の子マメの全長組成を分析したところ、ダム湖の方が有意に大きいことが確認された( $t$ -test,  $p < 0.05$ )。この結果は、ヤマメが生活史二型を示し、河川残留型と降湖型で生態と形態が大きく異なり、成長度が異なるためであると考えられる。

一般に魚類の放射性セシウム濃度にはサイズ効果が見られることから、各年の各環境の子マメのサイズ効果を検討した結果、河川ではダム湖に比べサイズ効果が明瞭であり、調査

期間中全ての年度で有意な相関が得られた(Spearman's rank-correlation,  $p < 0.05$ )。一方、ダム湖では有意な相関がほとんど見られなかった。このことから、ダム湖と河川ではヤマメの<sup>137</sup>Csの蓄積が異なることが示唆され、それらは河川残留型と湖沼型で生理機構や食性を含めた生態が大きく異なることに起因するものと推測された。

本研究では、太田川水系においてダム湖と河川の異なる環境でのヤマメの<sup>137</sup>Cs濃度の減少傾向、<sup>137</sup>Csの蓄積に関する調査を実施し、河川よりもダム湖で<sup>137</sup>Csの影響が長引く結果と、<sup>137</sup>Cs濃度のサイズ効果がダム湖と河川で異なることを示した。一方でヤマメの<sup>137</sup>Cs蓄積の主要因の餌料環境については未検討であり、今後はヤマメの餌料の<sup>137</sup>Cs濃度、食物網の解明、それぞれの環境の餌料の起源について炭素窒素安定同位体比から調査していく必要がある。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なし

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-09】

## 土壌および岩石から大気へのトロン散逸に関する研究

研究代表者：城間 吉貴

共同研究者：仲宗根 峻也

受入研究者：平尾 茂一

## 1. 研究成果報告

ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ )・トロン ( $^{220}\text{Rn}$ ) は、土壌および岩石中のラジウムの放射壊変によって生成され、壊変時の反跳によって固体物質から間隙中に移行する。これまで、半減期が約 3.8 日と長いラドンについては、固体物質から大気中への移行について多くの研究が行われているが、半減期が約 56 秒と短いトロンについては、研究事例が少ないのが現状である。福島県には、ラジウムを含む鉱泉が湧出している。また、沖縄県の赤褐色土壌は、高いラジウム濃度を有することが知られており、ラドン・トロン研究に適したフィールドである。本研究では、トロンを主な対象として、トロンおよびラドンの固体物質から大気中への移行量（散逸係数）を実験的に評価することを目的とした。

ラドン・トロン散逸係数の評価には、土壌・岩石中ラジウム ( $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ) 濃度および密閉容器内の大気中ラドン・トロン濃度が必要である。福島県および沖縄県において測定試料である土壌・岩石試料を採取する。試料は乾燥処理を行い、ラジウム濃度分析用サンプルと散逸係数評価実験用サンプルに分取した。ラジウム濃度分析用サンプルは、プラスチック容器に密封し、福島大学の Ge 半導体検出器を用いて 80,000 秒の測定を行い、ラジウム濃度を定量した。散逸係数評価実験用サンプルは、琉球大学にて、密閉容器と静電捕集型ラドン・トロンモニタを用いて、大気中ラドン・トロン濃度の測定を行った。これらの結果から散逸係数の評価を試みた。

散逸係数を評価するため必要な密閉容器内のトロン濃度を測定するために、密閉容器、除湿ユニット、静電捕集型ラドン・トロンモニタからなる実験系を構築した。密閉容器には、沖縄県糸満市喜屋武岬の土壌を粒径 2 mm 以下に統一して封入した。封入後から 72 時間にわたって、1 時間毎のラドン・トロン濃度を測定した。同時に、密閉容器内の温度、湿度、気圧を測定した。水分条件を変えて 3 回の測定を行った。測定の結果、実験系内のラドン濃度は時間経過に伴って上昇した。一方で、トロン濃度は低い値で推移した。このことからラドン濃度は正常に測定できているが、トロン濃度は測定できていないことが示唆された。その要因として、半減期の短いトロンが除湿ユニット内で壊変し、検出できなかったと考えられる。この改善点として、流量を大きくすること、除湿ユニットを短くすることなどが挙げられた。得られたラドン濃度を用いて、ラドン散逸係数を算出した。各測定において、測定開始からおおよそ 5 時間程度にわたって異常に高いラドン散逸係数を呈した。その後、漸次

開始からおよそ 5 時間程度にわたって異常に高いラドン散逸係数を呈した。その後、漸次的に緩やかに減少し、15 時間以降は非常に緩やかに減少する傾向がみられた。ラドン散逸係数に影響する要因として、粒径、ラジウム濃度、含水比が知られているが、本研究においてはこれらの大きな変動は認められなかった。このことから、測定開始直後の異常なラドン散逸係数は、土壌に滞留したラドン濃度が高い空気を吸引したことによるものであり、徐々に減少する要因は、測定系における外気の混入であることが示唆された。そこで、封入時のラドン散逸係数を評価するため、15 時間以降のデータを用いて、測定開始時のラドン散逸係数を外挿することで、ラドン散逸係数を評価することが可能であることが示唆された。今後は、さらなるデータの蓄積を行い、新しいラドン散逸係数の測定法として確立することを目指す。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

Nakasone S., Ishimine A., Shiroma S., Masuda N., Nakamura K., Shiroma Y., Ooka S., Tanaka M., Kato A., Hosoda M., Akata N., Yasuda Y., Furukawa M., Temporal and spatial variation of radon concentrations in environmental water from Okinawa Island, southwestern part of Japan, *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 2021. 18 998.  
<https://doi.org/10.3390/ijerph18030998>.

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



【Y-20-10】

バイオロギング技術を用いた原発周辺海域の魚類の移動生態の解明

～魚類の放射能汚染のリスク評価に向けて～

研究代表者：野田 琢嗣

共同研究者：三田村 啓理

受入研究者：和田 敏裕

1. 研究成果報告

福島県の沿岸漁業は、津波による直接的被害に加えて、原発事故に伴う魚介類の放射能汚染の問題により、復旧が著しく遅れている。その理由の一つとして、現在も原発港内に放射性セシウムの基準値を上回る魚類が生息し、潜在的なリスクとして存在することや、これらの「魚類の移動を制御することができない」ことが挙げられる。そこで本研究では、福島県の重要魚種であるカレイ類が、原発周辺の海域をいつどの程度利用しているかを明らかにすることで、魚類の放射能汚染の正確なリスク評価に資する情報を得ることを目的とした。2020年7月に、人工種苗を飼育し1歳、2歳まで成長させたホシガレイ80尾(1歳魚：30個体、2歳魚：50個体)に深度・温度ロガーを装着した。その後、原発から5km北に位置する浪江町請戸漁港にて放流した。これまでに4個体が再捕され、ロガーのデータ回収に成功した。カレイ類の多くは、海底に滞在する時間が存在するため、海底地形情報および潮汐予測モデルと照合することで、位置を絞ることができる。ホシガレイの移動速度を考慮しつつ、観測誤差がある深度データを用いて位置を推定するために状態空間モデルを用いた粒子フィルタのアルゴリズムを構築した。実際に、構築したアルゴリズムを2021年1月末に再捕された個体のロガーデータを適用し移動履歴の推定を行なった。現在、並行して、再捕個体の筋肉中の放射性セシウム濃度を測定し、移動経路と放射性セシウム濃度の関係の解析を進めている。

2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-11】

## 淡水魚の移動とその放射能セシウム濃度の関係解明

研究代表者：高木 淳一

共同研究者：三田村 啓理

受入研究者：和田 敏裕

## 1. 研究成果報告

福島県阿武隈川水系では、近年ダム周辺水域を中心として特定外来生物であるチャネルキョットフィッシュ (*Ictalurus punctatus*) の個体数が再生産により急激に増大している可能性が指摘されている。本研究では、阿武隈川流域の信夫ダムにおいて、本種の産卵場の推定、及びその放射性セシウム濃度を調査した。産卵場の推定には超音波テレメトリー手法（発信機を対象に装着し、受信機でその信号を受信することにより行動追跡をする手法）を用いた。超音波発信機(V13 または V13AP、Vemco 社)を外科手術で腹腔内に装着した本種 51 個体（成熟可能な標準体長 38–66 cm）を信夫ダム（堤体から約 800 m 上流）に放流した。以前に行った調査で産卵場所と推定された場所周辺に、16 台の受信機（VR2W、Vemco 社）を用いて音響アレイを配置した。本種の産卵期（5–7 月）を含む 4 月 19 日から 7 月 26 日まで、双曲線位置決定法による測位手法を用いて放流個体の追跡を行った。合計 35 個体の位置データの取得に成功した。測位データから、比較的河岸沿いの 1–2 箇所狭い範囲に、数週間程度留まる個体が複数観察された。その期間、滞在深度の変動は極端に小さくなり、加速度値はゼロ付近が増加していた。本種は、産卵前には産卵場にて雌雄が寄り添って行動し、産卵後には雄が卵や仔魚を保護することが試験下で観察されている。本結果は、それらの行動を野生下で捉えたものと考えられる。また、本種及び淡水域の他魚種（コクチバス、ギンブナ、コイ）の放射性セシウム濃度を福島大学放射能研究所にあるゲルマニウム半導体検出器を使用して測定した。その結果、本種の放射性セシウム濃度はコクチバス、ギンブナ、コイと比較して有意に高いことが分かった。現在、その要因を検討している。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-12】

## Assessment of Radionuclide Content in Environmental Sample from West Borneo

研究代表者：Radhia Pradana

受入研究者：床次 眞司

### 1. 研究成果報告

Due to the importance of radiocesium monitoring in water body, several method for cesium extraction has been established including the use of potassium-nickelhexacyanoferrate (KNiFC) in which incorporated into a modified polyacrylonitrile (PAN). KNiFC-PAN resin is

capable of cesium extraction up to nearly 100% recovery rate for 4 L sample with 2 ml of the resin by setting the flow rate of the sample under 10ml/minute. By using the method, IAEA ALMERA water sample from year 2018 and 2019 was measured to evaluate the accuracy of the method. The measurement result was evaluated with Z-score value method according IAEA/AQ/32. The accuracy evaluation resulting in satisfactory from all measurement result with Z-score value for 2019 sample are 0.6 and 1.43 for  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  respectively, while Zscore value for 2018 sample are 0.38 and 1.29  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  respectively.

Keyword: Radiocesium extraction, KNiFC-PAN

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

-

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-13】

## 原子力災害時の空气中放射性物質濃度測定へのラドン族濃度測定器 の応用に関する研究

研究代表者：五十嵐 悠

共同研究者：飯本 武志・金 千皓

受入研究者：細田 正洋・玉熊 佑紀

### 1. 研究成果報告

原子力災害により大気中へ放出された放射性物質は公衆の内部被ばくの原因となるため、迅速な被ばく線量評価には空气中における放射性物質の拡散状況と濃度測定が重要となる。また、原子力災害時の迅速な測定体制構築および評価のため、環境バックグラウンドとなる自然放射線などの平常時からの連続的な測定が求められている。これらのことから、緊急時モニタリングを見据えた平常時モニタリングの実施が重要と言える。

本研究では、環境バックグラウンドとなる空气中のラドン族濃度測定の迅速化、およびラドン族濃度を考慮した平常時から緊急時への連続した空气中放射性物質濃度測定に着目し、2 フィルター式ラドン濃度測定器の上流側フィルター開閉による、単一測定器でのラドンおよびラドン壊変生成物の空气中濃度安定測定の実現、および環境バックグラウンドであるラドン族濃度を考慮した原子力災害時における緊急時モニタリング手法の開発を目的としている。

今年度は開発する測定器で使用する検出器選定に向け、同一検出器で  $\alpha/\beta$  線双方を測定可能な半導体検出器3種類(PD300 24V および 70V、CAM300)を対象とした、制御した測定環境下における空气中放射性物質の捕集・測定による比較を実施した。

比較実験は量研機構・放医研の標準ラドン場にて実施し、測定環境は温湿度を一定、ラドン濃度を 4000Bqm-3 一定とし、2 フィルター法による 222Rn から 218Po への壊変を利用した 218Po を測定対象とした。また、測定によって得られるスペクトルとカウント数、およびラドン濃度基準器で得られたラドン濃度より、ROI 効率および Count→Bq・m-3 変換係数を算出・比較することで、空气中放射性物質捕集中の測定における検出器性能を評価した。その結果、ROI 効率は3つの検出器とも変わらず、変換係数は PD300 が最も小さいが残り2つについても大きな差は無いと評価した。これより、制御環境下での捕集・測定では検出器性能に大きな差は見られなかったことから、測定環境が変動する野外等の実環境下で測定・比較による検出器選定が必要という結論となった。

今後に向けた課題としては、自然界におけるラドン族測定を通し、測定環境が変動する実環境下における最適な検出器の選定および測定器全体へ与える影響の評価が必要である。また、これまでの研究よりラドン族濃度の測定は可能と明らかになったことから、ラドン族と同様に自然界に存在し、環境 BG となりうるトリウム系列のトロンおよび壊変生成物の測定を試みる必要がある。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-14】

## Estimation of indoor radon behavior focusing on human lifestyles and environmental parameters: a case study of Japanese dwellings

研究代表者：Hasan Md Mahamudul

共同研究者：飯本 武志・迫田 晃弘

受入研究者：細田 正洋・玉熊 佑紀

### 1. 研究成果報告

From the viewpoint of radiation protection, ascertaining dynamics of natural radon (Rn-222) gas in terms of entry and distribution into indoor environments is greatly important due to its significant human exposures. Radon is a naturally occurring radioactive gas formed from decaying of uranium present in rocks and soil; it undergoes further decays forming radioactive progenies which can move into human lung through breathing. The alpha rays emitted from these radionuclides can affect human lung tissues adversely, and cause lung cancer. Consequently, radon is considered as second cause of lung cancer after smoking. It's behavior (concentration variations and human exposures-radiation dose) in dwellings depends on human lifestyles, indoor structures, environmental factors or strength of source-soil/building materials. Thus, this study aims to preliminary estimate the indoor radon behavior following the parameters of human lifestyle and environmental factors. Indoor radon modeling was done in an indoor room of Okayama prefecture in Japan which was easy to be controlled on its environmental conditions. Radon concentrations and its possible affecting parameters (i.e., temperature) were assessed in an hourly basis for about one month. Radon concentration was measured with AlphaGUARD monitor, Saphymo GmbH, Germany; and radon progenies which cause direct human lung exposures were measured with WLM monitor (BWLMPPLUS-S, Tracerlab, Germany) simultaneously to determine the radon equilibrium factor, F. By learning F for a specific indoor environment, we can predict radon exposures and calculate dose by measuring only radon gas. As preliminary radon modeling, a multivariable log-linear regression model was evaluated to identify influential factors on varying indoor radon exposures and to predict future concentration level following the factors. The log-linear equation is written as  $\log(y) = \beta_0 + \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_3 + \dots + \beta_n x_n$  [y, indoor Rn;  $\beta_0$ , intercept;  $\beta_n$ , parameter coefficient;  $x_n$ , parameters]. Then the model was fit into the measured time-series radon data to obtain parameter coefficients. Significant ( $P < 0.05$ ) parameters were identified with ANOVA test using SPSS version 25. 60 percent data was used

as model development set; 40 percent is of validation for predicting indoor radon after normalization. As the primary results following the measured data, parameters of indoor window usage by resident, outdoor temperature and outdoor radon influenced significantly ( $P < 0.05$ ) the variation of indoor radon concentration levels. Alternatively, human lifestyles (air condition and window usage) are found to be influential factors on varying radon equilibrium factor  $F$ . Air condition sufficiently reduced  $R_n F$ -value, might be due to the filtration; however, coupled with opening door parameter, it exhibited a diverse pattern of  $F$ . Furthermore, although predicted radon was similar to estimated radon (ratio:  $0.9 \pm 0.6$ ), the validation indicated lacking other required parameters. Thus, for the future study learning about the radon modeling and its uncertainties, longer time series data set concerning radon concentrations, environmental parameters (indoor & outdoor), human lifestyles (daily activities and ventilation effect) and source influences (building materials, outdoor soil) might be effective for the Japanese house. Based on the obtained findings, in future study, the environmental conditions of model room will be adequately adjusted to newly ascertain the atmospheric pressure driven influence on vertical dynamics of radon gas into buildings.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-15】

## Determination Sr-90 and Y-90 using LSC by extraction chromatography separation

研究代表者：Evans Azka Fajrianshah

受入研究者：床次 真司

### 1. 研究成果報告

Determination of  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  in Environmental Sample by Liquid Scintillation Counting

Abstract

Liquid scintillation counting (LSC) was used to determine  $^{90}\text{Sr}$  /  $^{90}\text{Y}$  in samples of Japanese milk powder. The determination of  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  is based on four main steps; the preparation of the sample, the addition of Sr-carrier, the extraction of radio-strontium and radio-yttrium by chemical treatment and the determination of the activity by LSC. In this analysis, the  $^{90}\text{Sr}$  sampling activity concentration shows that the  $^{90}\text{Sr}$  concentration of all Japanese samples is lower than the Euratom regulatory criteria for food and milk.

Background

A significant number of volatile radionuclides were emitted into the atmosphere after the Fukushima nuclear accident, with Strontium-90 ( $^{90}\text{Sr}$ ) being no exception[1]. In environmental pollutant control, monitoring of Strontium-90 ( $^{90}\text{Sr}$ ) is very important.  $^{90}\text{Sr}$  is a pure beta emitter that is one of the most hazardous contaminants in the environment.  $^{90}\text{Sr}$  has a relatively long physical half-life of 28.79 years and a biological half-life of approximately 13 years [2]. The chemical properties of Strontium are similar to calcium because they are of the same class of elements. Thus,  $^{90}\text{Sr}$  is readily stored in bone tissue and teeth. Skeletal cancer or leukemia could be affected [3]. Liquid scintillation counting (LSC) is used in this work for the analysis of  $^{90}\text{Sr}$ .

Experimental

Chemicals and Materials used:

Milk powder and milk ash sample from Japan, 65%  $\text{HNO}_3$  8M; 65%  $\text{HNO}_3$  2M; 65%  $\text{HNO}_3$  0.5M; 65%  $\text{HNO}_3$  0.05M; 65%  $\text{HNO}_3$  0.1M; Oxalic acid solid; Aquabides Sr-specific product in resin (Eichrom); Sr-resin aquades; Whatman 42 filter paper ; Nitrous cellulose filter paper; Sr-carrier, Sr-tracer, 25%  $\text{NH}_4\text{OH}$ , universal pH-meter, Ca-standard solution 1000 mg L<sup>-1</sup> and Ultima Gold (UG) scintillation cocktail were used.



#### Equipment used:

Porcelain cup, desiccator, Bulb, spray bottle, glassware, petri dishes, tweezers, analytical balance, spatula, stirrer, vial bottle 20 mL, Eichrom Sr-resin chromatography column, furnace, vacuum pump, hot plate, micropipette 20  $\mu$ L, Liquid Scintillator Counting (LSC) Quantulus-1220, and Atomic Absorption Spectrophotometer were used.

#### Procedure

(Picture)

Figure 1. Schematic of LSC analysis

#### Results

(Table 1)

The chemical recovery percentage of the samples displayed in Table 1 shows that the procedure was reasonably precise and quite suitable for the analysis of  $^{90}\text{Sr}$  for this type of sample.

(Table 2)

The  $^{90}\text{Sr}$  sample activity concentration shown in Table 2 indicates that the  $^{90}\text{Sr}$  concentration of all selected Japanese samples is smaller than the Euratom regulatory requirement for food and milk.

#### Conclusion

In this study, LSC combined with radiochemistry methods for separation of elements can be successfully applied for determining  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  and the results of the analysis of the  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  concentration level of all samples in this study were lower than the Euratom regulatory criteria for food and milk concentrations of  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ .

#### Citation

1. Shozugawa K, Nogawa N, Matsuo M (2012) Deposition of fission and activation products after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Environ Pollut* 163: 243–247.
2. Joyce, M. (2018). The Actinides and Related Isotopes. *Nuclear Engineering*, 87–110.
3. Schwantes JM, Orton CR, Clark RA (2012) Analysis of a nuclear accident: fission and activation product releases from the Fukushima Daiichi nuclear facility as remote indicators of source identification, extent of release, and state of damaged spent nuclear fuel. *Environ Sci Technol* 46: 8621–8627

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

None

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-16】

## Estimation of radiation exposure to wild boar using dicentric analysis

研究代表者：Donovan Anderson

共同研究者：石庭 寛子・難波 謙二

受入研究者：三浦 富智

### 1. 研究成果報告

This research investigated radionuclide activities and chromosomal aberrations in lymphocytes of wild boar inhabiting areas of varying radiation exposures of Fukushima Prefecture. Presence of chromosomal aberrations would indicate possibility of other deleterious effects and detection frequency could allow for a suitable radiation biomarker in future studies. However, it is uncertain if chromosomal aberration frequency is sufficient at low chronic radiation exposures, such as those measured in impacted areas of Fukushima. Here, we attempted to investigate the biological consequences of long-term chronic, low dose or dose rate radiation after the FDNPP accident using dicentric chromosome aberrations in lymphocyte cells of wild boar. We also tried to determine the suitability of dicentric yields to estimate radiation doses at such chronic, low dose or dose rate radiation. For comparative analyses, lifetime radiation doses of boar were estimated using measurements of radionuclide concentrations in muscle tissues (i.e., internal dose rate) and measurements from ambient doses at trap sites (i.e., external dose rate) multiplied by the corresponding estimated age of each animal. The highest estimated lifetime dose to wild boar was 690 mGy. The highest dose rate per hour and per year was 36  $\mu$ Gy and 320 mGy, respectively. Overall, external dose tended to account for the majority of the total dose rate (68%), while internal dose accounted for 32%. Despite elevated low dose or dose rate radiation exposures, we observed no radiation-related dicentric aberrations in the wild boar in Fukushima Prefecture. Our result is somewhat unexpected because dicentric chromosome aberrations have been detected and had a positive dose response in areas of less contamination. Disparities in results might suggest that detectability of the effects at low dose and low dose rate is statistically as a function of the number of cells. In other words, more cells may need to be scored before we can see a dicentric dose response at the chronic, low dose or dose rate radiation exposure sites such as those nearby FDNPP. If no dicentrics are observed in a greater number of cells, then this may indicate that the chronic low dose rate radiation observed in our study may be too low to cause dicentrics or chronic regimes repair prevents accumulation.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-17】

## Determination of Nuclear Fallout ( $^{241}\text{Am}$ , $^{239}\text{Pu}$ , dan $^{236}\text{U}$ ) in Environmental Samples derived from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident

研究代表者：Sarah Nataz Shilfa

共同研究者：Kusdiana · Eka Djatnika Nugraha

受入研究者：床次 眞司

### 1. 研究成果報告

There are several radionuclide separation procedures for uranium, plutonium, and americium, namely based on anion-exchange chromatography, solvent extraction, and extraction chromatography. According to No'ra Vajdad and Chang-Kyu Kim (2010), chromatography extraction is also called solid-phase extraction and reverse-phase partition chromatography, where the liquid extraction is absorbed on the surface of the inert support material.

Extraction chromatography combines the selectivity and flexibility of conventional liquid-liquid extraction techniques with the flexibility and convenience of column chromatography. In chromatography like this, the stationary phase consists of an organic complex supported by a porous substrate. Solute retention is based on its tendency to form stable complexes with organic compounds on the surface of a porous substrate (W. A. Abbasi and M. Streat, 1994).

The tools used in this study were: laboratory glassware, analytical balance, Teflon beaker, hotplate, 50 mL centrifuge tube, centrifuge, infrared lamp (IR), chromatographic extraction column, 10 mL reservoir, vacuum box, vacuum pump, bath. sand, electrodeposition equipment (electrodeposition tube, statif, platinum wire, stainless steel disk, DC power supply), tweezers, bunsen, and alpha spectrometer.

The resin to be used is a specific resin to elute U, Pu, and Am. For the preparation of the column, a container tube (tube) is placed on the inside of the vacuum box and then the lid is attached. The yellow end is attached to the hole above the cap, matched with the small white pipe above the yellow tip, the column is attached above it and the reservoirs are attached above it. The vacuum pump is installed on the box then turned on. (The use of vacuum pump is used conditionally in this study).

In addition to digesting the sample, the addition of acids at the time of digestion will make the pH of the solution acidic, in this study the pH of the solution is adjusted to 2. At this pH, organic compounds that can interfere with the analysis will be digested or damaged by strong acids so that only what is left is the metals only.

In this study, UTEVA resin was used to separate U from Am and Pu. UTEVA resin retains elements in the form of uranium(VI), thorium(IV), neptunium(IV), and plutonium(IV). The retention of these elements depends on the nitrate concentration in the solution, the higher the nitrate concentration, the better the actinide uptake. After inserting the sample, the resin was washed with 2x10 mL of 3M HNO<sub>3</sub> to elute Pu (III) and Am(III). The Pu and Am eluents were then extracted chromatography on the TRU resin column. Recovery values  $\geq 90$  percent were obtained for all elements.

The final stage of this experiment is counting with an alpha spectrometer with a silicon surface barrier detector. Measurement of alpha radiation must be carried out through an electrodeposition process before it can be measured using an alpha spectrometer (Aslina, 2014; Novarty, 2009). This is because alpha ray radiation has very little penetrating power so that a very thin and even thickness of the sample is needed so that it can be analyzed with an alpha spectrometer. Future studies will measure alpha emissions from discs. The eluent is transferred into the electrodeposition cell and the radioelement electroplated on stainless steel discs. Alpha particle spectrum was analyzed with Alpha Spectrometers.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Ambient dose measurement from high natural background radiation (HNBR) in Botteng Utara Village, Mamuju-Indonesia, IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. Series Vo. 1436, p. 012027, 2020, IOP Publishing

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-18】

## 大気中放射性物質捕集用フィルタの選定に向けた性能評価

研究代表者：山田 椋平

共同研究者：玉熊 佑紀

受入研究者：床次 眞司・細田 正洋

## 1. 研究成果報告

2012年に定められた原子力災害対策指針では、緊急事態において大気中の放射性物質の濃度を把握することが重要であるとしている。また、その補足参考資料では、 $\alpha$ 線放出核種向けの大気中放射性物質測定装置に用いるろ紙（フィルタ）は、粒子が内部に入り込まないメンブレンフィルタを用いることとしている。一方、これらの資料には、メンブレンフィルタの具体的な材質については言及されていない。本研究では、これまで大気中放射性物質捕集用フィルタとして検討されてこなかった材質を含む複数のメンブレンフィルタにおいて性能評価を行った。

本研究で性能評価を行ったメンブレンフィルタの材質は、セルロース混合エステル（AAWP02500、Merck）、ポリテトラフルオロエチレン（以下、PTFE）（T080A025A、ADVANTEC）、ポリプロピレンネット付きPTFE（J100A025A、ADVANTEC）、セルロースアセテート（C080A025A、ADVANTEC）、ニトロセルロース（7188-002、Cytiva）及びポリカーボネート（K080A025A、ADVANTEC）である。

まず、これら全てのフィルタにおいて、デジタルマノメータ（DMH-01-40kP、木幡計器製作所）及びローボリウムポンプ（LV-40BW、SIBATA）を用いたフィルタによる圧力損失を測定した。なお、フィルタの有効径は20 mmで、面速度は10-70 cm/sで設定した。

次に、弘前大学被ばく医療総合研究所に設置されているラドン曝露システムを用いた表面捕集効率の評価を行った。始めにフィルタ上にラドン子孫核種を捕集し、シリコン半導体検出器を用いてエネルギースペクトルを得た。そして、得られたスペクトルから、玉熊ら（保健物理, 2019）と同様の方法を用いて表面捕集効率を評価した。なお、表面捕集効率の評価はセルロース混合エステル、PTFE及びポリカーボネートでのみ実施できた。

結果として、圧力損失は低い順にポリカーボネート、セルロース混合エステル、セルロースアセテート、ポリプロピレンネット付きPTFE、ニトロセルロース、PTFEであることがわかった。また、表面捕集効率は低い順に、セルロース混合エステル、PTFE、ポリカーボネートであった。これらの結果より、ポリカーボネート製メンブレンフィルタは、圧力損失が最も低く（面速度50 m/sにおいて圧力損失10 kPa）、表面捕集効率が最も高い（Am-241線源と比較する方法で78.9%）ことがわかり、大気中放射性物質捕集に最適なフィルタであ

ることが示唆された。一方、表面捕集効率の評価は全てのフィルタに対して行えていないことに注意が必要である。

本研究により、現時点ではポリカーボネート製メンブレンフィルタが最適な大気中放射性物質捕集用フィルタであると考えられる。今後も引き続き、表面捕集効率の評価、実環境での流量変動評価や、本研究に関連した先行文献との比較等を行い、大気中放射性物質捕集用フィルタの最適化に向け検討を進める。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



【Y-20-19】

## 沖縄島の河川における水中ラドンを用いた

### 地下水湧出量に関する研究

研究代表者：仲宗根 峻也

共同研究者：城間 吉貴

受入研究者：赤田 尚史

#### 1. 研究成果報告

沖縄島では農地などから高濃度の硝酸やリンが地表水（主に河川水）を介して沿岸海洋へ流出し、水質汚染を引き起こすことが懸念されている。これまで沖縄県では、地表水を介した栄養塩の海洋流出に関する調査が行われている。しかし、沖縄県はその地質環境から地下水系が発達しており、県内各地に湧水が点在している。その地質学的背景から、湧水が河川の水源である場合もあり、陸源物質の海洋への流出経路は地表水だけでなく、地下水を介した流出経路の可能性も検討する必要がある。そこで、本研究では、沖縄島北部の湧水河川を対象に、地下水湧出の実態を明らかにすることを目的とし、下流域から上流域にかけて、水中ラドン濃度、主要溶存イオンを測定し、河川における湧出地点の分布やその水質を把握する。

対象河川は、沖縄島北部の塩川（26° 36′ 56″ N, 127° 53′ 43″ E）とした。塩川は全長約 300m の湧水河川であり、上流に地下水の流出部が 2 ヶ所あり、流出した地下水は途中で合流し、海洋へと流れ込む。水試料は、河口付近から上流域にかけて計 14 地点で採取した。水中ラドン濃度の測定用試料は注射針を装着したシリンジで 10mL 採取した。採取後は、同量のミネラルオイルシンチレーターを入れたガラスバイアルに注入し、暗所で保存した。濃度測定は液体シンチレーションカウンタ（Tri-Carb2910TR, PerkinElmer）で 1 試料あたり 60 分間測定を行った。主要溶存イオンは 0.45  $\mu$ m メンブレンフィルター（DISMIC 25CS045AS, ADVANTEC）で濾過した後、イオンクロマトグラフィー（Dionex ICS-2100, Thermo Fisher Scientific）を用いて、イオン成分（Na<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>）の濃度を測定した。HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>は pH4.8 アルカリ度滴定法により定量した。

水中ラドン濃度（±不確かさ）は、N.D.から 7.0（±0.3）Bq/L の範囲であった。地下水流出部の水中ラドン濃度はそれぞれ 7.0（±0.3）Bq/L、5.6（±0.3）Bq/L であった。塩川の水中ラドンの濃度分布は、下流域で低く、上流域で高い傾向であった。しかし、河川の合流地点では、6.5（±0.3）Bq/L と他の地点と比べて高く、流出部近傍と同程度のラドン濃度であった。また、上流域のいくつかの地点で、流出部と同レベルのラドン濃度が検出さ

れた。このことから、既知の地下水流出部の他に、新たな流出地点の存在が示唆される。また、主要溶存イオン成分は、地下水流出部の2地点とも  $\text{Na}^+$  や  $\text{Cl}^-$  が高く、海水に起源をもつ湧水（アルカリ非炭酸塩型）であることが示唆された。加えて、他の地点においても同様にアルカリ非炭酸塩型の水質を示すことから、塩川は同一の水源で形成されていることが示唆された。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-20】

## 放射性セシウム粒子がプランクトンのセシウムの 濃縮係数に与える影響

研究代表者：三浦 輝

共同研究者：石丸 隆・神田 穰太

受入研究者：田副 博文

### 1. 研究成果報告

福島第一原子力発電所事故によって、大量の放射性セシウム (Cs) が環境中へ放出された。放射性 Cs の形態の一つとして放射性 Cs 粒子 (CsMP) が報告された (Adachi et al., 2013)。Kubo et al. (2018) は熊川河口の懸濁粒子中から高線量の粒子を報告し、海洋における CsMP の存在を示唆した。本研究では (i) プランクトンネットサンプルなどの海洋サンプル中からの CsMP の発見、(ii) 陸域で報告されている CsMP との比較、(iii) CsMP の存在が Cs の固液分配や濃縮係数へ与える影響評価を目的とした。

福島沖沿岸から採取された様々なサンプル (懸濁粒子、沈降粒子、プランクトンネット、堆積物) から CsMP を発見した。湿式分離により単離した後、分析を行った結果、懸濁粒子、沈降粒子、プランクトンネットから単離された CsMP は陸域で報告されている Type-A の特徴に一致し、陸域に沈着したものが河川などを通じて海洋へと移行した可能性が示唆された。一方で、堆積物から単離された CsMP はカルシウム (Ca) を含むことや、亜鉛を含まないことから Type-A などのこれまでに報告されている CsMP とは異なることがわかった。この粒子は、(i) Cs 放射能比から 2 or 3 号機由来であること、(ii) 3 号機からの放射性物質の放出時のプルームが海方向であったこと、(iii) Ca のソースと考えられるコンクリートと核燃料の反応 (MCCI) が 2 号機では限定的であったこと、の理由から、3 号機に由来する粒子であると推定された。本研究に用いたサンプルだと、CsMP の寄与率は、プランクトンネットで 77%、堆積物で 93% となり、固液分配や濃縮係数に影響を与える可能性が示唆された。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

H. Miura, Y. Kurihara, M. Yamamoto, A. Sakaguchi, N. Yamaguchi, O. Sekizawa, K. Nitta, S. Higaki, D. Tsumune, T. Itai, and Y. Takahashi (2020) Characterization of cesium-bearing microparticles emitted from the Unit 1 of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant by multiple synchrotron radiation analyses: Difference between two types of cesium-bearing microparticles, *Scientific Reports*, 10, 11421.

H. Miura, T. Ishimaru, Y. Ito, Y. Kurihara, S. Otsuka, A. Sakaguchi, K. Misumi, T. Daisuke, A. Kubo, S. Higaki, J. Kanda, and Y. Takahashi (2021) First isolation and analysis of caesium-bearing microparticles from marine samples in the Pacific coastal area near Fukushima Prefecture, *Scientific Reports*, 11, 5664.

A. Kubo, K. Tanabe, Y. Ito, T. Ishimaru, M. Otsuki, H. Arakawa, Y. W. Watanabe, H. Miura, D. Tsumune, and J. Kanda (2020) Changes in radioactive cesium concentrations from 2011 to 2017 in Fukushima coastal sediments and relative contributions of radioactive cesium-bearing microparticles, *Marine Pollution Bulletin*, 161, 111769.

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-21】

## Preliminary characterization studies of Rn-222 progeny calibration chamber

研究代表者：Trilochana Shetty

受入研究者：玉熊 佑紀・Chutima Kranrod

### 1. 研究成果報告

#### Introduction:

The worldwide annual effective dose due to ionizing radiations to the general public is 2.4 mSv and out of this, about 1.275 mSv of dose is mainly due to  $^{222}\text{Rn}$  and its progeny alone. This fact explains the importance of the measurement of  $^{222}\text{Rn}$  and its progeny and estimation of dose due to them to the general public. These  $^{222}\text{Rn}$  progenies are solids and behave as airborne particles that attach to carrier aerosol particles, as a result depends strongly on its size & concentration. Inhalation doses are predominantly due to decay products and cumulative decay product concentrations are actual measure of exposure.

It is essential to address the reliability and accuracy of  $^{222}\text{Rn}$  and its progeny concentrations measured through (i) periodic calibration and performance evaluation of detectors, (ii) adequate quality control programs, and (iii) periodic inter-comparison measurements, hence a  $^{222}\text{Rn}$  progeny calibration chamber of volume 0.5 m<sup>3</sup> is established at IREM, Hirosaki University, Japan. The proposed study under the allotted grant covers the target of “Preliminary characterization experiments of the  $^{222}\text{Rn}$  progeny calibration chamber”.

#### Details of the study

$^{222}\text{Rn}$  progeny homogeneity mapping was performed using an ionization chamber based online progeny monitor.  $^{222}\text{Rn}$  progeny was generated inside the calibration chamber using a standard  $^{222}\text{Rn}$  source at environmental aerosol concentrations. The experiments were carried out at different  $^{222}\text{Rn}$  concentration levels. Also the effects of relative humidity (RH) on the progeny concentrations were studied.

#### Project outcome

1. EERC studies in the chamber exposure volume using online progeny monitor was done at three different  $^{222}\text{Rn}$  concentration levels. And is found to have a linear relation between the two .
2. Variations of EERC in the chamber with RH is studied at three different ranges and is found to be higher for higher RH values.
3. The effect of fan speed on the EERC levels attained in the chamber can be seen from these results, displaying a deviation from the expected values. Also these experiments were performed without the generation of aerosols, at environmental aerosol concentration.

Acknowledgement: The authors would like to thank the Environmental Radioactivity Research Network Center (Grant Number: Y-20-21) for funding the research program.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-22】

## Evaluation of accuracy of in-situ waterbed radioactivity measurement technology.

研究代表者：Estiner Walusungu KATENGEZA

共同研究者：越智 康太郎

受入研究者：真田 幸尚

### 1. 研究成果報告

Since 2013, a plastic scintillation fiber (PSF) system has been used for in-situ monitoring of the distribution of radiocesium ( $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) concentration in bottom sediments of ponds affected by radioactive fallout from the 2011 Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. The conversion factor ((Bq.kg<sup>-1</sup>).cps<sup>-1</sup>) from PSF counting rate to radioactivity concentration (Bq.kg<sup>-1</sup>) are obtained by direct comparison with the average concentration of radiocesium in sediment core samples (0-10 cm) collected from PSF-coinciding positions within the same ponds. However, radiocesium is gradually migrating from the surface (0-10 cm) to deeper layer (lower than 10 cm) of sediment over time. This study aimed at evaluating the stability of the PSF measurements over time in consideration of radiocesium's vertical migration. The conversion factor at each thickness (10, 15, and 20 cm) was determined based on measurements in 49 ponds conducted in 2015-2019. Relative deviation (RD) of radiocesium concentration estimated by PSF measurement to that measured in sediment core samples were calculated. There was a good agreement ( $R^2 \geq 0.9$ ) between the concentration determined by PSF and core samples for all depths but the PSF values were closest to core values for the 10 cm depth. The mean, median, standard deviation and normalized mean square error (NMSE) of the RD increased (shifted rightward to larger positive values) with core thickness indicating increased overestimation by the PSF as a result of averaging over larger sediment thickness of heterogeneous concentration. This indicates a stability of the PSF results over the 10 cm thickness during the measurement period. Future research will focus on the effect of different sediment vertical profiles on PSF measurement stability and accuracy which will be useful for continued monitoring in the ponds.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Katengeza, E.W., Sanada Y., Yoshimura, K., Ochi, K., and Imoto T. 2020. The ecological half-life of radiocesium in surficial bottom sediments of five ponds in Fukushima based on in situ measurements with plastic scintillation fibers. *Environmental Science: Processes and Impacts*. 22 (7), 1566-1576. <https://doi.org/10.1039/D0EM00160K>.

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## 【Y-20-23】

## 原子力発電所事故後における福島県内及び隣接県に生息する

## イノシシの個体群構造の究明

研究代表者：斎藤 梨絵

共同研究者：今藤 夏子・熊田 礼子・根本 唯

受入研究者：玉置 雅紀

## 1. 研究成果報告

東京電力福島第一原子力発電所事故後、帰還困難区域や居住制限区域内において、イノシシの個体数が増加し、他地域へ分散することが懸念されている。2019年度の共同研究拠点による先行研究により、福島県内のイノシシはおおよそ阿武隈川の東西を介して2系統に分かれることを明らかにした。また、帰還困難区域も含めた福島県内のイノシシの管理には、隣県（とりわけ、帰還困難区域の北・南に位置する隣県）も含めたイノシシの個体群構造の把握が必要であると示唆された。そこで本研究では、福島県内及び隣県に生息するイノシシのDNAを利用したMIG-seq解析を行い、福島県内・外におけるイノシシの遺伝子解析に基づく個体群構造を明らかにすることを目的とした。

昨年度の研究で試料数が不十分であったいわき市などを中心にサンプルを追加し、福島県内の広域で採集されたイノシシの肉片からDNAを抽出した。加えて、隣県である宮城県（角田市、丸森町、村田町、亶理町）、栃木県（那須町）、茨城県（大子町）からイノシシ試料を採集し、DNAを抽出した。先行研究から、阿武隈川周辺域がイノシシの分散障壁となっている可能性が示唆されたことから、宮城県においては、阿武隈川を介した東西で、試料の採取を行った。抽出したDNAについて、MIG-seq解析により、塩基配列の1塩基多型 [Single-nucleotide polymorphisms (SNPs)] の検出を行った。

全349頭のイノシシについて解析した結果、382個のSNPsが検出され、これらを用いてSTRUCTURE解析による遺伝子解析に基づく系統分けを行った。その結果これらのイノシシは、統計的に2つの系統に分けられることが明らかになった。福島県内のイノシシを用いた先行研究でも2系統に分かれることが確認されており、その結果に基づき阿武隈川を介して東部で優占していた系統を「東系統」、西部で優占していた系統を「西系統」とすると、宮城県の4町村と大子町では東系統が優占しており、那須町では東系統と西系統がほぼ同じ割合で検出された。宮城県においては、福島県で確認されたような阿武隈川を介した2系統の分布特性の違いが認められず、阿武隈川周辺域がイノシシの分散障壁となっていないことが示唆された。さらにイノシシの遺伝子解析結果より3系統または4系統に系統分

けを行い、個体群構造の解析を行った。その結果、3系統に分けた場合には地理的に明確なグループ分けをすることができなかった。一方で、4系統に分けた場合には、より地域特性が認められる個体群構造が確認され、2系統に分けた場合の結果と比較して、より近年の遺伝子流動の結果を反映した特性を確認することができた。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

・斎藤梨絵,石井弓美子, 根本唯, 熊田礼子, 中村匡聡, 相馬理央, 大町仁志, 玉置雅紀. メタバーコーディングに基づくイノシシの食性解析: 植物性食物の推定における再現性と動物性食物の推定における効果的な解析対象種 DNA の抑制方法の検討. 日本生態学会誌. 70: 163-176. 2020.

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【Y-20-24】

## 野生ニホンザルにおけるセシウム、ルビジウム、カリウム

### 体内動態の解析

研究代表者：漆原 佑介

受入研究者：青野 辰雄

#### 1. 研究成果報告

ヒトにおける Cs 動態モデルは、様々な生物種の K、Rb、Cs 体内濃度データを元に構築されている。我々は、昨年度の放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点の共同研究にてサル各組織中 Cs-137 濃度を明らかにしたが、現行の Cs 動態モデルとの比較のために K、Rb の体内動態を明らかにする必要がある。そこで、福島県内で捕殺された野生ニホンザル組織試料より安定 K、Rb、Cs の測定を行い、K に対する Rb、Cs の組織間移行の傾向を明らかにすることを目的とした。

解析試料として、福島県においてニホンザル保護管理計画に基づいて捕殺された、野生成獣ニホンザルより採取した 22 の組織試料を用いた。各試料の安定 K、Rb については誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) で測定し、安定 Cs については原子吸光光度法 (AAS) にて測定した。

成獣ニホンザルの各組織中 K、Rb-85、Cs-133 濃度を測定し、相対濃度を比較したところ、多くの組織で K、Rb、Cs の血液濃度に対する相対濃度に大きな差はみられなかった。眼球と肝臓の Rb 相対濃度は K の相対濃度に比べて高く、骨格筋及び顎下腺の Cs 相対濃度は K の相対濃度に比べて高い結果となった。一方で、脳における K 相対濃度は Rb、Cs の相対濃度よりも低いことが明らかとなった。

本研究によって、K 相対濃度と比較して Cs は骨格筋と顎下腺に蓄積しやすいことが明らかとなった。カリウムは細胞内外分極を担う重要な元素であり、筋収縮時に生じる細胞内外分極において重要な機能を持つ。また、顎下腺は唾液腺組織として知られ、ヒトでは唾液中のカリウム濃度は血清よりも 5-10 倍程度高く、唾液腺細胞においてカリウムイオンの能動的な細胞内への輸送が行われている。このことから、生体機能にカリウムの細胞内輸送が深く関わる組織にセシウムが蓄積しやすいことが示唆される。今後はこれらのデータをもとに、血液から各組織への Cs の流入率及び排出率を算出し、現行 Cs 動態モデルとの比較を行う必要がある。また、現行モデルで言及されていない組織においても K、Rb、Cs 濃度の測定を行うことで、より正確な Cs 体内動態モデル構築のための基礎データとなることが期待される。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

Urushihara Y., Suzuki T., Shimizu Y., Suzuki M., Kuwahara Y., Kino Y., Sekine T., Shinoda H., Aono T, Fukumoto M., Investigation of radiocaesium distribution in organs of Japanese macaques, Proceedings of the 21st Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings, 2020, 141-143, 2020.

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-25】

## 福島県で採取された放射性 Cs 濃集粒子に含まれる

## Sr,Pu の微量分析

研究代表者：五十嵐 淳哉

受入研究者：鄭 建

## 1. 研究成果報告

## ① 研究目的

福島第一原子力発電所事故では、SiO<sub>2</sub> の母材に放射性 Cs が高濃度に濃集した水に不溶性放射性微粒子（不溶性粒子）が放出されたことがわかっている。この粒子は水に不溶である性質から放出時の状態を保持していると考えられ、その元素組成を調べることにより、核燃料内に存在する放射性核種の放出過程などの事故時の原子炉内環境についての情報を得ることが期待される。本研究では不溶性粒子から、揮発性の異なる Cs, Sr, Pu を定量することにより、これらの元素の不溶性粒子への取り込み過程を通じて、放射性核種の核燃料からの放出過程の解明を試みた。また Pu の定量により由来に応じて特定の値を持つ、Pu 同位体比の決定が期待できる。これまで事故前から存在するグローバルフォールアウト（GF）の影響が存在するため、事故由来の Pu 同位体比の決定は行われておらず、Pu 同位体比からの汚染評価は困難な状況にある。そこで本研究では、事故による正確な Pu 汚染評価のために、不溶性粒子から Pu 同位体比を決定した。

## ② 研究方法

本研究ではまず環境中から採取した不溶性粒子について、SEM-EDS 分析や  $\gamma$  線測定によって放射性 Cs の放射能（<sup>134</sup>Cs,<sup>137</sup>Cs）や比放射能、放射能比（<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs）などの性質を調べて不溶性粒子の分類を行った。そして放射化学的手法と質量分析によって不溶性粒子に含まれる Sr、Pu 同位体を定量した。大まかな手順としては、アルカリ溶融により不溶性粒子を溶液化した後、Sr-Rad disk により不溶性粒子に含まれる Sr を固相抽出分離し、液体シンチレーションカウンタにより <sup>90</sup>Sr の放射能を定量した。この時 Sr を取り除いた溶液について、TEVA, UTEV, DGA レジンを用いたクロマトグラフィーにより不溶性粒子に含まれる Pu を分離・精製し、SF-ICP-MS により Pu 同位体（<sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu）を定量した。

### ③ 結果・考察

本研究では  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  の値 から 1 号機由来と推測される粒子に含まれる Sr, Pu の定量に初めて成功した。粒子から定量された Pu 同位体比 ( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ) の値は 0.370 となり、GF の値より大きく、炉内インベントリー計算値に近いことがわかり、Pu 同位体比を決定することができた。これにより事故による Pu 汚染の定量的な評価が可能となった。不溶性粒子に含まれる  $^{137}\text{Cs}$  に対する  $^{90}\text{Sr}$  の放射能比 ( $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ ) の値はほぼ  $10^{-4}$  のオーダーとなった。これに対して不溶性粒子に含まれる  $^{137}\text{Cs}$  に対する  $^{239}+^{240}\text{Pu}$  の放射能比 ( $^{239}+^{240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ ) は、 $10^{-10}$  未満から  $10^{-7}$  のオーダーとなり、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$  よりも値のばらつきが大きいことがわかった。これについては、事故時に核燃料から放出された Sr と Pu がそれぞれ異なるプロセスを経て不溶性粒子に取り込まれたことが示唆された。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 【Y-20-26】

## 沿岸海域における放射性核種の挙動解明に関する研究

研究代表者：神林 翔太

受入研究者：青野 辰雄

## 1. 研究成果報告

2011年の東電福島第一原子力発電所事故によって放射性セシウムを含む大量の放射性核種が海洋環境へ放出された。東電福島第一原子力発電所周辺の海域モニタリングでは、放射性セシウム濃度やその分布は調査毎に異なることが報告されている。本研究では沿岸海域における放射性核種の挙動や濃度変化の要因を明らかにすることを目的として、河川や間隙水による海洋への放射性セシウムの移行状況の把握を行った。

2020年9月29日から10月1日にかけて現地調査を実施し、福島県双葉郡を流下する請戸川及び富岡川の淡水域と河口域において河川水を採取した。また、潮位変化に合わせて河口に近い砂浜（極沿岸）において海水と堆積物（約15cm）を採取し、堆積物から間隙水の抽出を行った。河川水、海水及び間隙水試料は孔径0.20または0.45 $\mu\text{m}$ のろ紙を用いてろ過を行った後に、リンモリブデン酸アンモニウム法を用いて処理を行ったうえで溶存態放射性セシウムの測定を行った。さらに、2018年9月20日から30日にかけて実施されたKS-18-12次研究航海で採取された海水試料並びに東電福島第一原子力発電所の近傍・沿岸海域で毎月実施されているモニタリングのうち、2019年8月から10月までの海水試料の分析結果の解析を行い、極沿岸域と沿岸海域における存態放射性セシウムや塩分等の比較を行った。

各試料に含まれる溶存態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度は、間隙水試料で最も高く、沿岸海域で採取された海水試料で最も低い結果になった。極沿岸及び沿岸海域における溶存態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度並びに塩分に関して、海域間の差を検討したところ有意差が認められ、極沿岸では沿岸海域に比べて河川水や地下水などの流入による影響をより強く受けていることが分かった。また、両河川から海洋へ流入する溶存態 $^{137}\text{Cs}$ フラックスを試算した結果、請戸川の溶存態 $^{137}\text{Cs}$ フラックス（河川流入、懸濁粒子からの溶出及び間隙水の流入の合計値）は富岡川の溶存態 $^{137}\text{Cs}$ フラックスに比べて約10倍大きいと試算された。今後は、極沿岸から沿岸海域を対象としたボックスモデルの構築などを通じて河川や間隙水に由来する溶存態 $^{137}\text{Cs}$ フラックスの高精度化を目指す予定である。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



【Y-20-27】

## 放射性核種を化学トレーサーに用いた海底湧水による陸域から沿岸

### 海域への水・物質輸送状況の解明

研究代表者：片境 紗希

共同研究者：張 勁

受入研究者：青野 辰雄

#### 1. 研究成果報告

海底地下水排出（以下、海底湧水）は、陸から海への水および物質輸送プロセスの一つとして重要であることが世界的に認識されている。本研究対象地域の富山湾では、淡水性海底湧水が確認されており、それを介して陸起源栄養塩が豊富に供給され富山湾表層の基礎生産へも寄与していることが実証されている（Guo et al., 2019）。しかし、近年、北陸地方では降雪量が半減した一方で、冬季降雨量が 2 倍に増加していることが報告されている（Yasunaga and Tomochika, 2017）。この気候変化を考慮した水収支モデルの計算の結果、富山湾の海底湧水の湧出量は 30 年間で最大 3 割増加していることが明らかとなった（Zhang et al., 2017）。このような海底湧水の量的な変化は、同時に質的な変化ももたらすと考えられる。そこで、本研究では、異なる期間（2017-2018 年と 2001-2003 年）に採取した淡水性海底湧水と関連する陸上地下水を同様の方法で観測・分析を行い、海底湧水を介した陸域から富山湾への物質供給量の長期変化を評価した。

本研究の主な結論は以下の通りである。

1. 気候変化（降雪量減少・降雨量増加）に伴う地下水量の増加（最大 3 割増加）は、地下水と海底湧水中の溶存成分の希薄化と滞留時間の短縮を引き起こしていた。
2. 海底湧水を介した沿岸海域への物質供給は、過去 20 年前と比較して溶存無機炭素（DIC）供給量は 3 割増加した一方で、栄養塩供給量は 3～4 割減少した。
3. 沿岸海域への炭素供給量増加と栄養塩供給量減少による一次生産の低下を考慮すると、沿岸海域表層に含まれる過剰 DIC は過去 20 年前と比較して 2 倍になっていることが示唆された。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

放射能環境動態・影響評価  
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

2020 年度 年次報告書

**【海外共同研究】**

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
I-20-01	Xinchao Sun	Tianjin University	Atmospheric deposition and canopy exchange processes at different topographic gradients in a forested watershed	恩田 裕一	CRiED
I-20-02	Delphis Levia	University of Delaware	Developing deeper insights into water cycling of forests using radiocesium as a tracer	恩田 裕一 加藤 弘亮	CRiED CRiED
I-20-03	Nathalie LEONHARDT	CEA	Contribution of K transporters to Cs uptake and accumulation in rice	古川 純	CRiED
I-20-04	Thomas Johnson	Colorado State University	Establishment of Radiocesium Concentration Ratios for Japanese Eels ( <i>Anguilla japonica</i> ) and Conger Eels ( <i>Conger myriaster</i> ) in Fukushima Prefecture	和田 敏裕	IER
I-20-05	Ralf Sudowe	Colorado State University	Radiocesium solid-liquid distribution and retention in soils and sediments	Alexei Konoplev	IER
I-20-06	James Beasley	University of Georgia	Influences of Rooting Activity by Wild Boar on <sup>137</sup> Cs Bioavailability	脇山 義史 難波 謙二	IER IER
I-20-07	Diana Lafferty	Northern Michigan University	Effects of radionuclide exposure on the microbiome community within gastrointestinal tract of wild boar	Kenji Nanba	IER
I-20-08	Tamara Fuciarelli	McMaster University	Impacts on Insect Biomass, Abundance, and Diversity in Areas Surrounding the Fukushima Daiichi Plant	三浦 富智	IREM
I-20-09	Tapashi Ghosh Roy	University of Chittagong, Bangladesh	Synthesis and characterization of nickel(II) and cobalt(III) complexes of aryl-substituted multi-azamacrocyclic chelator for application in radioactive waste decontamination	Ismail Md. Mofizur Rahman	IER
I-20-10	Debashis Palit	University of Chittagong, Bangladesh	Study of naturally occurred radioactivity in the soil and rocks of Chittagong Hill Tracts area of Bangladesh	Ismail Md. Mofizur Rahman	IER
I-20-11	FENGRU TANG	National University of Singapore	Low dose radiation effect on the brain development in racoon and large Japanese field mice from Fukushima area after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident.	三浦 富智	IREM
I-20-12	Mathew James Bruce Swallow	Mount Royal University	Evaluating radiocesium mobility from forest soils to soil ecosystems and soil fauna	赤田 尚史	IREM
I-20-13	Rawiwan Kritsananuwat	Chulalongkorn University	Trend of radiocesium and relate radionuclides concentration in surface-water and ground-water after FDNPP accident	田副 博文 赤田 尚史	IREM IREM
I-20-14	Dwi Ramadhani	National Nuclear Energy Agency of Indonesia	A Preliminary Study to Assess The Activity of Antioxidant Enzymes in Population Exposed to Very High Levels of Radon Concentration	三浦 富智	IREM
I-20-15	Fei Chen	National Center for Occupational Safety and Health, National Health	Gross alpha and gross beta radioactivity concentration in environmental water	田副 博文	IREM
I-20-16	Rungroj SAKULNAERAMIT	Chulalongkorn University	Development of producing radioactive aerosol under a variety of environmental conditions for dose assessment	Chutima Kranrod 玉熊 佑紀	IREM IREM
I-20-17	David Rollo	Faculty of Science, Department of Biology	Effects of Chronic Radiation on Biodiversity	三浦 富智	IREM

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	受入研究者	受入機関
I-20-18	Ken O. Buesseler	Woods Hole Oceanographic Institution	A study of Japanese beaches for Fukushima Dai-ichi derived radionuclides	田副 博文	IREM
I-20-19	Chanis Pornnumpa	Kasetsart University	EVALUATION OF THE CONVERSION FACTOR OF RADON AND THORON PROGENY DETECTOR IN DWELLING USING TRACK ETCH DETECTORS	Chutima Kranrod 玉熊 佑紀	IREM
I-20-20	Zhou shumín	East China University of Technology	Study on the migration law of radioactive aerosol	Chutima Kranrod 玉熊 佑紀	IREM IREM
I-20-21	Wu men	Third Institute of Oceanography	Analytical method of <sup>135</sup> Cs and <sup>137</sup> Cs in large volume of seawater by ICP-MS spectrometry	鄭 建	QST
I-20-22	Hai Wang	University of South China	Studies on the distribution and migration characteristics of Np and Pu in typical karst environment	鄭 建	QST
I-20-23	Wang Zheng	Tianjin University	Tracing the sources of Pu and Hg in the deep-sea sediments using Pu and Hg isotopes	鄭 建	QST
I-20-24	Shaoming Pan	Nanjing University	Method development for simultaneous analysis of <sup>237</sup> Np and Pu isotopes in the seawater by SF-ICP-MS	鄭 建	QST
I-20-25	Xiongxín Dai	China Institute for Radiation Protection	Source identification and environmental impact assessment of actinides around Fukushima: Development of ultra-sensitive methods in	鄭 建	QST

**【I-20-01】**

## **Atmospheric deposition and canopy exchange processes at different topographic gradients in a forested watershed**

Principal Researcher : Xinchao Sun

Host Researcher : Yuichi Onda

### 1. Report (about one page of A4 paper)

Forest canopies create a high spatial variability of both canopy interception ( $E_i$ ) and acidic and base cationic deposition. However, spatial characteristics of these hydrochemical fluxes along a slope gradient in forest watersheds remain unclear. Here we monitored bulk precipitation (BP), throughfall (TF), stemflow (SF), and associated acidic and base cationic fluxes, in addition to acid neutralizing capacities (ANC) and alkalinity (ALK) in an upper slope plot (UP) and a lower slope plot (LP) in a subtropical broadleaved forest, Southeast China. In addition, a canopy budget model was applied to distinguish the relative contributions of dry deposition (DD) and canopy exchange (CE) to net TF + SF (NTF) flux. Results showed that annual rates of TF, SF and  $E_i$  to BP in UP were 85.2%, 2.6%, and 12.2%, respectively. Corresponding values in LP were 88.6%, 2.2%, and 9.2%. There were no significant differences among these rainfall partitioning components between UP and LP. Additionally, annual volume weighted mean concentrations of  $\text{NO}_3\text{-N}$  in TF and SF were significantly lower than in BP, whereas no significant differences were found for  $\text{SO}_4\text{-S}$  among BP, TF and SF. Unlike annual TF  $\text{NO}_3\text{-N}$  fluxes were similar in UP and LP, annual TF  $\text{SO}_4\text{-S}$  fluxes significantly increased along the UP to LP. Net TF + SF (NTF) fluxes were negative for  $\text{NO}_3\text{-N}$  and  $\text{SO}_4\text{-S}$  at the two slope plots, illustrating retained/uptake in the canopy. Dormant season NTF S fluxes were close to zero, indicating that dry deposition does not appear to play a major role, whereas exchange with foliage surfaces should be the dominant factor controlling the spatial patterns of TF N and S fluxes in the watershed. In addition, annual volume weighted mean concentrations of base cations in TF and SF were significantly higher than those in BP in both UP and LP. Annual fluxes of TF or SF base cations had no significant differences between UP and LP, resulting in a comparable of the NTF fluxes. However, the relative contributions of DD and CE to NTF were different at the

two slope plots. NTF K<sup>+</sup> flux was dominated by CE regardless of slope position. Unlike K<sup>+</sup>, NTF Ca<sup>2+</sup> and Mg<sup>2+</sup> fluxes were dominated by DD in UP, while CE in LP. In addition, ANC and ALK of TF and SF were significantly higher compared to BP, suggesting rainwater beneath the canopy became less acidic and may mitigate in part the risk of soil acidification, especially in the dormant season. These findings can provide insights into the spatial variability of chemical characteristics of hydrochemical fluxes, and improve our understanding of the quantities and controls of external and internal nutrient inputs occurring within the canopy in forest watershed.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

(1) Xinchao Sun, Zhao Zhang, Yanhong Cao, Li Liu, Feilong Hu, Xiaoqiang Lu \*. Canopy modification of base cations deposition in a subtropical broadleaved forest: Spatial characteristics, canopy budgets and acid neutralizing capacity. *Forest Ecology and Management*, 2021, 482, 118863.

(2) Xiaoqiang Lu#, Yan Liu#, Li Liu, Zhao Zhang, Feilong Hu, Xueyan Liu, Xinchao Sun\*. Rainfall partitioning and associated nitrate and sulfate fluxes along a slope gradient in a subtropical broadleaved forest. *Journal of Hydrology*, 2020, 591: 125584.

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-02】

## Developing deeper insights into water cycling of forests using radiocesium as a tracer

Principal Researcher : Delphis Levia

Host Researcher : Yuichi Onda · Hiroaki Kato

### 1. Report (about one page of A4 paper)

#### 1. Research description

Our research examines the vertical flux (leaching and washing-off) and cycling of radiocesium via the branchflow and stemflow within forest stands, and its transport in the aftermath of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident. In particular, the research investigated and compared the distribution of radiocesium concentration (specifically Cs-137) transported by branchflow from upper and lower portions of the canopy and deposited by stemflow to the trunk-base. Furthermore, a stable isotope approach was initiated as to define the mixing process of intercepted rainfall, a signature of evaporation loss, and elucidate the transport of radiocesium via branchflow and stemflow on its routing through the canopy. The research was conducted in a coniferous forest (*Cryptomeria japonica* (L. f.) D. Don, young Japanese cedar stands, mean height of 10.9 m, mean DBH of 0.560 m) and a mixed deciduous broadleaved forest (*Quercus serrata* Murray, Japanese oak stands, mean height of 14.3 m, mean DBH of 0.789 m). The forest plots were located in Yamakiya, Fukushima Prefecture, with a radial distance of approximately 40 km from FDNPP. In addition, individual experimental tree stands were selected. Cedar: Cedar A, Cedar B and Cedar C and oak: Oak 1 and Oak 3. Branchflow was collected from branches of younger foliage, mixed foliage and dead foliage for cedar stand, while branches of uppermost foliage and mid-level foliage for oak stand. Stemflow was collected from upper-tree stemflow at 1 m below the last branch, and at 1.37 m from forest floor for both cedar and oak stands. Cedar and oak stands were partitioned into canopy layers (as described above) and then comprised into two compartments: canopy and trunk.



## 2. Research outcome

Significant vertical variability of Cs-137 concentration, depositional flux and volume generated in the branchflow and stemflow was observed among the sampling periods and season and also differed within the tree layers and between the two forest stands. The oak stand exhibited higher Cs-137 concentrations than the cedar stand. Branchflow of the dead foliage in the cedar canopy remained a significant contribution to the leachable Cs-137, reflecting the initial fallout that was intercepted by the upper canopy.

For seasonal changes, the distribution of Cs-137 concentration via branchflow and stemflow in the cedar and oak stands was most pronounced during winter season, with larger Cs-137 concentrations from the trunk than the canopy. This emphasized the importance of winter leaching, especially from the tree trunk, although a lower volume was generated.

Overall, the Cs-137 depositional flux from the oak stand was 7.5 times greater than for cedar. The Cs-137 depositional flux generated by branchflow and stemflow for the cedar stand and oak stand were 375.2 and 2812.8 Bq/m<sup>2</sup>/year, respectively. 71% of Cs-137 depositional flux originated from the canopy of cedar stands and 48% from the canopy of oak stands. Results also indicated that Cs-137 concentrations were strongly governed by leaching and sequestration processes along the preferential flowpaths within the canopy, as intercepted rainwater interacted with foliage and outer bark. Furthermore, the isotopic composition of branchflow was generally enriched in  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta\text{D}$  compared to open rainfall and throughfall, whilst oak stands more enriched than cedar stands.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Zul Hilmi SAIDIN, Yuichi ONDA, Hiroaki KATO, Janice E. HUDSON, Kazuki NANKO, Delphis F. LEVIA, 2020. Vertical variability of radiocesium cycling via branchflow and stemflow through the canopy of cedar and oak stands in the aftermath of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. [in preparation, to be published in Chemosphere].

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-03】**

**Contribution of K transporters to Cs uptake and accumulation in rice**

Principal Researcher : Nathalie LEONHARDT

Host Researcher : Jun Furukawa

1. Report (about one page of A4 paper)

The aim of our project is to develop in situ remediation approach using higher plants for rehabilitation of soil, a promising strategy for cost effective treatment of contaminated sites. Plants take up their essential elements from the soil through changes in the physico-chemical properties of the rhizosphere (acidification, excretion of chelators) and via transport systems of the essential elements (K, P, Fe,..etc). The radiological contaminants enter also using similar transport systems by chemical analogy (Cs/K). Also, using rice mutants affected in different transporters involved in the mobilization or transport of cesium, we will evaluate their capacity to increase or decrease the <sup>137</sup>Cs uptake in plants in order to generate new cultivars that can be used for phytoremediation or safe-food strategies.

In this experiment, we focused on OsHKT2;1 mutant line(oshkt2;1), which increased Cs uptake. Two mutant lines obtained from Tos17 mutant lines (ND4057(control and mutant), NC2534(control and mutant)) have used in our experiment. Seedlings transferred to paddy field (Fukushima) and cultivated for 5-6 months. Samples collected and separated into up ground part and grains. <sup>137</sup>Cs measured by Germanium counter, and K and Na contents measured by ICP-AES.

Field experiments performed 2018, 2019 and 2020. Three independent experiments (2018-2020) have showed same tendency in <sup>137</sup>Cs contents of grains. (<sup>137</sup>Cs contents of leaves are under measurement in NARO's Fukushima institute). K and Na contents of 2018 sample showed Na contents differences in the plants but not in K. (2019-2020 samples are under measurement in NARO's Fukushima institute). We will obtain all measurement data within 2021, and then we want to understand the Cs absorption control mechanism by integrating field data and laboratory data.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-04】

## Establishment of Radiocesium Concentration Ratios for Japanese Eels (*Anguilla japonica*) and Conger Eels (*Conger myriaster*) in Fukushima Prefecture

Principal Researcher : Thomas Johnson

Co-researcher : Meghan Dieffenthaler

Host Researcher : Toshihiro Wada

### 1. Report (about one page of A4 paper)

コロナ禍で申請者のトーマスジョンソン教授(コロラド州立大学)が来日できなかったため、受け入れ研究者の和田が福島県相馬市松川浦および周辺水域において予備的な調査を行った。

淡水域～海域に生息する魚類について、環境水と魚体中の放射性セシウム濃度比 (CR) を明らかにし、特に汽水環境での魚類の放射性セシウム汚染メカニズムの解明を目指すことを目的として汽水性の潟湖である松川浦にて調査をおこなった。松川浦湾口部外側に位置する新港 (St. 1)、松川浦北部 (St. 2)、松川浦南部 (St. 3)、流入河川の日下石川 (St. 4) にて、8月および9月に魚類等の採集調査および水質調査を行った。塩分が大きくことなる各調査地点において、淡水～海域に生息する様々な魚類等 (マアナゴ、ニホンウナギ、クサフグ、マハゼ、イシガニ) が採集された。マハゼの Cs-137 濃度の平均は 1.64 Bq/kg-wet であったが、個体差 (0.90-2.66 Bq/kg-wet) が認められた。これらの濃度は、各地点の堆積物中の Cs-137 濃度 (51-530 Bq/kg-dry) に比べて低い値であった。

### Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-05】

## Radiocesium solid-liquid distribution and retention in soils and sediments

Principal Researcher : Ralf Sudowe  
Co-researcher : Anna Deak  
Host Researcher : Alexei Konoplev

### 1. Report (about one page of A4 paper)

Monitoring of dynamics in radioactive contamination of the ponds and dam reservoirs in the FDNPP exclusion zone is essential not only in the context of radiation safety, but also for a better understanding of the main mechanisms responsible for persistence, mobility, and bioavailability of Fukushima-derived r-Cs in the freshwater environment. These water bodies are valuable and convenient subjects for the study of the surrounding freshwater environment with all its features and complexities.

Water and sediment samples from reservoirs/ponds within the exclusion zone were collected and analyzed. The contaminated water was filtered through membrane filters to separate particulate and dissolved r-Cs and then dissolved r-Cs was caught up by an ANFEZH (iron ferrocyanide) sorbent dissolved cesium. Soil/sediments size distribution was obtained and analyzed. The dynamics of the r-Cs distribution coefficient in the sediment-water system were analyzed.

Accumulated suspended material in ponds and dam reservoirs under study was mainly presented by clay and silt fractions. The typical XRD peak patterns of soil and sediment particles confirmed the presence of micaceous clay minerals, which selectively adsorb and fix radiocesium, in sediments and catchment soils.

The highest levels of the dissolved  $^{137}\text{Cs}$  were observed from June to October, depending on the water body. Additional dissolution of  $^{137}\text{Cs}$  in the summer can be attributed to the temperature dependence of  $^{137}\text{Cs}$  desorption from FES and its remobilization by ammonium. The  $^{137}\text{Cs}$  exchangeable distribution coefficients  $K_d^{\text{ex}}$  were found to be linearly proportional to the inverse effective concentration of major Cs competitive cations  $([\text{K}^+] + 5[\text{NH}_4^+])^{-1}$ , as would be expected from the theory of radiocesium selective

sorption on the FES of micaceous clay minerals. The exchangeable RIPex(K) was estimated to be 1650–2250 mEq/kg, which is within the range of values measured in the laboratory and available in the literature.

Despite <sup>137</sup>Cs contamination in the ponds being relatively persistent, a decline in both particulate and dissolved <sup>137</sup>Cs activity concentrations was revealed. The reduction rate of particulate <sup>137</sup>Cs activity concentrations was much higher than that for dissolved <sup>137</sup>Cs. Thus, the apparent distribution coefficient K<sub>d</sub>(<sup>137</sup>Cs) in the sediment–water system decreased with the rate constant 0.12–0.18 yr<sup>-1</sup>. We hypothesized that the K<sub>d</sub>(<sup>137</sup>Cs) decline may be associated with the decomposition of CsMP and subsequent <sup>137</sup>Cs leaching from them since the rate of K<sub>d</sub> decline in the ponds corresponds to the roughly estimated rate of <sup>137</sup>Cs leaching from CsMP in a freshwater environment based on the latest available data of laboratory experiments.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Konoplev A, Wakiyama Y, Wada T, Udy C, Kanivets V, Ivanov V, Komissarov M, Goto A, Nanba K (2021) Radiocesium distribution and mid-term dynamics in the ponds of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant exclusion zone. *Chemosphere*, 265: 129058.

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-06】

## **Influences of Rooting Activity by Wild Boar on <sup>137</sup>Cs Bioavailability**

Principal Researcher : James Beasley

Host Researcher : Yoshifumi Wakiyama · Kenji Nanba

### 1. Report (about one page of A4 paper)

Recent research has shown that some wildlife species, including wild boar, are increasing in number within evacuated areas, despite the radiological contamination. Increases in wild boar populations are of growing concern because wild boar cause extensive damage to property and agriculture through rooting, where boar overturn surface soil in search of food items, effectively tilling areas where rooting occurs to a depth of 120 cm. Rooting by wild boar has the potential to alter the soil chemistry, arthropod communities, and vegetation composition, and wild boar likely play an important role in the redistribution of contaminants within soil profiles. Redistribution of contaminants to the soil surface likely increases their availability to plants, and may facilitate the transport of contaminants more broadly within the landscape through erosion. Our objective in this study is to determine whether rooting by wild boar alters the bioavailability of <sup>137</sup>Cs. We hypothesize wild boar rooting alters the distribution of <sup>137</sup>Cs within the soil profile, increasing the bioavailability of this contaminant to biota and the potential for redistribution through erosion.

To evaluate the effects of rooting on <sup>137</sup>Cs distribution in soil, we initiated collection of soil samples within the difficult to return zone, in areas with and without boar rooting during 2020. However, due to the COVID-19 pandemic Dr. Beasley was unable to travel to Japan to carry out this research. Preliminary samples were collected and analyzed by Dr. Wakiyama at the Institute of Environmental Radioactivity, and we have purchased additional supplies to expand data collection this summer. These preliminary data support our hypothesis, and suggest wild boar rooting appears to disrupt the vertical migration of <sup>137</sup>Cs within soil, although additional sampling is needed to validate this observation. During summer 2021 we intend to travel to Japan as soon as the travel restriction is lifted to collect and analyze the remaining samples for this research. We will target both former agricultural areas as well as forested sites to investigate the influence of habitat and soil type. In addition, we will collect samples from recent (<1-2 weeks) and old (e.g., >3 months) rooting to study the effects of

weathering on the redistribution process. For all sampling sites, we will collect soil cores to determine the vertical distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in the surface and sub-surface soil layers. Radiocesium activity will be determined for all collected samples using an Auto-Gamma Counter at the Institute of Environmental Radioactivity.

Although we only have preliminary results to this point, these initial results suggest increases in wild boar populations have the potential to alter the distribution of contaminants within soil profiles. Upon completion of sampling in fall 2021 this study will produce the first results to date on the effects of disturbances from wild boar on changes to the distribution of  $^{137}\text{Cs}$ . Given the growing population of wild boar within the difficult to return zone, a clear understanding of the impacts of this species on the local environment is necessary to better inform appropriate management actions. Thus, the proposed research will produce unique insights that could be relatable to ongoing management of this species in areas impacted by the Fukushima Daiichi nuclear accident.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

One paper is currently being finalized, and will be submitted to a major international journal within the next 1-2 months.

In addition, the following paper was recently published where the PI and host researcher are co-authors.

Gerke, H.C., T.G. Hinton, T. Takase, D. Anderson, K. Nanba, and J.C. Beasley. 2020. Radiocesium concentrations and GPS-coupled dosimetry in Fukushima snakes. *Science of the Total Environment* 734:139389

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



【I-20-07】

## Effects of radionuclide exposure on the microbiome community within gastrointestinal tract of wild boar

Principal Researcher : Diana Lafferty

Co-researcher :

Host Researcher : Kenji Nanba

### 1. Report (about one page of A4 paper)

哺乳類に共生あるいは寄生して生活する微生物叢、マイクロバイオームの大部分は、宿主の消化管 (GIT) に存在する。これらは、腸内マイクロバイオーム [GMB] とよばれる。GMB は宿主の行動、生理、繁殖、健康、生存、そして最終的には進化に深く影響する無数の役割を担っている。野生動物の GMB を形成する多様な要因 (食性、系統、生息地の質、性別、年齢など) についての理解は進んでいるが、放し飼いにされている野生動物の GMB に対する低線量放射線の影響についてはあまり知られていない。

この研究では、低線量放射線被曝のレベルの違いが、イノシシ (*Sus scrofa*) の GMB 構成種や組成にどのように影響するかを明らかにすることを目的としている。その前提として、イノシシの GMB の基本的な情報も明らかにする必要がある。そこで、イノシシの腸内細菌叢における性別および腸管の位置による分類学および系統学的 GMB 組成変化を特徴づけ、定量化する。イノシシの捕獲場所の放射線量率および筋肉中の放射能濃度から生涯被曝線量を求める。そして、イノシシの 3 つの年齢階級における GMB コミュニティ組成を生涯被曝線量率と比較して特徴づける。2018 年 1-2 月に帰還困難区域内外で採集した合計 42 個体について分析を行った。主な結果の概要は以下の通り。

- ・福島帰還困難区域で捕獲されたイノシシは、帰還困難区域外で捕獲されたイノシシ ( $0.2 \pm 0.1 \mu\text{Gy/h}$ ) と比較して、捕獲時の放射線量率が大幅に高かった ( $5.1 \pm 6.6 \mu\text{Gy/h}$ )。
- ・GMB の組成と構造は、性別による違いはなかった。
- ・腸の上部 (胃、十二指腸、空腸、回腸) では多様性が小さく、下部 (盲腸、結腸、遠位結腸) では統計的に類似していた。
- ・標高と地理的距離に関連した GMB の変化がみられた。これは、標高と空間的な近さ (地理的距離が 40km 未満) の両方が、GMB 組成に大きく影響し、離れた場所に生息するイノシシ (距離が 40km 以上) は、全く異なる分類学的系統の GMB であることを示していた。

・1歳のイノシシのGMBは、慢性的な低線量放射線への曝露によって有意に異なるが、高齢のイノシシ（亜成体および成体）では線量による違いは見られず、免疫系が発達途上の若い動物は放射線の影響を受けやすいことが示唆された。

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

まだありません。

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-09】**

**Synthesis and characterization of nickel(II) and cobalt(III) complexes  
of aryl-substituted multi-azamacrocyclic chelator for application in  
radioactive waste decontamination**

Principal Researcher : Tapashi Ghosh Roy

Co-researcher : Zinnat Ara Begum

Host Researcher : Ismail Md. Mofizur Rahman

1. Report (about one page of A4 paper)

Different radioisotopes of nickel(II) and cobalt(III) are produced in the structural steels of nuclear reactor vessels and internal components from neutron activation of corresponding naturally occurring stable isotopes. The shape-persistent macrocycles can be used for the selective isolation of r-Ni from the waste matrix. However the field of macrocyclic chemistry is growing very rapidly because of its application and importance in the area of coordination and analytical chemistry. The present research plan aimed to evaluate the capability of chelators for the selective isolation of r-Ni or r-Co from the waste matrix. In this context, new aryl substituted multi-azamacrocyclic chelator and its Co(III) and Ni(II) complexes have been synthesized and characterized. The new macrocycle is found to act as very efficient chelator of Ni(II) and Co(III) during complex formation. The compounds have been characterized by spectroscopic methods as well as by magneto-chemical, and conductivity data. It is expected that, future studies on the efficiency of adsorption of the chelators on Ni(II) and Co(III) ions can play a vital role on the development of radiochemistry.

Keywords: Macrocyclic chelator; complexation; nickel; cobalt; radiometric studies.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Title: Syntheses, Characterization and Antimicrobial Studies of Ni(II), Cu(II), and Co(III) Complexes with an N-Pendent Azamacrocyclic Chelator

Authors: Lucky Dey, Saswata Rabi, Debashis Palit, Saroj K. S. Hazari, Zinnat A. Begum, Ismail M.M. Rahman, Tapashi G. Roy \*

Journal Name: Journal of molecular structure

Status: Comments of Reviewers have arrived just now from Editor (Answers on queries will be provided soon for taking further action on it)

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-10】

## Study of naturally occurred radioactivity in the soil and rocks of Chittagong Hill Tracts area of Bangladesh

Principal Researcher : Debashis Palit

Co-researcher : Shahadat Hossain

Host Researcher : Ismail Md. Mofizur Rahman

### 1. Report (about one page of A4 paper)

#### Introduction

Chittagong Hill Tracts area is a hilly area situated in between 21025' N to 23025' N latitude and 91054' E to 92050' E longitude in the southeastern part of Bangladesh. Weathering and erosion of both igneous and metamorphic rocks of this area transform rocks into soil and sand which bear natural radionuclides from the uranium and thorium series as well as potassium. Again, this area is has a border with Myanmar and India and is not very far from China. As because neighboring India and China have nuclear power, their activities also can increase the background gamma radiation level. But there is no study of measurement of the radioactivity of this area as a whole. So our aim is to study the background radiation level of the whole area.

#### Sample Collection

Due to current pandemic situation, the whole area was locked down, University is closed till today. So, we could not collect the requisite amount of sample, only nine samples were collected from Rangamati district. The samples were collected from the undisturbed area. It is then dried grinded, sieved and kept closed in a Marinelli beaker for 4 weeks. The radioactivity level of radioactive K, Th and Ra isotopes are measured by an HPGe detector.

#### Results and Discussion

The result of the natural radioactivity of the measured sample is given on Table 1

Table 1: Radioactivity level of soil samples of Chittagong Hill Tracts

Sl. No.	Sample location	K-40(Bq/Kg)	Th-232(Bq/Kg)
			Ra-226(Bq/Kg)
1	Rm-1		190 ± 19

98 ± 10.78		3 ± 0.36
2	Rm-2	115 ± 14.95
89 ± 8.9		5 ± 0.6
3	Rm-3	270 ± 45.9
109 ± 16.35		11 ± 1.43
4	Rm-4	235 ± 25.85
60 ± 7.2		10.1 ± 2.32
5	Rm-5	235 ± 32.9
50 ± 6.5		12.9 ± 2.45
6	Rm-6	320 ± 38.4
23 ± 2.99		6.7 ± 1.21
7	Rm-7	390 ± 46.8
34 ± 5.78		5 ± 0.85
8	Rm-8	340 ± 40.8
41 ± 4.51		10 ± 1.7
9	Rm-9	390 ± 46.8
40 ± 5.2		10 ± 1.7

From Table 1 it is clear that among the collected sample the highest value of  $^{40}\text{K}$  is  $390 \pm 46.8$  Bq/Kg,  $^{232}\text{Th}$   $109 \pm 16.35$  Bq/Kg and  $^{226}\text{Ra}$  is  $16.1 \pm 2.9$  Bq/Kg. All this values in the data are below world average<sup>1</sup> except some values for  $^{232}\text{Th}$  in some places. But with this small number of samples with a limited area we cannot conclude about the background radioactivity level of any area.

#### Conclusion

We could not complete our project because we were not able to collect the requisite amount of sample due to current pandemic situation. We hope to complete the rest of work this year if the situation permits.

#### Reference

1UNSCEAR, Sources and effects of ionizing radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Vol.II. 2000

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

We could not publish any paper from this ERAN funded project. But we have several papers on our other works.

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-11】**

**Low dose radiation effect on the brain development in racoon and  
large Japanese field mice from Fukushima area after Fukushima  
Daiichi Nuclear Power Plant accident.**

Principal Researcher : FENG RU TANG

Host Researcher : Tomisato Miura

1. Report (about one page of A4 paper)

Abstract:

The brain cellular and blood vessel changes including newly generated neurons in the subgranular zone of the dentate gyrus, astrocytes, microglia, oligodendrocyte progenitor cells and blood vessel in the Raccoon and large Japanese mice from Namie Town, Japan from contaminated (Namie, Fukushima) and reference (clean) areas were investigated using respective markers including doublecortin (DCX), Glial fibrillary acidic protein (GFAP), Ionized calcium binding adapter molecule 1 (IBA1), IB4, and platelet derived growth factor receptor beta (PDGFR1). More samples are still needed to make solid conclusions.

Methods:

The brains from Raccoon and large Japanese mice from Obori, Omaru, Namie, Kakura and Kiyohashi, Ishikari, Hirosaki, Japan were harvested and fixed with 4% paraformaldehyde and cut with 40 $\mu$ m, free-floating sections were immunostained with DCX, GFAP, IBA1, IB4, and PDGFR1

Results and conclusion:

Newly generated neurons in the subgranular zone of the dentate gyrus, astrocytes, microglia, oligodendrocyte progenitor cells and blood vessel in the Raccoon and large Japanese mice were well stained as indicated in Fig. 1.

As only 3 raccoons and 4 large Japanese mice were obtained from intermediate (0.65-1.81 $\mu$ Sv/h) or high (>3  $\mu$ Sv/h) dose rate regions, more animals are still needed for statistical analysis.



## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Nil

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-12】**

## **Evaluating radiocesium mobility from forest soils to soil ecosystems and soil fauna**

Principal Researcher : Mathew Swallow

Host Researcher : Naofimi Akata

### 1. Report (about one page of A4 paper)

This project was implemented to determine radiocesium mobility in forest soils affected by the FDNPP accident. The method being developed aims to mimic the movement of radiocesium in the soil water induced by the evaporative flux of plants. The method will also allow for the collection of mobile radiocesium to understand the colloidal fraction which facilitates the transport of radiocesium within the soil. Unfortunately, travel restrictions due to COVID-19 limited the project to development of methodology and beginning testing in Canada on Canadian forest soils. However, despite the delay caused by the pandemic significant progress has been made in the project's development.

To date, we have successfully developed a treatment cell and methodology to ensure delivery of water solely through suction caused by matric forces of the soil driven by evaporative suction in the wicking material. We have done a small pre-trial test using 100 gram samples of dry mineral soil from a local forest treated with 5 ml of 5 ppm cesium chloride solution. These samples were subjected to 3 different wet/dry cycles (1, 5 and 10 times) to test ageing of cesium within the soil and to elicit a change in cesium availability.

Results show that the ageing treatment appears to increase the release of colloidal organic matter accumulation in the wicking material, though unfortunately due to local equipment malfunctions the wicks themselves have not yet been analyzed for the presence of cesium. However, the higher accumulation of colloidal organic material within the wicks of aged soils suggests that any radiocesium bound within this fraction would be mobile and freely migrate towards the rhizosphere of active plants. After entering the rhizosphere, these organic colloids would be at risk of being decomposed leading to the potential for transfer of radiocesium into the soil foodweb and plant tissues.

The pre-trial has shown that the wicking methodology can capture mobile colloids yet there

are still many challenges needed to complete this work. For one, the wicking material in its current form only elicits a moderate soil suction of approximately -200 kPa to -300 kPa, which is well below the generally accepted suction threshold of -1.5 MPa for terrestrial plants. Modification of the method is currently underway to lower the suction potential of the wicking to levels more commonly seen in terrestrial plants. We are also developing the potential for the system to function as a technique for in situ remediation treatment of radiocesium affected soils. The development efforts will continue and hopefully the easing of travel restrictions to Japan will allow for Dr. Swallow to travel to Hirosaki and Rokkasho to work with team members on the project on soils affected by the FDNPP accident.

### Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

N/A

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-13】

## **Trend of radiocesium and relate radionuclides concentration in surface-water and ground-water after FDNPP accident**

Principal Researcher : Rawiwan Kritsanauwat  
Host Researcher : Hirofumi Tazoe · Naofumi Akata

### 1. Report (about one page of A4 paper)

It is important to monitor the radionuclide concentration in the aquatic environment such as river, groundwater, lake water in the situation of accident of nuclear facilities. In this study, we have developed a simple enrichment system for radioactive cesium (Cs-134, Cs-137) and radioactive strontium (Sr-89, Sr-90), which are important man-made radionuclides for environmental monitoring to avoid ingestion of contaminated water. In order to concentrate radionuclides at the same time, we constructed a two-stage concentration system in which consists of two chromatographic columns. The product KNiFC PAN Resin by Prussian blue was used as an adsorbent for radioactive cesium. This cesium adsorbent can collect cesium under both acidic and neutral pH conditions. A research group at Hirosaki University has established a method for radioactive cesium in river water using this resin (Hegedus et al., 2020). In order to quantify low-concentration radioactive cesium, it is necessary to focus on a small amount of resin that can be measured with a well-type germanium semiconductor detector. According to previous work, a column filled with 1 mL of KNiFC PAN resin was used. Radioactive cesium in 2 L of river water sample could be quantitatively collected by passing through a column at a flow rate of 2 mL/min by peristaltic pump. Since adsorption of Sr to KNiFC PAN resin is negligible, a cation exchange column (Bio-Rad AG1-X8, 100-200 mesh, 5 mL) was combined with KNiFC PAN resin packed column to concentrate Sr directly. The divalent cations containing Sr were quantitatively concentrated and could be eluted with 30 mL of 3M HNO<sub>3</sub>.

Regarding radioactive cesium, the resin was transferred to a measuring tube and measured with a well-type high-purity germanium semiconductor detector for 3 days. As a result, it was possible to quantify with minimum detectable activity concentration of 5 mBq/L. Regarding radiostrontium, although radiocesium has been removed, other artificial radionuclides and

natural radionuclides coexist even after cation exchange, so further chemical separation is required. When Sr-90 is directly separated by ICPMS or radiation measurement, it can also be separated using Sr resin. When quantifying with the progeny nuclide Y-90, after 2 weeks or more have passed since the cation exchange, Y-90 in radiation equilibrium with Sr-90 is chemically separated by DGA Resin and radiation measurement is performed (Tazoe et al., 2016).

#### Reference

1. Hegedus, M., Shiroma, Y., Iwaoka, K., Hosoda, M., Suzuki, T., Tamakuma, Y., Yamada, R., Tsujiguchi, T., Yamaguchi, M., Ogura, K., Tazoe, H., Akata, N., Kashiwakura, I., Tokonami, S. Cesium concentrations in various environmental media at Namie, Fukushima Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 323(1), 197-204 (2020).
2. Tazoe, H., H. Obata, T. Yamagata, Z. Karube, H. Nagai, M. Yamada: Determination of strontium-90 from direct separation of yttrium-90 by solid phase extraction using DGA Resin for seawater monitoring. Talanta, 152, 219-227 (2016).

#### Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-14】**

## **A Preliminary Study to Assess The Activity of Antioxidant Enzymes in Population Exposed to Very High Levels of Radon Concentration**

Principal Researcher : Dwi Ramadhani

Host Researcher : Tomisato Miura

### 1. Report (about one page of A4 paper)

The Mamuju regency in West Sulawesi, Indonesia, is considered to have a high dose rate due to the high level of natural uranium content in the soil (Syaeful et al. 2014). A comprehensive dose evaluation including both of internal and external exposures by Hosoda et al. (2021) revealed that the annual effective dose in Botteng village, Mamuju could reached 27 mSv based on the median value of the measurements. Recent investigations revealed that Tande-Tande sub-village in Mamuju has the highest radon concentration that could reached 1644 Bq/m<sup>3</sup>. As a radioactive decay product of radium, radon, which has a short half-life (3.82 days), is a colorless, odorless gas that can easily move through the soil into the air before decaying by emission (Autsavapromporn et al. 2018; Ćujić et al. 2020). Therefore, the long-term exposure to radon and its progeny is the major contributor to exposure in people who live in areas with high natural background radiation, such as Tande-Tande sub-village inhabitants.

Radon can emitted alpha particles that capable to induce reactive oxygen species and DNA damage of respiratory cells and increase the lung cancer risk. Thus, it can be assumed that the antioxidant level in Tande-Tande sub-village inhabitants should be lower compare to control samples due to the utilization of antioxidants that could scavenge the higher free radical concentrations. In this study we will evaluate the activities of antioxidant enzymes to find out whether the level of antioxidant enzymes in Tande-Tande sub-village inhabitants are higher compare to control subjects.

Methods

The MnSOD and GPx activities from 17 healthy adult subjects from Tande-Tande Sub-village, Mamuju and 17 healthy adult subjects from normal background radiation areas (NBRAs) were measured using specific kit by visible spectrometer.

#### Results

The mean of MnSOD and GPx activities in the Tande-Tande sub-village inhabitants ( $8.47 \pm 0.3611$ ,  $0.374 \pm 0.03508$ ) were not statistically different than that found in the Topoyo village inhabitants ( $8.341 \pm 0.4007$ ,  $0.3511 \pm 0.0323$ ;  $p=0.8133$ ,  $0.633$ ).

#### References

1. Syaeful H, Sukadana IG, Sumaryanto A. Radiometric Mapping for Naturally Occurring Radioactive Materials (NORM) Assessment in Mamuju, West Sulawesi. *Atom Indones.* 2014;40(1):33–9.
2. Hosoda M, Nugraha ED, Akata N, Yamada R, Tamakuma Y, Sasaki M, et al. A unique high natural background radiation area – Dose assessment and perspectives. *Sci Total Environ.* 2021;750(142346):1–11.
3. Autsavapromporn N, Klunklin P, Threeratana C, Tuntiwechapikul W, Hosoda M, Tokonami S. Short telomere length as a biomarker risk of lung cancer development induced by high radon levels: A pilot study. *Int J Environ Res Public Health.* 2018;15(10).
4. Čujić M, Janković Mandić L, Petrović J, Dragović R, Đorđević M, Đokić M, et al. Radon-222: environmental behavior and impact to (human and non-human) biota. *Int J Biometeorol.* 2020;

#### Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-15】**

## **Gross alpha and gross beta radioactivity concentration in environmental water**

Principal Researcher : Fei Chen

Host Researcher : Hirofumi Tazoe

### 1. Report (about one page of A4 paper)

To improve the precision and accuracy of gross radioactivity detection in water, and to improve the radiological health and environmental monitoring level of each laboratory, it is necessary to carry out method verification and quality control. The thick source method for gross alpha and the thin source method for gross beta analysis were used to analyze the actual sample. After multiple test, the precision of the detection was calculated. Through the spike recovery test and the comparison sample analysis of the national radiological health in 2019, the accuracy analysis of the method was performed.

In the precision experiment, the relative standard deviations of the gross alpha and gross beta result were 23% and 13%, respectively. The three spike recoveries were 103.1%, 103.5%, and 105.8%, respectively. The relative errors of gross alpha and gross beta compared with the reference values were 0.92% and 9.4%, respectively. All the result reflected the high accuracy of the method. The relative standard deviations, recoveries, and relative errors in the method validation and quality control were below the limits of the criterion.

In the future, proposed method will be applied to river water sample collected in Ukedo river, Fukushima Prefecture in 2012 and 2013. These samples are registered as sample archive catalogue in ERAN. Since radioactive nuclides such as Cs-134 and Cs-137 and elemental concentration have been determined in IREM, Hirosaki University. Cs-137 concentrations range from 100 Bq/L to 2000 Bq/L, which exceed level of natural radionuclides such as K-40 and Ra-226 and become ideal sample to validate proposed method.



## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

陈飞 , 张震, 王雪涛, 邵宪章, 李玉文 (2020) Quality control of gross  $\alpha$  and gross  $\beta$  analysis in water. 中华放射医学与防护杂志 Chin. J. Radiol. Med. Prot. 40(8) 65-67

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-16】**

## **Development of producing radioactive aerosol under a variety of environmental conditions for dose assessment**

Principal Researcher : Rungroj Sakulnaeramit

Host Researcher : Chutima Kranrod · Yuki Tamakuma

1. Report (about one page of A4 paper)

### **OBJECTIVE**

To develop a method for producing radioactive aerosols in 10 to 150 nm of radon progeny and estimate the lung effective dose.

### **RESEARCH SCOPE**

- Using NaCl, Glucose and KMnO<sub>4</sub> solutions by different concentrations to produce radioactive aerosols.
- Study the effect of temperature at 25 and 35 ° C and suitable relative humidity in calibration chamber on radioactive aerosols.
- Estimate the equivalent dose from inhalation of radon progeny with the Integrated Modules for Bioassay Analysis (IMBA).

### **EXPERIMENTAL**

At first, we use dryer in front of pump and generate pressure for Atomizer. The atomizer generates aerosols from water-soluble materials such as NaCl, Glucose and KMnO<sub>4</sub>, the product is sent to calibration chamber with radioactive. After that, the attached decay products will be measured by PAMS.

In this time, The results of the experiment have the results obtained from the use NaCl, Glucose and KMnO<sub>4</sub>. The next expectation is an experiment to control environmental conditions such as humidity and temperature to obtain complete results. And can summarize the results of the experiment completely.

## RESULT

The procedure for producing radioactive aerosols of radon progeny in the range that can accumulate in the alveoli. It can be used to estimate the effective dose that humans will be exposed to due to the radioactive aerosols of radon progeny. And it can be applied to measure and assess the equivalent dose, radiation of radon progeny in various environments.

## NOTE

Because of the COVID-19 epidemic situation Therefore it is a work limitation Causing the performance to not be as expected But the operation has made some progress. It is estimated from the results of the experiment that this research will be successful in meeting the goals.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Kranrod C, Chanyotha S, Tokonami S, Ishikawa T. A simple technique for measuring the activity size distribution of radon and thoron progeny aerosols. *J Environ Radioact.* 2021 Apr;229-230:106506. doi: 10.1016/j.jenvrad.2020.106506. Epub 2021 Jan 17. PMID: 33472114.

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-18】

## A study of Japanese beaches for Fukushima Dai-ichi derived radionuclides

Principal Researcher : Ken O. Buesseler

Co-researcher : Nuria Casacuberta · Seiya Nagao

Host Researcher : Hirofumi Tazoe

### 1. Report (about one page of A4 paper)

The Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plants (FDNPPs) accident in 2011 led to an unprecedented release of radionuclides into the environment. Particularly important are Sr-90 and Cs-137 due to their known health detriments and long half-lives ( $T \approx 30$  y) relative to ecological systems. These radionuclides can be combined with the longer-lived I-129 ( $T = 15.7$  My) to trace hydrologic, atmospheric, oceanic, and geochemical processes. This study seeks to evaluate Cs-137, Sr-90, and I-129 concentrations in seawater off the coast of Japan, reconcile the sources of contaminated waters, and assess the application of Cs-137/Sr-90, I-129/Cs-137, and I-129/Sr-90 as oceanic tracers. We present new data from October 2015 and November 2016 off the coast of Japan, with observed concentrations reaching up to  $198 \pm 4$  Bq/m<sup>3</sup> for Cs-137,  $9.1 \pm 0.7$  Bq/m<sup>3</sup> for Sr-90, and  $(114 \pm 2) \times 10^{-5}$  Bq-m<sup>3</sup> for I-129. The utilization of activity ratios suggests a variety of sources, including sporadic and independent releases of radiocontaminants. Though overall concentrations are decreasing, concentrations are still elevated compared to pre-accident levels. In addition, Japan's Environment Minister has suggested that stored water from the FDNPPs may be released into the environment and thus continued efforts to understand the fate and distribution of these radionuclides is warranted. This result has been published in Kenyon et al. EST (2020).

### Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-19】

## EVALUATION OF THE CONVERSION FACTOR OF RADON AND THORON PROGENY DETECTOR IN DWELLING USING TRACK ETCH DETECTORS

Principal Researcher : Chanis Pornnumpa

Co-researcher : Chanis Pornnumpa

Host Researcher : Chutima Kranrod • Yuki Tamakuma

### 1. Report (about one page of A4 paper)

In this study, radioactive aerosol generation system was developed to understanding the behavior of ambient aerosols for evaluating the conversion factor of Rn-Tn progeny by alpha-track detector. The conversion factor values obtained could be used to calculate Rn-Tn progeny concentrations in the dwellings for internal dose assessment. In order to develop a high-performance of radioactive aerosol generation system, 1,000 ppm NaCl solution was used for generating particle in the chamber. For uniformity of the particles, a fan was installed upper side of a tank lid. The particles were neutralized by an electrostatic eliminator that was installed inside. The temperature was set around 20-21C under controlling of an air-conditioner. The system was divided into two parts; first part was an aerosol particles generator. The particle was generated and controls the concentration by flow rates before sending into the chamber. The amount of particle would be measured using a scanning mobility particle sizer (SMPS). Second part (Radioactive gases generator), radioactive gas from generator was produced and injects into the mixing chamber. Both of them were mixed with the optimum ratio for producing radioactive aerosols before entering into the exposure chamber for radiation instrument calibration.

All results revealed that the aerosol particles generating system can maintain the particle concentration between  $1.7 \times 10^3$  particles per  $\text{cm}^3$  and  $3.3 \times 10^5$  particles per  $\text{cm}^3$ . The particles could be generated in the range between 60 and 80 nm for NaCl solution at concentration of 1,000 ppm. From this study, the condition with other flow rates should be carried out for observing the effect of flow rate to particle concentration for development of the calibration system and evaluation the conversion factor of Rn-Tn progeny by alpha-track detector in the future.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Japanese journal of health physics

Journal of physics conference series

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-20】**

## **Study on the migration law of radioactive aerosol**

Principal Researcher : Zhou shumín

Co-researcher : Chen Rui · Zhang Xiongjie

Host Researcher : Chutima Kranrod · Yuki Tamakuma

### 1. Report (about one page of A4 paper)

In order to study on the migration law of radioactive aerosol under PM<sub>2.5</sub> atmospheric pollution, the project established an experimental platform of PM<sub>2.5</sub> combined radon progeny aerosol, mixed different types of PM<sub>2.5</sub> aerosol with radon and its progeny.

Studied the formation mechanism and decay law of PM<sub>2.5</sub> combined radon progeny, the influence law of particle size, wind speed, humidity and other parameters on the equilibrium factor of PM<sub>2.5</sub> and radon progeny was obtained. The radon-progeny equilibrium factor F is  $0.56 \pm 0.14$  (28.04 %/77.51%, n = 120) and  $0.54 \pm 0.15$  (15.50 %/50.00%, n = 120). The F value conforms with the indoor standard value recommended by UNSCEAR. The growth rate of F increases with the PM<sub>2.5</sub> level. From moderate pollution to heavy pollution, the growth rate of F is significantly higher than the previous growth rate, but F remains within the reasonable range of 0.1–0.9. There is a positive correlation between the radon-progeny equilibrium factor F and the concentration of PM<sub>2.5</sub> ( $R^2 = 0.91805$ ), and these two parameters are closely related. The study of the radon-progeny equilibrium factor F is significant and can provide reference for environmental protection and radiation protection. The effects of different PM<sub>2.5</sub> aerosol concentrations on the counting of <sup>218</sup>Po and <sup>214</sup>Po were studied based on the solid particles as aerosol vectors of radon. The results show that the total number of <sup>218</sup>Po and <sup>214</sup>Po increases with the increase of the concentration of aerosol in PM<sub>2.5</sub>, which reaches the maximum when the PM<sub>2.5</sub> concentration is 309  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Keywords: radioactive aerosol, PM<sub>2.5</sub>, equilibrium factor, concentrations

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



**【I-20-21】**

**Analytical method of  $^{135}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in large volume of seawater by  
ICP-MS spectrometry**

Principal Researcher : Wu men

Host Researcher : Jian Zheng

1. Report (about one page of A4 paper)

$^{135}\text{Cs}$  is a promising geochemical tracer to study the seawater mixing and exchange. This project will establish an analytical method for Cs isotopes ( $^{135}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) in large volume of seawater : 1.The separation and purification techniques of Cs isotopes in the large volume of seawater will be achieved. 2.The measuring techniques using triple-quadrupole inductively coupled plasma – mass spectrometry also will to be developed. At present, the recoveries of ~95.5% were obtained in the series of experiments using 10ml AMP resin to concentrate 60L of seawater sample under the flow rate of 60-80ml/min. The AMP leaching experiment is in progress. Due to the COVID-19, the remaining part of the experiments and measurements have not been implemented in QST yet. In 2021, we plan to complete the remaining experiments in QST or in China.

Keywords:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ , seawater, analytical method, ICP-MS

Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

**【I-20-22】**

## **Studies on the distribution and migration characteristics of Np and Pu in typical karst environment**

Principal Researcher : Hai Wang

Co-researcher : Qianlin Li

Host Researcher : Jian Zheng

### 1. Report (about one page of A4 paper)

Groundwater in karst aquifers constitutes about 25% of drinking water sources globally. Soils on karst landscapes are typically thin, patchy and extremely fragile. The widespread existence of metal binding and transport by natural organic matter (NOM) in karst drip waters. The sediments, plants, water and other environmental sample were collection in karst region. The vertical distribution of  $^{137}\text{Cs}$  activity in soils and lake sediment from Hunan karst environment were investigated. The  $^{137}\text{Cs}$  activity was  $15.11 \pm 0.63$  mBq/g in surface soil and  $12.4 \pm 0.53$  mBq/g in lake sediment. The  $^{137}\text{Cs}$  activity ratios in undisturbed soils decreased from  $15.11 \pm 0.63$  mBq/g to  $0.74 \pm 0.14$  mBq/g with increasing depth from 1cm to 10cm. The  $^{137}\text{Cs}$  activity ratio in disturbed soils was a narrow range with increasing depth.

### Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-23】

## Tracing the sources of Pu and Hg in the deep-sea sediments using Pu and Hg isotopes

Principal Researcher : Wang Zheng

Co-researcher : Yuanming Zhang

Host Researcher : Jian Zheng

### 1. Report (about one page of A4 paper)

Radionuclides (e.g., Pu) and heavy metals (e.g., Hg) are important pollutants in marine environments. However, the sources and distribution of these contaminants in the Southern Hemisphere are rarely studied. In this project, we measured  $^{239+240}\text{Pu}$  activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios, as well as Hg concentration and isotope compositions in deep-sea sediments in the South Pacific for the first time. The purpose of this project is to understand the contributions of anthropogenic activities and natural processes to these two common contaminants in marine environments that are relatively remote from direct pollution. We found extremely low  $^{239+240}\text{Pu}$  inventories in the South Pacific sediments, suggesting relatively less fallout compared with that of North Pacific. The  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in the South Pacific sediments ( $0.097 \pm 0.018$ ) are well below the global fallout value ( $0.174 \pm 0.014$ ), suggesting that global fallout is unlikely the dominant source of Pu in the South Pacific. We suggest that French Nuclear Tests and/or the United Kingdom Nuclear Tests in Australia, which generated relatively low  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ , are the main sources of Pu. Using an isotopic mass balance model, we estimated that the contribution of French Nuclear Test ranges from ~10% to ~90%. The plausible pathways for Pu transportation were the South Pacific Gyre, based on the observation of latitudinal trends in both the  $^{239+240}\text{Pu}$  inventories and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios.

We also studied Hg isotopes in the sediment cores near the Antarctic sea, where local anthropogenic Hg sources are absent. The total Hg concentration (THg) and Hg isotope ratios together reveal different Hg sources in different time periods. Period I (50-20 ka BP) is marked by low sedimentation rate, low THg, strongly negative  $\delta^{202}\text{Hg}$  (as low as -2‰), and slightly positive  $\Delta^{199}\text{Hg}$  and  $\Delta^{200}\text{Hg}$ . The low sedimentation rate and low THg is likely

due to extensive ice cover at the Antarctic sea during Last Glacial Maximum (LGM). The isotope signals in period I are consistent with modern seawaters that primarily receive deposition of background atmospheric Hg. Thus Hg during period I was most likely deposited from the atmosphere at ice-free area, and then transported by ocean circulation to the Antarctic sea. Period II (20-10 ka BP) shows a dramatic increase of the deposition rate and a slight increase of THg compared to period I, suggesting enhanced terrestrial weathering after the LGM due to the retreat of glacial. The Hg isotope signals are also consistent with enhanced input of terrestrial Hg. Period III (10 ka BP to present) shows no significant changes in the sedimentation rate, but a dramatic increase of THg, suggesting that the increased THg was caused by enhanced external input.  $\delta^{202}\text{Hg}$  shows even more positive values compared to period II, and  $\Delta^{199}\text{Hg}$  and  $\Delta^{200}\text{Hg}$  both shift towards zero, which are consistent with volcanic or anthropogenic emissions. It is well known that there has been intensive volcanic activities surrounding the Antarctica since LGM 1. Thus we suggest that Hg in the last 10 ka was primarily contributed by volcanic or hydrothermal emissions near the Antarctica.

In the year of 2021 we will 1) continue to finish the analysis for Hg concentration and isotopes in the remaining sediment samples; 2) perform data analysis; 3) publish the results. We expect at least two publications based on these data.

1. Fraser, C. I., Terauds, A., Smellie, J., Convey, P. & Chown, S. L. Geothermal activity helps life survive glacial cycles. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 111, 5634–5639 (2014).

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-24】

## Method development for simultaneous analysis of $^{237}\text{Np}$ and Pu isotopes in the seawater by SF-ICP-MS

Principal Researcher : Shaoming Pan

Co-researcher : Shuai Zhang

Host Researcher : Jian Zheng

### 1. Report (about one page of A4 paper)

Plutonium in seawater is a well-known tracer in biogeochemical processes with its particle-reactive properties. Recent studies evidenced that another transuranic isotope,  $^{237}\text{Np}$  ( $t_{1/2}=2.14 \times 10^6$  y) has a similar behavior of  $^{137}\text{Cs}$ , thus shows great potential to act as a tracer for water mass circulation for decadal and longer time scales. However, information on  $^{237}\text{Np}$  presented in seawater, especially in open ocean is very scarce, the distribution and inventory of  $^{237}\text{Np}$  in the ocean remains largely unknown due to its low concentration in seawater and great analytical challenge for its measurement. Therefore, a method for simultaneous analysis of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes in the seawater by SF-ICP-MS was developed. The results show that almost 100%  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes were concentrated from small volume seawater (15L) using the  $\text{Fe}(\text{OH})_2$  co-precipitation, the average chemical fractionation was  $0.98 \pm 0.03$  ( $n=9, 1\sigma$ ) for  $^{237}\text{Np}$  and  $^{242}\text{Pu}$  during the entire analytical method, which proved that  $^{242}\text{Pu}$  can be used as a non-isotopic tracer for monitoring the recovery of  $^{237}\text{Np}$  in this method, and the chemical recovery of  $^{242}\text{Pu}$  yield tracer ranged 72%-76%. Moreover, a high U decontamination of  $\sim 10^7$  was achieved, which made the U interference negligible for the determination of ultra-trace level  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes in seawater. To demonstrate the accuracy of our method,  $^{237}\text{Np}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  concentrations in IAEA-443 standard reference materials was determined. The results showed good consistency with the certificated values and the reported values.

Keywords:  $^{237}\text{Np}$ , Pu isotopes, seawater, ICP-MS, IAEA-443

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

No

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

【I-20-25】

**Source identification and environmental impact assessment of  
actinides around Fukushima: Development of ultra-sensitive methods  
in environmental samples**

Principal Researcher : Xiongxin Dai

Co-researcher : Shan Xing · Maoyi Luo

Host Researcher : Jian Zheng

1. Report (about one page of A4 paper)

Isotopic signatures of actinides have been used as a powerful tool to identify the source-term of anthropogenic radionuclides and to evaluate their radio-contamination contributions and environmental impact. Due to extremely low level of actinides present in complicated environmental sample matrices, ultra-sensitive radioanalytical techniques would be very much needed for analysis of actinides in environmental samples. Mass spectrometric measurements, particularly accelerator mass spectrometry (AMS) and inductively coupled mass spectrometry (ICP-MS) technologies, often provide superior analytical sensitivity for long- and intermediate-lived actinide nuclides in environmental samples. Based on ICP-MS and AMS, numerous methods have been developed and applied for measurements of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$  in soil and sediment samples. However, the measurement data on  $^{237}\text{Np}$  and  $^{241}\text{Pu}$  in soil and sediment samples are still very scarce largely due to the lack of sufficiently sensitive and reliable methods for these two radionuclides at the environmental levels. Therefore, a radiochemical separation method was developed for simultaneous measurement of plutonium isotopes ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$ ) and  $^{237}\text{Np}$  in soil and sediment samples by AMS and triple quadrupole ICP-MS (ICP-QQQ).

In this method, after the addition of the  $^{242}\text{Pu}$  tracer, 5-10 g of soil/sediment sample is first fused with lithium metaborate and the fusion button is completely dissolved in concentrated acids. The digested solution is then processed through 3 precipitation steps, including NaOH precipitation, YF<sub>3</sub> and HTiO (hydrous titanium oxide) co-precipitation, to remove majority of the sample matrices. After dissolution of Pu and Np in the HNO<sub>3</sub>, the sample is loaded

onto a solid-extraction (TisKem TK200 resin) column to simultaneously separate Pu and Np from Th and U. The Pu and Np are then eluted together off the resin, and finally measured with ICP-QQQ. The validation results of the spike samples showed no observable differentiation between Pu and Np through the entire procedure (with the average Np/Pu ratio of  $0.972 \pm 0.041$ ). For 5 samples spiked with known amounts of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes, good agreements between the expected and measured values by ICP-QQQ have been achieved with satisfactory chemical recoveries of  $>70\%$ , confirming the validity of the method. Due to the major delay of the installation of our new AMS (caused by the pandemic issue), the AMS validation tests are yet to be performed.

## Published Papers

Papers published by the research group between April 2020 and March 2021 (papers in which ERAN funding is stated in the acknowledgements, or the principal investigator and host researcher are co-authors. Accepted papers can be included).

Keywords: Pu isotopes,  $^{237}\text{Np}$ , soil, sediment, triple quadrupole ICP-MS, accelerator mass spectrometry

Please report any publications from the ERAN collaboration through the following form:

<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



放射能環境動態・影響評価  
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

2020 年度 年次報告書

【拠点間共同研究】

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者
E-20-01	恩田 裕一	CRiED	斜面における放射性物質移行プロセス	脇山 義史
E-20-02	古川 純	CRiED	コシアブラにおける放射性セシウムの吸収特性に関する研究	玉置 雅紀 水野 隆文
E-20-03	加藤 弘亮	CRiED	渓流水中の溶存態セシウム137濃度の形成機構 - 土壌水及び堆積有機物からの溶脱の影響 -	新里 忠史
E-20-04	加藤 弘亮	CRiED	侵食土砂の放射性セシウム濃度形成機構の解明 - 近接リモートセンシングによる土壌侵食プロセスの推定 -	脇山 義史
E-20-05	加藤 弘亮	CRiED	Influence of canopy interception processes on formation of radiocesium concentrations in throughfall and stemflow	Vasyl Yoschenko
E-20-06	坂口 綾	CRiED	極微量アクチノイド測定法開発とその応用	Zheng Jian
E-20-07	山崎 信哉	CRiED	電極反応におけるヨウ素の同位体分別の検討	平尾 茂一
E-20-08	高田 兵衛	IER	河川から海洋への放射性セシウムの寄与と挙動の解析	青山 道夫
E-20-09	脇山 義史	IER	出水時における河川水のI-129濃度の時系列変化	笹 公和 松村 万寿美 松中 哲也 平尾 茂一
E-20-10	細田 正洋	IREM	大気中放射性核種濃度の連続モニタリング	平尾 茂一 玉熊 佑紀 床次 眞司 赤田 尚文
E-20-11	三浦 富智	IREM	モデル水域を活用した淡水魚への放射性物質の移行経路の解明	中西 貴宏 佐久間 一幸
E-20-12	赤田 尚史	IREM	有機結合型トリチウムの前処理手法と濃度測定の改良	藤原 健壯 平尾 茂一 御園生 敏治
E-20-13	田副 博文	IREM	ICP-MSによるSr-90分析の標準規格化のための機種性能調査	高貝 慶隆

受付番号	申請者氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者
E-20-14	石井 弓美子	NIES	太田川上流における淡水生態系への放射性セシウム移行特性評価	和田 敏裕 舟木 優斗
E-20-15	石井 弓美子	NIES	飼育実験による昆虫類と淡水魚への放射性セシウム移行評価	和田 敏弘 舟木 優斗 JO Jaeick

## 斜面における放射性物質移行プロセス

研究代表者：恩田 裕一

共同研究者：脇山 義史

### 1. 研究成果報告

セシウム 137 は土壌や土砂の粒子に強く吸着されるため、降雨にともなう侵食によって土砂とともに河川水系に流入し、主に懸濁態として移行することが知られている。したがって、河川水系を介した放射性セシウムの再移動を予測するためには斜面から生産される土砂および放射性セシウムの定量的評価が必要である。

我々は 2011 年 6 月より、様々な土地利用のプロット調査による土壌侵食量とセシウム流出量を調査を行った。調査は 2020 年 11 月に終了した。そこで、過去のデータのとりまとめを行うとともに、移動プロセス、特に凍結融解のとりまとめを行った。

### 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

1. Igarashi, Y., Onda, Y., Wakiyama, Y., Yoshimura, K., Kato, H., Kozuka, S., Manome, R., Impacts of freeze-thaw processes and subsequent runoff on <sup>137</sup>Cs washoff from bare land in Fukushima, Science of The Total Environment, Vol 769, 144706 (2021) 10.1016/j.scitotenv.2020.144706

2. Onda, Y., Taniguchi, K., Yoshimura, K., Kato, H., Takahashi, J., Wakiyama, Y., Coppin, F., Smith, H. Radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in terrestrial systems, Nature Reviews Earth & Environment, 1, 644–660 (2020) 10.1038/s43017-020-0099-x

3. IAEA (2020) Environmental Transfer of Radionuclides in Japan following the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. IAEA TECDOC 1927, <https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TE-1927web.pdf>

4. Wakiyama, Y., Onda, Y., Yoshimura, K., Igarashi, Y., Kato, H. (2019) Land use types control solid wash-off rate and entrainment coefficient of Fukushima-derived  $^{137}\text{Cs}$ , and their time dependence, Journal of Environmental Radioactivity, Vol. 210, DOI: 10.1016/j.jenvrad.2019.105990
5. Yoshimura, K., Onda, Y. and Kato, H. (2015) Evaluation of radiocaesium wash-off by soil erosion from various land uses using USLE plots. Journal of Environmental Radioactivity, 139, 362-369. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2014.07.019

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## コシアブラにおける放射性セシウムの吸収特性 に関する研究

研究代表者：古川 純

共同研究者：玉置 雅紀・水野 隆文

### 1. 研究成果報告

#### <背景と目的>

多年生の山菜には放射性セシウムを多量に吸収する種が存在しており、特にウコギ科の山菜であるコシアブラは高い吸収能を示すことが報告されている。この吸収能について、具体的な機構はいまだ明らかではないことから、現地調査による野生個体のサンプリングと、実験室における培養系を組み合わせた解析を行う。今期は現地サンプリングにおいてコシアブラの根圏形成についての特徴に着目し、また培養系では、コシアブラを種子段階あるいは組織培養から無菌的に栽培する実験系を確立することを目的とした。

#### <材料と方法>

現地サンプリングは福島県飯舘村佐須地区で実施し、コシアブラの周囲 1 m 以内の地点で 50 cm の深さまで土壌を採取し、0-5、5-10、10-20、20-30、30-50 cm に分けて根と土壌を篩により分別した。同時にコシアブラの葉も採取し、 $^{137}\text{Cs}$  濃度の測定用サンプルとした。層ごとに根と土壌の新鮮重量を測定することで土壌中の根の存在割合を重量ベースで算出し、コシアブラ葉中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度との相関を求めた。

培養系の確立については西日本各地で採取されたコシアブラの種を園芸培土に播種し、人工気象器にて発芽を誘導した。また筑波大学内で栽培しているコシアブラから展開直前の休眠芽を採取し、カルス誘導培地にて培養を行った。

#### <結果と考察>

現地サンプリングの結果からは、表層からの深さ 0-5 cm において最も根の存在割合が高く、約 4% に達することが示された。より深い土壌になると徐々に根の割合は減少し、最も深い 30-50 cm では 1% 以下であった。コシアブラ葉中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度との相関では、深さ 5-10 cm における根の存在割合が  $^{137}\text{Cs}$  濃度と弱い相関を示し、セシウムが多く存在する浅い土壌からの養分吸収が  $^{137}\text{Cs}$  蓄積の一因となり得ることを示唆する結果が得られた。今後はサンプリングされた根がコシアブラのものであるかを明らかにするため、植物種の同

定が可能な遺伝子領域を解読し、当該深度においてコシアブラの根が優先するのかについて検証を行う予定である。

また培養系については種子発芽、組織培養共に良好な結果が得られなかった。特にカルス誘導培地での培養では定法通りの無菌化処理では植物体に由来する微生物の除去が困難であり、栽培系の確立に向けた更なる手法の検討が必要である。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 渓流水中の溶存態セシウム 137 濃度の形成機構

### － 土壌水及び堆積有機物からの溶脱の影響－

研究代表者：加藤 弘亮

共同研究者：新里 忠史

#### 1. 研究成果報告

##### 1. はじめに

福島原発事故により陸域環境に沈着した放射性セシウムのうち、およそ 70%が森林域に蓄積されている。森林は河川流域の上流域に位置しており、水や土砂の流出を通じて長期的に水系や河川下流域への放射性セシウムの供給源となることが懸念されている。特に溶存態として流出する放射性セシウムは生態系に取り込まれやすいと考えられるため、河川水中の溶存態放射性セシウム濃度が Kd 吸脱着モデルにより推定されているが、季節変動や出水時の濃度変動を再現できていない状況にある。そのため森林から河川水への溶存態の放射性セシウムの移行メカニズムの解明が不可欠であり、特に源頭部流域での地下水や土壌水の水流出と、堆積有機物からの溶出の影響などを観測して総合的に解析することが必要である。

そこで本研究では、福島原発事故により高濃度の放射性セシウムの沈着を受けた森林流域を対象として、表流水に含まれる放射性セシウム濃度を現地観測により明らかにするとともに、濃度の変動を引き起こすメカニズムに着目して研究を実施した。

##### 2. 研究地域と調査方法

調査対象地域は、福島県浪江町の森林流域を選定した。福島原発事故にともなうセシウム 137 の初期沈着量はおよそ 4700 kBq/m<sup>2</sup> である。流域の主な植生はスギ及び落葉広葉樹(クリ・コナラ)で、試験流域の面積は 0.008km<sup>2</sup> である。試験流域の谷底部に位置する湧水点(A-1、A-2 地点)及びその約 25m 下流の地点(A-3 地点)に量水堰を設置して流量を観測するとともに、1ヶ月に1回の頻度で湧水と表流水を採取した。また、A-3 地点には浮遊砂サンプラーと粗大有機物ネットを設置した。さらに、流域斜面にゼロテンションライシメータを設置して、リター層とリター・土層を通過した土壌浸透水をそれぞれ採取した。採取した水サンプルは、0.45 μm のメンブレンフィルターを使って濾過を行い、通過水に含まれる放射性セシウムを溶存態とした。なお、現地観測は 2020 年の 5 月から 6 月に実施した。



### 3. 結果とまとめ

本研究の調査結果から、湧水及び表流水からおよそ 0.1~0.3 Bq/L のセシウム 137 が検出された。全観測期間の傾向として、表流水の方が湧水よりもやや高いセシウム 137 濃度を示した。土壤浸透水の溶存態セシウム 137 濃度はおよそ 1~10 Bq/L であり、湧水・表流水よりも 1~2 オーダー高い濃度を示した。

平水時の湧水及び表流水の溶存態セシウム 137 濃度は季節や調査時期によって変動を示した。湧水中の溶存態セシウム 137 濃度は流量の増加とともに低下する傾向が認められたが、表流水については気温及び水温の上昇とともに溶存態セシウム 137 濃度が増加する傾向を示した。一方、出水時においては、地下水位の上昇に対応して表流水の溶存態セシウム 137 濃度が上昇することが確認された。出水により地下水の上昇が発生した時点と、出水前の地下水位が低い時点について、河道近傍の斜面土層にピエゾメータを設置して飽和帯の地下水ポテンシャルを計測した。その結果、出水前では斜面土層中の地下水は深部に向かう流動が確認されたが、出水時の地下水位の上昇とともに、土層中の地下水が河道に向かって流動していることがわかった。

以上のことから、平水時においては、湧水では地下水流出による希釈の影響や、温度条件の変動による土層や堆積有機物層から表流水への溶出フラックスの変化により溶存態セシウム 137 濃度が増加することを示唆するデータが得られた。一方、出水時においては、斜面土層中での飽和帯の範囲や流動が変化していることを示す観測データが得られており、土層や堆積有機物からの溶出フラックスだけでなく、水の流出経路の変化も詳細に観測する必要があることが明らかになった。今後は、斜面土層中での地下水の流動の観測を継続するとともに、地下水・土壌水の溶存態セシウム 137 濃度の測定を行う。また、堆積有機物から表流水への溶出実験により、斜面土層からの地下水/土壌水の流入と、河床堆積有機物からの溶出の影響を分離して評価する。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 侵食土砂の放射性セシウム濃度形成機構の解明

### — 近接リモートセンシングによる土壌侵食プロセスの推定 —

研究代表者：加藤 弘亮

共同研究者：脇山 義史

#### 1. 研究成果報告

##### 1. はじめに

福島第一原子力発電所事故により陸域に沈着した放射性セシウムは、主に土壌侵食により発生した土砂とともに環境中を移動し、水系を通じて最終的に海洋へと流出する。土壌侵食にともなう放射性セシウム流出を長期的に予測するためには、土砂の放射性セシウム濃度の時系列変化と形成機構を解明することが必要である。本研究では、土壌侵食の現地観測と、近接リモートセンシングを用いて、侵食観測区画内の土壌侵食プロセスを推定することにより、流出土砂の放射性セシウム濃度の形成機構を明らかにすることを目的として実施した。

##### 2. 調査方法

調査対象地域は、福島県伊達市及び川俣町に位置する除染・未除染の耕作地である。各調査地点に USLE 標準プロット（長さ 22m×幅 5m；以降、侵食プロットと呼ぶ）を設置して、侵食プロット下端から流出する表面流量及び土砂量を観測した。なお観測期間は 2020 年の 7 月から 10 月である。

本研究では、非接触で ID 情報を読み取ることができる RFID タグを用いて、土壌粒子を模した人工土砂粒子を作成した。RFID タグは幅が約 2 mm 及び約 1 mm の 2 種類を調達し、セメントに真鍮粉を混ぜて土壌に比重を合わせたコーティング剤を使って粒径が異なる人工土砂粒子を作成した。人工土砂粒子の粒径は前者が約 5 mm で後者が約 2 mm である。侵食プロット内にそれぞれ 50 個の RFID タグを設置し、降雨イベントの前後で位置の変化を測定した。RFID タグの位置座標は、UAV-SfM 測量により得られたオルソ画像を元に算出した。また、UAV-SfM 測量から得られた 3 次元ポイントクラウドデータを元に地表面の微少起伏をラスターデータ化し、DEM (Digital Elevation Model) を出力した。DEM データを元に、観測期間中の侵食区画内での微地形の変化と、地表流の流路及び流水の掃流力の推定を行った。

### 3. 結果とまとめ

本研究の観測期間中に、4回の降雨イベントを観測した。観測結果から、侵食区画からの土砂流出量が多い高イベントと少ない降雨イベントでは、前者の方が地表流の流路網の密度が高く、それにとまって RFID タグの移動距離が長いことがわかった。粒径が異なる RFID タグの比較においては、粒径が小さい RFID タグの方が長距離移動したタグの数が多く観測された。RFID タグの粒径と移動距離の情報をもとに、インターリル域での土砂移動距離と地表流の掃流力エネルギーの関係式を示した既存モデルから、RFID 設置地点の地表流の掃流力エネルギーを算出した。その結果、粒径が異なる二つの RFID タグについて推定した掃流力エネルギーが高い相関を示したことから、侵食プロットにおいては地表流による運搬が土砂粒子の移動の主要因となっており、また RFID タグの移動距離から地表流の掃流力エネルギーを逆算して推定できる可能性を示した。

以上の結果から、土砂流出量が多いイベントでは、地表流の流路網が発達することにより、大小の RFID タグのいずれにおいても侵食区画内での輸送距離が長くなり、斜面下端から流出する土砂量を増加させたことが示唆された。今後の研究の展開として、福島事故由来の放射性セシウムに加えて、鉛 210、ベリリウム 7 などの天然降下放射性核種を併用して、侵食深度を加えたトレーシング研究への発展が期待される。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

# Influence of canopy interception processes on formation of radiocesium concentrations in throughfall and stemflow

研究代表者：加藤 弘亮

共同研究者：Vasyl Yoschenko

## 1. 研究成果報告

### 1. はじめに

森林に沈着した放射性 Cs は、樹冠に捕捉され雨水や落葉により林床に移行する。森林内での移行・循環の理解のためには、樹冠遮断を起点とした林床への物質輸送を解明する必要がある。そこで本研究では、樹冠通過雨による樹冠-林床への放射性 Cs 輸送メカニズムに着目して研究を行った。

### 2. 研究地域と調査方法

調査対象地域は、福島県浪江町のスギ林を選定した。福島原発事故にともなうセシウム 137 の初期沈着量はおよそ 4700 kBq/m<sup>2</sup> である。調査対象林分内に実験区画を選定し、区画内に 12 個の雨水サンプラーを設置し、月 1 回程度の頻度でサンプリングを行った。現地観測は 2020 年 5 月から 10 月に実施した。各雨水サンプラーの直上の樹冠被覆状況を全天球写真、地上 3D レーザースキャナ及び UAV-SfM 手法による測量データを元に推定し、各地点の樹冠密度パラメータと、樹冠通過雨量、<sup>137</sup>Cs 濃度・フラックス関係解析を行った。

### 3. 結果とまとめ

本研究の調査結果から、樹冠通過雨によるセシウム 137 の林床への移行フラックスは地点によってばらつきが大きいことが明らかになった。樹冠密度が大きい地点では、樹冠通過雨量が少なくなる傾向を示したが、雨水に含まれるセシウム 137 濃度は高くなる傾向が認められた。結果的に、樹冠密度が大きい地点ほど樹冠通過雨による林床へのセシウム 137 フラックスが多くなることが確認された。

樹冠通過雨によるセシウム 137 の移行フラックスは、雨量の増加とともに増大する傾向が確認された。樹冠通過雨中のセシウム 137 はおよそ 6 割が溶存態として存在していたが、イベント雨量の増加とともに溶存態の割合が増加した。セシウム 137 の総移行量に対する溶存態の割合が雨量とともに増加する関係が認められたが、特に樹冠密度が高い地点においては両者の関係式の傾きが大きくなる傾向を示したため、樹冠密度が高い地点ほど樹体

から雨水へ溶出するセシウム 137 の容量が多い可能性が示唆された。

以上のことから、本研究により樹冠通過雨によるセシウム 137 の移行フラックスは樹冠密度により制御されることを示すデータが得られた。今後は、定常的に降下する天然放射性核種をトレーサとして、樹冠密度が大気降下物の樹冠遮断（捕捉効果）に及ぼす影響を含めた総合解析を行う予定である。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 極微量アクチノイド測定法開発とその応用

研究代表者：坂口 綾

共同研究者：Zheng Jian

### 1. 研究成果報告

【序論】スーパーカミオカンデガドリニウム (SK-Gd) 実験では、SK 検出器内の超純水に数%の硫酸ガドリニウムを溶解することで中性子同時計測を可能にし、世界初の超新星背景ニュートリノの観測を目指している。この検出器ではその特性上、放射性不純物によるバックグラウンドが極めて低い測定環境が要求される。プロトアクチニウム-231(231Pa,  $T_{1/2} = 3.3$  万年)は、硫酸ガドリニウム中に含まれる可能性がある放射性核種の一つである。しかし、その詳細な化学的挙動が不明な事から、試薬精製過程における分離法が確立されていない。さらに、231Pa は高純度の  $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$  中に極微量に存在するため、放射線測定や質量分析でも定量が困難である。そこで本研究では、最終的に SK-Gd に使用される  $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$  中の 231Pa を質量分析により定量することを目的とし、ICP-MS の高感度化および樹脂(TK400)を用いた Pa 化学分離法の確立を行った。

【実験】<ICP-MS 高感度化>プラズマにより生成したイオンが効率よく分析部へ導入されることを目指し、差動排気部に位置するスキマーコーンやレンズを、低マトリクス試料導入用の形状へ変更し、さらに特注でオリフィス径を 0.4 mm から 0.5 mm に拡大したスキマーコーンの使用を検討した。また、測定のための装置設定最適化 (チューニング) に用いる元素や方法を検討することで、231Pa 測定に最適なチューニング条件を決定した。この時、質量数やイオン化エネルギーが 231Pa に最も近い 232Th の強度を参考にした。<化学分離法確立>高感度化後の ICP-MS で SK-Gd 要求値量の 231Pa を測定するため、TK400 により飽和 Gd 溶液から効率よく Pa を濃縮精製する方法を検討した。測定が容易な 233Pa を添加した飽和 Gd 溶液(濃度 1.5 wt%, 9 M 塩酸系)1 L を、樹脂 5 ml に 100 ml ずつ逐次的に通し、233Pa の吸着率から実際の吸着条件を決定した。最終的に、20 ml の 1 M 塩酸で 233Pa を樹脂から溶離し、その回収率を求めた。

【結果】<ICP-MS 高感度化>スキマーコーンとレンズ形状の変更、さらに高質量数の元素でのチューニング (Normal モード) により、 $^{232}\text{Th}$  の強度は一般的な設定と比較して約 3 倍増加した。これにより定量下限は 231 ppq から 77 ppq に低減され、機器の高感度化を実現した。また、SK-Gd での要求値量の  $^{231}\text{Pa}$  を測定するために約 500 mL の飽和 Gd 溶液を化学分離する必要があると見積もった。<化学分離法確立>樹脂 5 ml に対する  $^{233}\text{Pa}$  の吸着実験では、 $^{233}\text{Pa}$  を添加した飽和 Gd 溶液の通液量が 700 ml を超えた時点から吸着率の低下が確認されたが、目標とする 500 ml の通液では 100% の吸着率が確認された (右図)。 $^{233}\text{Pa}$  を添加した飽和 Gd 溶液 500 ml を樹脂 5 ml に通液する実験を繰り返した結果、 $99.1 \pm 1.9\%$  と高い吸着率が再現性よく得られた ( $n=3$ )。回収率は  $98.1 \pm 3.6\%$  と高く、目的核種である Pa の濃縮を実現した。

今後は SK-Gd で実際に用いられている  $\text{Gd}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$  に本手法を適用し、 $^{231}\text{Pa}$  を定量することでバックグラウンドレベルを見積もる予定である。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文 (謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

1. Valeriy Stepanenko, Andrey Kaprin, Sergey Ivanov, Peter Shegay, Kassym Zhumadilov, Aleksey Petukhov, Timofey Kolyzhenkov, Viktoria Bogacheva, Elena Zharova, Elena Iaskova, Nailya Chaizhunosova, Dariya Shabdarbayeva, Gaukhar Amantayeva, Arailym Baurzhan, Bakhyt Ruslanova, Zhaslan Abishev, M a dina Apbassova, Ynkar Kairkhanova, Darkhan Uzbekov, Zaituna Khismetova, Yersin Zhunussov, Nariaki Fujimoto, Hitoshi Sato, Kazuko Shichijo, Masahiro Nakashima, Aya Sakaguchi, Shin Toyoda, Noriyuki Kawano, Megu Ohtaki, Keiko Otani, Satoru Endo, Masayoshi Yamamoto, Masaharu Hoshi, Internal doses in experimental mice and rats following exposure to neutron-activated  $^{56}\text{MnO}_2$  powder: results of an international, multicenter study, Radiation and Environmental Biophysics, accepted, in press.
2. Kimikazu Sasa, Maki Honda, Seiji Hosoya, Tsutomu Takahashi, Kenta Takano, Yuta Ochiai, Aya Sakaguchi, Saori Kurita, Yukihiko Satou, Keisuke Sueki, A sensitive method for Sr-90 analysis by accelerator mass spectrometry Journal of Nuclear Science and Technology, 1-8.
3. H Miura, Y Kurihara, M Yamamoto, A Sakaguchi, N Yamaguchi, Oki Sekizawa, Kiyofumi Nitta, Shogo Higaki, Daisuke Tsumune, Takaaki Itai, Yoshio Takahashi Characterization of two types of cesium-bearing microparticles emitted from the Fukushima accident via multiple synchrotron radiation analyses Scientific reports 10 (1), 1-9.
4. AG Zhumalina, EK Sambayev, A Sakaguchi, S Endo, K Tanaka, T Kajimoto, N

Kawano, TB Suleimenov, K Sh Zhumadilov, M Hoshi, Comparison of aluminum and manganum concentration in Akmola region, Kazakhstan, Eurasian Journal of Physics and Functional Materials 4 (1), 29-37

5. Y. Hayakawa, A. Yokoyama, A. Sakaguchi, K. Teranishi, R. Morita, N. Matsumura, A. Nakajima, D. Mori, Y. Komori, T. Yokokita, Y. Wang, H. Haba, Production of Np-236 in the  $^{232}\text{Th} + ^7\text{Li}$  reaction for standard material in accelerator mass spectrometry, RIKEN accelerator progree report 2019, 2020 , 179-179

6. L. G. Cao, J. Zheng, Z. C. Zhou, W. T. Bu, Z. T. Wang, W. Zheng, M. Yamada (2021): Distribution and behavior of plutonium isotopes in the Western Pacific marginal Seas. Catena, 198, 105023.

DOI: 10.1016/j.catena.2020.105023

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## 電極反応におけるヨウ素の同位体分別の検討

研究代表者：山崎 信哉

共同研究者：平尾 茂一

### 1. 研究成果報告

#### 【序論】

再処理施設や原発事故などにより環境中に放出される放射性ヨウ素の研究では定量が主に行われてきたが、化学状態別の定量は行われていないことが多い。ヨウ素は環境試料中で様々な化学形態を取ることが考えられ、事故初期の動態や長期的な移行挙動を把握する上で化学形態の変化などを調べることは重要である。放射性ヨウ素 (I-129) は長半減期核種であるため、加速器質量分析を用いて測定が行われる。電気化学的手法を構築する事で、化学種別に濃縮することができるため、放射性ヨウ素の存在状態の解明に繋がる事が期待される。そこで本研究では電気化学的手法を用いてヨウ化物イオンの選択的濃集法の開発を行った。さらに、環境中の極微量の放射性ヨウ素を分析する上で、電極反応時に放射性ヨウ素と安定ヨウ素が同位体比を保ったまま電極に濃縮されるかは分かっていない。このため、同位体比分別を調べるために、放射性ヨウ素 (I-125) の測定系の構築を行った。

#### 【実験】

電気化学測定は銀ディスク電極 ( $\phi$  3mm)、白金線、銀一塩化銀電極 (+0.197 V vs SHE) をそれぞれ作用電極、対極、参照電極として用いた。装置はポテンシオメーターとファンクションジェネレーター一体型 (EC-stat 101、EC フロンティア) を用いた。測定は+0.15V で定電位電解を行った後、リニアスイープボルタンメトリー (LSSV) により還元電流を測定した。定電位電解 (CPE) は 5-60 分で時間を変えて行い、電解中はアルゴンガスを吹き込み妨害となる溶存酸素を除去した。

ヨウ素 I-125 を測定するために井戸型 NaI シンチレーターを構築した。この装置を用いて I-125 標準液 (日本アイソトープ協会、NEZ033H) を希釈して測定し、検出効率を決定した。溶液は 15 mL の遠沈管に入れて測定した。

**【結果】**

安定ヨウ素 100 nM (12.7 ppb) 溶液について、5 分間 CPE を行った結果、LSSV 時に -0.15V にピーク電流が見られた。さらに 10 nM (1.27 ppb) で同条件で測定したところピークが見られなかった。CPE の時間を長くした結果、100 nM 溶液の場合、CPE の時間が長くなるにつれ、ピーク電流が直線的に増加した。約 50 分でピーク電流は一定となり、およそ全てのヨウ素が電極に回収できた。一方 10 nM 溶液の場合、約 2 分程度でピーク電流が一定となった。これらの結果から、ヨウ素濃度によって最適な電解時間は変わるが、100 nM 以下の濃度の場合約 60 分でほぼ全てのヨウ素を電極に回収することが出来る事が示された。

NaI シンチレーターを用いた標準試料の放射能測定結果から、検出効率 は 30% と決定された。今後は I-125 を含むヨウ素溶液について CPE を行い、安定ヨウ素と放射性ヨウ素の回収率をそれぞれ求める事で同位体分別挙動について検討を行う。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文 (謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 河川から海洋への放射性セシウムの寄与と挙動の解析

研究代表者：高田 兵衛

共同研究者：青山 道夫

### 1. 研究成果報告

はじめに

東電福島第一原発事故発生から 8 年経過してもなお、福島県周辺の沿岸域では未だに事故前のレベルを超える海水中の放射性 Cs 濃度が検出されている。これは、東電福島第一原発施設からの直接漏洩だけでは説明出来ないため、陸域に沈着した放射性セシウムが河川を介して同沿岸域へ流入し海水中の放射性セシウム濃度を高めている可能性を否定できない。

これらを解決する課題として、同事故由来の放射性 Cs の動態や濃度レベルを支配する因子として、河川の影響について検討する必要がある。更に、海洋生態系への影響についても海産魚の放射性セシウム濃度の高止まりが続いており、河川由来の粒子に含まれている放射性セシウムの生態系への寄与が考えられる。特に有機態の放射性セシウムは生体内へと取り込みやすいことが想定されるので、粒子中の有機態の放射性セシウムの割合を明らかにする。

そこで本研究は、河川から沿岸海域にいたる放射性 Cs 濃度レベルを把握するとともに粒子中の有機態放射性セシウムの割合をもとめ、その動態について解き明かすことを目的とする。

調査

福島県の東電福島第一原発周辺に位置する河川における河川のうち、同原発から南に 10km に位置する、富岡川下流およびその河口付近の富岡漁港にて、水試料の採取を行った。採取した後、ろ過を行い、溶存態と粒子態に分別し、それぞれ放射性セシウム濃度を測定した。また、粒子態においては更に、イオン交換態ならびに有機態の放射性セシウムに分別し、粒子態の放射性セシウムに対するそれぞれの画分の割合を求めた。

結果および考察

2019～2020 年にかけて、河川中の溶存態放射性セシウム濃度は 10-20 Bq/m<sup>3</sup> 程度の濃度範囲で推移した。海水中では河川中濃度と同程度であったが、台風による出水時においては高まる傾向がみられた。これは、河川からの粒子態の放射性セシウムのうち、一部が溶脱

し溶存態へと移行したことが考えられる。それをサポートする結果として、河川中の粒子態放射性セシウムのうち、イオン交換態は7%程度であったが、海水中では数%まで減少していたことから明らかである。その一方、有機態放射性セシウムの割合は河川および海水中ともに数%と同程度であった。今後は有機態セシウムの経年的変動と粒子の性状との関連性を明らかにする。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 出水時における河川水の I-129 濃度の時系列変化

研究代表者：脇山 義史

共同研究者：笹 公和・松村 万寿美・松中 哲也・平尾 茂一

### 1. 研究成果報告

福島第一原子力発電所事故によって放出された長寿命の 129I (半減期：1,570 万年) は、高い化学的活性や 137Cs との挙動の違いなどの観点から、陸から海洋への挙動を長期的に把握することが必要な核種の 1 つである。137Cs に関しては、台風接近などにもなう出水時に懸濁態として多量に流出することが知られているが、129I の出水時における動態を観測した例は少ない。本研究では、河川を通じた 129I の移行プロセスの解明を目的として、阿武隈川出水時の河川水の 129I 濃度を調べた。

河川水の採取地点は、阿武隈川中流の黒岩地点であり、集水面積は 2880 km<sup>2</sup>、流域平均 129I 沈着量は 0.41 Bq m<sup>-2</sup> であった。2018 年 7 月と 10 月の出水イベント時にそれぞれ 5 回と 7 回の採水を行った。流域平均総降水量は、河川水試料はデカンテーション・ろ過により懸濁物とろ液に分離し、溶存態・懸濁態 137Cs 濃度 (Bq L<sup>-1</sup>) の測定を行った。浮遊土砂およびろ液試料の前処理後、加速器質量分析法にて 129I/127I 比を測定し、ICP-QQQ-MS を用いて 127I 濃度を測定した。

7 月と 10 月のイベント計 12 試料の平均値は、溶存態 129I 濃度で 0.11  $\mu$ Bq L<sup>-1</sup> であり、懸濁物の 129I 濃度で 0.68 mBq kg<sup>-1</sup> であった。溶存態 129I 濃度と懸濁物の 129I 濃度は、ともに出水期間中に時間とともに低下する傾向を示した。溶存態については 137Cs と同様の傾向であったが、懸濁物中の 137Cs 濃度は出水のピーク時に最大値を示しており、相違が見られた。129I の見かけの分配係数の平均値は 5.4 $\times$ 10<sup>3</sup> L kg<sup>-1</sup> であり、137Cs に比べて 2 オーダー低かった。129I 流出量は 7 月と 10 月のイベントでそれぞれ 1.0 $\times$ 10<sup>4</sup> Bq と 2.3 $\times$ 10<sup>4</sup> Bq であり、対沈着量比は 0.0087%、0.019% であった。137Cs 流出量の対沈着量は 7 月と 10 月でそれぞれ 0.0032%、0.016% であり、オーダーとしては一致した。

以上の結果をまとめて、European Geoscience Union General Assembly 2021 で発表を予定している。今年度は、流域内の 129I 沈着量が比較的小さい阿武隈川を対象としたが、今後原発周辺や浜通り河川など 129I 沈着量が多い流域を含めて解析をすることによって、原発事故起源の放射性ヨウ素の動態を明らかにしていきたい。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 大気中放射性核種濃度の連続モニタリング

研究代表者：細田 正洋

共同研究者：平尾 茂一・玉熊 佑紀・床次 眞司・赤田 尚文

### 1. 研究成果報告

#### 緒言

ラドンやトロンの発生源は主に土壌や建材であり、それらの単位時間・単位面積あたりの湧出量（以降、散逸率）を評価することはラドンやトロンによる潜在的リスクを評価するために重要である。散逸率の測定方法の一つに蓄積容器で地表面を覆い、連続的に容器内の空気を循環させながら測定する方法（循環法）がある。トロンの半減期が約 56 秒と短いため、このような方法による散逸率測定では最適な捕集条件の決定が重要であるものの、これまで議論されてこなかった。本研究では、捕集流量がトロン散逸率の測定値に与える影響について検討した。

#### 1. 方法

##### 1-1. 静電捕集型ラドン・トロンモニタの較正

トロン散逸率の測定には静電捕集型ラドン・トロンモニタ（RAD7, DURRIDGE Company Inc.）を用いた。RAD7 は、被ばく医療総合研究所に設置されているトロン較正場で較正を行った。RAD7 の排気側にポンプを接続し、捕集流量を 0.2 L/min から 2.0 L/min まで 0.1 L/min 間隔に設定し、トロン濃度を測定した（C3）。Tokonami らが報告した手法で得られたトロン較正場内の値を RAD7 の吸気口前に接続している乾燥剤入り口での値に補正し、その値を基準値（C0）として各流量における較正定数（C0/C3）を得た。

##### 1-2. トロン散逸率の評価

トロン散逸率は 8 cm 程度の土壌厚で十分に飽和することが明らかになっているため<sup>3)</sup>、花崗岩風化土壌を 8 cm の厚さになるように容器内に敷き詰めた。蓄積容器（3.7 L）を土壌表面に設置し、捕集流量を 0.2 L/min から 2.0 L/min まで 0.2 L/min 間隔で変化させ、蓄積容器内のトロン濃度を計測した。ある時間  $t$  におけるトロンの原子数  $N$  の変化は（1）式で示す微分方程式で表すことができる。

$$dN/dt = ES/\lambda - \lambda N - v/V N + k v/V N \quad (1)$$

ここで、 $\lambda$  はトロンの壊変定数（s<sup>-1</sup>）、 $V$  は蓄積容器の体積（m<sup>3</sup>）、 $S$  は蓄積容器下の面積（m<sup>2</sup>）、 $v$  は捕集流量（m<sup>3</sup>s<sup>-1</sup>）、 $k$  は蓄積容器内のトロンが実験系を循環する間の減衰を考

慮した定数 ( $=e^{-(\lambda V)/v}$ ),  $V'$ は実験系のチューブの全体積 (m<sup>3</sup>) である。(1) 式を解くと (2) 式が得られる。

$$E=C\{\lambda V+(1-k)v\}/S\{1-e^{-(\lambda+(1-k)v/V)t}\} \quad (2)$$

また、微差圧計 (ZN-DPX21-S, OMRON) を用いて、各流量に設定して測定を行った際の蓄積容器内外の差圧を計測した。

## 2. 結果および考察

トロン濃度の指示値に対する較正定数 ( $C_0/C_3$ ) は、流量が 0.5 L/min までは急激に減少し、その後緩やかに減少した。RAD7 にはポンプが内蔵されているが、その流量は経時的に変化する。この結果は、RAD7 を用いたトロン計測での測定精度を担保するためには、流量のモニタリングが重要であることを示唆する。RAD7 の指示値に較正定数を乗じ、(2) 式から評価した結果、配管系の減衰補正を考慮しても捕集流量の増加にともないトロン散逸率も増加した。これは、捕集流量の増加により、蓄積容器内の気圧が外と比べて減少し、吸い出し効果によってトロンの散逸が促進したためであると考えられる。また、捕集流量の増加にともない差圧は増加傾向を示したが、1.4 L/min 以上では、トロン散逸率が飽和しているように見える。これ以上の捕集流量で吸い出し効果の影響を評価する際には、より厚い土壌が必要になると考えられる。0.2 L/min から 1.4 L/min までの結果を用いて評価した回帰式の切片より、本実験に用いた土壌試料のトロン散逸率は  $2.3 \pm 0.1$  Bq/m<sup>2</sup> s と評価された。一般に RAD7 の内蔵ポンプの流量は約 0.7 L/min であるが、吸い出し効果を考慮せずトロン散逸率を評価した場合、2.8 倍 (6.4 Bq/m<sup>2</sup> s) の過大評価となる。

## 3. 結語

循環法によるトロン散逸率の評価における捕集流量の影響を明らかにした。今後、異なる大きさの蓄積容器を用いて同様の実験を行い、任意の蓄積サイズや捕集流量で得られた散逸率の補正手法を確立する必要がある。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。  
なし

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>



## モデル水域を活用した淡水魚への放射性物質の 移行経路の解明

研究代表者：三浦 富智

共同研究者：中西 貴宏・佐久間 一幸

### 1. 研究成果報告

これまで、福島県浪江町の請戸川水系に生息するヤマメおよび水生昆虫の解析から、非肉食性の水生昆虫を介したヤマメへの主な移行経路と推測される。さらに、ヤマメ養殖池の解析では、ヤマメ体重と放射性セシウム濃度との間に負の相関が認められ、清浄餌を接種できない個体が養殖池の底に生息するベントスを捕食していることが示唆された。本研究では、ヤマメ、水生昆虫、ベントスにおける放射性セシウム濃度と安定同位体組成を解析し、ヤマメへの放射性セシウムの移行経路を解析を目的とし、研究計画を立案した。しかし、今年度は新型コロナウイルスのパンデミックにより、南相馬市のヤマメ養殖池をモデルとした研究が困難となったため、当初の予定を中止せざるを得なかった。また、請戸川（室原川）を対象とした研究においては、定点調査していた地域が2019年10月の豪雨により、川底の礫が砂に埋没したため、ベントスや水生昆虫の採集が困難であった。災害級の豪雨により氾濫した請戸川では河川環境が激変し、水生昆虫の捕食状況が変化が生じたと推測される。今後、餌資源（流下昆虫・水生昆虫）、胃内容物および魚類の解析を継続し、生態系における放射性物質の移行を明らかにしたい。

一方、これまで請戸川で採取したヤマメの筋肉試料を用いて酸素安定同位体比および窒素安定同位体比を解析し、植生解析を行った結果、陸由来のエサ資源を接触しているヤマメのCs-137濃度が高いことが明らかとなった。今後、胃内容物の解析および流下昆虫などの調査を進め、自然環境における淡水魚への放射性セシウムの移行経路の解明を目指す。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 有機結合型トリチウムの前処理手法と濃度測定の改良

研究代表者：赤田 尚史

共同研究者：藤原 健壮・平尾 茂一・御園生 敏治

### 1. 研究成果報告

有機結合型トリチウム(OBT)は生物学的半減期が自由水トリチウム(FWT)よりも長く、体内の滞留時間が長いため、近年懸念されているが、分析には煩雑な前処理が必要であり、多くの時間を要し、国内でも分析を行っている機関は少ない。また、環境サンプル中のOBT分析を行うにあたり、様々な前処理装置や分析装置が販売されており、分析機関によって使用している装置もさまざまである。そこで、各分析機関で使用されている前処理装置及び分析装置の分析精度確認として、市販品の標準試料であるNISTの松葉1575aを石英管燃焼装置、迅速試料燃焼装置(Parr社)、質量分析計、液体シンチレーションカウンターLB5及びLB7を用いて分析を行い、測定結果を比較した。その際、交換型トリチウムを除去するために、トリチウムを含まないバックグラウンド水を用いて3回洗浄操作を行った。

交換型トリチウムを取り除いた洗浄済試料について、燃焼実験を3回実施した結果、トリチウム濃度 $1.1 \pm 1.0$  Bq/L-CWであり、Akata et al.(2019)で報告されている結果とほぼ一致した。しかし、本実験で用いた試料水量が少なかつたためバックグラウンド水を加えているとともに、計測時間は600分と短く、得られた結果は有意なものではなかった。本研究で用いた液体シンチレーションカウンター(LSC-LB7, HITACHI)では、試料水50mLに対してシンチレーターを50mL混合し、1000分測定を実施すると、トリチウムのMDLはおおよそ0.3Bq/Lとなる。また、試料量10mLの場合、MDLはおおよそ1.2Bq/Lである。一方、弘前大学で所有するQuantalusGCT6220(PerkinElmer)を用いると、限られた試料水量(水として10mL)でも、そのMDLは1.0Bq/Lを下回る。今後、同様な実験を実施すると共に、長時間測定を行うことで、迅速燃焼装置の有効性を確認できるものと考えている。

### 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## ICP-MS による Sr-90 分析の標準規格化のための機種性能 調査

研究代表者：田副 博文

共同研究者：高貝 慶隆

### 1. 研究成果報告

放射性ストロンチウム (Sr-90) は難分析核種として知られ、熟練した分析者でしか信頼できる環境データを得ることが難しい状況であった。しかし、東京電力福島第一原子力発電所事故を契機として ICP 質量分析計を用いた技術革新が進み、画期的なサンプルスループットの増加や自動前処理オプションとの連携が進められてきた。検出下限の点では放射化学分析に及ばないが、材料分析や重金属分析にも利用されており、様々な機関に導入されており、今後も技術の進展が期待できる。感度増加が達成されれば環境モニタリングにおいても放射化学分析に置き換えられ、省力化や環境データの蓄積に貢献できる。

本研究では、各社から販売されているコリジョン・リアクションセル搭載四重極型 ICPMS の性能を比較することで、放射性ストロンチウム分析の特性を評価する。弘前大学被ばく医療総合研究所が所有する Agilent 8800 (アジレント社) に加え、NexION2000 (パーキンエルマ社)、iCAP-RQ (サーモフィッシャーサイエンティフィック社) の 3 機種について Sr のおよび Zr の感度に関するデータを比較した。測定条件は Zr イオンの妨害を低減することが可能な酸素ガスリアクションモードを使用した。四重極マスフィルタを 2 基搭載する Agilent8800 についても前段のマスフィルタは使用せず、シングル MS モードに設定した。

3 機種とも CRC への酸素ガス導入により Zr イオンの信号の低減を確認することができた。しかし、酸素ガス導入量に対する Sr イオンの信号の変化は機種により大きく異なっていた。これらを統一的に比較するために Zr イオンの除去係数に対する Sr イオンの信号強度の応答を比較したところ、パーキンエルマ社の NexION2000 が Sr の低下が最も少なく、Zr 除去係数によらず一定に近い傾向を示した。これは CRC に搭載されているイオン再加速機構 (Axial Field Technology) による効果である。Agilent8800、iCAP-RQ では酸素との衝突により Sr イオンの透過率が減少するため感度が大きく減少している。Zr の除去係数が 104 であるとき、Sr の感度は 100,000 cps/ppb (Agilent 8800), 160,000 cps/ppb (NexION2000), 15,000 cps/ppb (iCAP-RQ) となり、検出下限放射能濃度は 0.2 Bq/g, 0.1 Bq/g, 0.9 Bq/g であった。分析試料中の Zr 濃度や化学分離過程によって測定試料中の Zr 濃度が変わるため、必要となる Zr 除去係数 (酸素ガス流量) は異なっており、現実的な利用

としては試料によって測定条件を選択する必要がある。セル内イオン再加速機構を有する NexION2000 では幅広い Zr 濃度に対応可能であるため、酸素ガスリアクションを有効に利用することが可能である。アジレント社製の現行機種 Agilent8900 には CRC 内でのイオン再加速機構が搭載されているため、今後その効果について検証する予定である。また、水試料を対象として簡便な前濃縮法の開発についても進める計画である。

## 2. 発表論文リスト

2020 年 4 月から 2021 年 3 月までに研究グループにより発表された論文（謝辞に ERAN による助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN 共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 太田川上流における淡水生態系への放射性セシウム 移行特性評価

研究代表者：石井 弓美子

共同研究者：和田 敏裕・舟木 優斗

### 1. 研究成果報告

Radiocesium-bearing microparticles (CsMPs), which are insoluble, Cs-bearing, silicate glass particles, have been found in terrestrial and freshwater environments after the TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident in Japan. Few studies have investigated the distribution of CsMPs in freshwater ecosystems and their uptake by aquatic organisms. In this study, we determined the uptake of CsMPs by aquatic insects in the Ota River in Fukushima. Although aquatic insects are usually measured for radioactivity in bulk samples of several tens of insects, we investigated the variability of  $^{137}\text{Cs}$  concentration in individual aquatic insects, and the influence of CsMPs on them. Measurement of  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in detritivorous caddisfly (*Stenopsyche marmorata*) larvae and carnivorous dragonfly larvae showed that 3 of 47 caddisfly larvae had considerably higher radioactivity, whereas no such outliers were observed in dragonfly larvae. These caddisfly larvae were confirmed to contain the CsMPs emitted from Unit 2 of the FDNPP, using a scanning electron microscope and radioactivity measurements after isolation of the CsMPs. CsMPs were also found in potential food sources of caddisfly larvae, such as periphyton and drifting particulate organic matter, indicating that larvae may ingest CsMPs along with food particles of similar size. Our study demonstrated that CsMPs could be taken up by aquatic insects and possibly by the fish consuming them. The existence of CsMPs can result in sporadic, extremely high  $^{137}\text{Cs}$  concentrations, and large variations in samples, and consequently obscure the actual transfer and temporal trends of  $^{137}\text{Cs}$  in freshwater ecosystems.

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文（謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む）。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>

## 飼育実験による昆虫類と淡水魚への 放射性セシウム移行評価

研究代表者：石井 弓美子

共同研究者：和田 敏弘・舟木 優斗・JO Jaeick

### 1. 研究成果報告

淡水魚への放射性セシウムの移行には、水生環境だけでなく、陸生環境も強く関連しており、陸生由来のエサ資源が、魚類の放射性セシウム濃度が高くなる要因ではないかと推察されている。これまでの先行研究から、陸生昆虫の中でも、腐食性昆虫は、草食性、雑食性、肉食性の昆虫に比べて放射性セシウム濃度が高い傾向が認められている。福島県南相馬市に位置する太田川においても、生葉や腐葉土などのセシウム濃度が高い傾向にあるが、それらを食べる陸生昆虫などの生物にどの程度放射性セシウムが移行するか、その移行メカニズムは不明である。

ハナムグリ科のカナブンは、幼虫期に腐食性の食性形態をもち、森林などの腐葉土が豊富な環境に生息する種群である。太田川から採取したヤマメの胃内容物からも幼虫期に腐食性の食性形態をとるアオカナブン (*Rhomborhina unicolor*) が検出されており、淡水魚における重要なエサ資源の1つである。本研究では、淡水魚への高い放射性セシウムの移行に寄与していると考えられる腐食性陸生昆虫のカナブンに着目し、飼育実験により、リターを介したカナブンへの放射性移行係数等の移行メカニズムを明らかにする研究を進めている。今年度は、飼育実験の対象種としたカナブン、アオカナブン、シロテンハナムグリの3種をバナナトラップを用いて野外から採取した。採取した3種について、飼育系を確立しシロテンハナムグリについては実験に使用する F1 個体を得た。放射性セシウムを含有するリター土壌試料を野外から採集し、それらを放射性セシウムが含有されていない市販の腐葉土と混ぜ、飼育実験用の腐葉土試料を作成した。この腐葉土を F1 幼虫に一定期間与えた後、幼虫（解剖により3部位に分離：筋肉部、内臓部、表皮）、糞、飼育残の腐葉土に分け、放射性セシウム濃度の測定を行い、移行率や体内分布率の調査を進めている。

## 2. 発表論文リスト

2020年4月から2021年3月までに研究グループにより発表された論文(謝辞にERANによる助成が明記されているもの、もしくは研究代表者・受入研究者が共著に入っているもの。受理済の論文を含む)。

なお、ERAN共同研究による論文が出版された際には以下のフォームよりご報告ください  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/sending-paper-information/>