



# 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

## 2021 年度 成果報告書

### FY2021 Annual Report

2022年2月14日（月）オンライン開催

Feb 14. 2022 @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）

FY2021 FINAL REPORT

【重点/Priority 共同研究】

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	受入れ研究者	所属
F-21-01	竹内 幸生	福島県環境創造センター	阿武隈川支流広瀬川を流れる放射性セシウムの上水イベントにおける経時的な濃度変化	藤田 一輝 勝野 和美 谷口 圭輔	恩田 裕一	CRiED
F-21-02	藤田 一輝	福島県環境創造センター	福島県を流れる河川における放射性セシウムの長期的なモニタリング	谷口 圭輔 竹内 幸生 勝野 和美	恩田 裕一	CRiED
F-21-03	笠原 玉青	九州大学	森林管理による流域・プロット土砂流出の変化：移動土砂量と同位体データを用いて		恩田 裕一	CRiED
F-21-04	柴田 英昭	北海道大学	森林流域からの溶存化学成分流出パターンの長期変動	福澤 加里部	恩田 裕一	CRiED
F-21-05	五味 高志	東京農工大学	山地上流域における放射性セシウムの降下量と流出量の関係		恩田 裕一	CRiED
F-21-06	柿内 秀樹	環境科学技術研究所	植物アーカイブ試料を用いた環境トリチウムの遡及的評価法の開発	植田 真司 伊志嶺 聡伸	恩田 裕一 加藤 弘亮	CRiED CRiED
F-21-07	松中 哲也	金沢大学	湖沼堆積物に記録された1950年以降のI-129とCs-137の沈着量変動		笹 公和 末木 啓介	CRiED CRiED
F-21-08	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と分配に関わる輸送体の探索	久保 堅司	古川 純	CRiED
F-21-09	頼 泰樹	秋田県立大学	イネのセシウム吸収経路の全容解明	佐々木 翔渚	古川 純	CRiED
F-21-10	菅野 里美	名古屋大学	イネのNa、K、Cs輸送イメージング	Nathalie LEONHARDT	古川 純	CRiED
F-21-11	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	林 奈穂 加納 瑞季 五十嵐 康人 保坂 健太郎	古川 純 羽田野 祐子	CRiED CRiED
F-21-12	浅井 志保	産業技術総合研究所	環境中に放出された135Cs分析の精密化を目的としたセシウム同位体標準液の開発		坂口 綾	CRiED
F-21-13	横山 明彦	金沢大学	環境中ネプツニウム測定用AMSトレーサー調製法の検討	永井 歩夢	坂口 綾	CRiED
F-21-14	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及び放射性微粒子の影響研究	佐藤 斉 遠藤 暁 藤本 成明 七條 和子	坂口 綾 恩田 裕一	CRiED
F-21-15	宇都宮 聡	九州大学	放射性セシウム含有微粒子の多角的精密解析に基づく炉内条件と環境影響の解明		山崎 信哉	CRiED
F-21-16	田中 万也	日本原子力研究開発機構	人形峠におけるウランとラジウムの環境動態研究	栗原 雄一	山崎 信哉	CRiED
F-21-17	小島 貞男	愛知医科大学	ケイ酸バリウムを主成分とするストロンチウム吸着剤を用いた <sup>90</sup> Sr分析法の開発と海水・海洋生物中の <sup>90</sup> Sr測定への応用	有信 哲哉 緒方 良至 箕輪 はるか	青山 道夫	CRiED
F-21-18	猪股 弥生	金沢大学	日本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	CRiED
F-21-19	緒方 良至	名古屋大学	ケイ酸バリウムを主成分とするストロンチウム吸着剤を用いた海水・陸水中の <sup>90</sup> Sr分析法の検討一低濃度試料への応用一	有信 哲哉 小島 貞男 箕輪 はるか	青山 道夫	CRiED
F-21-20	遠藤 徳孝	金沢大学	砂礫洲における細粒粒子の捕捉能に関する実験	谷口 圭輔	関口 智寛	CRiED
F-21-21	山口 直文	茨城大学	非定常流下での堆積物輸送の特性解明に向けた基礎実験		関口 智寛	CRiED

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	受入れ研究者	所属
F-21-22	渡来 靖	立正大学	3次元気象場の把握を目的としたUAV観測手法の確立		中村 祐輔	CRiED
F-21-23	中尾 淳	京都府立大学	地質の異なる福島森林土壌中での放射性セシウムの移動性と鉱物組成との関係解明		高橋 純子 塚田 祥文	CRiED IER
F-21-24	杉浦 広幸	福島学院大学短期大学部	吾妻山周辺に生育するクロマメノキ果実における <sup>137</sup> Cs濃度差の研究		塚田 祥文	IER
F-21-25	藤島 政博	山口大学	福島第一原発事故のゾウリムシへの影響	CATANIA Francesco LYNCH	難波 謙二	IER
F-21-26	長谷川 浩	金沢大学	土壌中の放射性元素に対するキレート洗浄処理と植物への影響	Begum Zinnat Ara	Rahman Ismail Md. Mofizur	IER
F-21-27	有馬 ポシールアハンマド	山形大学	環境汚染重金属除去機能を有する磁性と多孔性粉体の開発	Begum Zinnat Ara	Rahman Ismail Md. Mofizur	IER
F-21-28	大手 信人	京都大学	福島県上小国集水域における放射性微粒子の動態把握	二瓶 直登 辰野 宇大 角間海七渡	和田 敏裕	IER
F-21-29	津田 吉晃	筑波大学	福島県東部に分布するエゾウグイの遺伝的多様性の解明：帰還困難区域周辺の生物多様性保全にむけて	神藤友宏	和田 敏裕 兼子 伸吾	IER IER
F-21-30	平良 文亨	長崎大学原爆後障害医療研究所	帰還困難区域における建屋に内在する放射性セシウムと解体作業に伴い飛散する放射性セシウムの動態把握	松尾 政彦	平尾 茂一	IER
F-21-31	大木淳之	北海道大学	沿岸海域の堆積物からのヨードエタン (C2H5I) 発生	高田兵衛	高田 兵衛	IER
F-21-32	立田 穰	電力中央研究所	福島沿岸魚における <sup>137</sup> Cs/ <sup>133</sup> Cs比：海洋生態系内の放射性セシウム移行の平衡と遷移	西川 淳 小林 卓也 青野 辰雄 浜島 靖典 青山 道夫	高田 兵衛	IER
F-21-33	保坂 健太郎	国立科学博物館	きのこ類と寄生菌および捕食者（小動物）を介した森林内の放射性セシウムの動態把握	糟谷大河 山本航平 南 京沃	石庭 寛子	IER
F-21-34	遠藤 大二	酪農学園大学	原発事故周辺地域のアカネズミにおけるDNA修復遺伝子多型	中嶋信美 大沼 学 玉置雅紀	石庭 寛子	IER
F-21-35	黄倉 雅広	東京大学	複雑な線量体系に関する公衆理解と定義の変更に伴う影響に関する研究	飯本武志 福田一斗	山口 克彦	IER
F-21-36	樋口 健太	日本医療大学	ラドン子孫核種における放射能環境動態の解明	玉熊 佑紀 細田 正洋 床次 眞司 秋葉 澄伯	床次 眞司	IREM
F-21-37	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3：活性炭型ラドン検出器による感度確認	向 高弘	床次 眞司 細田 正洋	IREM IREM
F-21-38	大河内 博	早稲田大学	里山再生を目指した福島県浪江町における放射性セシウムの森林内動態開明	反町 篤行 竹内 里紗	床次 眞司 赤田 尚史	IREM IREM
F-21-39	古川 雅英	琉球大学	亜熱帯島嶼における土壌の天然放射性核種濃度とその地学的背景に関する研究	城間 吉貴 細田 正洋 仲宗根 峻也 中村 夏織	床次 眞司 赤田 尚史	IREM IREM
F-21-40	柳澤 文孝	山形大学	山形蔵王の樹氷の水素・酸素同位体組成	吉原美咲 鈴木美沙	赤田 尚史	IREM

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	受入れ研究者	所属
F-21-41	岩田 尚能	山形大学	山形蔵王の樹氷に含まれているベリリウム-7	柳澤文孝 吉原美咲	赤田 尚史	IREM
F-21-42	飯本 武志	東京大学	放射線教育用簡易測定器の開発と校正に関する研究	庄 沁優 小池 弘美	赤田 尚史	IREM
F-21-43	佐瀬 卓也	核融合科学研究所	新学習指導要領による高校検定教科書における放射線・環境・震災教育の変遷調査	阪間 稔 丸山 晴男	赤田 尚史	IREM
F-21-44	阪間 稔	徳島大学大学院	PHITS計算と3D-CAD設計の融合による高精細MRCPs四面体メッシュ人体及び環境構造体における被ばく線量評価	佐瀬卓也	赤田 尚史	IREM
F-21-45	高橋 温	東北大学	付加線量法によるアライグマの外部被ばく量推定法の確立		三浦 富智	IREM
F-21-46	山城 秀昭	新潟大学	被災アカネズミにおける精原幹細胞の自己複製および分化の影響解析	中田 章史	三浦 富智	IREM
F-21-47	清水 良央	東北大学	アライグマ骨組織への放射性物質取り込みに関する組織局在評価	篠田 壽 佐野有哉	三浦 富智	IREM
F-21-48	木野 康志	東北大学	野生キノコの放射性セシウム濃度の測定	山下琢磨	三浦 富智	IREM
F-21-49	中田 章史	北海道科学大学	微小核法を利用した精子形成過程における放射線感受性評価の検討	山城秀昭	藤嶋 洋平 三浦 富智	IREM IREM
F-21-50	鈴木 正敏	東北大学	福島第一原発事故後の放射線被ばくによる 野生動物体内の酸化ストレス状態	石川諒椰	三浦 富智 藤嶋 洋平	IREM
F-21-51	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	白井厚太郎 中田裕希 江口貴博	田副 博文	IREM
F-21-52	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	石丸 隆 伊藤友加里	田副 博文	IREM
F-21-53	二瓶 直登	福島大学	放射性微粒子による作物への影響解析	吉村和也	吉村 和也	JAEA
F-21-54	尾崎 紀昭	秋田県立大学	生物の鉱物形成作用と核種固定化に関する研究	土肥 輝美	土肥 輝美	JAEA
F-21-55	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	田籠久也 山田映見 土肥輝美 藤原健壮	土肥 輝美	JAEA
F-21-56	田原 淳一郎	東京海洋大学	福島環境モニタリングを目的とした採泥機能を有する小型無人船の開発(2) u-ASVによる協調制御	森戸誠 小野聡太郎 藤井竣	眞田 幸尚	JAEA
F-21-57	佐々木 隆之	京都大学	酸化鉱物表面の核種収着状態に関する分光学的研究	藤原健壮 土肥輝美	藤原 健壮	JAEA
F-21-58	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鉱物学的研究	萩原大樹	萩原 大樹	JAEA
F-21-59	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の供給過程の解明	辻 英樹 三浦 輝 青山道夫 浜島靖典	林 誠二	NIES
F-21-60	高橋 真哉	筑波大学	DNA相同組み換えレポータ遺伝子を持つ植物培養細胞を用いた帰還困難区域におけるバイオモニタリング実施	玉置 雅紀	玉置 雅紀	NIES
F-21-61	根本 唯	東京農業大学	次世代シーケンサーを使用したMIG-seq法による福島県のツキノワグマの遺伝的集団構造の推定	斎藤梨絵 熊田礼子 今藤夏子	玉置 雅紀	NIES

## 新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響

氏名：恩田 裕一

共同研究者：高田 兵衛・脇山 義史

### 1. 成果

福島原発事故により拡散した $^{137}\text{Cs}$ の挙動を調査するには、懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ を追跡すること、すなわち河川内の浮遊砂移行を調査することが重要である。また、 $^{137}\text{Cs}$ フラックスは降水や雪解けによる出水時に増大することから、出水時における浮遊砂移行の挙動を調査する必要がある。そこで、新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響を調査するために Laser In-Situ Scattering and Transmissometry (LISST) Streamside Sequoia Scientific, Inc. Seattle, WA, USA を用いて、時系列の粒度組成調査を行った。その結果、出水に SS が粗粒化する傾向をもたらすことが多く、セシウムのフラックスについて粒度組成を基に、再計算が可能となった。またその粒度分布を基に、海洋での溶脱率についてもより高精度で評価が可能となった。

### 2. 論文

なし

## 森林源頭部における表流水への溶存態セシウム 137 の流出経路の推定

氏名：加藤 弘亮

共同研究者：新里 忠史

### 1. 成果

河川流域の上流部に位置する森林域は、河川水中の溶存態放射性セシウムの供給源になり得る。しかし、従来の Kd 吸脱着モデルでは、河川水中の溶存態放射性セシウムの季節変動や出水時の濃度変動を再現できない等の課題が残っている。

森林源頭部から水系に流出する放射性セシウムは、森林斜面土層内の地下水や土壌水の混合と、河道の堆積有機物からの溶出が混合して形成される。先行研究では、堆積有機物からの溶出の影響を現地観測や室内実験で調査した事例があるが、森林斜面土層内の飽和帯（浅い地下水）の流出の影響に着目した研究はない。そこで本研究では、森林源頭部での詳細な水文観測により、斜面土層からの地下水水流出が表流水の溶存態放射性セシウム濃度の変動に及ぼす影響を解明することを目的として実施した。

調査方法として、帰宅困難区域に位置する福島県浪江町の森林流域を調査対象流域とした。調査対象流域の流域面積は 0.002 km<sup>2</sup> で、流域の平均 137Cs 沈着量は 4700 kBq/m<sup>2</sup> である。調査対象流域において、湧水、表流水、土壌浸透水、及び斜面土層内の飽和帯地下水を定期的に採水した。土壌浸透水はゼロテンションライシメータを用いて採取した。飽和地下水は斜面に設置した井戸及びピエゾメータ内の水を採取した。採水した水試料は 0.45 μm のメンブレンフィルターで濾過した。フィルターで濾過した水試料をマリネリ容器に封入し、ゲルマニウム γ 線検出器を用いて 137Cs 濃度を定量した。なお、本研究では、フィルター通過水に含まれる 137Cs を溶存態の放射性セシウムと定義した。

水試料の採水のほかに、調査対象流域の 2 地点に量水堰と自記水位計を設置して表流水の流量変化を観測した。ピエゾメータは斜面測線上の 4 カ所に設置し、各地点で 4 深度のピエゾ水位を自記水位計を用いて記録することで、平水時及び出水時の斜面土層内の地下水ポテンシャルの変化を推定した。

調査観測結果から、平水時に調査対象流域から流出する表流水の溶存態 137Cs 濃度は概ね 0.1~0.4 Bq/L であった。流水の溶存態 137Cs 濃度は水温により変動する傾向が認められた。また、水温が 10 度変動した場合の溶存態 137Cs 濃度の変動率 (D10 値) は 2018 年から 2021 年の間に徐々に低下する傾向が認められた。一方、土壌浸透水の溶存態 137Cs 濃度はリター通過水で 5~6 Bq/L 程度、リター・土層通過水で 2~3 Bq/L であった。斜面土層内の地下水は 0.1~2.4 Bq/L と、表流水と比べて比較的高い溶存態 137Cs 濃度をを示すことが分かった。

降雨-流出時には、流量のピークに先立って表流水の溶存態 137Cs 濃度が上昇することが確認された。表流水の溶存態 137Cs 濃度の変動は、表流水の流量よりも地下水位の変動と対

応していたことから、平水時と出水時の斜面土層内の地下水ポテンシャルの分布からその流動方向を推定した。その結果、平水時には斜面飽和帯の地下水が深部に向かって流動するが、出水時には地下水位の上昇とともに、斜面土層から河道に向かって流動していることが明らかになった。これらの観測結果から、森林斜面の浅い地下水は比較的高い溶存態  $^{137}\text{Cs}$  を有し、出水時には斜面飽和帯の地下水が流出することで表流水の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇に寄与していることが示唆された。

## 2. 論文

## 高マトリクス試料中の極微量放射性核種測定法確立

氏名：坂口 綾

共同研究者：Jian Zheng

### 1. 成果

宇宙素粒子観測装置であるスーパーカミオカンデ(SK)タンク内の超純水に硫酸ガドリニウム( $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$ )を溶解させることで、超新星背景ニュートリノの観測を目指す SK-Gd プロジェクトが進行している。硫酸ガドリニウム中には天然の極微量放射性核種が含まれており、妨害シグナルの要因となることからいくつかの核種において濃度の上限値が定められている。この核種の一つであるラジウム-226( $^{226}Ra$ ,  $T_{1/2}=1600$  年; 上限値 0.5 mBq/kg-  $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$ )は既に  $\gamma$  線測定による定量法が確立されている<sup>1)</sup>。しかしこの方法では、極低バックグラウンド環境で約 1 週間の測定時間を必要とするため、SK タンクに導入する約 100 トンの硫酸ガドリニウム全バッチ中の  $^{226}Ra$  を測定するには環境的制約と時間的コストが必要となる。そこで本研究では硫酸ガドリニウム中の  $^{226}Ra$  を質量分析法(ICP-MS)で迅速に測定することを目的として、ICP-MS の高感度化と硫酸ガドリニウムからの  $^{226}Ra$  の抽出・濃縮について検討した。

<ICP-MS 高感度化> プラズマへの試料導入効率向上およびプラズマ中における元素のイオン化効率向上による高感度化を目指し、①試料溶液の脱溶媒を行いドライエアロゾルとして試料をプラズマに導入、②プラズマを発生させるトーチの内径を変更(2.5 mm→2 mm)した。更に、試料分析部へのイオン透過効率向上を目的とし、差動排気部の高真空化を図った。また、単位時間当たりの試料導入量に対する感度上昇を目指し、ネブライザーの種類についても検討した。それぞれの条件における装置設定条件の最適化を自作のチューニング溶液で行い、最終的な ICP-MS の感度による  $^{226}Ra$  の定量下限から、必要な硫酸ガドリニウムの量を見積もった。

< $^{226}Ra$  抽出・濃縮> 硝酸系溶液中での Ra 吸着選択制の高い樹脂(AnaLig Ra-01)の利用にあたり、濃度の異なる硝酸に硫酸ガドリニウムを飽和量溶解し、それぞれの溶解度を求めることで最適な硝酸濃度と  $^{226}Ra$  測定に必要な最小試料溶液量を見積もった。先行研究<sup>2)</sup>で Ra の回収率トレーサーとして用いられていた Ba の放射性核種( $^{133}Ba$ )を用い、カラムに充填する樹脂量や通液する溶液の流速等の最適化を行った。また、樹脂に吸着した Ra を質量分析のために回収する方法として 0.03 mol/L の EDTA による溶離と濃硝酸+過酸化水素による樹脂分解を試みた。

<ICP-MS 高感度化> 導入試料の脱溶媒化や試料導入速度の検討、トーチのインジェクター一径の決定、高真空化により、最終的な感度は一般的な ICP-MS の約 30 倍に上昇した。この時の  $^{226}Ra$  の定量下限値は 0.48 ppq であった。

< $^{226}Ra$  抽出・濃縮> 硫酸ガドリニウムは 2 mol/L 硝酸に対して最も溶解性が高く(約

10%)、ICP-MS の感度から  $^{226}\text{Ra}$  測定に必要な溶液量は約 350 mL と計算された。吸着実験に要する時間、吸着率、回収率と、回収溶液を ICP-MS で測定する際のマトリクス効果を考慮した結果、使用する樹脂量 0.75 mL、流速約 5 mL/min で 500 mL の試料溶液を通過し、濃硝酸+過酸化水素による樹脂分解で Ra を回収する方法が現段階で最も効率よく Ra を抽出・濃縮する方法と判断した。この条件における  $^{133}\text{Ba}$  の吸着率は  $89.7 \pm 0.4\%$ 、吸着した Ba の回収率は 85.4 %であった。今後は更なる回収率の向上を目指し改善を行っていくとともに、SK-Gd に導入する硫酸ガドリニウム中の  $^{226}\text{Ra}$  定量を行う。

【参考文献】 1) S. Ito, et al. Prog. Theor. Exp. Phys 2020, 7. ; 2) S. Ito, et al. Prog. Theor. Exp. Phys 2018, 6.

## 2. 論文

## 福島県山木屋地区における除染後のダイズ連作地と非耕作地の 土壌理化学性の比較

氏名：高橋 純子  
共同研究者：脇山 義史

### 1. 成果

土壌侵食による Cs-137 流出に関するモニタリングとして、事故直後より福島県川俣町山木屋地区を中心に USLE プロットによる観測が行われてきた。2011 年 7 月から 2014 年 7 月まで、さらに除染作業を挟み、2014 年 12 月から 2020 年 12 月まで山木屋地区内の畑地で継続された調査によって、除染前の未耕作畑では、時間とともに流出する土砂中の Cs-137 濃度が減少し、さらに除染によって、流出する土砂中の Cs-137 濃度は一桁程度減少し、その後は明確な時間変化は認められないことが明らかにされた。さらに、土砂侵食量に関しても、除染前後で比較すると除染後の方が単位侵食力あたりの土砂流出量が低下している傾向にある。本共同研究では、モニタリングの終了にあたり、USLE プロット内で土壌断面調査を実施し、除染前後の耕作地・未耕作地における土壌の理化学性（三相分布、飽和透水係数、粒径組成、粒径別 Cs-137 濃度等）の測定を行い、これまでの結果を補完する情報を提供することを目的とした。

Cs-137 濃度の深度分布に関しては、除染前は深さに伴い指数関数的に減少していたが、除染後は 20cm 深度までほぼ均一の濃度となった。特に、最表層 0-1cm の濃度は除染により約 2% (45 Bq/g から 0.96 Bq/g) にまで減少していた。除染後の Cs-137 存在量も約 100 kBq/m<sup>2</sup> であり、除染前の約 4 分の 1 であった。

土壌の理化学性に関しては、本地点は除染前から造成された土地であり、A 層の発達はやや弱い傾向にあった。除染前は気相率が 2.7% と低く、飽和透水係数も  $2.9 \times 10^{-4}$  cm/秒 と低い傾向にあったが、除染により物理性が改善され（気相率 33~38%）、飽和透水係数も上昇していることが示された ( $2.1-3.4 \times 10^{-3}$  cm/秒)。また、除染によりレキ・粗砂画分が増加しており、除染前はレキ+粗砂の重量割合が 20.8% だったのに対し、除染後は 38.1% であった。湿式篩別および沈降法により有機物分解後の土壌を 2 mm 以上、0.5-2 mm、0.2-0.5 mm、0.063-0.2 mm、0.020-0.063 mm、0.002-0.020 mm、0.002 mm 以下の 7 つに分画し、それぞれの画分中の Cs-137 濃度を測定したところ、除染前・除染後ともに細粒なほど Cs-137 濃度が高い傾向が認められた。とくに、除染前の比表面積  $S(\text{m}^2/\text{g})$  と Cs-137 濃度  $C(\text{Bq}/\text{kg})$  の関係は  $C=15164S^{0.61}$  と非常に高い精度で近似され、He and Walling (1996) がイギリス南西部の土壌で示した係数 0.65 と近い値であった。一方、除染によってクリーンかつ粒径の粗い粒子が投入されたことを反映し、除染後の比表面積と Cs-137 濃度の関係は  $C=723S^{0.90}$  と変化していることが明らかとなった。

### 2. 論文

## 銀電極を用いた定電位電解におけるヨウ素の同位体分別の検討

氏名：山崎 信哉

共同研究者：平尾 茂一

### 1. 成果

#### 【序論】

放射性ヨウ素は再処理施設や原発事故などにより環境中に放出される。ヨウ素-131 は半減期の短さから被ばく影響の観点で重要である一方、減衰が早いため事故直後などに測定しなければならない。一方でヨウ素-129 は半減期が長いため長期におけるモニタリングが容易であるが、化学状態別の定量に至っていない研究が多い。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及びその変化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、環境レベルの濃度では放射線計測が困難であり、質量分析 (加速器質量分析 AMS、誘導結合プラズマ質量分析 ICP-MS) を用いた測定が試みられている。これらの質量分析を行うために、溶媒抽出法などを用いた前処理が行われている。しかし、この方法では全ヨウ素をヨウ化物イオンに変換して回収するため、化学状態別定量ができない。そこで、本研究では放射性ヨウ素の存在状態の解明を行うこと目的として、電気化学的手法によるヨウ素の回収法の構築を試みた。本課題ではヨウ化物イオンを対象として銀電極表面へのヨウ化物イオンの濃集挙動について検討した。

#### 【実験】

NaI 検出器によるヨウ素-125 の回収率を求めるため、ヨウ素 125-I を 3-3000 Bq/10mL となるように調製し、測定を行った。

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。10 ppb ヨウ素-127 溶液 (pH 7.0) について +0.20V で定電位電解 (CPE) を最大 60 分間行った後、リニアスイープボルタンメトリー (LSSV) をにより還元電流を測定した。さらに、ヨウ素-125 の回収率を求めるため 300 Bq/ 10 mL とするよう 10 ppb ヨウ素-127 溶液に加えた。この溶液について 0.2 V で CPE を 30-180 分間行い、測定後の溶液について NaI で放射能測定を行った。

#### 【結果】

NaI の検出効率はおおよそ 40%と求まった。また、放射能濃度が 10 Bq/ 10 mL を下回ると検出効率の誤差が大きくなったため、この濃度を今回の条件における検出限界とした。

ヨウ素-125 の溶液について CPE の時間を変えて電極への回収率を求めた結果、おおよそ 30 分で一定となった。この結果はヨウ素-127 における回収率の時間依存性と同様の傾向を示

した。また、ヨウ素-125の回収率は80%程度であり完全に回収はできなかった。これはヨウ素の濃度が電気化学反応に寄与するためと考えられる。このことからヨウ素-127の濃度とヨウ素-125の回収率との相関を今後検討する必要がある。また、時間を変えてCPEを行ったときのヨウ素-125とヨウ素-127の回収率には直線関係が成り立った。このことから今回の実験条件下では、CPE時の同位体分別は起こらないと結論づけられた。今後は、上記の検討を行ったうえで環境試料に適用してヨウ素を回収するための条件について検討する。

## 2. 論文

Shinya Yamasaki, Hikaru Saito, Tsukasa Nakamura, Kazuya Morooka, Keisuke Sueki, Satoshi Utsunomiya, Gravitational separation of  $^{137}\text{Cs}$  contaminated soil in Fukushima environment: Density dependence of  $^{137}\text{Cs}$  activity and application to volume reduction. *Journal of Environmental Radioactivity*, 246, 106846, 10 pages, 2022.

Shinya Yamasaki, Satoshi Utsunomiya, A review of efforts for volume reduction of contaminated soil in the ten years after the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 59(2), 135-147, 2022.

## 阿武隈川および新田川における出水時の 129I 動態

氏名：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. 成果

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。申請者らは 2019 年度、2020 年度に阿武隈川で採取した水試料について分析を行い、137Cs に比べて、129I は溶存態として流出する割合が高いことなどを示した。これらの結果に基づいて、European Geoscience Union General Assembly 2021 および日本地球惑星科学連合大会 2021 において発表を行なった。昨年度まで分析対象とした阿武隈川中流では 129I の沈着量が相対的に低かったことから、2021 年度は、浜通り地域の 129I の沈着量が高い新田川で採取した試料を分析対象として阿武隈川を対象とした分析結果との比較を行った。分析対象としたのは 2016 年 8 月 16～17 日の出水イベント時に新田川下流の原町地点で採取した水試料である。採取地点における集水面積は 206 km<sup>2</sup>、平均 129I 沈着量は 0.093 Bq m<sup>-2</sup> であった。水試料をろ過して得た浮遊土砂およびろ液試料について、昨年度までと同様の方法で、前処理を行い、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。溶存態 129I 濃度の平均値は  $1.8 \times 10^{-4}$  mBq L<sup>-1</sup> (n=4)、懸濁物質の 129I 濃度の平均値は  $4.1 \times 10^{-3}$  Bq kg<sup>-1</sup> (n=4) であり、見かけの分配係数 K<sub>d</sub> の平均値は  $2.2 \times 10^4$  L Bq<sup>-1</sup> であった。129I/127I 比の平均値は、溶存態では  $5.6 \times 10^{-9}$ 、懸濁物質で  $28 \times 10^{-9}$  であり、懸濁物質で高かった。129I の流出量は  $2.5 \times 10^4$  Bq であり、流域内の総 129I 沈着量の 0.13% に相当した。これらの値を阿武隈川 2018 年 10 月の出水イベントで採取された試料の分析結果と比べると、溶存態 129I 濃度の平均値は 2.3 倍高い値であり、流域平均 129I 沈着量の比 (新田川：阿武隈川 = 2.6 : 1) と同程度であった。このことから、溶存態 129I 濃度が、流域の 129I 沈着量に応じて高くなることが示唆される。一方で、懸濁物質の 129I 濃度は新田川で 9.4 倍高い値であり、前述の 129I 沈着量の比を大きく上回っていた。また、見かけの分配係数の平均値が阿武隈川では 103 L kg<sup>-1</sup> のオーダーであったのに対して、新田川では 104 L kg<sup>-1</sup> のオーダーにあったこととも符合する。これらの結果からは、新田川では 129I が懸濁態として移行しやすいことが示唆される。その原因としては、両流域における 129I 沈着量の違い、土地利用構成や面積といった特性の違い、あるいは対象としたイベントの降雨規模の違いが反映された可能性が考えられる。今後の継続的な試料分析により、河川に通じた 129I 動態の支配要因を明らかにしていきたい。

### 2. 論文

## 河川から海洋への放射性セシウムの寄与と挙動の解析

氏名：高田 兵衛

共同研究者：青山 道夫

### 1. 成果

はじめに

東電福島第一原発事故発生から 10 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のみならず、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がある。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

2019～2021 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。一方、海水においても河川河口付近の漁港においては、溶存態放射性セシウム濃度が 20 Bq/m<sup>3</sup> を超えるような値が確認され、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。また、河川中の粒子態放射性セシウムのうち、イオン交換態および有機態のセシウムの割合求めたところ、河川ではイオン交換態の割合が海水に比べ高く、一方、有機態セシウムの割合は共に数%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. 論文

## 液体シンチレーションカウンターを用いたトリチウム分析のための カクテル剤の検討

氏名：赤田 尚史

共同研究者：田副 博文・桑田 遥・藤原 健壮・寺島 元基・平尾 茂一

### 1. 成果

#### 背景

低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターは低濃度トリチウムを測定する際に広く利用されている。測定の際には水試料とシンチレーションカクテル剤を混合するのが一般的である。しかし、欧州地域で制定された化学物質の総合的な登録・評価・認可・制限の制度である REACH 規則により、その多くが製造中止になる可能性がある。そのため、継続的に利用可能な代替シンチレーションカクテルを使用することが望まれる。本研究では代替シンチレーションカクテル剤を決定するために、継続的に利用可能な Gold Star LT<sup>2</sup>と、国内で現在使用されている Ultima Gold LLT、Insta-Gel Plus、Ecocint Ultra の3つのシンチレーションカクテル剤を用いた性能の比較試験を行った。

#### 方法

性能評価ではそれぞれのシンチレーションカクテル剤につき10本の異なる混合比の標準溶液を用意し、液体シンチレーションカウンター(LSC-LB5)で400分測定を行った。そして、得られた結果を基にクエンチングの補正曲線を作成し、シンチレーションカクテル剤の性能を評価するための値である FOM 値(Figure of merit)を求め、それぞれのシンチレーションカクテル剤の最適な混合比、計数効率、バックグラウンドカウンットの比較を行った。

#### 結果

比較試験を行った結果、Gold Star LT<sup>2</sup>は Ultima Gold LLT と同程度の高い計数効率を示し、バックグラウンドカウンット値も低かった。しかし、試料とカクテル剤の混合比において試料量が50%を超えてしまうと試料が分離してしまうため、試料調製の際には試料量を50%以下にすることが必要である。また、Gold Star LT<sup>2</sup>は Ecocint Ultra 及び Insta-Gel Plus より低いバックグラウンドカウンット及び高い計数効率を示した。そのため、Gold Star LT<sup>2</sup>は環境試料中のトリチウムの濃度を測定するうえで、今後継続的に利用できる代替シンチレータとして有効であることを確認した。

### 2. 論文

Haruka Kuwata, Hirofumi Tazoe, Chutima Kranrod, Kenso Fujiwara, Motoki Terashima, Makoto Matsueda, Shigekazu Hirao, Naofumi Akata (2022) PERFORMANCE EVALUATION OF COMMERCIAL SCINTILLATION COCKTAILS FOR LOW-LEVEL TRITIUM COUNTING by HIGH-CAPACITY LIQUID SCINTILLATION COUNTER, Radiation Protection Dosimetry, accepted.

## ICP 質量分析計を用いた緊急時における水質中の Sr-90 分析

氏名：田副 博文

共同研究者：高貝 慶隆

### 1. 成果

Research has been conducted to speed up and simplify the  $^{90}\text{Sr}$  analysis method in water samples based on the importance of Sr-90 measurement for environmental monitoring in the event of a radiological incident. To optimize the measurement with ICP-MS, which enables rapid analysis, we examined the pre-treatment conditions when cation exchange resin chromatography and Sr Resin solid-phase extraction were used. Sr was quantitatively recovered by cation exchange resin from 1 L synthetic water samples, and anionic components such as Ge and Se were efficiently removed. In addition, under the elution condition using 3 M  $\text{HNO}_3$ , it is possible to suppress the elution of Zr with a small volume of eluent. The eluate from cation exchange chromatography can be used for successive solid-phase extraction of Sr-Resin directly, which provides further Sr purification and concentration sufficient for Sr-90 determination by ICP-MS. Verification was performed on real samples including high hardness bottled water. We confirmed that the results of the synthetic sample analysis were reproduced, and that Sr was quantitatively recovered (96-100%) and coexisting elements were removed sufficiently so as not to interfere with the measurement of Sr-90. Sr-90 was concentrated by a factor of 100 during chemical separation procedure without any evaporation step. Processing time for more than 10 samples was 3 hours, which is fast enough for emergency response in the case of radiological incident.

### 2. 論文

H. Tazoe, Y. Tomisaka, N. Akata, B. Russell, P. Ivanov, M. Hosoda, S. Tokonami, Rapid Chemical Separation Protocol for Optimized  $^{90}\text{Sr}$  Determination by ICP-MS in Water Samples for Radiological Incident. *Radiation Environment and Medicine* 11(1) 7-15 2022

## 大気中放射性物質の連続モニタリングに資する基礎研究

氏名：細田 正洋

共同研究者：平尾 茂一・床次 眞司・赤田 尚史・玉熊 佑紀

### 1. 成果

福島第一原子力発電所事故後 10 年以上が経過し、人工放射性核種濃度が減少したことにより住民に対する事故起源の放射性核種による被ばく線量評価には天然放射性核種の影響を定量的に評価することが重要になってきた。自然界には原発事故以前よりラドンをはじめとする天然放射性核種が存在しており、その変動を正確に評価することは人工放射性核種の高い測定精度での測定につながると考えられる。日本分析センターの調査により我が国の大気中のラドン濃度の平均値は約 5 Bq/m<sup>3</sup> 程度あることが明らかとなった(Oikawa et al J. Environ. Radioact. 2003)。つまり、大気中ラドン濃度の変動を捉えるためには、より検出下限値が低いラドンモニタが必要である。現在、検出下限値が 0.5 Bq/m<sup>3</sup> 程度のラドンモニタが市販されており、これまでも大気中ラドンの連続観測に用いられてきた(Iida et al Environ. Int. 1996)。このラドンモニタは大気中ラドンの捕集に静電捕集法が用いられているが、この手法の欠点として大気中の湿度の影響を受けて測定値が過小評価されることである。そこで、連続測定を実施する際には、十酸化四リン(P<sub>4</sub>O<sub>10</sub>)のような吸湿剤を介して測定器内に乾燥 空気を取り入れる必要があった。しかし、十酸化四リンは吸湿により液体となるため、長期間の測定を実施する場合その管理が問題となる。そこで、本研究では大気中ラドンの連続観測に用いられる静電捕集型ラドンモニタの湿度特性を明らかにするとともに、十酸化四リンの代わりに硫酸カルシウム(Drierite)を使用した場合の除湿効果について検討した。本研究で用いた静電補集型ラドンモニタの捕集容器の容積は 16.8 L であり、正に帯電しているラドンの子孫核種である Po-218 を捕集電極へ収集するための -3000V の印加電圧がかけられる。Po-218 からの  $\alpha$  線の検出には 1700 mm<sup>2</sup> のプレーナシリコン半導体検出器が用いられている。静電補集型ラドンモニタを Drierite を介して弘前大学被ばく医療総合研究所のラドン曝露場に接続した。その際、直列に接続する Drierite の本数を 1 本から 3 本まで変化させた。ラドン濃度の基準値はラドン曝露場内に設置されている電離箱式ラドンモニタ (AlphaGUARD) で得られた値とした。AlphaGUARD で得られたラドン濃度に対する静電補集型ラドンモニタで得られたラドン濃度の比は、相対湿度の増加に伴い減少傾向を示した。さらに、Drierite の本数が 1 本、2 本及び 3 本としたときのラドン濃度の比はそれぞれ  $0.94 \pm 0.07$ 、 $0.97 \pm 0.04$  及び  $0.95 \pm 0.04$  であり、Drierite の本数には依存しなかった。また、静電捕集型ラドンモニタで測定されるラドン濃度は 4 時間程度の遅れがあることが明らかとなったが、応答の遅れは乾燥剤の数に依存しなかった。今後は、静電捕集型ラドンモニタを用いて大気中ラドンの連続測定を開始し、そのベースラインデータと変動幅に関する情報を蓄積するとともに、大気汚染物質などの大気輸送に関するトレーサ利用の可能性についても検討を進める計画である。

### 2. 論文 なし

## 阿武隈川支流広瀬川を流れる放射性セシウム(Cs-137)の出水イベントにおける経時的な濃度変化

氏名：竹内 幸生

受入研究者：恩田 裕一

共同研究者：藤田 一輝・勝野 和美・谷口 圭輔

### 1. 成果

福島県の河川水中の放射性セシウム(Cs-137)濃度は、震災直後から10年経過した現在も低下傾向にある。一方、河川を流れるCs-137移行量における出水イベントの寄与が大きいとの報告があるため、出水イベントにおけるCs-137移行量の把握が重要と考えられる。このため、阿武隈川支流の広瀬川流域を対象として、出水時及び平水時における河川水中Cs-137濃度の調査を行った。

広瀬川下流の間野橋付近に観測地点を設置し、河川水位・濁度のデータを10分間隔で収集するとともに、出水時において4時間程度の間隔で大容量採水システム又はバケツによる採水を行った。採水した試料を孔径0.45 $\mu$ mのメンブレンフィルターに通水して懸濁態Cs-137を捕集し、ろ液をイオン交換樹脂又は溶存態セシウムモニタリング用カートリッジに通水して溶存態Cs-137を捕集した。フィルター、樹脂及びカートリッジに含まれるCs-137をGe半導体検出器によって測定し、河川水中のCs-137濃度を算出した。

本調査では2021年7月26日～29日と8月11日～17日における2つの出水イベントを観測した。アメダス梁川局におけるイベント降水量はそれぞれ48mmと106mmであった。降雨開始直後から徐々に河川流量は増加し、降雨強度が最大であった時間帯又はそれ以降に河川流量最大点へ到達した。

出水イベントにおける懸濁態Cs-137濃度は、7月のイベントでは450～1,600 Bq/kg、8月のイベントでは980～1,500 Bq/kgの範囲で推移した。溶存態Cs-137濃度は、7月のイベントでは全て検出下限値未満(<1.0 mBq/L)であり、8月のイベントでは検出下限値未満～0.84 mBq/Lの範囲で推移した。一方、2020年～2021年における平水時の観測結果は、懸濁態Cs-137濃度が930～1,600 Bq/kg、溶存態Cs-137濃度が検出限界値未満(<0.56)～0.86 mBq/Lであった。このため、今回の出水イベントにおける懸濁態Cs-137濃度及び溶存態Cs-137濃度は、平水時の濃度範囲と同程度の範囲で推移していたと考えられる。

本調査では、大容量採水システムによるプログラム採水が適切に動作しなかったため、大容量採水システムの改良を行った。また、経時的な濁度観測が十分に実施できていなかったため、濁度計の再設置を実施したところである。今後、濁度観測と採水調査を継続し、データの蓄積を進めていく予定である。

### 2. 論文

## 福島県を流れる河川における放射性セシウムの長期的なモニタリング

氏名：藤田 一輝

受入研究者：恩田 裕一

共同研究者：谷口 圭輔・竹内 幸生・勝野 和美

### 1. 成果

2011年3月に起きた東京電力（株）福島第一原子力発電所事故により、多量の放射性物質が環境中に放出され、河川を含む陸水域にも大きな影響を与えた。河川水は、水道水や農業用水など、生活の中で幅広く利用されていることから、その安全性を担保することは重要である。そこで、本申請課題では、福島県内を流れる河川における放射性Csの長期的な移行状況を明らかにするとともに、森林火災や大規模出水等、水圏での放射性セシウム動態に影響を及ぼす可能性のある突発的事象が発生した場合の影響評価に資するデータの蓄積を行うことを目的とした。

調査は、福島県から宮城県を流れる阿武隈川とその支流並びに福島県の浜通り地域を流れる主要な河川を対象として、各河川に観測地点（総数31地点）を設置した。各地点において、河道内に設置した浮遊砂サンプラーから懸濁物質（SS）を2～3ヶ月おきに回収し、Ge半導体検出器による乾燥重量あたりの $^{137}\text{Cs}$ 濃度を測定した（懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ ）。加えて、連続観測を実施している水位・濁度データを既知の換算式により、流量・SS濃度に換算後、懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度と掛け合わせることで懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ のフラックスを算出した。また、年2回程度（夏季と冬季）に40～100L程度の河川水を採取し、イオン交換樹脂法（環境水等の放射性セシウムモニタリングコンソーシアム監修「環境水中の放射性セシウムの前処理手法・分析法（第2版）」）によりCsを陽イオン交換樹脂に捕集し、樹脂中の $^{137}\text{Cs}$ 濃度をGe半導体検出器により測定した（溶存態 $^{137}\text{Cs}$ ）。

調査の結果、存在形態に依らず河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は共に事故直後から現在まで低下する傾向を示していた。特に、事故後約1年間は急激な低下を示していたが、2年目以降は緩やかな変化となっていた。また、懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ フラックスも、懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の低下に伴い、徐々に低下していた。なお、事故から10年目までのこれらの結果については、データを整理し、ERANの環境放射能データセットウェブサイトへの登録に向けた準備を行っている。

今後も継続して調査を行うことで、河川水中の放射性セシウムの長期的な移行状況について把握するとともに、河川水の安心・安全な利用に資する情報の発信を行うこととする。

### 2. 論文

## 森林管理による流域・プロット土砂流出の変化： 移動土砂量と同位体データを用いて

氏名：笠原 玉青  
受入研究者：恩田 裕一

### 1. 成果

管理放棄された人工林の間伐作業が進む中で、間伐によって変化する水や土砂の流出が下流域に与える影響を理解することは重要である。近年では、2017年に起こった九州北部豪雨など、集中豪雨による斜面崩壊や土石流の被害の報告も増えていて、その際に花崗岩を表層地質に持つ流域の被害の報告も多くあげられている。そこで、本研究では花崗岩地質で急峻な地形をもつ森林流域を調査地とし、本数で50%の強度の点状間伐を行った際の土砂流出の変化を流域とプロットの2つのスケールで考察することを目的とした。また同位体データも用いて、土砂流出の変化を考察した。

調査流域は、福岡県飯塚市に位置し、スギ・ヒノキの人工林が全体を覆う流域面積約3 haの小流域である。年平均降水量は2098 mmで、平均勾配が0.81 m/m、平均河床勾配が0.37 m/mと急峻な地形をもつ。2012年の1~3月にかけて間伐が実施され、本数の50%が伐採され、流域外へ持ち出された。

調査流域では、2011年を間伐前、2013年を間伐後とし、表面流量と渓流量、またそれらにもなって移動した土砂量の測定を行った。表面流に関しては、斜面には幅5 m、長さ10 mの表面流測定プロットを設置し、表面流量と土砂の移動量を測定した。流量に関しては、流域の源流部分と下流端に流量堰を設置し、10分間隔で水位を測定、水位流量曲線から流量を計算した。流量堰に堆積した土砂量を測定し、流路内の土砂移動量とした。下流端に設置された流量堰での浮遊土砂のCs-137濃度の測定も行った。

斜面における土砂移動量は、表面流量と正の相関があり、降雨に関しては降雨強度ではなく、イベント降雨量との相関がみられた。ただし、相関がみられたのは間伐後のみで、間伐前は降雨と土砂移動には有意な関係はみられなかった。間伐によって林床の植生が増えたものの、降雨量が大きいと間伐前に比べて土砂移動量が増えることが示唆された。流路内における土砂移動量に関しては、間伐後のみ測定を実施した。源流部分と下流端では傾向が異なり、源流部分の土砂移動量は最大降雨強度と正の相関がみられたのに対し、下流端では降雨との関係はみられず、ピーク流量と正の相関がみられた。源流部分では、溪畔域が主な土砂供給源であり降雨の影響が強く、下流端では流路に堆積した土砂が主な供給源であることが示唆された。下流端の堰で採取した浮遊土砂のCs-137濃度は、間伐前と比べると、間伐後に低い傾向が見られ、間伐による土砂供給減の変化が考えられた。

### 2. 論文

## 森林流域からの溶存化学成分流出パターンの長期変動

氏名：柴田 英昭

受入研究者：恩田 裕一

共同研究者：福澤 加里部

### 1. 成果

森林生態系の物質循環は気候や大気沈着などの外部要因、生態系内部での植生変化、生物攪乱、土壌内での変化、水文過程などの内部要因が密接に絡み合って時空間的に複雑な挙動を示す。その結果として形成される河川水質の変化を調べることで、森林流域全体の物質循環の仕組みや変動を理解することができる。また、森林流域の物質循環形成機構は多様な時間スケールの影響を受けており、流域を形成する環境変動の規模やパターンによってその河川水質が受ける影響と反応プロセス、メカニズムも異なる。特に気象要素や大気沈着の影響を評価するためには、長期的な視点で河川水質の変動を解析する必要がある。そこで本研究では、森林流域生態系の物質循環の指標として河川水質に着目し、北海道北部の森林河川流域を研究対象とした。雨龍研究林 M1 流域において複数年にわたる河川水質の経年変化と、それに及ぼす要因やメカニズムについて明らかにすることを目的に、河川水のイオン濃度と気象・水文要因、大気沈着データ等と比較解析した。観測期間を通じて、河川水に含まれるナトリウム、カルシウム、マグネシウムイオンの濃度は有意に経年上昇する傾向が認められたのに対し、硫酸イオン(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)は経年低下する傾向が認められた。同時期について、河川流量は有意に経年減少する傾向が見られた。通年の降水量は有意な上昇傾向にあったことから、経年的な河川流量の低下傾向は、高温年による極端気象の影響を反映していることが推察された。河川への流出フラックスから大気沈着フラックスを差し引いた正味収支は、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、アンモニウム(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)、硝酸(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)イオンで負の値を示し、これらのイオンが流域に正味保持されていることを示していた。また、多くのイオン濃度は河川流量との関係性が不明瞭であったのに対し、流域に正味保持されている SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度は流量変動を受けており、流量－水質関係には流域内での物質のソース・シンクの強度が大きく影響していることが示唆された。

### 2. 論文

## 山地上流域における放射性セシウムの降下量と流出量の関係

氏名：五味 高志

受入研究者：恩田 裕一

### 1. 成果

本研究は、福島第一原子力事故後の森林および溪流生態系における放射性セシウム 137 (Cs-137) の減衰や食物網を通じた移行について評価するものである。2021 年の研究では、事故後 5 年後のサンプルの分析を進め、事故直後（1 年後）との森林と溪流の栄養段階別の Cs-137 濃度の比較を行い、食物網における減衰傾向について検討した。

サンプルの採集は、福島県二本松市のスギ人工林に覆われる大沢川流域（初期 Cs-137 沈着量: 100-300kBq/m<sup>2</sup>、流域面積: 170ha）で行われ、森林（林床）と溪流においてリター、昆虫類、カエル類、ネズミ類、魚類を採集した。採集した生物は、種別および利用する餌資源によって分類した 4 つの栄養段階別（一次生産: リター、一次消費者: デトリタス食昆虫類、二次消費者: 肉食昆虫類、上位捕食者: カエル類（森林）、ネズミ類（森林）、魚類（溪流））に Cs-137 濃度を計測・算出した。

腐食連鎖における栄養起源であるリターの Cs-137 濃度の事故後 1 年後から 5 年後において、林床ではサンプル中央値で 24000 Bq/kg から 4500 Bq/kg に 81%減少していた。一方で、溪流においては 8000 Bq/kg から 4300 Bq/kg に 46%の減少にとどまり、減少速度は溪流において低かった。

消費者における Cs-137 濃度は、1 次消費者、2 次消費者、上位捕食者の順に、森林では 500 Bq/kg、150 Bq/kg、160 Bq/kg、溪流では 200 Bq/kg、170 Bq/kg、600 Bq/kg 程度であり（いずれも中央値）、栄養段階が上がると Cs-137 濃度が下がる傾向は事故 1 年後とおおむね同様であった。しかし、それぞれの栄養段階の Cs-137 濃度の減少率は、森林で 76%（デトリタス食昆虫類）、89%（肉食昆虫類）、96%（上位捕食者）に対し、溪流では 68%（デトリタス食昆虫類）、75%（肉食昆虫類）、54%（上位捕食者）であり、溪流の上位捕食者において減少率が低い結果となった。溪流の上位捕食者であるイワナについて、その齢と Cs-137 濃度の関係を事故 1 年後と 5 年後で比較すると、当歳魚（0 齢）の個体は 89%減少していたのに対し、2 歳魚の個体は 65%となったように、高齢の個体ほど減少率は低かったことから、特に高齢の個体の高い Cs-137 濃度がこの結果に影響を及ぼしていると考えられた。本研究では、事故後の時間の経過に伴う森林－溪流生態系において、平均して 70%から 80%程度の Cs-137 の減衰が確認できた。しかし、溪流中のリターや高齢のイワナなど一部の減少速度が小さい栄養段階・分類群があり、必ずしも森林から溪流、あるいは低次消費者から高次消費者へという物質やエネルギーの流れに沿って減少しているわけではないことが明らかになった。

### 2. 論文

## 植物アーカイブ試料を用いた環境トリチウムの遡及的評価法の開発

氏名：柿内 秀樹

受入研究者：恩田 裕一・加藤 弘亮

共同研究者：植田 真司・伊志嶺 聡伸

### 1. 成果

2011年福島第一原子力発電所の事故に伴い多数の放射性核種が拡散したが、そのうちトリチウムの実態は不明である。そこで事故初期に採取された植物試料中のOBTを用いて、簡便に当時の環境トリチウムへの影響評価に資するデータを得る手法を検証した。まず、植物等の有機物試料に含まれるトリチウムには組織自由水型トリチウム(TFWT)と有機結合型トリチウム(OBT)が存在し、さらにOBTは水と容易に同位体交換する交換可能型OBT(exchangeable OBT; Ex-OBT)と炭素骨格に直接結合し、同位体交換しない非交換可能型OBT(nonexchangeable OBT; Nx-OBT)に分類できる。Ex-OBTにはTFWTの同位体情報が履歴として残っている可能性があり、2011年福島県で採取した植物試料を用いて簡便にEx-OBTの評価を行った。具体的操作として植物の乾燥試料に含まれるEx-OBTは、乾燥処理前に存在したTFWTと同位体平衡にあり、Ex-OBTにTFWT濃度が履歴として保存されていると考えられるため、乾燥保存した植物試料に対し、トリチウムが含まれていない水(無 $3H$ 水)を添加するとEx-OBTと同位体交換するため、この水を抽出してトリチウムを測定してFWT濃度を推定した。その結果実測によるFWT濃度と交換型OBT分析の推定値は一致し、手法の妥当性が示された。

### 2. 論文

## 湖沼堆積物に記録された 1950 年以降の I-129 と Cs-137 の沈着量変動

氏名：松中 哲也

受入研究者：笹 公和・末木 啓介

### 1. 成果

【はじめに】 地球温暖化に対する日本海における海洋循環の応答性を検知するために必要な海洋循環トレーサーとして、長寿命の 129I の利用が期待されている。しかしながら、日本海におけるその主な供給源、供給プロセス、および供給量の実態を把握する必要がある。本研究は、主に人類の核活動（核燃料再処理・核実験・原子力発電所事故）に起因する 129I と 137Cs について、日本海域における 1950 年以降の沈着量変動を明らかにすることを目的とする。日本海に面した能登半島の湖沼堆積物に記録された 129I (T1/2: 1570 万年)・137Cs (T1/2: 30.1 年)・210Pb (T1/2: 22.3 年) の計測を詳細に実施し、堆積物の堆積年代を決定すると共に、129I・137Cs の沈着フラックスを評価する。

【試料と方法】 能登半島の七尾市の貯水池において、2011 年 12 月に採取された B11-1 コア（長さ 63 cm）について 1 cm 毎に分割した堆積物を分析試料とした。均一化した乾燥堆積物（乾燥重量：1.5 g 程度）をプラスチック容器に密封し、金沢大学 LLRL の Ge 半導体検出器を用いて 210Pb と 137Cs を測定した。堆積物からの 129I の抽出・精製を実施するための前処理システム（熱加水分解法と溶媒抽出・逆抽出）は 129I バックグラウンドが低い金沢大学 LLRL で新たに立ち上げ、実施した。堆積物（0.5 g）から生成した燃焼ガスをトラップしたアルカリ溶液に対し、1 mg の 127I キャリア（Deepwater iodine, 129I/127I:  $\sim 1 \times 10^{-14}$ ）を加えて同位体希釈を行った後、ヨウ素を溶媒抽出・逆抽出で精製し、硝酸銀を添加してヨウ化銀ターゲットを作製した。筑波大学応用加速器部門の加速器質量分析計でターゲットの 129I/127I 比を測定し、Purdue 1 (129I/127I:  $8.38 \times 10^{-12}$ ) を標準として規格化した。ICP-MS を用いて試料の 127I 濃度を測定した後、129I 濃度を算出した。試料（B11-1 コア）の放射性核種（137Cs、210Pb、129I）測定を行い、137Cs と 210Pb に基づく堆積層の形成年代と主に核燃料再処理施設から大気経由で供給される 129I の沈着量変動を解析した。

【結果と考察】 堆積物中の余剰 210Pb (210Pbex) 濃度は、表層から深度 29 cm において 84.2-739 Bq/kg（試料採取日に壊変補正済）の範囲にあり、深度 29 cm 以深では未検出であった。質量深度 (Mass depth: g/cm<sup>2</sup>) に対する余剰 210Pbex の自然対数の深度分布を基に、堆積速度を解析した結果、表層から 0.836 g/cm<sup>2</sup>/yr（深度 0-7.5 cm）、0.0638 g/cm<sup>2</sup>/yr（深度 7.5-15.5 cm）、0.219 g/cm<sup>2</sup>/yr（深度 15.5-24.5 cm）、及び 0.0332 g/cm<sup>2</sup>/yr（深度 24.5-29.0 cm）と変化することが分かった。一方、137Cs 濃度は、表層から深度 29 cm までにおいて 8.6-71.2 Bq/kg（試料採取日に壊変補正済）の範囲にあり、深度 26-27 cm に極大を示す深度分布であった。この 137Cs の極大層は、210Pb から算出した堆積速度を基にすると

西暦 1962 年に形成されたことが分かった。従って、対象とした堆積物は大気核実験に起因する  $^{137}\text{Cs}$  を明瞭に記録していること、及び  $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  に基づく年代モデルが正しいことが確認された。堆積物中の  $^{129}\text{I}$  について、8 試料について試験的に前処理と測定を行った。堆積物中の  $^{129}\text{I}$  は  $0.04\text{--}33.9 \mu\text{Bq/kg}$  の範囲にあり、沈着量に換算すると  $0.01\text{--}67.4 \mu\text{Bq/m}^2/\text{yr}$  であった。 $^{129}\text{I}$  沈着量は、西暦 1946 年以前は  $0.01\text{--}0.06 \mu\text{Bq/m}^2/\text{yr}$  と低いレベルであったのに対し、西暦 1962 年以降漸増する傾向を示した。この傾向は、西暦 1950 年以降の核燃料再処理に伴って、大気放出された  $^{129}\text{I}$  の沈着量が増加したことを示唆していると考えられる。更に  $^{129}\text{I}$  測定に実施し、高解像度の  $^{129}\text{I}$  着量変動を解析する予定である。

## 2. 論文

Mutsuo Inoue, Shotaro Hanaki, Ryosei Takehara, Hisaki Kofuji, Tetsuya Matsunaka, Hiroshi Kuroda, Yukiko Taniuchi, Hiromi Kasai, Takami Morita, Shizuho Miki, Seiya Nagao (2021) Lateral variations of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{228}\text{Ra}$  concentrations in surface waters in the western North Pacific and its marginal sea (2018–2019): Implications for basin-scale and local current circulations *Progress in Oceanography* 195 102587-102587

## マメ科植物ルーピンの放射性セシウム吸収と分配に関わる輸送体の探索

氏名：丸山 隼人

受入研究者：古川 純

共同研究者：久保 堅司

### 1. 成果

ERAN 2021 年度共同研究成果報告書 応募課題名： マメ科植物ルーピンの放射性セシウム吸収と分配に関わる輸送体の探索 研究種目： 重点共同研究 研究代表者： 丸山隼人（北海道大学） 共同研究者： 久保 堅司（農業・食品産業技術総合研究機構）、菅 あやね（北海道大学 修士1年） 受入研究者： 古川 純（筑波大学） <背景と目的> マメ科植物のルーピンは放射性セシウム(RCs)の吸収能がダイズと比較して非常に高い。ルーピンはクラスター根を発達させることで知られており、土壌中のリンなどの元素を可給化し吸収する。クラスター根圏ではカリウム (K) やセシウム(Cs)の可給化や吸収も同時に起きる可能性が考えられているもののこれら機構に関わる輸送体の知見はない。先行研究において、ルーピンも他の作物同様に土壌中の交換性 K 濃度が高まると RCs の移行係数は下がることや、ナトリウム(Na)の吸収が高い品種では RCs 吸収が低い傾向が見いだされ、植物体内への K や Na の取り込みが Cs の体内移行に関わる可能性がある。そこで本研究では、ルーピンの RCs 吸収と蓄積に寄与する輸送体の探索を目的とした。 <材料と方法> ルーピン（品種: Kievskij）を人工気象器内で約3週間水耕栽培した。水耕栽培を開始してから2週間後に K 濃度を4段階(30,100,500,3000  $\mu\text{M}$ )、Cs 濃度2段階(0, 0.1  $\mu\text{M}$ )の全8処理にかけ、植物体の部位ごとの元素濃度を ICP-MS にて測定した。K100, 3000  $\mu\text{M}$  処理の根のサンプルから RNA 抽出、ライブラリ調整を行い、RNA-Seq による網羅的遺伝子発現解析を行った。 <結果と考察> 1週間の K 処理では生育や K 濃度に大きな差は見られないが、K 濃度が低い場合に Cs を多く吸収する吸収の拮抗が確認できた。体内の分配を見たところ、Cs は K 濃度が高い場合に葉へ（根から地上部へ）多く移行する傾向が確認でき、体内での K と Cs 分配は制御が異なる可能性がある。体内分配係数 (DF) を計算した結果、Cs の移行は K 濃度が高い場合には選択性が低く、K 濃度が高い場合には Na 吸収が Cs により影響を受けていた。RNA-Seq の結果、K 処理による発現変動遺伝子が確認できなかった一方で、Cs 処理で発現が大きく変動する遺伝子がいくつか存在していた。今後詳細な調査を実施し、Cs の吸収や分配へ関与を明らかにしたい。

### 2. 論文

## イネのセシウム吸収経路の全容解明

氏名：頼 泰樹

受入研究者：古川 純

共同研究者：佐々木 翔渚

### 1. 成果

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<sup>+</sup>輸送体であるOsHAK1からほとんどのCs<sup>+</sup>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OsHAK1以外のCsの吸収・輸送を担う輸送体の特定およびCsの体内輸送系の解明を目指してきた。今年度は新型コロナの影響で予定していたトレーサー実験の実施が困難な期間もあり、おもにポット栽培の実験系においてK、Csの体内輸送系の違いについて解析を進めた。

実験材料は野生型（あきたこまち）、oshak1変異体2系統を用いた。

実験方法として

- ① K濃度を4段階 200, 400, 600, 800ppm, Cs（ $^{134}\text{Cs}$ ：安定同位体）が1ppmとなるように調整した土壤を充填した1/5000aワグネルポットで水稻を栽培し、
- ② 分けつ期、出穂期、登熟期、収穫期と経時的に植物体を採取
- ③ 各部位の重量及び元素濃度を分析して、K、Csの体内分配を解析した。

その結果

野生型では土壤のK濃度が高いほど茎、葉、玄米のCs濃度は競合により低下した。

それに対し、oshak1変異体は茎のCs濃度には土壤のK濃度の影響はなく、葉と玄米については200ppmKでCs濃度が比較的高く、400~800ppmKではその半分以下とCs濃度は低下した。

このことは植物体全体に取りこまれるCs濃度はoshak1のノックアウトにより大幅に減るが、取りこんだ一部のCsの体内分配についてもOsHAK1が何らかの役割を果たしていると考えられ、現在解析を進めている。

### 2. 論文

## イネの Na、K、Cs 輸送イメージング

氏名：菅野 里美

受入研究者：古川 純

共同研究者：Nathalie LEONHARDT

## 1. 成果

イネ HKT2;1 遺伝子は、ナトリウムとカリウムを輸送体であるが、先行研究の電気生理学の実験により Cs の輸送についても確認されている。そのため、HKT2;1 遺伝子の欠損株 (oshkt2;1) は、Cs 輸送が減少するということを予測し、2018 年より福島でのセシウムを含む圃場実験を進めてきた。その結果、予想とは逆に oshkt2;1 において Cs 吸収が高まるという結果を得ている。さらにサンプル茎葉のナトリウム、カリウム量を測定したところ、茎葉の乾重量あたりのカリウムは、野生型株と変異体株において同等であるのに対しナトリウムは、変異体株で減少した。このことから体内の Na と Cs 量に負の相関があることが分かっている。そのため、本研究は、OsHKT2;1 の欠損により変化する、Na、K、Cs の吸収分配を明らかにすることを目的としている。

野生型株と oshkt2;1Na、K、Cs 輸送を比較するために実験室水耕栽培系により、Na、K、Cs の放射性トレーサ実験を行い、イメージングプレートによる根と茎葉の分配イメージング、ガンマカウンタでの乾重量あたりの取り込み量測定により 3 つの元素の輸送の違いを解析した。まず、圃場実験の結果を実験室水耕栽培系にて再現するにあたり、圃場の土壌水溶液中のナトリウム(300-800  $\mu\text{M}$ )、カリウム濃度(20-40  $\mu\text{M}$ )を参考にし、異なる K/Na 濃度比で 12 日間栽培したイネに 2 日間 放射性 Cs トレーサを取り込ませ、ガンマカウンタにて測定したところ K 20  $\mu\text{M}$ /Na 300  $\mu\text{M}$  の条件下では、圃場実験の結果と同様に変異体株の Cs 吸収が高くあった。次に、Na の影響を理解するため、100  $\mu\text{M}$  のカリウム濃度条件で健康なイネを栽培し、そこから 10  $\mu\text{M}$  の低カリウム条件下におき、5 日目に輸送体遺伝子の発現量が増加していたため、10  $\mu\text{M}$  の栽培期間を 5 日間とした。その後、Na、K、Cs の放射性トレーサを 2 日間投与し、トレーサの測定を基として取り込まれた Na、K、Cs を乾重量あたりのモル数として求めた。放射性トレーサの吸収比較実験の際の培地のナトリウムの濃度は、10  $\mu\text{M}$ -50 mM まで設けた。Na10 mM までの条件では、Na は、根も地上部も共に、常に oshkt2;1 は野生型株に比較して低くありました。しかしながら Cs 量の差は地上部のみで顕著でした。またこの差は 10  $\mu\text{M}$ 、50 mM では見られませんでした。oshkt2;1 の Cs 量は Na 濃度 0.5-10 mM でほぼ一定であるのに対して野生型株の Cs 量は Na の増加により減少した。

以上から、圃場で見られた現象は、oshkt2;1 の Cs 吸収が上昇したのではなく、比較対象の野生型株の Cs 吸収が抑制される現象であったことが示唆された。今後は、輸送を担う因子を明らかにしていく予定である。

今年度は、コロナウィルス蔓延の状況から所属大学において出張が認められない時期があ

り、予定通り研究を進めることは困難であったが、受け入れ研究者の古川純准教授のご尽力により十分な結果を出すことができた。上記の結果は、2021年7月7日アイソトープ研究会、2022年3月22日植物生理学会年会にて発表済みである。

## 2. 論文

## 大気と植物・菌類間の放射性セシウム移行可能性の研究

氏名：北 和之

受入研究者：古川 純・羽田野 祐子

共同研究者：林 奈穂・加納 瑞季・五十嵐 康人・保坂 健太郎

### 1. 成果

(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。我々のグループでは、浪江町の森林の近傍の未除染地区において大気粒子の連続サンプリングを行い、大気中の放射性セシウムの動態を調べている。その結果、夏季に大気セシウム<sup>137</sup> (Cs-137) 放射能濃度が増加し、その原因は主にこの時期に増加する植生から放出される粗大有機物粒子(バイオエアロゾル)であり(Igarashi et al., 2019)、それを純水抽出すると50-90%のセシウム<sup>137</sup> が水中に脱離することが分かった。本共同研究は、この大気粒子から純水中に脱離する Cs-137 が、植物に吸収され植物—大気での循環が起ころうのか、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。本研究では、下記のサンプリングおよび実験により目的にアプローチした。1) 上記サイトにおいて、大気粒子を1か月程度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 Cs-137 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、Cs-137 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 Cs-137 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 Cs-137 を比較し、大気・降水起源の寄与を推定する。2018年および2021年について、ほぼ1年を通し、おおよそ1か月大気粒子を連続的に捕集した試料を対象とした。大気 Cs-137 放射能濃度は、2年とも過去の観測(Kinase et al., 2018)と同様に、春に比較的小さいピーク、8-9月に最大のピークを持つ季節変化を示した。純水抽出し Cs-137 が純水に脱離する割合を調べたところ、春のピークでは約45%、夏のピークでは60~70%が純水中に抽出された。この抽出で得られた溶液中に微細な(不溶性)土壌鉱物が混入していないか SEM-EDS 分析で調べたが、検出されなかったことから、純水中に抽出されたほぼすべての Cs-137 が水溶性であると考えられる。この抽出液でイネを栽培したところ、おおむね純水抽出液中の Cs-137 放射能に比例する形で、イネの根部および地上部に 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。多くのサンプルでは、誤差の範囲内で純水抽出液中の Cs-137 はほぼ100%イネの根部あるいは地上部に移行したが、2年とも6-7月のサンプルでは、移行割合が根部と地上部合計で約70%と、有意に100%より低い結果が得られた。このイネへの吸収割合が低い原因について、抽出液中のカリウムイオン(K<sup>+</sup>)濃度が高く、Cs吸収が阻害されたためではないかと考え、純水抽出溶液のイオン組成を調べたが、これらイ

ネへの吸収割合が低い試料において有意に K<sup>+</sup>濃度が高いといった関係は見られず、今のところ原因は不明である。これまでの結果により、大気 Cs-137 放射能濃度に強い正相関を示す形で、春および夏から秋にかけての大気 Cs-137 のかなりの部分（約 50%以上）が植物に吸収されうる水溶性であることが分かった。この大気起源の Cs-137 が、植物体内に吸収されるものの、大きな寄与をしているかどうかを、観測サイトでの植物を栽培実験により今後検討していく予定である。

## 2. 論文

Kajino et al., Reassessment of the radiocesium resuspension flux from contaminated ground surfaces in eastern Japan, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 783–803, 2022 (<https://doi.org/10.5194/acp-22-783-2022>)

Tang et al., Atmospheric resuspension of insoluble radioactive cesium-bearing particles found in the difficult-to-return area in Fukushima, *Progress in Earth and Planetary Science* 9:17, 2022, <https://doi.org/10.1186/s40645-022-00475-6>)

## 環境中に放出された $^{135}\text{Cs}$ 分析の精密化を目的とした セシウム同位体標準液の開発

氏名：浅井 志保

受入研究者：坂口 綾

### 1. 成果

【背景】  $\text{Cs-135}$  は半減期が 230 万年であり環境中に長期間存在し続けることから、 $\text{Cs-137}$  に代わる環境動態用トレーサーとして注目されている。加えて、廃炉にともない大量に発生する放射性廃棄物の長期安全評価の対象核種でもあるため、近年、 $\text{Cs-135}$  分析の重要性がますます高まっている。しかしながら、測定基準となる  $\text{Cs-135}$  標準液の入手が困難であり、分析値の信頼性が十分に検証できないことが課題となっている。

【研究の目的】 本研究では、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) を用い、産総研計量標準総合センター (NMIJ) が管理する認証標準物を基準として  $\text{Cs}$  同位体を値付けすることにより、信頼性の高い  $\text{Cs}$  同位体標準液を開発することを目的とした。

【方法】 市販の  $\text{Cs-137}$  標準液中には、 $\text{Cs-135}$  および  $\text{Cs-133}$  (安定同位体、天然存在率 100%、核分裂でも生成する) が共存していると予想された。そこで本研究では、まず、認証標準物質であるセシウム標準液 (NMIJ CRM) を基準とし、日本アイソトープ協会から購入した  $\text{Cs-137}$  標準液中の  $\text{Cs-133}$  の質量分率を決定した。つぎに得られた値と  $\text{Cs-135}/\text{Cs-133}$  実測比から  $\text{Cs-135}$  の質量分率を算出した。頒布用溶液の  $\text{Cs-137}$  標準液原液からの希釈率は、NMIJ 放射能中性子標準研究グループの協力により、JCSS (計量法トレーサビリティ制度) にしたがって校正されたマイクロ天秤を用いて精確に算出した。

【結果】 調製した希釈液の ICP-MS 測定で得られる  $\text{Cs-133}$  および  $\text{Cs-135}$  の定量値の拡張不確かさは 2~4% であり実試料分析用の標準液としての適用を十分に見込める範囲であった。また、 $\text{Cs-135}$  の主な測定干渉要因である  $\text{Ba-135}$  については、希釈液中  $\text{Ba-138}$  の計数率とブランク試料中  $\text{Ba-138}$  の計数率に有意な差がなかったことから、頒布用希釈液中においてその影響が無視できることを確認した。さらに全質量数範囲で測定したところ、明確な干渉要因となる共存元素 (核種) の存在は認められなかった。したがって、化学分離等による精製操作なしで標準液として使用できることがわかった。今後は、不純物評価や補正法の確立を進めて  $\text{Cs-135}$  標準液調製法として完成させ、これまでにない「一般ユーザー向けの実用標準液」としての頒布を目指す。

### 2. 論文

## 環境中ネプツニウム測定用 AMS トレーサー調製法の検討

氏名：横山 明彦

受入研究者：坂口 綾

共同研究者：永井 歩夢

## 1. 成果

【はじめに】  $^{237}\text{Np}$ ( $T_{1/2}=2.1\times 10^6\text{y}$ ) 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。 $\text{Np-237}$ 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  $\text{Np-236g}$ ( $T_{1/2}=1.5\times 10^5\text{y}$ )の製造が検討されている。 $\text{Np-236g}$ の製造法として  $\text{Th-232}$ に  $\text{Li-7}$ を照射する方法が検討しているが、生成物はターゲット由来の多量の  $\text{Th}$ 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。昨年度、Aliquat336を用いた溶媒抽出による  $\text{Th}$ からの  $\text{Np}$ 分離をすでに試みているが、十分な  $\text{Th}$ 除去率(分離係数)を得ることができなかった。今年度は  $\text{Th}$ から  $\text{Np}$ に対する分離係数の向上を目的に、 $\text{Ge}$ 半導体検出器で  $\gamma$ 線が容易に測定可能な  $\text{Np-239}$ を用いて化学分離スキームの改善を行った。

【実験】 Aliquat336が30wt%になるように溶解させたベンゼンを使用して、 $\text{Th}$ から  $\text{Np}$ を分離する溶媒抽出実験を行った。実験手順は、まず  $\text{Am-243}$ からのミルキングで得られた  $\text{Np-239}$ 溶液に  $\text{Th-232}$ 溶液( $\text{Th}$ 45mg含む)を加えて蒸発乾固した。この試料を、昨年度の成果より高収率が確認された  $\text{HCl}$ 溶液(7M, 8M, 9M)で溶解し、アスコルビン酸で  $\text{Np}$ の価数を調整して、Aliquat336/ベンゼン溶媒による抽出を実施した。化学分離スキームの改善として溶媒抽出後の精製を複数回(1~3回)試行した。抽出相から  $\text{Np}$ を0.5M硝酸で逆抽出し、 $\text{Np}$ の  $\gamma$ 線を測定して  $\text{Np}$ 回収率を求めた。また  $\text{Th}$ 原子数を ICP-MS 測定することにより  $\text{Th}$ 除去率を求め、分離係数を得た。

【結果と考察】 溶媒抽出実験における回収率及び分離係数の速手の結果、塩酸濃度7M~9Mの条件では高回収率80~90%が得られ、昨年度の実験結果と比較して再現性があることが確認された。また ICP-MS 測定により求めた分離係数(除去係数)は、精製回数1回では  $10^3\sim 10^4$ となり、3回では  $10^6\sim 10^7$ と大幅に改善された。実際の AMS 利用のためには  $10^8$ は必要であると考えられるので、溶媒抽出後に TEVA 樹脂によるカラム分離を併用することで、さらなる分離係数向上が期待される。また、別に同じ液量で  $\text{Th}$ を5倍に増量した実験( $\text{HCl}$ 溶液8M条件)では溶媒抽出の収率が低下したので、今後、化学分離のスケールアップが必要と考えている。

## 2. 論文

Measurement of the isotopic ratio of Np-236 to Np-237 in Th-232 + Li-7 reaction products by using accelerator mass spectrometry, A. Nakajima, K. Teranishi, A. Yokoyama, A. Sakaguchi, K. Hain, R. Morita,, A. Seto, A. Nagai, D. Mori, Y. Komori, T. Yokokita, Y. Wang, H. Haba, RIKEN Accelerator Progress Report 54 (2021), 142.

## 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及び 放射性微粒子の影響研究

氏名：星 正治

受入研究者：坂口 綾・恩田 裕一

共同研究者：佐藤 斉・遠藤 暁・藤本 成明・七條 和子

### 1. 成果

本研究の研究代表者とそのグループは1994年から、カザフスタンの旧ソ連核実験場周辺で放射線とその人体への影響について研究を行ってきた。その後、ウラン鉱山地帯のあるステップノゴルスク市及びその近郊での自然放射能についても調査してきた。本研究ではカザフスタンでこれまで行ってきた、大気中の塵や水試料の収集と測定、放射能を帯びた微粒子の曝露による生物影響研究を引き続き継続する。これまでの成果の一つとして、動物実験の結果、放射性微粒子の肺への影響が20倍以上あることを発見した。このことは昨年度に報告している。今年度はそのうち、ステップノゴルスク市近郊のアクス村でのラドンの測定について報告する。カザフスタンには多くのウラン鉱山や精錬所があり、それからの放射能や重金属が地域住民に与える影響についても調査をはじめた。カウンターパートは、アスタナ医科大学のメイラット・バフティン教授、ユーラシアン大学のカシム・ズマジーロフ教授らを中心としたグループで、測定などを依頼した。今回、ステップノゴルスク市近郊のアクス村において、ラドンビジョン7 (SARAD社製) を用いてラドン測定を行った。特に、ウラン工場貯水池に近い小学校の校舎内で、平均で3,000-4,000 Bq/m<sup>3</sup>、最大で8,000 Bq/m<sup>3</sup>という高い値が確認された。一方、学校外では30 Bq/m<sup>3</sup>程度であった。カザフスタンでの規制値は200 Bq/m<sup>3</sup>以下とされており、IAEA、ICRP、WHOでは300 Bq/m<sup>3</sup>が対策すべきレベルとされている。従って、学校の強制換気など、何らかの防護策を講じる必要がある。メイラット・バフティン教授からは、この結果をその地方の担当部署に報告し、調査を行ったと報告があった。そして、校舎内の換気設備が壊れていたことが分り、それを修理した後は正常なレベルに戻ったと報告があった。今回の測定は小学校だけであるので、今後その地域全体を測定する計画である。また、その原因も考え効果的な対策を講じる必要がある。加えて、大気中のエアロゾルを採取して放射能や重金属を測定し、住民への影響を検討する。

### 2. 論文

1. Inoue K, Apbassova M, Hoshi M, Takeichi N, Noso Y, Ohira Y, Shabdarbayeva D, Chaizhunusova N, Zhunussov YT, Fujihara J, Kimura-Kataoka K, Fujita Y, Takeshita H. The indicators associated with increasing suicide trends: Need for harmony in discussing suicide in legal medicine and other fields. *Leg Med (Tokyo)*. 2021; 50: 101820-101820. doi: 10.1016/j.legalmed.2020.101820.
2. Ken Inoue, Yoshiyuki Ohira, Sadayuki Hashioka, Takuji Inagaki, Haruo Takeshita,

- Yasuyuki Fujita, Yuri Murayama, Shigeto Moriwaki, Nobuo Takeichi, Yoshihiro Noso, Masaharu Hoshi, Decreasing suicides: The importance of discussion using suicide statistics. *Journal of St. Marianna Medical Institute* 2021, 21 (96) 13-15, ISSN 1346-1478
3. Masaharu Hoshi, Radioactive microparticle effects found in animal experiments. *The Innovation Platform* ISSUE 5, *Innovation News Network* 2021, 274, 186-188, <https://www.innovationnewsnetwork.com/effects-of-radioactive-microparticles-found-in-animal-experiments/9639/>.
  4. Nariaki Fujimoto, Bakhyt Ruslanova, Zhaslan Abishev, Nailya Chaizhunosova, Dariya Shabdarbayeva, Gaukhar Amantayeva, Rakhimzhanova Farida, Marat Sandybayev, Kasuke Nagano, Kassym Zhumadilov, Andrey Kaprin, Sergey Ivanov, Valeriy Stepanenko, Masaharu Hoshi, Biological impacts on the lungs in rats internally exposed to radioactive  $^{56}\text{MnO}_2$  particle. *Scientific Reports*, 11, 11055, 2021, <https://doi.org/10.1038/s41598-021-90443-9>
  5. Stepanenko V.F., Kaprin A.D., Ivanov S.A., Shegay P.V., Kolyzhenkov T.V., Bogacheva V.V., Iaskova E.K., Petukhov A.D., Karyakin O.B., Kiseleva M.V., Krikunova L.I., Borysheva N.B., Biryukov V.A., Rukhadze G.A., Kucherov V.V., Korotkov V.A., Ivannikov A.I., Khailov A.M., Zharova E.P., Zhumadilov K.Sh., Endo S., Hoshi M. 35 years after the Chernobyl NPP accident: Methods of retrospective dosimetry in assessing of the consequences of large-scale uncontrolled radiation exposures, their subsequent development and application in oncoradiology (experience of A. Tsyb MRRC). *Radiation and Risk*, 2021, 30(2), pp. 7–24.
  6. Azumi Todaka, Shin Toyoda, Nariaki Fujimoto, Hitoshi Sato, Valeriy Stepanenko, Noriyuki Kawano, Nailya Chaizhunosova, Darkhan Uzbekov, Ynkar Kairkhanova, Bakhyt Ruslanova, Zhaslan Abishev, Gaukhar Amantayeva, Dariya Shabdarbaeva, Kassym Zhumadilov, Almas Azhimkhanov, Masaharu Hoshi, ESR tooth enamel doses of rats and mice exposed to radioactive  $^{56}\text{MnO}_2$  dust. *Advances in ESR Applications*, 2021, 37, 13-18.
  7. Bakhyt Ruslanova, Zhaslan Abishev, Nailya Chaizhunosova, Dariya Shabdarbayeva, Sholpan Tokesheva, Gaukhar Amantayeva, Ynkar Kairkhanova, Valeriy Stepanenko, Masaharu Hoshi and Nariaki Fujimoto, Hepatic Gene Expression Changes in Rats Internally Exposed to Radioactive  $^{56}\text{MnO}_2$  Particles at Low Doses. *Curr. Issues Mol. Biol.* 2021, 43, 758–766. <https://doi.org/10.3390/cimb43020055> <https://www.mdpi.com/journal/cimb>.
  8. Ken Inoue, Nursultan Seksenbayev, Nailya Chaizhunosova, Timur Moldagaliyev, Nargul Ospanova, Sholpan Tokesheva, Yersin T. Zhunosov, Nobuo Takeichi, Yoshihiro Noso, Masaharu Hoshi and Noriyuki Kawano, An Exploration of the Labor, Financial, and Economic Factors Related to Suicide in the Republic of Kazakhstan. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 2021, 18, 6992. <https://doi.org/10.3390/ijerph18136992>

<https://www.mdpi.com/journal/ijerph>.

9. Ken Inoue, Noriyuki Kawano, Nobuo Takeichi, Yoshihiro Noso, Masaharu Hoshi, A combined scientific and public health approach is needed to evaluate the health impacts of internal exposure to radiation. *The Lancet Regional Health - Western Pacific* 15 (2021) 100296. journal homepage: [www.elsevier.com/locate/lanwpc](http://www.elsevier.com/locate/lanwpc)

## 放射性セシウム含有微粒子の多角的精密解析に基づく炉内条件と 環境影響の解明

氏名：宇都宮 聡

受入研究者：山崎 信哉

### 1. 成果

1. 緒言 2011年3月に福島原発で起きた原子力災害により520 PBqの放射性核種が放出された。なかでも $^{137}\text{Cs}$ は半減期が約30年と比較的長く、現在も環境中の高線量の要因となっている。環境中に放出された難水溶性Csの1つの形態として1号機由来の放射性粒子が存在する。粒径が数百 $\mu\text{m}$ と比較的大きく、1粒子あたりの放射能が高い。1号機由来粒子は原発から北北西方向の局所的な場所からのみ発見されており、この場所は1号機の水素爆発による放射性核種が沈着したことで、その周囲よりも特異的に線量が高くなっている。本研究ではこの北北西高線量帯の表層土壌から非常に放射能が高い粒子(SR1P: Super-Radioactive Unit 1-Derived Particles)の単離に成功したので、発表ではSR1Pの精密分析の結果を発表する。

2. 実験 2018年8月に福島県双葉郡双葉町で採取した土壌から、2つのSR1P(FTB1、FTB26)を単離した。Ge半導体検出器を用い放射能を測定後、SEM/TEM-EDXを用いて構造・組成分析を実施した。また、より放射能の高かったFTB26についてはXRFによる詳細な組成分析の後、X-CTにより粒子の3次元像の構築を行った。更に粒子表面及び粒子断面に対してSIMSによるCs、B同位体比分析を行った。断面試料は、粒子を二等分した後、表面をダイヤモンド研磨して作成した。断面の一部をFIBで加工しTEM/STEM-EDX、EELS分析を行った。

3. 結果・考察 今回単離したFTB1とFTB26の $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 放射能はそれぞれ $6.02 \times 10^5 \text{ Bq}$ 、 $2.48 \times 10^6 \text{ Bq}$ 、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は0.971、0.954であり、1号機由来の放射性粒子であることが確認できた。FTB26に関しては、これまでに報告されている福島原発由来の放射性粒子の中で最高の放射能を持っていた。FTB1は粒径が300 $\mu\text{m}$ 程で主にO,Al,Si,Feから構成されていた。さらに、1号機由来粒子としては初めてSEM-EDXでCsが検出され、Csを比較的高濃度に含有していた。TEM分析よりFTB1はアルミノシリケートの相に均一にCsを保持していることが分かった。FTB26は粒径が約3mmと大きく、歪な形状の放射性粒子だった。組成分析の結果、主成分はCで構成され、表面にはSiが主成分の微粒子や繊維状の微粒子が点在しており、これまでの1号機由来粒子とは異なる組成、形状を呈していた。XRF、X-CTから、粒子表面にのみ高密度な部分が存在し、粒子内部は低密度かつ多孔質な構造であることが分かった。更に、断面の組成分析及びEELSの結果から、FTB26はガラス様炭素を中心核として、建屋内建造物由来とされる微粒子が外縁部に埋め込まれた構造をしていた(図1)。この組織は1号機水素爆発発生的一瞬间

に建屋内で充満していた大気微粒子を捕獲したものと考えられる。また、同位体比分析の結果、ガラス様カーボンコアから B、Cs は検出されず、表面の微粒子からのみ B、Cs が検出された。11B/10B は 4.13 – 4.28 であり、天然存在比(4.05)よりも高い値を示した。これは B が制御棒由来で、中性子吸収反応により 10B が消費された痕跡を反映している。また、Cs が水素爆発以前に揮発し、圧力容器から原子炉建屋内部に放出された後に建屋内建造物に吸着していたことを示唆している。

## 2. 論文

K. Morooka, E. Kurihara, M. Takehara, R. Takami, K. Fueda, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, T. Ohnuki, B. Grambow, G. T.W. Law, J. W.L. Ang, W. R. Bower, J. Parker, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, New highly radioactive particles derived from Fukushima Daiichi Reactor Unit 1: Properties and environmental impacts, *Science of The Total Environment*, 773 (2021) 145639. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.145639>. 9.

T. Ikenoue, M. Takehara, K. Morooka, E. Kurihara, R. Takami, N. Ishii, N. Kudo, & S. Utsunomiya, Occurrence of highly radioactive microparticles in the seafloor sediment from the pacific coast 35 km northeast of the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *Chemosphere*, 267 (2021) 128907. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.128907> 10.

W. Zouari, T. S. Muresan, T. Kobayashi, S. Utsunomiya, A. Abdelouas, & B. Grambow, Solubility of monoclinic and yttrium stabilized cubic ZrO<sub>2</sub>: solution and surface thermodynamics guiding ultra-trace analytics in aqueous phase. *Journal of Nuclear Materials*, 545 (2021) 152631. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2020.152631>

## 人形峠におけるウランとラジウムの環境動態研究

氏名：田中 万也

受入研究者：山崎 信哉

共同研究者：栗原 雄一

## 1. 成果

研究背景及び目的 人形峠は、岡山県と鳥取県の県境に位置し、周辺地域には砂岩型の旧 U 鉱床が分布している。JAEA 人形峠環境技術センター内には、かつての U 鉱石採掘による坑道の跡が残っている。坑道に流入した地下水が U 鉱石と接触することで発生する坑水には、一般的な環境水に比べて高濃度の U や Ra が含まれている。また、地下を経由して現れる坑水は、還元的事から Fe<sup>2+</sup>や Mn<sup>2+</sup>を含んでいる。地表に現れた坑水は最終的に、鉱さいたい積場に流入し、U や Ra を吸着した Fe(III)水酸化物や Mn(IV)酸化物が堆積する。本研究では、こうした準天然環境を活かして U と Ra の環境動態を明らかにすることを目的とした。試料及び分析 人形峠センターの鉱さいたい積場において堆積物と水試料を採取し、それぞれ U 及び <sup>226</sup>Ra(半減期 1601 年)濃度分析を行った。堆積物試料は乾燥の後、<sup>226</sup>Ra 濃度分析のためにメンタム缶(スチール製)に封入し放射平衡に達するまで保管した。その後、Ge 半導体検出器を用いて子孫核種等のガンマ線を計測することにより U 及び <sup>226</sup>Ra 濃度を定量した。水試料は硝酸を用いて pH2 に調整した後、硫酸バリウム共沈法により <sup>226</sup>Ra の前濃縮を行った。回収した硫酸バリウムを乾燥した後、ポリエチレンバッグに二重に封入し放射平衡に達するまで保管した。その後、堆積物試料と同様にガンマ線計測を行った。水試料の U 濃度は ICP-MS を用いて定量した。濃度堆積物に含まれる Fe(III)水酸化物の鉱物組成を調べるために、Fe-K 吸収端 X 線吸収端近傍構造(XANES)スペクトル測定を行った。

結果及び考察 堆積物試料の主要な構成物質としては、坑水に含まれる二価 Fe の酸化により形成される鉄水酸化物と鉱さいたい積場に自生するヨシに由来する植物片などが考えられる。XANES スペクトルの解析結果から、鉄水酸化物はフェリハイドライトとゲーサイトからなることが分かった。堆積物試料中の U 濃度は、260 ~ 1850 ppm であった。一般的な岩石や堆積物試料の U 濃度が 2 ~ 10 ppm 程度であることを考えると、これはかなり高濃度と言える。水試料中の U 濃度は 4.7 ~ 17 ppb であった。一方、河川水中の U 濃度は 0.04 ppb 程度である。坑水に含まれていた U が鉄水酸化物の形成とともに除去されたことを考慮しても、一般的な表層水に比べると 100 倍以上高い U 濃度であった。堆積物と水試料の U 濃度から見かけの固液分配係数を求めた結果、 $0.28 \sim 2.7 \times 10^5$  (mL/g)であった。堆積物試料中の <sup>226</sup>Ra 濃度は、12000 ~ 29000 Bq/kg であった。一方、一般的な岩石や堆積物試料の <sup>226</sup>Ra 濃度は 10 ~ 100 Bq/kg 程度である。したがって、鉱さいたい積場の堆積物には U と同様に <sup>226</sup>Ra がかなり高濃度含まれていると言える。堆積物と水試料の <sup>226</sup>Ra 濃度から見かけの固液分配係数を求めた結果、 $0.26 \sim 3.7 \times 10^5$  mL/g であった。

先行研究によれば、フェリハイドライトとゲーサイトに対する Ra の固液分配係数はそれぞれ~1000 及び~300 mL/g という値が報告されている (Sajih et al., 2014)。したがって、本研究で得られた見かけの Ra 分配係数はこれら先行研究の値に比べて 10~100 倍高いことになる。このことは、堆積物への Ra 濃集には鉄水酸化物への吸着に加えて、それ以外のメカニズムが寄与している可能性を示唆している。今後こうした Ra 濃集メカニズムについて詳細に調べていく予定である。

引用文献 Sajih et al. (2014) *Geochim. Cosmochim. Acta* 146, 150-163.

## 2. 論文

1. Nakamoto, Y., Doyama, K., Haruma, T., Lu, X., Tanaka, K., Kozai, N., Fukuyama, K., Fukushima, S., Ohara, Y. and Yamaji, K. (2021) Fe, Mn and <sup>238</sup>U Accumulations in *Phragmites australis* Naturally Growing at the Mill Tailings Pond; Iron Plaque Formation Possibly Related to Root - Endophytic Bacteria Producing Siderophores. *Minerals* 11, 1337. <https://doi.org/10.3390/min11121337>.
2. Tanaka, K., Tani, Y., Kozai, N. and Ohnuki, T. (2022) Sorption of Pu(IV) on biogenic Mn oxide and complexation of Pu(IV) with organic ligands secreted by fungal cells. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 331, 1109-1114.
3. Wu, C., Tanaka, K., Tani, Y., Bi, X., Liu, J. and Yu, Q. (2022) Effect of particle size on the colonization of biofilms and the potential of biofilm-covered microplastics as metal carriers. *Sci. Total Environ.* (in press).
4. Eljamal, O., Maamoun, I., Alkhudhayri, S., Eljamal, R., Falyouna, O., Tanaka, K., Kozai, N. and Sugihara, Y. (2022) Insights into boron removal from water using Mg-Al-LDH: reaction parameters optimization & 3D-RSM modeling. *Journal of Water Process Engineering* (in press).
5. Falyouna, O., Bensaida, K., Maamoun, I., Ashik, U.P.M., Tahara, A., Tanaka, K., Aoyagi, N., Sugihara, Y. and Eljamal, O. (2022) Synthesis of hybrid magnesium hydroxide/magnesium oxide nanorods [Mg(OH)<sub>2</sub>/MgO] for prompt and efficient adsorption of ciprofloxacin from aqueous solutions. *Journal of Cleaner Production* (in press).
6. Maamoun, I., Falyouna, O., Eljamal, R., Bensaida, K., Tanaka, K., Tosco, T., Sugihara, Y. and Eljamal, O. (2022) Multi-functional magnesium hydroxide coating for iron nanoparticles towards prolonged reactivity in Cr(VI) removal from aqueous solutions. *J. Environ. Chem. Eng.* (in press)
7. Aoshima, M., Tani, Y., Fujita, R., Tanaka, K., Miyata, N. and Umezawa, K. (2022) Simultaneous Sequestration of Co<sup>2+</sup> and Mn<sup>2+</sup> by Fungal Manganese Oxide through Asbolane Formation. *Minerals* (in press)

## ケイ酸バリウムを主成分とするストロンチウム吸着剤を用いた $^{90}\text{Sr}$ 分析法 の開発と海水・海洋生物中の $^{90}\text{Sr}$ 測定への応用

氏名：小島 貞男

受入研究者：青山 道夫

共同研究者：有信 哲哉・緒方 良至・箕輪 はるか

### 1. 成果

#### 1. 研究成果報告

<緒言>放射性ストロンチウムは、東電福島原発事故でも大気・海洋に放出された放射性核種であり、その測定は重要である。 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{89}\text{Sr}$  は純  $\beta$  核種で、放射能測定前に他の元素から分離する必要がある。従来の化学分離法は、煩雑で、長時間の作業時間を必要とする。より簡便で迅速な化学分離法の開発が切望されている。我々は、ケイ酸バリウム ( $\text{BaSi}_2\text{O}_5$ ) を主成分とするストロンチウム吸着剤 (ピュアセム MAq、日本化学工業社製) を用いた  $^{90}\text{Sr}$  測定法の実現に取り組んでいる。本年度の研究では、化学分離法を精査するとともに、本分析法を海水のみならず海洋生物等の試料分析に応用し、分析対象を広げることを目的とする。

<実験および結果>分析試料として海産物である市販の煮干し (カタクチイワシ) 7.045 g を用いた。電気炉で  $600^\circ\text{C}$ 、10 時間加熱による乾式灰化で重量は 0.895 g となった。王水および濃硝酸を用いた湿式灰化を行い、蒸発残渣を塩酸で溶解し、吸引ろ過を行なった。不溶性残渣の重量は 5% 未満であった。約 70 mL の塩酸溶液とし、 $^{85}\text{Sr}$  (26.6 kBq)、 $\text{Na}_2\text{SO}_4$  溶液、105 mg の Sr 吸着剤を加え、2 時間攪拌した。遠心分離 (3000 rpm、10 分) により Sr 吸着剤と上清に分けた。Ge 半導体検出器を用いた  $^{85}\text{Sr}$  の測定結果から、上清に 29.6% の  $^{85}\text{Sr}$  が残存していたため、上清に 60 mg の Sr 吸着剤を新たに加え、再吸着操作を行なった。2 時間攪拌後、遠心分離により、Sr 吸着剤と上清に分けた。上清中の  $^{85}\text{Sr}$  残存率は 19% であり、81% の  $^{85}\text{Sr}$  が Sr 吸着剤に捕集された。 $^{90}\text{Sr}$  の放射能測定に当たっては、Sr 吸着剤に吸着された  $^{90}\text{Sr}$  から放射壊変で生成する  $^{90}\text{Y}$  が放射平衡に達した後、 $^{90}\text{Y}$  をミルク操作により単離し、その  $\beta$  線を計測する。 $^{90}\text{Y}$  ミルク操作による Y の化学収率の評価を以下のように行なった。前述の  $^{85}\text{Sr}$  を捕集した Sr 吸着剤に 40 mL の 0.05M EDTA を加え、NaOH で pH を 11~12 に調整し、1 時間 30 分攪拌した。Sr 吸着剤はほぼ溶解し、わずかに残った不溶性残渣を吸引ろ過で除いた。ろ液中の  $^{85}\text{Sr}$  は、投与した 74% であり、 $^{85}\text{Sr}$  の脱離率は 91% であった。ろ液に  $^{90}\text{Y}$  (5.04 kBq)、Y キャリア (Y : 2.0 mg) を加えた。Y(OH)<sub>3</sub> 沈殿が生成するまで NaOH を加えた。遠心分離 (3000 rpm、10 分) により Y(OH)<sub>3</sub> 沈殿と上清に分けた。上清から 20 mL を分取し、LSC 装置でチェレンコフ光測定を行なった。チェレンコフ光測定の計数効率は 63% で、 $^{85}\text{Sr}$  による影響はない。投与した 32% の  $^{90}\text{Y}$  が残存していたため、上清に 30%  $\text{H}_2\text{O}_2$  を加え EDTA を酸化分解したところ、Y(OH)<sub>3</sub> 沈殿が生成した。遠心分離により Y(OH)<sub>3</sub> 沈殿を分け、先ほどの Y(OH)<sub>3</sub> 沈殿と

ともに 6M HCl で溶解した。純水で希釈し、チェレンコフ光測定を行なった。投与量の 80% の  $^{90}\text{Y}$  が検出された。ミルク操作による Y の化学収率は 80% と評価できる。また  $^{85}\text{Sr}$  の混入率は 3.3% であった。

<結論> 約 7 g の煮干し試料を用いた実験により、Sr 吸着剤への Sr の捕集率は 81% であった。 $\text{Y}^{3+}$  と EDTA によるキレート錯体生成の安定度定数  $K_{ML}$  は  $\text{Sr}^{2+}$  の値より大きく、Sr 吸着剤からの Y 脱離率は 91% 以上と推定できる。ミルク操作による Y の化学収率は 80% であった。従って操作全体における  $^{90}\text{Y}$  の収率は 65% と評価される。本分析法が海洋生物等の分析に応用しうることが示された。ただし、課題も存在する。海水試料では Sr 吸着剤への捕集率は 98% を上回ることから、Sr 吸着剤への収着操作の方法を改善することで、 $^{90}\text{Y}$  の収率を 85% 以上にできることが期待される。

## 2. 論文

## 日本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

氏名：猪股 弥生  
受入研究者：青山 道夫

### 1. 成果

#### 【研究目的】

2011年3月の東京電力福島第1原子力発電所（FNPP1）の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。これまでの解析結果から、2015/16年以降<sup>137</sup>Cs濃度は減少傾向にあるものの依然として事故前より高い濃度で変動している。本研究では、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量を見積もると共に、数年スケールでの太平洋表層循環について明らかにする。

#### 【結果と考察】

解析には、HAMGlobal2021: Historical Artificial radioactivity database in Marine environment, Global version 2021 (M. Aoyama, doi: 10.34355/CRiED.U.Tsukuba.00085)に収録されているデータ及びERAN共同研究で新たに得られた<sup>137</sup>Cs及び<sup>134</sup>Cs濃度を使用した。

日本海及び東シナ海における海水中の<sup>137</sup>Cs濃度は、福島原子力発電所の事故後2013年ころから徐々に増加し、2015/2016に最大値に達した。しかし、その後2020年までは、濃度が低い値も観測されてはいるものの、再び増加するなど、明瞭な濃度の減少は認められず、一定の範囲で変動をしている。また、日本海北部では、南部に比べて高濃度の傾向があり、東シナ海から日本海に流入した<sup>137</sup>Csが北上していることが示唆されている。日本海へのFNPP1-<sup>137</sup>Cs流入経路として、Subtropical Mode Water (STMW)に取り込まれた<sup>137</sup>Csは亜表層を西方に輸送され、黒潮蛇行に伴い大陸棚付近で間欠的に上方に輸送され表層水となり、東シナ海を北上し、最終的に日本海に輸送されている可能性が示唆されている。2012-2021年に日本海に流入したFNPP1-<sup>137</sup>Csは $0.40 \pm 0.11 \text{PBq}$ と見積もられた。これは、STMWに取り込まれたFNPP1-<sup>137</sup>Csの $9.4 \pm 2.6\%$ に相当する量であった (Inomata et al., submitted)。

さらに、本研究では東シナ海の与那国及び石垣において、<sup>137</sup>Cs及び<sup>134</sup>Csの濃度を測定している。2019年に観測された<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs放射能比は、日本海で観測された<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs放射能比に近い値まで増加しており、FNPP1事故に由来する放射性セシウムは亜熱帯循環を時計回りの輸送で約8年後に東シナ海東端に到達したことが示唆された (青山、2022)。

### 【参考文献】

Aoyama (2021) HAMGlobal2021: Historical Artificial radioactivity database in Marine environment, Global version 2021, Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba. doi: 10.34355/CRiED.U.Tsukuba.00085.  
青山道夫 (2021) 東京電力福島第一原発事故に由来する放射性物質の北太平洋での 10 年間の挙動. 月間地球, 44, 104-109, 2022.

## 2. 論文

Aoyama(2021) HAMGlobal2021: Historical Artificial radioactivity database in Marine environment, Global version 2021 (doi: 10.34355/CRiED.U.Tsukuba.00085)  
青山道夫 (2022) 東京電力福島第一原発事故に由来する放射性物質の北太平洋での 10 年間の挙動. 月間地球, 44, 104-109, 2022.

F-21-19

## ケイ酸バリウムを主成分とするストロンチウム吸着剤を用いた海水・陸水中の $^{90}\text{Sr}$ 分析法の検討—低濃度試料への応用—

氏名：緒方 良至

受入研究者：青山 道夫

共同研究者：有信 哲哉・小島 貞男・箕輪 はるか

### 1. 成果

#### 1. Sr 吸着剤の吸着能

海水 100 mL に 12M HCl を 100  $\mu\text{L}$  加え、放射性ストロンチウム ( $^{85}\text{Sr}$  あるいは  $^{90}\text{Sr}$ ) を 5~10 kBq 加えた後、Sr 吸着剤(ピュアセラム MAq、P-MAq)を 150 mg 投入し、2 時間攪拌した。固相(P-MAq)と液相に分離した後、液相に再度 P-MAq を 50 mg 投入した。また、陸水を模擬した純水 100 mL に 12M HCl を 100  $\mu\text{L}$  および 1.25M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  溶液を 2 mL 加えた後、放射性ストロンチウムを加え、P-MAq を 50 mg 投入し、2 時間攪拌した。海水に対しては、1 回目の投入で 92~93%、2 回目の投入で 99%以上吸着した。純水に対しては 1 回の投入で 98%以上吸着させることができた。

#### 2. $^{90}\text{Y}$ の脱離

Sr を吸着した P-MAq に 0.05M EDTA と 8M NaOH を加え、pH を 11 以上とし、30-40 分攪拌する。P-MAq の溶解後、Fe 標準溶液(1 mgFe/mL)を加えた後に、 $\text{H}_2\text{O}_2$ (30%)を加え、攪拌・加熱する。8M NaOH を加え、加熱する。遠心分離で沈殿を分離し、HCl で溶解の後、 $\text{NH}_4\text{Cl}$  とアンモニア水を加える。加熱し、 $^{90}\text{Y}$  が共沈している  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  の沈殿をろ紙上に収集する。

#### 3. $^{90}\text{Y}$ の測定

試料 10 L で Y の化学収率が 90%、10 時間測定した場合の検出下限濃度(MDC)は、低 BG ガスフロー検出器(LBC)で 0.22 mBq/L、低 BG 液体シンチレーションカウンタ(LB)で 0.63 mBq/L、液体シンチレーションカウンタで 1.6 mBq/L であった。LBC および LB で現在の大洋中の  $^{90}\text{Sr}$  濃度である ~1 mBq/L の測定が可能であることが分かる。

#### 4. 課題

本年度の実験では、1 L の海水を用いた実験を行った。しかし、この実験で定常的に Y を回収するまで至っていない。今後、Y 回収を確実に行うことのできる実験方法を開発する。また、10~40 L の海水への応用を行う。

#### まとめ

Sr 吸着剤を用いて、海水・陸水中の Sr を吸着させることができることが分かった。成長した  $^{90}\text{Y}$  を回収し、低 BG ガスフロー検出器で 10 時間測定することにより低レベルの  $^{90}\text{Sr}$  測定ができることが分かった。

### 2. 論文

## 砂礫洲における細粒粒子の捕捉能に関する実験

氏名：遠藤 徳孝

受入研究者：関口 智寛

共同研究者：谷口 圭輔

### 1. 成果

福島第一原発事故由来の Cs-137 のうち、河川を流下するものの 90%以上が粘土などの微細土砂粒子に吸着されている。微細土砂粒子は、浮遊したまま海洋まで到達すると考えられているが、砂洲形成時には、しばしば細粒土砂が捕集されている様が観察される。本研究は、砂洲（礫洲）形成時に、粗大粒子間隙にトラップされる粘土粒子（およびそれに吸着されている Cs-137）を定量する実験を通じて、微細粒子の河道への滞留時間の予測モデリングに役立つ知見を得ることを目的とする。

今年度は、予備的な実験として、ふたつのサイズの粒子を混合させた初期地形に対して水流を作用させ、孤立ベッドフォームの形成過程を観察する実験を行った。実験には、筑波大学に設置されている流路幅 20cm, 高さ 40cm, 長さ 6m の水路を用いた。細粒成分として豊浦珪砂、粗粒成分として、1~2mm の濾過用砂を用い、細粒成分 30g と粗粒成分 120g をよく混ぜ、円錐形に設置したものを初期地形とした。17m3s-1 の水流を、ベッドフォームが 1 波長分移動するまでの間作用させ、終了後のベッドフォームの構成粒子を回収し、細粒成分と粗粒成分の重量比がどのように変化するかを観察した。

初期地形では粗粒・細粒成分はよく混合されていたが、ベッドフォームが下流側へと移動するにつれ、細粒成分を中心としたバルハン（三日月形ベッドフォーム）と、粗粒成分を中心としたバルハンとに分離した。前者では粗粒成分と細粒成分の重量比が 1.6:1、後者では 27:1 であった。移動速度は細粒成分からなるバルハンの方が遅く、上流側に取り残されるような形で分離した。

今後は、粗粒砂のみで覆われた河床の上に大量の細粒成分を含む流れを作用させる実験の実施を計画している。

### 2. 論文

Y-21-21

Presence of Cs-137, Cs-134, Sr-90 traces from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident in the seawater and air for baseline date in Viet Nam

氏名 : Vo Van Tien

受入研究者 : 田副 博文

共同研究者 : Dao Van Hoang · Nguyen Van Hoai Nam · Đoàn Thị Thanh Nhan

## 1. 成果

Contamination by radioactive cesium (Cs-134 and Cs-137), which was released by the severe accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) in 2011, still has a great impact on aquatic organisms. In the case of the Chernobyl accident, the rate of decline of Cs-137 in fish and aquatic environments slowed down after some decades. Cs-137 in river systems can be taken up by aquatic animals. In this study, total Cs-137 concentration in the Ukedo River system and Cs-137 presence in dissolved, acid-soluble, and insoluble fractions in river water samples were determined. Total Cs-137 concentration increased going downstream and had the maximum value of 2.08 Bq/kg below the Ogaki Dam in May 2012. When there was no rainfall before sampling, >87% of Cs-137 existed in the dissolved state, and the acid-soluble state and the insoluble state were <13% and the undetectable level, respectively. After the heavy rain event, the particulate fraction (acid-soluble state + insoluble state) was elevated to 65%, which corresponds to twice as much as that in the base flow condition. Particulate Cs-137, especially the acid-soluble Cs, can play a role when taken into the food chain in aquatic ecosystems.

## 2. 論文

## 非定常流下での堆積物輸送の特性解明に向けた基礎実験

氏名：山口 直文

受入研究者：関口 智寛

### 1. 成果

堆積物や放射性物質の環境動態解明のためには、定常一方向流だけでなく、津波や振動流のような非定常な流れが、堆積物の輸送においてどのような特性を持つかを明らかにする必要がある。これまであらゆる環境の堆積物動態を考える際には、流れとそれに伴う堆積物輸送との関係を、河川のような定常な一方向流と同様のものと仮定して研究が進められてきた。しかし、そうした関係が、例えば津波や振動流のように流速や流れの厚さが変化し、乱流条件が常に変化する非定常な流れの下でも成り立つかどうかは明らかでない。本研究課題では、その解明に向けた足がかりとして、津波のような段波を対象として、水路実験によって流れと堆積物輸送量の時系列を調べた。実験は筑波大学 CRiED 環境動態予測部門の複合流水路を使用した。津波を模した非定常流段波を作用させ、砂床からの堆積物輸送過程と流速・水深などの変化を観察・計測した。実験では段波の規模と初期水深をパラメータとして変化させることで、それらの影響について調べた。最大流速が同等で初期水深が異なる実験での堆積物輸送の時系列を調べた結果、単純に流速だけでは決まらず、流れの厚さと流速の上昇に伴う乱流条件の変化が、堆積物の巻き上げに影響している可能性が示唆された。初期水深が相対的に大きく、流れの乱れの砂床まで伝播が遅い場合には堆積物の巻き上げ開始も遅れてることが明らかになった。今後は高速度カメラによる観察結果の解析を進め、より詳細な時系列での堆積物輸送過程を調べる必要があると考えられる。

### 2. 論文

山口直文・滝俊文・関口智寛「堆積物供給がウェーブリップルの形状に与える影響：造波水路実験（予報）」、堆積学研究，受理済。

### 3 次元気象場の把握を目的とした UAV 観測手法の確立

氏名：渡来 靖

受入研究者：中村 祐輔

#### 1. 成果

大気中の放射性・汚染物質などの微粒子の挙動調査として、高層大気における気象観測やモデル構築が行われてきた。一方、生物へ直接影響を及ぼす物質の取り込み過程を調査するうえで、地表面近傍における気象場の把握が重要である。近年、無人航空機(UAV: Unmanned Aerial Vehicle)は環境動態・自然災害等の調査に利用されているが、気象観測の分野において、観測手法が確立しているとは言い難い。そこで本研究は、UAV による 3 次元気象場の観測システムの構築および、その精度検証を実施し、観測手法の確立を目指す。特に以下の点に注目した。すなわち、①UAV の違いによる観測値への影響、②飛行方法の違いによる観測値への影響、③姿勢制御データを用いた風向・風速値の推定、の 3 点である。

精度検証のための観測は、UAV に小型の気象センサーを搭載し、地上から高度数 100m までを上昇・下降させることで実施された。観測は、2019 年 8 月から 2020 年 11 月において立正大学熊谷キャンパス、2022 年 2 月から同年 3 月において筑波大学アイソトープ環境動態研究センター観測圃場にて、それぞれ実施された。使用した UAV は、spark, Phantom3 pro, Phantom4 pro (DJI 社製) である。気象センサーは、Logtta (温度・相対湿度; ユニ電子社製), RTR-502 (温度; T&D 社製), iMet XQ2 (温度・相対湿度・気圧・GPS; InterMET 社製) が使用された。

①UAV の違いによる観測値への影響について、Phantom3 pro および spark で観測された気温を比較した。その結果、spark による気温が平均 1.1°C 高いことが示された。spark 本体の熱が、温度センサーに伝達されたことが要因と考えられる。

②飛行方法の違いによる観測値への影響について、地上から高度 5m 毎に 30 秒間のホバリングを行なった UAV と、ホバリングを行わなかった UAV による気温を比較した。その結果、ホバリングを実施しなかった UAV による気温の高度毎の標準偏差が  $\pm 0.2^{\circ}\text{C}$  大きくなった。つまり、UAV による気温は、ホバリングを行なうことで誤差が低減されることが推測される。

③姿勢制御データを用いた風向・風速値の推定について、2020 年 10 月 22 日の立正大学熊谷キャンパスにおいて推定された風速は、高度 10~40m で急激に大きくなる傾向が示された。観測場所の周辺には高度 20~30m の樹木が生育しており、これらによって森林キャノピーが形成されてことが考えられる。そのため、UAV がその森林キャノピーを脱出した前後で、風速に大きな差が生じたことが推測される。

以上のように、上記の①~③についての検証を行なうことで、UAV による気象観測手法の一部が確立された。一方で、下記に挙げる課題も残されている。すなわち、姿勢制御データを用いた風向・風速を UAV 搭載型超音波風速計によるデータと比較すること、気象場の違いによる観測値への影響を検討することである。今後は、このような課題を検証していくことで、UAV による気象観測手法の確立を目指す。

#### 2. 論文

## 地質の異なる福島森林土壤中での放射性セシウムの移動性と 鉍物組成との関係解明

氏名：中尾 淳

受入研究者：高橋 純子・塚田 祥文

### 1. 成果

本研究では、地質の違いが森林土壌間での放射性セシウム動態に及ぼす影響を明らかにすることを目的とする。福島原発事故以降、森林域は大部分未除染のままであるため、森林域における放射性セシウムの環境動態を把握することは、被ばくりスク管理上重要である。

放射性セシウムは土壌表層に蓄積する傾向が知られており、雲母系鉍物への特異吸着が原因とされている。近年の研究により地質の違いに由来する土壌中での雲母系鉍物の性状の違いが、放射性セシウムの挙動に影響することが明らかになってきたが、主に農地を対象とした研究が多く、森林域での実態は不明であった。

そこで本研究では、福島県阿武隈山地（郡山市蟹沢 愛宕山鉍業敷地内）の蛇紋岩地帯に隣接する花崗岩地帯の森林を対象に、まず土壌断面を採掘し、断面観察により花崗岩の影響を受けた土壌であることを確認した。高橋純子氏より断面周辺でスクレーパープレートの利用方法について指導を受けた後、地形条件の似た近隣の3地点の表層からリター層を取り除き、その直下にある鉍質表層土壌0-8 cmを薄く層状に8分割（0-5, 5-10, 10-15, 15-20, 20-30, 30-40, 40-50, 50-80 mm）して採取した。これら採取した土壌中に含まれる放射性セシウム濃度をゲルマニウム半導体検出器を用いて調べるとともに、土壌の有機炭素含量をNCアナライザーを用いて分析し、鉍物組成をX線回折法により調べた。

土壌中には蛇紋岩由来の鉍物類もわずかに含まれていたものの、花崗岩に由来する石英、長石とともに雲母類が主要成分として含まれていたことから、土壌のセシウム吸着能力が十分確保されていることが確認された。土壌に含まれる放射性セシウム量の深度分布は表層0-15 mmで約5000 Bq kg<sup>-1</sup>と最大値を示し、そこから下層に向けて漸減した。また放射性セシウムの約9割が表層0-50 mmに存在しており、これらの傾向は3地点とも一貫していた。これらの結果により、多くの先行研究と同様に、土壌中に雲母が含まれる場合は森林土壌での放射性セシウム垂直分布が表層蓄積傾向を示すことが確認できた。

土壌の有機物蓄積量の指標である全炭素量は、放射性セシウム量とほぼ同様の表層に向けた増加傾向を示した（図3右）。この相同性は、おそらく植物根の活動が活発な領域において、放射性セシウムのわずかな下方移動が起こることを示唆していると思われる。来年度は蛇紋岩の影響がより強い地点でも同様の調査を実施し、地質の違いが放射性セシウムの動態に及ぼす影響について明らかにする予定である。

### 2. 論文

Asano, I., Harada, N., Nakao, A., Evrard, O. and Yanai, J. Impact of radiocesium contamination in flood sediment deposited after the 2019 typhoon on decontaminated fields of Fukushima Prefecture, Japan. *Comptes Rendus Geoscience* (in press)

## 吾妻山周辺に生育するクロマメノキ果実における $^{137}\text{Cs}$ 濃度差の研究

氏名：杉浦 広幸

受入研究者：塚田 祥文

### 1. 成果

福島第一原子力発電所の西北西 80 km の吾妻山景場平湿原に自生する野生ブルーベリー‘クロマメノキ’ (*Vaccinium uliginosum*) 果実について、採取場所により放射性セシウム濃度の差が大きい理由を調査した。2021 年 11 月における景場平湿原のクロマメノキ生育土壌の交換態の  $^{137}\text{Cs}$  を測定したところ、池周囲では 0.095 Bq/g で土壌中の  $^{137}\text{Cs}$  全体の 8.1% であり、湿原中央 (0.036 Bq/g、4.0%) や山側 (0.024 Bq/g、2.7%) より高く、果実の  $^{137}\text{Cs}$  濃度 (池周囲 549 Bq/kg、中央 159 Bq/kg、山側 112 Bq/kg) と相関を示した。一方、ブルーベリー (*Vaccinium* spp.) 果実中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が低かった福島市瀬上の庭園土壌の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は湿原の 24~46 倍であったが、交換態  $^{137}\text{Cs}$  は 0.013 Bq/g (1.1%) で湿原より低かった。湿原土壌は土壌鉱物がほとんどなく、泥炭とミズゴケで構成されており、特に池周囲はミズゴケ層が厚く堆積し、可給態  $^{137}\text{Cs}$  の割合の高いことが原因と推測された。また、クロマメノキ果実中の濃度は 8.2 Bq/kg と低かった酸ヶ平 (噴火口近くの灌木・草原帯) では、 $^{137}\text{Cs}$  の量は湿原と大差無かったが、イオン交換態は 0.009 Bq/g とわずかでありながら  $^{137}\text{Cs}$  全体の割合としては 29.7% と高かった。今後、クロマメノキ果実への  $^{137}\text{Cs}$  移行について、有機質の少ない火山性土壌で交換態セシウムの割合が多い理由の調査が必要と思われる。

### 2. 論文

## 福島第一原発事故のゾウリムシへの影響

氏名：藤島 政博

受入研究者：難波 謙二

共同研究者：CATANIA Francesco・LYNCH Michael

### 1. 成果

【目的】 福島第一原子力発電所の事故による放射性物質の影響を受けた複数の池からゾウリムシを採集し、細胞形態及び行動の変異株を検出し、ゲノムに生じた変異を調査する。株は国内外の研究者が利用できるようにNBRPゾウリムシから提供可能にする。

【方法】 2021年9月に、福島大学の難波謙二教授の支援を得て、福島市内の池7箇所、伊達市の池1箇所、浪江町の池2ヶ所、大熊町の池1箇所、双葉町の池2箇所、双葉町の放射線量が高い下深沢池(2.6  $\mu\text{Sv/h}$ )と中深沢池(5.9  $\mu\text{Sv/h}$ )からプランクトンネットを使用して40~120Lを約100 mLに濃縮した水からゾウリムシを72細胞単離した。各細胞を個別に洗浄して試験管培養し、最終的に59株を継代培養した(下深沢池由来12株、中深沢池由来47株)。培養は、*Klebsiella aerogenes* ATCC35028を使ったレタスジュース培養液で23-24°Cで行った。光学顕微鏡で各株の形態の特徴を観察して種名を判定し、交配反応の有無でsyngenと接合型を同定し、増殖速を比較した。

#### 【結果と考察】

(1) 種・syngen・接合型の同定 細胞の形態及び小核の数と形から種を同定した結果、59株の全てが*Paramecium caudatum*(和名、ゾウリムシ)であった。*P. caudatum*には交配反応の可否で遺伝的に隔離されたsyngenと呼ばれる変種が16種存在し、各syngen内には2種の相補的な接合型(O型とE型)が存在する。同一syngenのO型とE型細胞を適切な条件で混合すると、交配反応と呼ばれる繊毛同士の接着による細胞凝集反応が起こり、やがて接合対が形成されて、受精し、子孫ができる。Syngenと接合型は交配反応の有無で判定できる。山口大学で保存している7種のsyngen(1、3、4、5、6、12、13)の相補的接合型細胞と59株を混合し、syngenと接合型を同定した。同定されたsyngenと接合型の株数を下に記した。

Syngen 1 : O型 2株

Syngen 5 : O型 36株、E型 6株

Syngen 12 : O型 12株、E型 2株

死 : 1株

(2) 分裂速度や形態の変異株 59株には、遊泳行動の異常株は認められなかった。小核が無い株が2株と小核のサイズが小さい株があった。交配反応活性発現期間は、通常は飢餓状態になってから2-3日継続するが、飢餓状態の最初の1日目だけの株があった。しかし、原発事故前のデータや環境放射線量の低い池のデータがないので、これらが放射線量の影響かは判定できない。接合過程の核変化の異常の有無はまだ調べていないが、事故

から 11 年経過しているため、ゾウリムシの寿命（約 700 回細胞分裂、25°C で約 7 カ月）から判断して有性生殖能力を維持しているはずである。59 株は、クローン化後 1 週間で分裂速度に顕著な違いが認められ、17 株は分裂速度が正常（約 3 回分裂/日）で、41 株は分裂速度が極めて遅かった（約 1 回分裂/日）。しかし、その後、41 株の分裂速度は正常値を回復した。同じ池由来の株でも分裂速度が株によって異なり、分裂速度が遅い株の全てが継代培養で正常値に回復したので、株による細胞分裂速度の違いの原因は、飢餓ストレスや老化の程度の違いではないと推定される。強い環境放射線によるゲノムの変異を防ぐために分裂速度を低下させることができた株とそれができなかった株かもしれない。今後、細胞分裂速度の 2 タイプの株の大核ゲノムの変異を比較し、分裂速度の低下がゲノムの変異か発現調節の変異かを調べたい。ゲノムが放射線の影響を最も強く受けるのは、クロマチン構造が解ける細胞周期の S 期であると思われるので、細胞周期の S 期以外の間期の時間を長くして細胞分裂速度を低下させる生存戦略かもしれない。大核ゲノムの変異の有無は、受精核から大核が分化する過程で行われる内部除去配列（IES, internal eliminated sequence）の除去の程度を比較することで検証する。IES が除去されない遺伝子は発現不能となることが知られている。ゲノムの変異の確認は、共同研究者の Catania と Lynch が行う。

## 2. 論文

無し

## 土壌中の放射性元素に対するキレート洗浄処理と植物への影響

氏名：長谷川 浩

受入研究者：Rahman Ismail Md. Mofizur

共同研究者：Begum Zinnat Ara

### 1. 成果

Research objective Understanding the dynamics of  $^{137}\text{Cs}$  and other metals associated with soil organic matter in Fukushima-derived soil.

Experimental Three different soil samples (Soil depth 0–10 cm, particle size <2 mm), one forest soil (FS) from Tomioka, and two grassland soils (GS 1 and GS 2) from Minamitsushima, Namie machi of Fukushima prefecture were collected. The soils samples were treated with the dispersing agent sodium hexametaphosphate (SHMP). The soil samples, raw and SHMP-treated, were analyzed to study the  $^{137}\text{Cs}$  in soil size fraction and the effect of sodium hexametaphosphate (SHMP) as a soil dispersing agent.

Results and discussion Forest and grassland soils (FS, GS 1, and GS 2), as collected from three different locations of the difficult-to-return zone of Fukushima prefecture, were treated with SHMP. SHMP concentrated  $^{137}\text{Cs}$  (70–82%) in finer soil fraction (41–63% of soil mass). SHMP induced release of  $^{137}\text{Cs}$ , OC, and minerals from the soil, and a positive correlation was observed within dispersed soil OC, Fe, and Al content.

### 2. 論文

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, Highly selective and straightforward recovery of gold and platinum from acidic waste effluents using cellulose-based bio-adsorbent, *J. Hazard. Mater.*, 410, 124569, 2021.05

A.S. Mashio, T. Tanimura, H. Hasegawa, S. Takeda, H. Obata, Budgets and sources of dissolved platinum in inland seas in Japan, *Estuar. Coast. Shelf Sci.*, 253, 107293, 2021.05,

F.B. Biswas, I.M.M. Rahman, K.Nakakubo, K. Yunoshita, M. Endo, A. S. Mashio, T. Taniguchi, T. Nishimura, K. Maeda, H. Hasegawa, Comparative evaluation of dithiocarbamate-modified cellulose and commercial resins for the recovery of precious metals from aqueous matrices, *J. Hazard. Mater.*, 418, 126308, 2021.09

I.M.M. Rahman, Y. Ye, M.F. Alam, H. Sawai, Z.A. Begum, Y. Furusho, A. Ohta, H. Hasegawa, Selective separation of radiocesium from complex aqueous matrices using dual solid-phase extraction systems, *J. Chromatogr. A*, 1654, 462476, 2021.09

H. Hasegawa, O. Akhyar, Y. Omori, Y. Kato, C. Kosugi, O. Miki, A.S. Mashio, R.I. Papry, Role of Fe plaque on arsenic biotransformation by marine macroalgae, *Sci. Total Environ.*,

802, 149776, 2022.01

K.Nakakubo, T. Nishimura, F.B. Biswas, M. Endo, K. H. Wong, A. S. Mashio, T. Taniguchi, T. Nishimura, K. Maeda, H. Hasegawa, Speciation analysis of inorganic selenium in wastewater using a highly selective cellulose-based adsorbent via liquid electrode plasma optical emission spectrometry, *J. Hazard. Mater.*, 424, 127250, 2022.02

## 環境汚染重金属除去機能を有する磁性と多孔性粉体の開発

氏名：有馬 ボシールアハンマド

受入研究者：Rahman Ismail Md. Mofizur

共同研究者：Begum Zinnat Ara

### 1. 成果

東日本大震災後に放射線を発生する Sr、Cs 等の金属イオンが水の汚染の大きな問題となっている。現在使われている汚染物の吸着量が低い、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、低コストで吸着量が高い、分離や処分が簡単な材料が求められている。申請者は最近の研究で多孔性 FeOOH ナノ粒子の合成に成功した。合成したナノ粒子を用いて Sr イオンの吸着実験した結果、吸着量 98.44 mg/g (吸着率 97.78%)である事が分かった。本研究では、FeOOH, LaFeOOH, CdFeOOH 等の合成及び様々な重金属 (例、Cs, Co, Ni) 等の吸着の向上を目標とした。これまでの研究では、水熱合成法を使用し、FeOOH, LaFeOOH, CdFeOOH のナノ粒子を合成に成功した。作製した試料は電子顕微鏡 (SEM), X-線回析 (XRD) によって測定を行った。SEM 観察から作製したナノ粒子はロッド型である事が分かった。また、XRD 結果から全ての試料は結晶性を持つことを確認した。今後は、これらの材料を利用して Cs, Sr, Co, Ni 等の重金属イオンの吸着実験を行う。また、pH や温度を変化し、重金属イオンの吸着条件の最適化について調べる。

### 2. 論文

1. 「多孔性金属酸化物ナノ粒子の合成及び特性評価に関する研究」、富田啓純、ジンナット アラ ベガム、イスマイル エム エム ラハマン、有馬 ボシールアハンマド、電子情報通信学会技術研究報告, vol. 121, no. 387, pp. 13-16, 2022 年。

## 福島県上小国集水域における放射性微粒子の動態把握

氏名：大手 信人

受入研究者：和田 敏裕

共同研究者：二瓶 直登・辰野 宇大・角間 海七渡

### 1. 成果

#### 研究の目的

2011 年の福島第一原発事故により、県北部の森林地帯にも多量の放射性セシウム (Cs) が拡散・沈着した。森林からは土粒子等に吸着した Cs が降雨時の土壌侵食に伴いが河川に流入し、下流へ移動する。また、河川水中において Cs を比較的多量に含む原発由来のガラス質状粒子である放射性微粒子も検出されており、河川水中の Cs 濃度への影響や微粒子自体の動態把握が課題となっている。本研究では、森林から河川を通じた Cs 流出、特に放射性微粒子の流出の把握を目的に河川のモニタリング、採水試料の分析を行った。

#### 方法

福島県伊達市上小国川において 2021 年 2 月から、河川水のモニタリング（水位、水温、濁度）と流出水のサンプリングを行った。対象地の最上流部は大半が落葉紅葉樹の二次林であり、河川水の採取等は上流の森林から約 4 km 下流の生活区域に位置する河川で行った。降雨時の河川水の採取は自動採水機を用いて 20 分間隔で 1 L 採水を 24 本分、また、無降雨時はポリタンクを用いて 1 回 10 L の採水を行った。なお、各条件下での採水は 2021 年内にそれぞれ 3 回行った。採水試料は孔径 0.45  $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルターを用いて懸濁物とろ液に分け、懸濁物は採水試料毎、ろ液は採取イベントごとにまとめてゲルマニウム半導体分析器を用いて測定し、それぞれの Cs 濃度を懸濁態 Cs 濃度、水溶態 Cs 濃度として扱った。また、イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィ法により、懸濁態 Cs 中の放射性微粒子由来の Cs 量を測定した。尚、微粒子の識別に際し、既往の報告 (Ikehara et al., 2020) の閾値を参考に 1 粒当たり 0.06 Bq の粒子を放射性微粒子として定義した。

#### 結果と考察

1. 降雨時の放射性微粒子の流出 降雨時に採水において、懸濁態 Cs と異なり、放射性微粒子由来の Cs はごく一部の試料でのみ検出された (5 試料/72 試料)。また、試料中の懸濁物濃度と懸濁態 Cs 濃度には正の相関がみられたが、放射性微粒子由来の Cs 濃度は懸濁物濃度とほぼ相関がみられなかった。これらの結果から、降雨時の土砂移動とともに放射性微粒子が河川に流入するのは非常に稀であり、流域内で懸濁態 Cs と放射性微粒子の分布傾向や河川水中での動態が異なる可能性が示唆された。

2. 降雨、無降雨時の河川水の  $^{137}\text{Cs}$  濃度における放射性微粒子の割合 無降雨時（平水時）に採取した河川水からは放射性微粒子は検出されなかった。また、降雨時の河川水中の Cs 濃度に占める放射性微粒子由来の Cs 濃度は 1.21% と非常に低く、河川水中の Cs 濃度の 90% 以上は微粒子以外の懸濁物由来の Cs 濃度であった。これらの結果から、放射性微粒子

は降雨時の土壌侵食に伴い河川に流入するが、河川中の Cs 濃度を与える影響は少ないと考えられた。

## 2. 論文

Tatsuno, T., Waki, H., Kakuma, M., Nihei, N., Wada, T., Yoshimura, K., Nakanishi, T., Ohte, N. (2022) Cesium-rich microparticles runoff during rainfall: A case study in the Takase River, Radiation Protection Dosimetry (accepted).

## 福島県東部に分布するエゾウグイの遺伝的多様性の解明：帰還困難区域周辺の生物多様性保全にむけて

氏名：津田吉晃

受入研究者：和田 敏裕・兼子 伸吾

共同研究者：神藤 友宏

### 1. 成果

#### はじめに

これまでの申請者らの研究から、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)。特に申請者らの 2019 年度以降の ERAN の助成研究から帰還困難区域を含む阿武隈高地や浜通りなど福島県東部の河川に分布するイワナやヤマメなどの溪流魚複数種では共通して、他地域とは遺伝的に異なる地域系統集団が分布していることを明らかにしてきた。本研究では申請者らのグループにより、分布情報文献の再整理および標本登録により浜通りなど福島県東部の分布を明確化したコイ科ウグイ属エゾウグイ (和田ら 2021) を対象にした。本種は北海道から福島県への分布が一般には知られており、福島県内の分布は只見地域が知られている一方、福島県東部の情報は限られていた。そこで帰還困難区域の生物多様性評価の一環として、エゾウグイにも他の溪流魚同様に阿武隈高地周辺の固有系統がある可能性があるという仮定の下、集団遺伝学研究を行った。

#### 材料および方法

エゾウグイおよび近縁種であるウグイを対象に阿武隈高地を流れる 4 河川で各種 30 個体程度を採取し、母性遺伝するミトコンドリア DNA シトクロム b 領域を解読した。これらデータを先行研究 (Watanabe et al. 2018) で報告されているウグイ属の全国集団データと統合して他種、他地域集団との系統関係および遺伝構造を評価した。また阿武隈高地周辺で分布域調査を行った。

#### 結果および考察

エゾウグイからは福島県東部の先行研究では報告されていない 2 つの新規ハプロタイプが検出され、ほぼ全ての供試個体がこの新規 2 ハプロタイプのいずれかであった。これら 2 ハプロタイプと既報のエゾウグイのハプロタイプとの間には 10 塩基程度の変異がみられ、ウグイ属内での系統関係の評価から、これら 2 ハプロタイプは、近縁集との浸透交雑ではなく、祖先種からエゾウグイへと種分化した過程の初期に形成された地域固有性の高い系統であることが示唆された。また放流などが各地で行われているウグイについては他地域由来個体の放流の影響もみられた一方、先行研究では未検出の福島県東部にしかみられない 5 つの新規ハプロタイプも検出された。これらのことからエゾウグイだけでなくウグイも含めたウグイ属 2 種からもイワナやヤマメなどと同様に福島県東部地域に固有の系統が存在する可能性が高いことを本研究では明らかにできた。この要因として、阿武隈高地は約 250

万年前に形成され、周辺の山地から長期間独立しており、その地理的特異性から、阿武隈高地のエゾウグイ集団は更新世における気候変動を経て、現在まで生残した遺存集団である可能性が考えられる。今後はより詳細な遺伝構造や集団動態の解明のために、核 DNA の解析や生態・分布調査を進め、希少な地域系統の維持に配慮した長期的な帰還困難区域周辺の生物多様性保全・管理や環境回復について提案していく。

## 2. 論文

## 帰還困難区域における建屋に内在する放射性セシウムと解体作業に伴い飛散する放射性セシウムの動態把握

氏名：平良 文亨

受入研究者：平尾 茂一

共同研究者：松尾 政彦

### 1. 成果

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、2018年7月以降、JR夜ノ森駅前エリアを皮切りに除染・解体作業が進んでいるが、この環境修復作業に伴う $^{137}\text{Cs}$ の再浮遊（舞い上がり）に関する事例報告は少ない。我々が実施したこれまでの調査では、解体した建屋G（2階建て木造アパート）の敷地内において $^{137}\text{Cs}$ が断続的に検出されたものの、解体作業に伴う建屋由来の粉塵と敷地内に飛散する $^{137}\text{Cs}$ 濃度との間に明らかな関連性は認められなかったことから、建屋Gに近接する他の建屋を対象に、解体前・解体中の屋内・屋外ダストに含まれる $^{137}\text{Cs}$ の環境動態について追加調査した。方法は、2021年1月～4月の期間、富岡町の特定復興再生拠点区域（帰還困難区域）にある「夜の森地区」に位置する建屋Y（地上1階木造平屋）の敷地内にハイボリウムエアサンプラー（HV-RW、1000L/min、柴田科学株）を設置し、除染・解体作業中の大気浮遊塵をガラス濾紙（ADVANTEC、203mm×254mm）に捕集（6時間程度）し、その後、濾紙をベルトポンチで円形に12穴打ち抜き、U8容器に梱包し測定試料とした。測定試料は、ゲルマニウム半導体検出器（GMX Series (Ortec)、MCA7600 (SEIKO EG&G))で核種分析した（測定時間80,000秒）。分析の結果、検出された人工放射性核種は $^{137}\text{Cs}$ のみで、建屋Yの解体前は0.35-0.36 mBq/m<sup>3</sup>、解体中は0.13-2.3 mBq/m<sup>3</sup>以下であった。なお、解体前の建屋内の屋内ダスト及び対照である富岡町食品検査所（避難指示解除地区）の屋外ダストでは、 $^{137}\text{Cs}$ は不検出であった。また、建屋Yの主な解体作業としては、重機の搬入、屋根の片づけ、内装・屋根の解体、窓（サッシ）外し、外壁・屋根材外し、重機による家屋解体及び解体廃材のフレコン袋詰めであった。さらに、作業期間中に浮遊していた粉塵の粒径を1 $\mu\text{m}$ または5 $\mu\text{m}$ と仮定すると、粉塵に含まれる $^{137}\text{Cs}$ の吸入による内部被ばく線量は、最大 $4.9 \times 10^{-5} \text{mSv/y}$ と推定された。本研究の結果から、解体作業に伴う建屋由来の粉塵と敷地内の $^{137}\text{Cs}$ 濃度との関連性は明確ではなく、むしろダンプ等の作業車両の往来に伴い夜の森地区に賦存する $^{137}\text{Cs}$ が舞い上がる事象（再浮遊係数）を反映したと示唆される。したがって、建屋の解体作業に伴う $^{137}\text{Cs}$ の飛散性は限定的で、吸入による内部被ばくリスクは極めて低いレベルであった。なお、コロナ禍、PM2.5等の粒径別の調査が十分実施できなかったため、 $^{137}\text{Cs}$ の再浮遊との関連性について、追跡調査を実施予定である。

### 2. 論文

修正論文投稿中

## 沿岸海域の堆積物からのヨードエタン (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>I) 発生

氏名：大木 淳之

受入研究者：高田 兵衛

共同研究者：高田 兵衛

### 1. 成果

本申請者の先行調査により、北海道沿岸の海洋堆積物では、表面に堆積した植物プランクトン由来の有機物から、有機ヨウ素ガスの一種であるヨードエタン (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>I) が発生することが明らかにされている。直上の海水では、有機ヨウ素ガス種に占めるヨードエタンの存在比は小さいにもかかわらず、堆積物表面ではヨードエタンが圧倒的なメジャー成分になるのである。先行調査では、噴火湾にて春の珪藻ブルームが発生したときにプランクトンネットで珪藻懸濁物を採取して凍結保存した。その凍結保存した試料を解凍したのち、冷暗所にて培養した結果、ヨードエタンの発生が確認されたのである。先行調査では明らかにされていない点がいくつかあった。その一つ目は、(a)凍結保存した珪藻（おそらく死滅）で調べた結果を実際の海洋現象に適用できるのかである。二つ目は、(b) プランクトンネットで採集した珪藻試料には他の微生物（バクテリア）が含まれており、その影響の程度が不明であることである。三つ目は、珪藻が成長するときに海水中のヨウ化物イオンを吸収していることがヨードエタン発生に必要なのか（不要なのか）である。これら、(a)～(c)を明らかにするため、2021年3月に海洋観測で得られたプランクトン試料を凍結することなく、培養実験に供した。また、無菌培養された珪藻の一種（タラシオシラ・ノルデンスキオルディ）を大量培養してヨードエタンの発生を調べた。タラシオシラの大量培養に際しては、ヨウ化物イオン添加の有無を設定した。これらの実験より、海洋で採取した珪藻については、凍結保存の有無にかかわらずヨードエタンが発生することが明らかになった。また、無菌培養株のタラシオシラを暗所に放置することによってもヨードエタンが発生したので、ヨードエタン発生にはバクテリアの作用が無くてもよいことが明らかになった。また、珪藻（タラシオシラ）が成長する際にヨウ化物イオンを取り込む必要があることが明らかになった。まだ推測の域ではあるが、どの珪藻種でも、成長期にヨウ化物イオンを吸収していれば、死滅する際にヨードエタンを放出することが考えられる。本研究では、当初、福島沖の海底からも珪藻由来のヨードエタンが発生することを調べる計画を立てていた。しかし、新型コロナウイルス感染拡大の影響で、予定していたおしよる丸の研究航海が中止となったため、それを調べることはできなかった。次年度以降、おしよる丸で福島沖を航行する機会を見つけて、当初目的を果たす予定である。

### 2. 論文

## 福島沿岸魚における $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 比：海洋生態系内の放射性セシウム移行の平衡と遷移

氏名：立田 穰

受入研究者：高田 兵衛

共同研究者：西川 淳・小林 卓也・青野 辰雄・浜島 靖典・青山 道夫

### 1. 成果

【背景】福島第一原子力発電所事故 10 年経過したが、沿岸生態系のプランクトン・底生生物・魚類における放射性 Cs 濃度は、海水中濃度が充分低下しているにも関わらず、海水中濃度から期待される生物中濃度まで低下していない。原因として、1) プランクトンのような浮遊生態系では、生物の採取位置における海水中濃度と、その生物が浮遊期間中に暴露されてきた海水環境が異なる可能性があること、2) 底生生物のように、海水に比較して放射性 Cs 濃度が高い海底に生息する場合、海底環境からの核種移行の寄与が考えられること、ということが 2019-2020 年の学際共同研究で明らかになってきた。また、3) 魚類では生理・生態学的要因により平衡時でも種特異的に Cs 濃度が高い場合があること、等が提起されている。

【目的】本研究では、海洋生態系内で、元素移行が平衡状態にある安定 Cs を用いて、福島沿岸魚の  $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$  比を求め、事故 10 年後の放射性セシウム移行の平衡・遷移状態を明らかにする。方法：新青丸研究航海 KS-18-12・KS-20-17 研究航海における福島沿岸での採取試料について、魚類筋肉中の安定 Cs 濃度と放射性 Cs 濃度を求めた。安定 Cs 濃度は、電力中央研究所環境科学研究所の ICP-MS を用いて、また、放射性 Cs は福島大学環境放射能研究所の同軸型・井戸型ゲルマニウム検出器および金沢大学低レベル放射能測定施設で定量した。得られた魚種別筋肉中  $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$  比から、福島沿岸の表層魚、中層魚、と海水間の放射性 Cs 移行が平衡状態にあるか、あるいは遷移状態にあるかの科学的根拠を検討した。

【結果】2018 年と 2020 年に新青丸研究航海により福島沿岸で採取された表層魚中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、およそ  $0.5 \text{ Bq/kg-ww}$  であった。中層魚における  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、およそ  $1.0 \text{ Bq/kg-ww}$  であった。いずれも安全基準値( $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$  濃度:  $100 \text{ Bq/kg-ww}$ )よりおおむね 2 - 3 桁低いレベルとなっており、食品安全の観点からの懸念はないと考えられたが、2010 年以前の  $^{137}\text{Cs}$  濃度であるおよそ  $0.1 \text{ Bq/kg-ww}$  までは低減していなかった。2018 年と 2020 年採取魚の表層魚類における  $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$  原子数比は、海水における原子数比よりおよそ 5 倍大きかった。また、中層魚における  $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$  原子数比は、海水における原子数比よりおよそ 10 倍大きかった。これらの結果によれば、福島沿岸魚類における  $^{137}\text{Cs}$  は、2010 年以前の海洋生態系における放射性 Cs 移行の平衡状態に戻っておらず、海水以外の供給減からの移行があることが示された。

【考察】2011 年に福島沿岸環境に導入された放射性 Cs は、沿岸海洋生態系内での移行において遷移状態にあると理解された。海水濃度から期待される表層魚と中層魚中の平衡濃

度に対して、事故後 10 年目の表層魚にみられた 5 倍の濃度、および中層魚中にみられた 10 倍の濃度差は、これらの魚種の生態学的要因に帰するものと推定される。福島沿岸海洋生態系内における放射 Cs 移行の遷移状態を説明できる合理的仮説として、1)低減はしているものの福島第一原子力発電所からの継続漏洩による沿岸生態系への供給が、表層魚中濃度を 2010 年以前より上昇させている、2) 降雨時の河川流入による陸域—海域間の再分配による沿岸への供給が、沿岸食物連鎖における放射性 Cs 上昇に寄与している、3) 初期に海底土に吸着された放射性 Cs が完全には固定されておらず、間隙水を経由した底生食物連鎖への移行寄与により、底生魚における放射性 Cs 濃度低減を遅延させている、が考えられる。

## 2. 論文

Pavel Povinec, Katsumi Hirose, Michio Aoyama, Yutaka Tateda, (2021) Fukushima Accident: 10 Years After – 2nd Edition, Elsevier, 559 page

## きのこ類と寄生菌および捕食者（小動物）を介した森林内の 放射性セシウムの動態把握

氏名：保坂 健太郎

受入研究者：石庭 寛子

共同研究者：糟谷 大河・山本 航平・南 京沃

### 1. 成果

[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指摘されている。さらに菌類、特にきのこ類は放射性物質の蓄積特性が、他の生物に比べ高いという観察結果も示されている。研究代表者らはこれまで限られたサンプリングから（１）地下生菌（トリュフ類）のセシウム濃度、（２）それらに寄生する菌類のセシウム濃度、（３）チェルノブイリおよび福島第一原発事故前後のきのこ標本からの放射性セシウムの検出、などを進めてきた。

[これまでの成果] 前年度までの研究で、以下が明らかとなった：（１）福島県内で採集されたきのこ類のうち、乾燥重量あたりの放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ ) 濃度が 500,000 Bq/kg 以上の値を示した種があった。特に他のきのこ類に寄生する冬虫夏草類 (*Tolypocladium* spp. など) や地下生菌類（トリュフ類）に高い値を示すものが多く含まれた。（２）樹木との共生菌（外生菌根菌）であるクロハツ *Russula nigricans*（ベニタケ目ベニタケ科）について、茨城県つくば市から採集された標本を時系列で測定したところ、チェルノブイリ原子力発電所事故（1986）後、および福島第一原子力発電所事故（2011年3月）後、のそれぞれにおいて、放射性セシウム濃度の上昇が確認された。

[当初の目標] １）トリュフとその寄生菌・捕食者（げっ歯類など）、２）クロハツとその寄生菌（ヤグラタケ）、３）その他のきのこ類と寄生菌・捕食者、について福島県～茨城県にかけて幅広く採集し、セシウムの蓄積特性を明らかにすることを当初の目的としたが、野外調査の実施が困難であったことから、新規データは取得できなかった。

[方法と目的] 国立科学博物館植物研究部の菌類標本庫に保管されているきのこ標本（乾燥標本）のうち、1990年代～2021年にかけて複数回かつ同一地点（茨城県つくば市）で採集され、放射能濃度測定用に供試可能（十分量が確保できる、など）な標本を抜き出し、幅広い分類群におけるセシウムの蓄積特性を明らかにすることを目的とした。測定用試料は計 345 点、乾燥重量 0.5～16.5 g を確保し、NaI シンチレーションガンマカウンター（パーキンエルマー社、2480 Wizard2）を使用して測定時間 1800 秒にて  $^{137}\text{Cs}$  濃度を測定した。

[結果と考察] 多くの種において、2011年3月以後の数値の上昇とその後の減少が確認された。そのうち、特に顕著なパターンを示したのは以下の通りであった： ・クロハツ | 1997年～2011年3月以前のサンプルからは検出限界以下もしくはそれに近い値であったが、2011年10月から数値の上昇が見られ、2014年をピーク（231 Bq/kg）にその後減少が

続いた。・タマゴタケ（ハラタケ目テングタケ科） | 2011年9月までは500 Bq/kg未満であったが、その後は上昇が続き、2015年9月の採集個体は3937 Bq/kgを示した。さらに上昇が続くかについては、今後中・長期的にモニタリングを継続する必要がある。・土壌上層部に分厚い菌糸マットを形成する種（オオホウライタケ、ヒメツチグリ属、など）で今回高い数値を示す種は存在しなかった。

[関連文献] 後藤康彦・桧垣正吾・柴田尚・保坂健太郎. 福島第一原子力発電所事故後に富士山で採取された野生食用きのこ 3 種の方角別および標高別の放射性セシウム濃度. 日本菌学会会報（投稿済み）.

## 2. 論文

## 原発事故周辺地域のアカネズミにおける DNA 修復遺伝子多型

氏名：遠藤 大二

受入研究者：石庭 寛子

共同研究者：中嶋 信美・大沼 学・玉置 雅紀

### 1. 成果

原発事故周辺地域のアカネズミにおける DNA 修復遺伝子多型 近年、動物に対する淘汰圧の指標として、個体間の一塩基多型(SNP)の変化が報告されている。遺伝子上の多数の SNP を調査するためには、exon 領域の PCR 増幅産物を次世代シーケンス(NGS)により決定する方法が取られる。本研究では、高放射線地域でのアカネズミへの影響を検討するため、二重鎖切断の修復に関与する ataxia telangiectasia mutated(ATM)遺伝子の exon の増幅と NGS での塩基配列の決定を進めている。ゲノム上の exon 塩基配列は、マウスの ATM 遺伝子 exon 相当アミノ酸配列とのアカネズミゲノム Scaffold との相同性に基づき、62exon 中 44exon を抽出した。続けて、NGS によるアカネズミ SNP 調査のため、限られた DNA 試料から多数の exon を PCR 増幅するプライマーの設計および増幅条件の検討を行った。Exon を高感度に増幅するため、PCR プライマーを、対象塩基配列のゲノム上での出現頻度の低さに基づいて設計し、さらに、本研究室で感度の改善が認められたループ構造を持つプライマー、16 塩基プライマーおよび通常の 21 塩基プライマーの使用と増幅温度条件を用いて、試行した 20exon 中 11exon で 0.01 ng のゲノム DNA から増幅産物が得られた。これらの実験条件により、62 個中 44 個のエクソンで ATM 遺伝子の SNP を調べることが可能になった。

### 2. 論文

Kayama, Kotetsu, et al. "Prediction of PCR amplification from primer and template sequences using recurrent neural network." Scientific reports 11.1 (2021): 1-24.

## 複雑な線量体系に関する公衆理解と定義の変更に伴う影響に関する研究

氏名：黄倉 雅広

受入研究者：山口 克彦

共同研究者：飯本 武志・福田 一斗

### 1. 成果

放射線防護の分野で用いられる防護量と実用量に関して、正しい理解がされていないことによる混乱や指標の誤用、混同が公衆のみならず放射線業界関係者の間で多数報告されている。この状況に加えて ICRP や ICRU より提案された防護量と実用量の新たな定義が我が国で導入されれば、多分野で新たな問題が生じてしまう可能性が考えられる。また現在、放射線量を理論的な面から解説する記事や学会誌のコラムは数多く存在するが、具体的な環境を例示した上で各放射線量の特徴について比較しつつ解説したものは少ないため、分かりやすさのために具体的な環境をイメージしての説明が必要とされると考えられる。このような背景を踏まえて、放射線量に関する理解の促進を支援するために誤解や混乱を生む要因を明らかにすることを目的として設定した。目的達成のために実施した複数の内容を紹介していく。

1つ目はシミュレーションである。公衆、放射線業界関係者それぞれを意識した環境を考案し、複数の線量を算出、比較した。結果から、放射線量に関する誤解や混乱を低減するには、代表値の選定方法をはじめとする数値の扱い方の違いや、同じ単位でも複数存在する各種線量の定義の違いを考慮しながら、関連の情報を展開していくことが必要であることを明らかにした。

2つ目はヒアリングである。放射線量に関する誤解や混乱を解消するには伝える側の認識を把握することが有効であると考え、放射線業界関係者数名にご協力いただき、得られた回答から課題を整理した。回答から得られた課題として、情報を受け取る側の理解度とニーズを伝える側が事前に、正確に把握することであることが示唆された。

3つ目は文献調査である。新定義導入に伴って生じると考えられる影響を調査し、それらを低減するための対策について検討した。法令や指針を策定する各種機関や校正施設、各種放射線施設など、それぞれが現場で対応しなければならないことではあるが、関係者全体として、変更対応がどこまで、どのように進んでいるのかを経時的に確認しつつ、共有していくことも必要となることが分かった。

結論としては、線量群が混在し、同じ単位でも異なる意味合いを表す可能性を認識した上で、まずは用途にあった線量を適切に選択する必要があること、また放射線量に関する状況判断のためにも伝える側が受け取る側の理解度と情報のニーズを事前に正確に把握し、あわせて伝える内容と方法を工夫することが必要であることが示唆された。

### 2. 論文

## ラドン子孫核種における放射能環境動態の解明

氏名：樋口 健太

受入研究者：床次 眞司

共同研究者：玉熊 佑紀・細田 正洋・床次 眞司・秋葉 澄伯

### 1. 成果

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。RaA (218Po) は非常に高い濃度を示す値が時折見られたが、その濃度と桜島の火山噴火データとの関連性については十分な解析がまだできていない。今後も更なる解析が必要である。

### 2. 論文

## 環境中ラドンによる放射線施設監視モニタの感度確認 3 : 活性炭型ラドン検出器による感度確認

氏名：安岡 由美

受入研究者：床次 眞司・細田 正洋

共同研究者：向 高弘

### 1. 成果

【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 年度及び 2021 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 ( $\text{Bq m}^{-3}$ ) 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（約  $20 \text{ kBq m}^{-3}$ ）の場合、相対湿度（7～90%）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（エラーバー）が  $\pm 25\%$ 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 7%から 74%において（10 データ）、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 80%を超えると大きく感度が低下（2 データ）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. 論文

Yamada, R., Hosoda, M., Tabe, T., Tamakuma, Y., Suzuki, T., Kelleher, K., Tsujiguchi, T., Tateyama, Y., Nugraha, E.D., Okano, A., Narumi, Y., Kranrod, C., Tazoe, H., Iwaoka, K., Yasuoka, Y., Akata, N., Sanada, T., Tokonami, S. (2022).  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{226}\text{Ra}$  Concentrations in Spring Water and Their Dose Assessment Due to Ingestion Intake. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 19(3), 1758.

## 里山再生を目指した福島県浪江町における放射性セシウムの森林内動態開明

氏名：大河内 博

受入研究者：床次 眞司・赤田 尚史

共同研究者：反町 篤行・竹内 里紗

## 1. 成果

## 1. 研究目的

2011年3月に発生した福島第一原子力発電所事故によって、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、広大な森林の除染には膨大な労働力と費用が必要である等の理由から、森林の多くは未除染のままである。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説明を行なっている。

## 2. 研究成果

## 2.1 土壌の元素および同位体分析

常緑針葉樹林と落葉広葉樹林のどちらも放射性Cs濃度と全炭素含有率の間に高い正の相関が認められ、全炭素量は土壌への放射性Csの蓄積に関与していた。落葉広葉樹林では土壌中Csの浸透率が大きいのが、これは全炭素含有率がより高いことが原因と考えられた。また、放射性Cs濃度とC/N比の間には高い正の相関が認められ、放射性Csは有機物分解の進んでいない土壌に蓄積されていた。土壌深部ほどC/N比は低く、有機物分解は進行していた。

放射性Cs濃度と $\delta^{15}\text{N}$ 含有率の間には高い負の相関が認められ、放射性Csは腐植化の進行していない有機物に蓄積されると言える。針葉樹林の方が $\delta^{15}\text{N}$ は低く、分解があまり進んでいない腐植物質の割合が高かった。

## 2.2 土壌中Csの化学形態分析

放射性Csの化学形態別分を行ったところ、常緑針葉樹林と落葉広葉樹林のほぼ全ての深度で、固定態Csが最も割合が高かった。時間の経過に伴って弱い結合形態（水溶性・交換態・有機態）から強い結合形態（固定態）へと変化することを示している。土壌のごく表層に比べて、深層では固定態Csの割合が低かったが、弱い結合形態のCsは浸透しやすいことが原因だと考える。

固定態Csと全炭素含有率の間には正の相関があり、交換態Csと全炭素含有率の間には高い負の相関があった。これは、腐植物質の多い表層は水溶性Cs保持量が多く、表層ほど乾

湿サイクルによって鉍物風化が進み、水溶性 Cs が固定態 Cs へ変化しやすいためだと考えられた。

### 3. 今後の展望

得られた知見をもとに、効率的かつ環境負荷の少ない現場除染技術の開発について検討していく。

## 2. 論文

## 亜熱帯島嶼における土壌の天然放射性核種濃度と その地学的背景に関する研究

氏名：古川 雅英

受入研究者：床次 眞司・赤田 尚史

共同研究者：城間 吉貴・細田 正洋・仲宗根 峻也・中村 夏織

### 1. 成果

亜熱帯島嶼における土壌の天然放射性核種濃度とその地学的背景に関する研究：一般公衆の外部被ばく源の代表的なものとして地殻ガンマ線が挙げられる。その源は、概ね現地性の地質（岩石）とその風化土壌に含まれる天然放射性核種（ $^{238}\text{U}$  系列、 $^{232}\text{Th}$  系列、 $^{40}\text{K}$ ）の壊変によるものであるが、南西諸島（亜熱帯海洋島嶼域）の隆起サンゴ礁起源石灰岩（第四紀琉球石灰岩）が分布する地域においては、大陸からの風成塵（いわゆる黄砂）が堆積して形成された土壌の分布が知られている。特に中国南東部の高自然放射線地帯から飛来した風成塵が母材であると考えられる一部の土壌（島尻マージ）は、比較的高い天然放射性核種濃度を有している（例えば、古川ほか、エアロゾル研究, 2005）。なお、この風成塵起源と推定される土壌が琉球石灰岩上に特に明瞭に分布する理由は、石灰岩（土壌母材となる鉱物粒子の含有率は1%程度）が風化の過程で溶解・消失し、風成塵の堆積が卓越するのに対して、他の堆積岩等の地質が分布する地域においては、岩石風化による鉱物粒子と風成塵を構成する鉱物粒子とが混合して区別できないためである。本共同研究では、南西諸島の中でも地殻変動による隆起が続いていると考えられる喜界島、沖永良部島、徳之島において、年代の異なる石灰岩段丘面上に生成された土壌を採取して核種分析を行い、東アジアにおける天然放射性核種の環境動態（特に大気輸送）を概ね海洋酸素同位体ステージ5（十数万年前）以降の年代幅での解明を試みた。ただし、COVID-19の影響により、現地調査は沖永良部島のみにとどまった。土壌試料（3地点）の分析は現在進行中であるが、日立\_Aloka PDR-111により24地点で地殻ガンマ線線量率の測定を行った結果、算術平均値±標準偏差として $0.055 \pm 0.015 \mu\text{Sv/h}$ を得た。係数0.652（Hosoda et al., Radiation Emergency Medicine, 2014）を用いて3"φx3" NaI(Tl)による空間吸収線量率（nGy/h）に換算した結果は、算術平均値で約36 nGy/hとなった。今後、段丘面の年代、地質・土壌分布、標高などとの関係について考究する予定である。

### 2. 論文

## 山形蔵王の樹氷の水素・酸素同位体組成

氏名：柳澤 文孝

受入研究者：赤田 尚史

共同研究者：吉原 美咲・鈴木 美沙

### 1. 成果

1. Introduction Juhyo (Ice Monster) are generated on the top of Mt.Zao (over 1550m) by repeating icing, snow accretion and sintering. The hydrogen and oxygen isotope ratios of Juhyo were measured to examine the source and travel route of water vapor.

2. Results Isotope ratios were correlated with the travel time from sea to Mt.Zao. It could be classified into three patterns according to weather map types.

(1) Winter Air Pressure Pattern The water vapor originated from the Sea of Japan. The hydrogen and oxygen isotope ratios were from middle to high and d-excess were middle (d=30).

(2) Cyclone Located off the South Coast of Japan The water vapor originated from the East China Sea. The hydrogen and oxygen isotope ratios were low and d-excess were low (d=20).

(3) Pressure Pattern of Cyclone on The Japan Sea The water vapor originated from the Sea of Japan. The hydrogen and oxygen isotope ratios were high and d-excess were high (d=40-50).

### 2. 論文

## 山形蔵王の樹氷に含まれているベリリウム-7

氏名：岩田 尚能

受入研究者：赤田 尚史

共同研究者：柳澤 文孝・吉原 美咲

### 1. 成果

1. Introduction Beryllium-7 is a cosmogenic radionuclide produced in the stratosphere. Beryllium-7 descended from the stratosphere to the troposphere due to the sphere interface gap. It is carried in the atmosphere attached to aerosols. Ice Monster (Juhyo) are generated on the top of Mt.Zao (free atmosphere layer) by repeating icing, snow accretion and sintering. The Beryllium-7 of Ice Monster (Juhyo) were measured. Backward trajectories were calculated to examine atmospheric transport process.

2. Results It could be classified into two cases according to the concentration of Beryllium-7.

(1) High Concentration of Beryllium-7 In case of high Beryllium-7 concentration, the wind from Siberia is predominant. Beryllium-7 descended from the stratosphere to the troposphere due to the sphere interface gap on the north side of Lake Baikal in Russia. Beryllium-7 in the atmosphere attached to aerosols flew to Mt. Zao by the northwest monsoon.

(2) Low Concentration of Beryllium-7 In low Beryllium-7 concentration, the wind from southwestern China is predominant. Beryllium-7 is rarely supplied from the stratosphere to southeastern China.

### 2. 論文

## 放射線教育用簡易測定器の開発と校正に関する研究

氏名：飯本 武志

受入研究者：赤田 尚史

共同研究者：庄 沁優・小池 弘美

## 1. 成果

本研究では、KINDpro（ケニス社製）を例として、放射線教育用簡易測定器に関する特徴を調査、整理した。 $\gamma$ 線の周辺線量当量や方向性線量当量の測定に関する規格基準として、放射線サーベイを目的とする線量計の性能についてのJIS Z 4333:2014「X線、 $\gamma$ 線及び $\beta$ 線用線量当量（率）サーベイメータ」を参考にした。ここでは、教育用放射線量計を使用する際に重要となる「温度特性」「方向特性」「エネルギー特性」について着目した。温度変化の幅が大きな屋外での使用が想定されるため、線量計の温度特性の検討は重要となる。試験では恒温箱を自作し、保冷材とカイロを用いて環境温度を調整した。標準試験条件でCs-137とCo-57線源を照射した際の指示値を基準とし、温度変化後の指示値から基準値を差し引いた値の基準値に対する百分率を求めた。結果、約 $+10^{\circ}\text{C}$ ～ $+38^{\circ}\text{C}$ の温度範囲でKINDproの指示値は約 $-11\%$ ～ $+10\%$ の範囲で変動し、温度が低いほど、指示値は高くなる傾向であった。たとえ標準となる使用方向を事前に定めていても、放射線の専門家ではない学生・生徒が環境中で線量計の向きを気にせず使用できる可能性はある。線量計の方向特性を明らかにし、かつその特性の重要性を使用者に示すことは教育的にも意味がある。正対位置を $0^{\circ}$ とし、入射角度を $0^{\circ}$ 、 $\pm 45^{\circ}$ 、 $\pm 90^{\circ}$ 及びKINDproの下部（表示画面がある面を上部とする）を線源に向けた状態でCs-137線源の $\gamma$ 線を照射した。入射角度 $0^{\circ}$ で照射した際のレスポンス（表示値と実際に照射した線量の比）を基準値として、各角度に対する相対レスポンスを求めた。結果、この相対レスポンスは $0.91$ ～ $1.12$ の範囲で変動し、変動が最大となるのは下部を線源に向けた方向であることが分かった。この傾向は主にKINDproのCsI結晶のサイズ（ $12\text{ mm}\times 12\text{ mm}\times 5\text{ mm}$ ）と位置に起因している。教育目的利用では、環境中に存在する複数の核種を同時に測定することになる。測定器のエネルギー特性を明らかにすることは、その安定性の確保の意味でも重要となる。本試験では、KINDproの比較として教育用のA2700（クリアパルス社製）、放射線施設管理用のTCS-161（アロカ製）とTCS-172（アロカ社製）を用意した。これらにCo-60、Cs-137、Ba-133、Co-57、Am-241線源の放射線を照射し、Cs-137線源で照射した際のレスポンスを基準値として、各エネルギーに対する相対レスポンスを求めた。結果、KINDproのCo-60、Cs-137、Ba-133、Co-57、Am-241線源に対する相対レスポンスは、それぞれ $1.22$ 、 $1.00$ 、 $1.27$ 、 $0.40$ 、 $0.11$ となった。想定される教育用放射線量計による測定対象は主に環境中の自然起源の放射線であることを勘案し、もっとも重要となるU系列、Th系列、K-40と、加えて、福島事故由来のCs-137が放出する $\gamma$ 線のエネルギー範囲におけるエネルギー特性は、上記JISの規格要件を満たしており、かつ他の比較線量計とも遜色のない性能を示したので、本研究で扱った

KINDpro については、現時点で大きな問題はないと結論された。今後は上記の試験で明らかとなった KINDpro の特徴に基づき、性能のさらなる向上に資する簡便な方法についての検討を進める。また、これらの情報を基に、教育用放射線量計の適切な活用方法や使用環境に関する解説書を作成し、放射線リテラシーの向上に貢献する。

## 2. 論文

飯本武志, 高木利恵子, 掛布智久(2021). 日本の原子力・放射線教育の国際展開への貢献 1. アジア太平洋諸国への放射線教育の展開, 日本原子力学会誌, 63(11), 754-756

庄沁優(2022). 教育用放射線量計に求められる特徴とその効果的な利用に関する検討, 東京大学大学院新領域創成科学研究科修士論文(未公刊).

## 新学習指導要領による高校検定教科書における放射線・環境・ 震災教育の変遷調査

氏名：佐瀬 卓也

受入研究者：赤田 尚史

共同研究者：阪間 稔・丸山 晴男

### 1. 成果

研究目的：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年度から全面施行が為される。特に高校地理は約30年ぶりに必修化され、東日本大震災の環境影響について記載増加の予定である。本研究の目的は改訂前の高校検定教科書における放射線・環境・震災教育の記載を調査し、現状を把握することである。

材料及び方法：高等学校の検定教科書のうち、東日本大震災や原子力発電、放射線等についての記載があると想定される教科科目（地理A、地理B、科学と人間生活、物理基礎、物理、総合物理2、化学基礎、化学、地学基礎、地学）計10科目について、2021年度に検定合格した総ての教科書計64冊について関連記載の調査を行った。

結果及び考察：高等学校における学習指導要領の完全施行は来年度であるが、一部の教科書においては新学習指導要領に対応して東日本大震災による原子力災害に関する記載が先行記述されていた。また同じ科目においても出版社の違いにより該当項目における分量や詳細度に差異が見られた。2022年度の高校1年生が使用する検定教科書では、新学習指導要領に即した記載で統一される予定であり、その記述内容、分量に関心が持たれる。

### 2. 論文

無し

## PHITS 計算と 3D-CAD 設計の融合による高精細 MRCPs 四面体メッシュ人体 及び環境構造体における被ばく線量評価

氏名：阪間 稔

受入研究者：赤田 尚史

共同研究者：佐瀬 卓也

### 1. 成果

原発事故の発生に伴い原子力発電所から放出された放射性物質(微量粒子状物質など)は、大気浮遊塵(SPM や PM の粒子状物質)に付着し、放射性プルームの形態で大気循環により広域に放出されている状況の中で、現地調査フィールド活動での土壌を中心とした環境試料すべてを採取し、各種の分析に供することには限界がある。事故直後の土壌沈着に伴う外部被ばくや外呼吸からの内部被ばくによる健康影響評価、事故直後から現在に至るまでの預託実効線量評価も含め保健物理学的な重要なタスクである。当該報告年度では、PHITS と ICRP ボクセルファントム(Publication 110: Adult Reference Computational Phantoms)を用いて、これまで報告がなされている分析調査結果データをイニシャルパラメータとし、放射線輸送計算を計算空間上に配置させたその人体ボクセルファントムや、近年、適用拡大が図られている高精細な四面体メッシュファントム Adult Mesh-type Reference Computational Phantoms (MRCPs)を用いて、モンテカルロシミュレーション(MC)計算の環境整備と実施することができた。特に、人体のみならず人間が生活する環境中の環境構造体についても精細な 3D-CAD データを用いて、Fusion360 でそのデータを取扱い、.stl ファイルに出力させることで、PHITS 計算への連成計算に持ち込むための tetgen による四面体構造メッシュ化を実施し、その堅実なワークフローを構築することができた。そのデータにより高精細なジオメトリ環境を MC 計算空間へ作用させることで、より実空間に近い人間と環境のもとで網羅的に計算し、原子力災害に伴う放射性核種の被ばく線量評価に係わる機序についての新たな放射線挙動に関する情報を適用することができた。

### 2. 論文

Erika Matsumoto-Kawaguchi, Minoru Sakama, Ken'ichi Fujimoto, and Hitoshi Ikushima, Dose Assessment on the Mean Absorbed Estimates Derived from the Simple Approach Method Applying Marinelli-Quimby's Formula for Ambient Risk Organs to Thyroid Uptake in the Administered <sup>131</sup>I Radiopharmaceutical of Graves' Disease Using PHITS and ICRP Reference Computational Voxel Phantom, Radiation Environment and Medicine 10(2) 87-95 (2021).

## 付加線量法によるアライグマの外部被ばく量推定法の確立

氏名：高橋 温

受入研究者：三浦 富智

### 1. 成果

【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。そこで本研究は、解析可能なスペクトルを得るために、試料へ $\gamma$ 線の追加照射を行うことでターゲットとなる炭酸ラジカルを増加させ、炭酸シグナルのS/N比を向上させることでフィッティングを目指す。

【方法】 アライグマの歯から調整したエナメル質試料を用いた。未照射では十分な解析ができなかった試料に $\gamma$ 線を照射し炭酸ラジカル量を増加させ、炭酸ラジカルのシグナルが相対的に他の妨害物質の影響に比較して優位になるよう調整し、ESRスペクトルの解析を試みた。さらにESRシグナルと吸収線量との間には直線関係があることを利用し、得られたグラフから回帰することでアライグマ各個体の外部被ばく線量を推定した。

【結果と考察】  $\gamma$ 線の追加照射により、従来解析が難しかったESRスペクトルを得ることができた。照射線量とESR intensityには直線関係があることは知られているため、未照射でフィッティング不良などの要因で十分な解析ができなくても追加照射により炭酸ラジカルのS/N比を上昇させることで推定できるようになることが示唆された。本研究により、アライグマのESR線量計測法が整備されることで、アライグマにおける被ばく影響を扱う研究全般にきわめて有効な情報が得られる、すなわち、従来は環境線量を指標とせざるを得なかった外部被ばく量を、個体ごとに推定できるようになる。そのため関連する研究全般の結果の信頼性を著しく向上させることができるものと考えられる。さらに、ESR線量計測の適用が困難である動物種へ応用し、外部被ばく量推定を可能にする足がかりとなる基礎的研究となる。

### 2. 論文

## 被災アカネズミにおける精原幹細胞の自己複製および分化の影響解析

氏名：山城 秀昭

受入研究者：三浦 富智

共同研究者：中田 章史

### 1. 成果

【目的】 生殖巣は放射線高感受性組織の一つであるが、とりわけ低線量率・低線量の放射線における配偶子形成への影響は不明な点が多く、確定的影響は生殖機能の低下すなわち不妊である。雄性の生殖巣は精巣であり、精原幹細胞→精原細胞→精母細胞→精子細胞→精子と分化・成熟する。後期精原細胞の放射線感受性は、高いことが知られているが、精原幹細胞に影響がでる線量を被ばくした場合、精子形成が行われず、永久不妊が起こる。しかし、精原幹細胞の放射線影響は不明である。そこで本研究では、福島原発旧警戒区域内にて継続して被災アカネズミを捕獲し、生殖器官を採取・保存するとともに、精原幹細胞の自己複製および分化に着目し、繁殖期および非繁殖期の初期精子形成の動態を解析した。

【研究結果】 慢性的な低線量率・低線量被ばくが被災アカネズミの精原幹細胞に及ぼす影響を明らかにするために、精原幹細胞特異的マーカーPLZFに対する抗体を用いた免疫蛍光染色を行った。その結果、被災アカネズミの繁殖期および非繁殖期の精巣内における PLZF 陽性細胞数は、新潟アカネズミに比較して、増加する傾向が見られた。このことから、低線量率・低線量の慢性被ばくは、被災アカネズミ精巣内における精原幹細胞の自己複製を促進することが示唆された。今後は、RNA-seq 解析を実施し、得られたデータに基づいて、特に初期精子形成に関わる遺伝子の発現変化に着目し、生殖細胞系列特異的であつ、慢性的な低線量・低線量率被ばくに高い感受性を示す候補バイオマーカーを探索する。

### 2. 論文

Komatsu K, Murata K, Iwasaki T, Tokita S, Yonekura S, Sugimura S, Fujishima Y, Nakata A, Miura T, Yamashiro Y. Changes in ovarian morphology and hormone concentrations associated with reproductive seasonality in wild large Japanese field mice (*Apodemus speciosus*). *Animal Reproduction*. 2021;18(4):e20210067. DOI: <https://doi.org/10.1590/1984-3143-AR2021-0067>.

## アライグマ骨組織への放射性物質取り込みに関する組織局在評価

氏名：清水 良央

受入研究者：三浦 富智

共同研究者：篠田 壽・佐野 有哉

### 1. 成果

本研究では、福島原発事故による被災動物の骨組織への放射性物質の取り込みについて、組織学的局在を検討することを目的とする。福島原発事故により拡散した放射性物質は、呼吸や摂食により生体内に入る、内部被曝が生じるが、取り込まれた放射性物質は歯や骨など硬組織の形成期に蓄積性に取り込まれるとされる。しかし歯や骨は、細胞が存在する小腔や突起などが存在する細管、基質の層板構造など微細な構造の組織学的な局在については明らかになっていない。本研究では動物の骨サンプル研磨標本を用いて、イメージングプレートとオートラジオグラフィによる局在を比較し確認した。

#### 材料および方法

使用したサンプルは被災動物の下顎骨水平断面の研磨標本を用いた。樹脂包埋した歯を含む下顎骨を約3mmの厚さでスライスし、イメージングプレートに置き、2カ月反応させた後、現像した。イメージングプレートでの検討後、プレート設置面で、アクリル板に接着し、さらに研磨したものをを用いて、乳剤に浸漬した後、3カ月反応させた後、現像した。イメージングプレートでの画像は、領域ごとに黒化度を示すグレイスケールにより数値化した。グレイスケールは黒が0、白が256とした。またオートラジオグラフィを行った標本は、領域ごとに顆粒のドット数をカウントし、計測領域の密度として計測した。さらにオートラジオグラフィは、Agの凝集があることを確認するため、EDXにて表面に存在する元素について確認した。

イメージングプレート像では、被ばく後に形成された領域、歯では歯根象牙質、セメント質に、また骨では成長に伴って添加された顎骨外側により濃い領域が確認され、成長に伴う添加骨組織中に取り込まれやすいことを確認した。土壌などが入り込みやすい咬合面の窩内が最も濃かった。この標本を用いたオートラジオグラフィでは、硬組織や軟組織の一部に光学顕微鏡で観察できる黒ないしグレイの顆粒状粒子が観察された。硬組織では骨基質中に観察されたが、骨小腔、骨細管、層板構造における局在性は明瞭ではなかった。この粒子はEDXによる分析でAgがあることが確認できた。イメージングプレート上でのグレイスケールの黒化度の高い骨基質領域、低い骨基質領域のグレイスケールを計測し、同じ部位のオートラジオグラフィでのドット密度を計測して相関関係について検討した。全部で6領域の計測した相関係数はイメージングプレートの黒化度の高い領域は、オートラジオグラフィでの密度は相関係数  $R^2$  乗 0.64 で相関関係を示した。

以上のことから本法でのオートラジオグラフィは、組織中の細胞、細胞外基質での局在を確認できると同時に、領域内のドット数の密度によって放射性物質の取り込み量を客観的に評価できる方法として活用できると思われた。

### 2. 論文 なし

## 野生キノコの放射性セシウム濃度の測定

氏名：木野 康志

受入研究者：三浦 富智

共同研究者：山下 琢磨

### 1. 成果

1. はじめに キノコは他の農作物と比べて多くの放射性セシウム(Cs)を蓄積することが知られている。このことは、大気圏内核実験が盛んであった 1964 年に Grüter により報告された[1]。その後、チェルノブイリ原子力発電所事故が起こり、東ヨーロッパを中心に多くの報告があった[2]。また、1990 年代に日本でも野生キノコの汚染が調査されたが、チェルノブイリ事故の影響は少なく、それ以前の大気圏内核実験由来の放射性 Cs による汚染であった。2011 年 3 月、東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故（以降、原発事故）により、多くの放射性物質が大気中に放出された。

原発事故直後は、東日本各地で食物の放射能汚染が報道され、社会問題となった。原発事故から 11 年以上経過し、多くの混乱は収束してきたが、自生キノコの汚染は続いている。宮城県内でも、栗原市、大崎市、仙台市、村田町で自生キノコの出荷制限が 2022 年 3 月現在も続いている[3]。放射性 Cs による自生キノコの汚染は、採取場所や種類により様々であり、安全なキノコもあれば、基準値を超えるキノコもある。自生キノコの安全性を判断するには、多くのデータを広い範囲で長期間にわたって集める必要がある。我々は、仙台キノコ同好会と共同で、宮城県内の野生キノコを現在まで継続的に採取し、汚染の動向を調査している。

2. 実験方法 採取したキノコは、表面の土や落ち葉等をティシュペーパー等で拭き取り、放射能を測る効率を高くするため 1 週間以上 50° C のオーブンで乾燥させた後に破碎し、100 mL の円筒形のプラスチック容器に均一に詰めた。キノコは乾燥により、体積が 10 分の 1 以下になった。乾燥すれば、放射能測定後に常温で保存できる。将来、放射能以外の測定の可能性も考えて、または事故の記録として、全ての検体を保存している。キノコ同士の放射能が混じらない様、それぞれの処理はキノコ毎に別々に行った。試料に含まれる放射能の測定は、低汚染の試料の放射能も精度よく測定できる高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた。一つの試料の計測時間は 3 時間程度であるが、汚染が弱いものや、重さが少量のものは最大 10 日間かけて測定した。汚染の強さは放射能濃度で評価した。放射能濃度は、1 キログラムあたりの放射能の強さ（単位：ベクレル, Bq）を意味し、Bq/kg と表す。本稿では、この放射能濃度 (Bq/kg) の算出には、キノコ試料の重量は乾燥前の生の重量を用い、Bq/kg 生 または単に Bq/kg と記す。キノコの含水量は、80%から 95%であるので、表示の値の 5 倍から 20 倍が乾燥重量あたりの値となる。

高純度ゲルマニウム半導体検出器(HPGE)でガンマ線を測定し、放射性セシウムの放射能濃度を求めた。HPGE の回りは、天然の放射線を遮蔽するため厚い鉛（厚さ 10-15 cm）、銅

(同 1 cm)、鉄 (同 5 cm)、アクリル (同 1 cm)の板 (放射線により生じる遮蔽体からの特性 X 線を効率よく遮蔽するため内側を低原子番号にする) で囲った。

3. 結果と考察 2011 年から 2021 年までに採取されたキノコの放射能の値の範囲を、採取区分地毎にまとめて、年毎の推移を示す。汚染の全体的な推移を調べるため、キノコを採取した場所を、文部科学省の 2011 年 7 月 2 日航空機サーベイにより測定された線量マップ [15]中の汚染レベルの区分にしたがって、3つのグループに分けた。(1) 比較的汚染の低かった仙台近郊の標高の低い里山や林、(2) 次に汚染が高かった宮城県北部・中部の山間部、(3) 宮城県内では汚染が高かった宮城県南部の山間部とした。中央値をみると、仙台近郊以外の場所では依然として一般食品の基準値の 100 Bq/kg を超えていた。また、中央値の変動をみれば、年変化の傾向がわかるが、全体的な傾向としては、2012 年に増加した後、徐々に減少している。この減少の主な原因は、半減期 2 年の Cs-134 の減衰によるものであり、この減衰をのぞくと、ほぼ一定の値となった。

#### References

- [1] H. Grüter, *Naturwissenschaften*, 51, 161-162 (1964).
- [2] A.G. Gillett, N.M.J. Crout, *J. Environ. Radioact.* 48, 95-121 (2000).
- [3] <http://www.rinya.maff.go.jp/j/tokuyou/kinoko/qa/seigenmiyagi.html>

## 2. 論文

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, Valerie Swee Ting Goh, 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

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 (2021) 1772 (13 pages)

福島第一原発事故後の放射線生物影響調査のための野生アライグマの被ばく線量評価, 小野拓実、木野康志、清水良央、高橋温、藤嶋洋平、Varerie Swee Ting Goh、有吉健太郎、中田章史、鈴木正敏、中川貴美子、高橋常男、山田良広、遠藤暁、山城秀昭、関根勉、篠田壽、三浦富智, *Proceedings of the 22nd Workshop on Enviromental Radioactivity, KEK 2021-*

2 (2021) 85-90

## 微小核法を利用した精子形成過程における放射線感受性評価の検討

氏名：中田 章史

受入研究者：藤嶋 洋平・三浦 富智

共同研究者：山城 秀昭

### 1. 成果

微小核法を利用した精子形成過程における放射線感受性評価の検討 中田章史(北海道科学大学), 山城秀昭(新潟大学), 三浦富智(弘前大学) 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、ヒト末梢血リンパ球における細胞遺伝学的線量評価法で用いられる細胞質分裂阻害微小核 (CBMN) 法が生殖細胞に対しても有用であることを明らかにした。本年度は、マウスの精細胞に対して、CBMN法によって得た細胞標本に対して減数分裂のステージの分類するために蛍光免疫染色法が適用可能か検討したので報告する。蛍光免疫染色として、減数第二分裂期 (MII) に特異的に発現している REC8 タンパク質に対するウサギモノクローナル抗体抗 REC8 抗体の抗体を使用した。標本は反応終了後、核に対する対比染色を行い、蛍光顕微鏡で観察した。その結果、免疫蛍光染色の観察像より REC8 が 2 核細胞の核に存在していることが示された。2020 年度 ERAN の研究結果から、2 核細胞における微小核の判定には、核と細胞質の二重染色が必須でありアクリジンオレンジ染色が最適である。しかし、今年度使用した検出用の二次抗体の蛍光色素とアクリジンオレンジは波長が類似しているため識別が困難である。今後は、検出用の二次抗体の波長の選択および蛍光フィルターセットの最適化を行い、核、細胞質、細胞周期マーカーの多重染色法の確立を目指していきたい。

### 2. 論文

## 福島第一原発事故後の放射線被ばくによる 野生動物体内の 酸化ストレス状態

氏名：鈴木 正敏

受入研究者：三浦 富智・藤嶋 洋平

共同研究者：石川 諒椰

### 1. 成果

生活圏に放出された放射性物質による被ばく影響の知見やその検証は、放射線災害時の被ばく影響リスクの推定に役立つ情報となる。福島第一原子力発電所事故では環境中に放射性物質が放出された一方で、環境汚染によって生じる被ばく線量率は過去に生じた原子力災害事故と比べて低いことが報告されている。放射線被ばく影響は線量・線量率に依存して生じるため、知見が少ない線量域の被ばく影響を福島県浜通りの野生動物で調査することは科学的な意義がある。本共同研究では、有害鳥獣駆除された後の浜通りの野生ニホンザルから採取した試料を用いて線量評価と生物学的解析を行い、両者の相関から放射線被ばく影響について検討を行なった。高線量率被ばくと比べて、低線量率被ばくでは酸化ストレスによる影響が生じる可能性が示唆されていることから、本共同研究では生物学的指標として酸化ストレスとその生体防御機構の活性状態とのバランスである酸化ストレス状態に着目した解析を実施した。

本解析では福島県外の対照群、及び浜通りで有害鳥獣駆除された個体から採取した試料を用いて解析を行なった。いずれの地域の個体も大腿筋に含まれる放射性セシウム濃度をゲルマニウム半導体検出器を用いて測定し、野生ニホンザルのサイズを模擬した楕円体ファントムを用いた PHITS モンテカルロシミュレーションにて決定した線量率換算係数を用いて内部被ばく線量・線量率を評価した。解析個体の一部について、ニホンザルの歯から抽出したエナメル質を電子スピン共鳴分析によって外部被ばく線量を評価した。酸化ストレス状態の指標として酸化ストレスについてはマロンジアルデヒド(MDA)濃度、生体防御機構については抗酸化酵素スーパーオキシドディスムターゼ(SOD)活性を測定した。MDA 濃度、SOD 活性は測定試料中に含まれるタンパク質量で補正し、被ばく線量評価との関連性を検討した。

野生ニホンザルから採取した肝臓を測定種類ごとに適した方法で試料を調整し、酸化ストレスマーカーの計測を行なった。MDA 濃度、SOD 活性ともに対照群では一定の範囲でバラついていることが確認された。この範囲を基準として被ばく個体群の解析結果の変動と線量・線量率との関連性について検討を行なった。MDA 濃度については対照群のバラつき範囲を超えずに、高値側に集束する傾向が見られた。また、今回解析した個体の中で特に内部被ばく線量・線量率の高い個体でのみ、対照群の範囲よりも高い MDA 濃度を示した。SOD 活性については、被ばく群の測定結果が対照群のバラつき範囲の低値側に線量・線量率依存的に低下する傾向が確認された。以上の解析結果より、福島第一原子力発電所事故に

よる環境汚染からの被ばくによって、肝臓では酸化ストレスを受けやすい分子・細胞レベルの応答反応が生じている一方で、今回解析した被ばく範囲では、酸化ストレスは生理学的な変動範囲を超えずに高値へのシフトが持続している状態であることが確認された。このため、肝臓において解析結果で示された変動が長期間持続することと、臓器機能に及ぼす影響の有無について今後さらなる検討が必要になることが示唆された。

## 2. 論文

## 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

氏名：苅部 甚一

受入研究者：田副 博文

共同研究者：白井 厚太朗・中田 裕希・江口 貴博

### 1. 成果

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。また、この原発にたまり続けているトリチウムなどの放射性核種を含む処理水の海洋放出が決まっている。この処理水には放射性 Sr も含まれている可能性があり、この海域における放射性 Sr モニタリングは今後にも必要である。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。そのため、長期的に放射性 Sr モニタリングを継続して行うためにも、放射性 Sr 分析法の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。

福井県の貝殻では1-2cm, 2-3cm, 3-4cm, 5-6cmのサイズ区分の貝殻の Sr-90 分析を行い、各サイズで Sr-90 は検出できなかった（定量下限値：1.0-1.7Bq/kg 以下）。福島県の貝殻は、小型の1-2cm, 2-3cm は定量下限値以下（1.0, 3.3Bq/kg）であったが、3-4cm では3.0Bq/kg（n=3）、4-5cm では3.3Bq（n=3）、5-6cm では8.3Bq/kg（n=6）、6cm以上では6.5Bq/kg（n=3）となった。一番大きい区分の6cm以上よりも5-6cmの貝殻の Sr-90 濃度が高くなってはいるが、全体的には貝殻サイズが大きくなるほど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）であった。二枚貝の貝殻サイズが大きいことからその個体の生息期間が長いことが予測できるため、今回のような大型個体で Sr-90 濃度が比較的高くなる傾向を示す要因の一つは、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くなっており、その海水に含まれる大量の Sr-90 を大型個体が取り込み、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. 論文

## 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

氏名：神田 穰太

受入研究者：田副 博文

共同研究者：石丸 隆・伊藤 友加里

### 1. 成果

高線量粒子の海洋生態系影響に関して、特にプランクトンについて注目して検討している。プランクトンは、底生生物群集を含めた海洋生態系全体の物質移行の出発点になる生物群であり、その放射能レベルは多くの生物群の放射能レベルの推移に影響する可能性がある。セシウムは海水からプランクトンに移行し、動物プランクトンでは海水の他に餌となる植物プランクトンなどからも移行する。プランクトン体内のセシウムは比較的すみやかに体外へ排出され、海水と交換している。そのため、一般には海水のセシウムレベルの変動に追従すると考えられてきた。しかし、これまでに得られているプランクトン試料の一部については、1) 海水の値から考えて非常に高いレベルの試料が散発的に得られる 2) 通常想定される濃縮比を超えた値の試料がある、ことなどがわかっている。海洋など水圏環境におけるプランクトンの採取は、メッシュサイズ 100mm や 330mm などの「プランクトンネット」によって行っている。プランクトンネットでは、あるサイズ以上の粒子はほぼ全て捕集されるため、プランクトンだけが採取されるとは限らない。しかし、ネットで捕集されるサイズの特定の種類の混入粒状物について、質量あたりの放射能レベルが高いものは確認できていない。そこで、陸域及び海域の多くの環境試料から見いだされる高セシウム含有微細粒子 (CsMPs) の影響が想定された。昨年度から、保有しているプランクトンネット試料についてイメージングプレート (IP) を用いたオートラジオグラフィによる解析を行ってきた。プランクトンネット試料で得られた大型の浮遊物で、これまでに我々が確認した CsMPs の含有は 1 例のみであった。2011 年 7 月に東京海洋大学「海鷹丸」で得た試料で、2 mm 角の繊維強化プラスチックの 1 つに 4 個の CsMPs を含む約 20  $\mu$ m の粒状物が含まれていた。そこで、昨年度は時系列データの全体の傾向から外れて特に高い放射能を示すプランクトンネット試料を選び出し、イメージングプレート (IP) により、CsMPs の確認を行った。1Bq スタンダード粒子の volume 値に対し、およそ 1/10 値以上の粒子を明瞭な CsMPs とし、こうした粒子を含む複数の試料が確認された。しかし、CsMPs (我々の基準による) の寄与率は 0~56% であり、高い放射能の全てを CsMPs で説明することはできなかった。

今年度は、明瞭な CsMPs を含まない試料について、長時間曝露による IP 画像を作成し、実態を解明する端緒とした。明瞭な CsMPs が見られないプランクトンネット試料について、長時間曝露 (曝露時間 72 時間) の IP 解析を行った。その結果、これらの試料では数個~数十個の比較的高線量の粒子が全体の放射能レベルに大きな寄与をしているものと推定された。これらの粒子の放射能は、これまでに報告されている CsMPs の放射能よりずっと小さい。この粒子の単離には至っておらず、どのような由来、性状のものかについての確認は

今後の課題である。可能性としては、比較的放射性セシウムを多く結合するとされる鉍物粒子などが考えられる。

これらがプランクトンネット試料に含まれるのは、動物プランクトンに誤食され、消化管内に入ったままネットで捕集された可能性や、糞粒に入って捕集される可能性が考えられる。また、一部の植物プランクトンおよび植物プランクトン由来の粘着性高分子、糞粒、鉍物などが凝集して形成されるデトリタス（マリンスノー）として捕集される可能性もあると考えられる。CsMPs の単離とあわせて、上述のような粒子についても単離を行い、性状を明らかにしていきたい。

## 2. 論文

Holmerin, I., F. Svensson, T. Hirawake, T. Ishimaru, Y. Ito, J. Kanda, F. Nascimento, C. Bradshaw: Benthic food web structures as an explanation for prolonged ecological half-life of <sup>137</sup>Cs in flatfish species in the Fukushima coastal area, *Journal of Environmental Radioactivity* 246, 106844 (2022) <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2022.106844>.

## 放射性微粒子による作物への影響解析

氏名：二瓶 直登

受入研究者：吉村 和也

共同研究者：吉村 和也

### 1. 成果

【目的】空間線量の高い地域では僅かだが浮遊物に放射性セシウム(RCs)が含まれており、作物栽培時にその影響が懸念される。これまで非汚染土壌で栽培した作物から洗浄後でもRCsが検出されることを確認したが、どのような経路でRCsが取り込まれたか不明である。本課題では、試験地に放置した土壌を用いた栽培試験より、作物への吸収経路の検討(実験1)と新たに沈着したRCsの取り込まれやすさを移行係数で検討した(実験2)。

【実験】(実験1)非汚染土壌を詰めたポットを福島県内に設置し、一定期間放置後、ポットを回収して人工気象器内で作物(コマツナ)を栽培した。収穫物の放射性Csをゲルマニウム半導体検出器で測定した。放置は2019年5月から11月まで4回繰り返した(Period1:5/26-6/29, Period2:7/15-8/4, Period3:8/10-9/6, Period4:9/21-11/2)。(実験2)汚染土壌をプランターに詰め、福島県内の帰還困難区域に放置した。一定期間放置後、ポットを回収して人工気象器内で作物(コマツナ)を栽培した。収穫物、土壌の放射性Csをゲルマニウム半導体検出器で測定した。放置は2019年8月から2020年3月まで行った。

【結果】(実験1)Period1,2では洗浄したコマツナのRCs濃度と試験地に放置後のプランターで栽培したコマツナのRCs濃度がほぼ同等であった(図)ことから、洗浄したコマツナのRCs吸収経路は経根と想定される。Period3,4では洗浄したコマツナのRCs濃度が放置後のプランターで栽培したコマツナのRCsより高かった(図)。この期間は降雨(台風)があり沈着量も多く、洗浄したコマツナは経根の他、洗浄で取りきれなかった付着したRCs微粒子と、葉面吸収によりRCsを取り込んだと考えられた。(実験2)試験地に放置後の土壌ではRCs濃度が増加し、その土壌で栽培したコマツナのRCs濃度も増加した。土壌からコマツナへの移行係数(コマツナのRCs濃度/土壌のRCs濃度)は、試験地に放置しなかった土壌(Cont.)に比べ放置した土壌で高まり、付着したRCsの移行係数が原発事故時に低下し土壌へ付着したRCsの移行係数より高いことが示された。両試験により土壌に新たに沈着したRCsは根を通して吸収され、原発事故時に沈着したRCsより植物に移行しやすいと考えられた。

### 2. 論文

## 生物の鉍物形成作用と核種固定化に関する研究

氏名：尾崎 紀昭

受入研究者：土肥 輝美

共同研究者：土肥 輝美

### 1. 成果

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「生体鉍物化作用」に着目し、基礎知見として円石藻による生体内の核種固定化への寄与を評価することを目的とした。2020年度より、培養株の入手・培養の容易性・生体内核種分析への適用性の観点から、培養株の選定および分析手法の検討を行ってきた。2021年度は、新たに2種の培養株を加え、培地の検討を重ねることで、増殖・石灰化の両観点から安定的な培養法を確立した。さらに、2021年度に検討した電顕分析に先立ち、共焦点レーザー顕微鏡を用いて、Ca検出試薬を円石藻に取り込ませることで、「その場観察」によって、生きたまま細胞内のCaの局在を観察することに成功した。今後、このようなアナログ元素での取込み試験および生体内動態の分析について検討を重ね、Srを用いた試験への適用を目指す。

### 2. 論文

## Cs 保持に関わる環境試料の前処理・分析手法の確立

氏名：川村 秀久

受入研究者：土肥 輝美

共同研究者：田籠 久也・山田 映見・土肥 輝美・藤原 健壮

### 1. 成果

環境試料中に含まれる Cs 含有粒子 (CsMP) を例に、それらの物理化学状態解明のため、電顕的手法・質量分析法を組み合わせた手法を確立した。2020 年度以降は、Cs 同位体比率を評価することを目的として、標準試料を用いた同位体比評価を進めてきた。2021 年度は、実試料 (地衣類) から単離した CsMP を用いて Cs-133、Cs-135、Cs-137 同位体比評価を行い、文献値との比較により FDNPS 事故 (2・3 号機) 由来の CsMP であることが示された。Ba-136、Ba-138 の同位体比評価を行い、天然存在比と異なることを見出した。また、Cs-135、Cs-137 同位体比評価において、同重体 (Ba-135, Ba-137, SnO-135, SbO-137) の質量強度による Cs 同位体評価への影響について調べたところ、それらの質量強度は Cs-135、Cs-137 の質量強度に対して 1%以下であり、Cs-135、Cs-137 の同位体比評価への影響は極めて小さいことが示された。本研究課題において、前処理から電顕的手法、質量情報までの分析手法を確立できた。

### 2. 論文

## 福島環境モニタリングを目的とした採泥機能を有する小型無人船の開発(2) u-ASV による協調制御

氏名：田原 淳一郎

受入研究者：眞田 幸尚

共同研究者：森戸 誠・小野 聡太郎・藤井 竣

### 1. 成果

東京海洋大学と JAEA を中心とした研究チームでは、海底の放射線計測と採泥を行う無人船（採泥 ASV）の監視を行うための「小型 ASV(u-ASV)」の開発を行っている。採泥 ASV は定められた測定点への自動航行および測定点での定点維持の運用が想定されている。u-ASV には、採泥 ASV を自動認識し追尾すること及び定点維持中に採泥 ASV を中心に周辺を周回し、漂流物や他の船との干渉を未然に防ぐことが求められる。本研究では、採泥 ASV の自動認識を想定したカメラシステムによる画像処理技術の適用について検討を行った。まず、採泥 ASV に設置された赤色・黄色・青色のマーカーボール（以下マーカー）を u-ASV に搭載されたカメラシステムの画像処理により自動認識できるアルゴリズムを構築した。アルゴリズムベースには、実績のある一般の PC で動作可能である OpenCV を採用し、色による画像処理で採泥 ASV を認識する。認識したマーカーの位置関係を使い、採泥 ASV と u-ASV の 1) 距離計測、2) 相対角を自動計算する。これにより採泥作業中の採泥 ASV と u-ASV の位置関係が計算でき、一定距離を開けた追尾や周回時の基礎情報となる。本手法は、GPS やレーザー距離計等の直接的な手法と比較して、対象（採泥 ASV）と自身（u-ASV）の位置を事前登録する必要がないなどメリットが多い。構築したシステムを実際に u-ASV にカメラシステムを搭載し、採泥 ASV にマーカーを設置し海上での試験を実施した。海上試験の結果と、周囲に誤認識要因がない地上での各マーカーの検出は可能であったが、黄色は注意色として防波堤の車輪止め等港湾で多用されていたり、青色は逆光と空の色が誤認識要因となることが分かった。3色の中では適用性の高い赤色のマーカーを、u-ASV に搭載した位置・方位固定制御システムによって画像認識の精度を高める最適化を次のステップで実施する予定である。また、いくつかのカメラを比較した結果から、波の動揺の影響を受けにくいジンバルや超広角・魚眼カメラ等の適用性が確認できた。本結果を AROB2022（査読無）において発表を実施した。現在、データの補正等を実施して論文にまとめている途中である。

### 2. 論文

Makoto Morito, Junichiro Tahara, Shun Fujii, Soutaro Ono, Shoichiro Baba and Yukihiisa Sanada, et al, Positioning of Unmanned Surface Vehicle by Image Processing of Small ASV, Proc. of the 27th International Symposium on Artificial Life and Robotics (AROB 27th 2022), pp.765-768, 2022.

## 酸化鉍物表面の核種収着状態に関する分光学的研究

氏名：佐々木 隆之

受入研究者：藤原 健壮

共同研究者：藤原 健壮・土肥 輝美

### 1. 成果

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し、モデル化を試みてきたが、固相表面状態の違いが収脱着挙動に及ぼす影響に着目した研究は十分ではない。本研究では、固相表面や2次鉍物の元素組成・元素分布情報を集積することを目的とし、電子顕微鏡などを用いて固相表面における元素情報を取得、収着現象の解明につながるデータの蓄積を進めている。Cs-137 が収着した 1F 周辺土壌及び、非放射性金属イオンを収着させた微斜長石試料を用いて、土壌構成鉍物表面の核種収着状態の分析法として EPMA, ToF-SIMS, XPS を適用した。1F 周辺の土壌試料は、IP を用いて数百  $\mu\text{m}$  オーダーまで高線量の粒子を絞り込むことで、顕微鏡を用いて鉍物種ごとに弁別することが可能であることが分かった。弁別後の団粒系、長石系、石英系粒子のうち IP で放射能を検出できたのは団粒系粒子のみであった。土壌試料から鉍物種ごとに粒子を弁別するには団粒系粒子のさらなる弁別が必要である。また Eu を含む水溶液に 7 日間浸漬した微斜長石試料について、EPMA, ToF-SIMS により固相表面の元素分布情報を得た。さらに、XPS により収着 Eu のピークを確認できたが、強度は十分でなかった。Sr の浸漬試料では、どの分析法でも検出が困難であることが分かった。より精度の高い分析のためには、収脱着試験において試料浸漬時の収着分配係数  $K_d$  を上げるなどの工夫が必要である。

### 2. 論文

## 放射性セシウムの移動媒体についての鉱物学的研究

氏名：小西 博巳

受入研究者：萩原 大樹

共同研究者：萩原 大樹

### 1. 成果

福島第一原子力発電所 (FDNPP) の事故により環境中に放出された放射性セシウムは、湖や河川の堆積物中に沈着し、台風等の増水時に移動する 2 次的な汚染プロセスが懸念されている。河床堆積物中の鉱物の放射性セシウムの吸着特性を明らかにすることは、動態予測の観点で重要である。近年、著者らは福島県内の河川水系の放射性セシウムの含有量が支配的な細粒分画 (250-106  $\mu\text{m}$ ) において、雲母鉱物だけでなく、有色鉱物や無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、有色鉱物および無色鉱物のうち、特に角閃石と長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。

試料は、FDNPP 周辺の富岡川で採取した河床土を乾燥、分画及び放射能測定後、ハンドピックで鉱物を選別した。TEM 分析用試料は、集束イオンビーム加工装置を用いて薄膜化し、角閃石については、001 方向の断面を作成した。

エネルギー分散型 X 線分析結果から、角閃石は、普通角閃石、長石は、曹長石に分類された。SEM 観察より、角閃石、長石いずれの表面は、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、風化ポテンシャル指数を用いると、劈開周辺がホストと異なり、粘土鉱物化していることが明らかとなった。また、長石表面にはチューブ状のハロイサイトおよび劈開には鉄鉱物の挟在を確認した。これらの結果から、角閃石、長石の表面は、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、長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。

### 2. 論文

## 松川浦から海洋への溶存放射性セシウムの供給過程の解明

氏名：津旨 大輔

受入研究者：林 誠二

共同研究者：辻 英樹・三浦 輝・青山 道夫・浜島 靖典

### 1. 成果

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 11 年が経過したが、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。相馬沖は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く、松川浦を経由した河川の影響の把握に有利だと考えられる。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。

2019 年度から継続的に、宇多川・松川浦・相馬沖において、水中の溶存態および懸濁態の放射性セシウム濃度に加え、松川浦堆積物の間隙水中の放射性セシウム濃度の時系列観測を実施した。2021 年度は、2021 年 8 月 30 日および 12 月 16 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。

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かった。また、間隙水中の溶存放射性セシウム濃度は、松川浦の水中濃度よりも高い。松川浦において、間隙水を通じて堆積物から供給されていることが示された。間隙水中の溶存放射性セシウム濃度のソースと考えられる堆積物中の放射性セシウム濃度の時系列変化は小さいが、空間的な変動が大きいことが分かっている。間隙水／堆積物の分配係数は  $7.6E+2$  から  $1.8E+3(L/kg)$  で変動は小さい。つまり、堆積物中の放射性セシウム濃度と同様に、間隙水中の溶存放射性セシウム濃度の空間的な変動が大きいと考えられる。また間隙水の塩分は、沼水の塩分よりも高く、海水系の湧水が示唆された。

間隙水を通じた堆積物からの溶出フラックスの定量的な把握のためには、松川浦の堆積物の空間分布の把握が重要となる。加えて、松川浦の放射性セシウム濃度の空間分布が大きいことから、松川浦と海水との交換率の空間分布も大きく、その把握も課題となる。

今後、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. 論文

## 付加線量法によるアライグマの外部被ばく量推定法の確立

氏名：高橋 真哉

受入研究者：三浦 富智

### 1. 成果

2011年3月の福島第一原発事故に伴って放出された、放射性物質による土壤汚染が問題となっている。放射性物質の蓄積により空間線量の高い帰還困難区域を含む計画的避難区域は、2013年から面積比で30%弱にまで縮小しているが、土壤汚染により発生する低線量放射線が野生生物に与える影響はほとんど明らかにされておらず、環境放射線による生物影響は今後長期間にわたる継続的な影響モニタリングが必要である。一方で野外の放射性物質汚染による直接的な生物影響は定量的評価が困難であり、現在まで効果的なモニタリング法は存在しない。本研究では、変異型 $\beta$ -グルクロニダーゼ(GUS)レポーター遺伝子を含むシロイヌナズナカルスに対して低線量放射線を曝露し、相同組み換え活性による正常型GUS遺伝子への変異復帰活性を可視的に検出することでDNA損傷生成を測定可能とするモニタリングシステムの開発を行い、現場土壤における低線量放射線影響評価を行うことを目的としている。これまでに、変異型GUS遺伝子(GU-US遺伝子)を持つシロイヌナズナ植物体よりカルスを作成し、現場土壤にて放射線曝露をすることで、その影響モニタリングを行ってきた。具体的には、カルスを移植したアッセイプレートを作成し、福島県内の3箇所(各々の積算線量は3.8、7.18、11.1 mGy)にカルスを移植したプレートを埋設し、30日間静置培養して曝露後GUS染色をおこない、GUSスポットの数を数えることで、相同組換え頻度の検出を行った。その結果、少なくとも11.1 mGyまで曝露した放射線量の増加に応じてGUSスポット数が直線的に上昇することが明らかになった。今年度は、GUSスポット数の計測によるモニタリング以外の手法について検討すべく、野外において高~超高線量下で放射線曝露したカルスの全ゲノム配列の比較を行った。福島県大熊町地内において、高線量以上の2地点(積算線量6.11および14.3 mGy：それぞれ“高、超高線量”と定義)にカルスを30日間埋設した。その後、カルスから抽出したゲノムDNAの全ゲノムシーケンズを行い、放射線曝露による変異誘発数について評価を行った。対象区として、つくば市内(積算線量0.1 mGy)に埋設したカルスのゲノムDNA配列を用いて、一塩基多型、挿入・欠失変異の発生数を比較した結果、これらについて放射線曝露による有意な増加は確認できなかった。以上の結果から、本実験に用いたシロイヌナズナカルスでは、相同組み換え活性の活性化が起こる高線量以上の放射線曝露下でも、DNA修復により変異蓄積を抑制していることが示唆された。また同時に、GU-US遺伝子を持つシロイヌナズナカルスにおける相同組み換え頻度を用いたモニタリングシステムが、他の手法では検出が困難である広いレンジでの低線量放射線において影響評価可能であることを示している。

### 2. 論文

## 次世代シーケンサーを使用した MIG-seq 法による福島県のツキノワグマの 遺伝的集団構造の推定

氏名：根本 唯

受入研究者：玉置 雅紀

共同研究者：斎藤 梨絵・熊田 礼子・今藤 夏子

### 1. 成果

福島県におけるツキノワグマの筋肉中放射性核種濃度が変動する要因の一つとして、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、福島県において遺伝的な集団を推定し、集団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。遺伝的な集団を推定する方法として、近年開発された MIG-seq 法では高い解像度で遺伝的集団を推定することが可能である。しかしながら、福島県のツキノワグマでは従来の手法であるミトコンドリア DNA コントロール領域の解析しか行われていない。そこで本研究では、MIG-seq 法を用いてまずツキノワグマの集団的遺伝構造を明らかにし、従来行われてきたミトコンドリア DNA コントロール領域の解析との比較を行うことを目的とした。本研究では、2013-2018 年に有害捕獲および狩猟によって捕殺されたツキノワグマ(n=162)から DNA 抽出用の筋肉を採取した。採取した筋肉より、Suyama & Matsuki(2015)を基に、次世代シーケンサー(MiSeq)を使用した MIG-seq 法を用いて塩基配列の多型検出を行った。検出した一塩基多型(361bp)から GENELAND を使用し遺伝的集団と分布域を推定した。GENELAND の設定は Correlated frequency model, 1,000,000 iteration, 100 thinning, 5000 burn in とした。同じサンプルを用いて、ミトコンドリア DNA (mtDNA) の D-loop 領域(塩基数 706bp)を解析した結果では、11 のハプロタイプの検出と 3 つの遺伝的集団(D1、D2、D3)が推定されている。そこで、mtDNA による遺伝的集団と本研究で推定された遺伝的集団(一塩基多型に基づく遺伝的集団)を比較するために、各個体が一塩基多型に基づく各遺伝的集団に含まれる確率を、mtDNA の D-loop 領域から推定した遺伝的集団間でスティール・ドゥワスの多重検定を用いて比較した。その結果、本研究のツキノワグマでは 3 つの一塩基多型に基づく遺伝的集団(M1、M2、M3)が支持された。この遺伝的集団は、高速道路などの公共交通網や市街地によって分けられている可能性が示唆され、個体群の分布に特徴が認められない mtDNA・D-loop 領域から推定した遺伝的集団に比べ、より地理的な障害に則した分布を推定できた。また、mtDNA・D-loop 領域から推定した遺伝的集団と比較した結果では、各個体が遺伝的集団 M1 と M3 に属する確率は、それぞれ mtDNA・D-loop 領域を用いて推定した遺伝的集団 D3 と D1 に属する個体で高く、一塩基多型から推定した遺伝的集団 M1 と M3 は、mtDNA・D-loop 領域から推定した遺伝的集団 D3 と D1 に相当する可能性が示唆された。また、この結果から、本研究で用いたツキノワグマは、少なくとも 2 つの遺伝的集団に分類される可能性が高いことが示された。

### 2. 論文

放射能環境動態・影響評価  
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

FY2021 FINAL REPORT

【若手/Young 共同研究】

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	受入研究者	所属
Y-21-01	荒居 博之	筑波大学大学院卒	霞ヶ浦における放射性セシウムの移行と収支に関する研究		恩田 裕一	CRIED
Y-21-02	亀山 敏顕	東京大学	流域特性が水文過程に及ぼす影響の評価に資する山地森林流域流出モデルの開発：水文・同位体データを用いて	熊谷 朝臣	恩田 裕一	CRIED
Y-21-03	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水及び生物試料中の90Srの分析	Martin Martschini Peter Steier	坂口 綾 末木 啓介	CRIED CRIED
Y-21-04	Hu Jun	Chiba University	Quantify the fire trends and resuspension radionuclides using remote sensing data for radioactively contaminated forests in Ukraine.	小槻 俊司	五十嵐 康記	IER
Y-21-05	舟木 優斗	福島県内水面水産試験場	横川ダム湖およ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	難波謙二 林 誠二 石井弓美子	和田 敏裕	IER
Y-21-06	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		和田 敏裕	IER
Y-21-07	野田 琢嗣	京都大学	深度・温度ロガー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～	三田村啓理	和田 敏裕	IER
Y-21-08	高木 淳一	国立極地研究所	淡水域における食物網の上位魚種の移動とその放射能セシウム濃度の関係解明	三田村啓理	和田 敏裕	IER
Y-21-09	渡部 翔	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	榎本昌宏 天野洋典	和田 敏裕 高田 兵衛	IER IER
Y-21-10	湯本 景将	筑波大学大学院 (2021年度～)	帰還困難区域に生息するセミ類の生物多様性評価	津田吉晃	兼子 伸吾 和田 敏裕	IER IER
Y-21-11	中村 夏織	琉球大学大学院	沖縄本島に分布する代表的な土壌のラドン散逸率の評価	古川雅英 城間吉貴 仲宗根峻也	平尾 茂一	IER
Y-21-12	Eka Aulia Ardyanti	National Nuclear Energy Agency	External Dose Assessment in the High Background Radiation Area,Natural and Artificial Sources	HeruPrasetio Eka DjatnikaNugraha	床次 眞司	IREM
Y-21-13	小池 弘美	東京大学	学校での放射線教育を想定した自然放射線源の活用方法の検討	飯本武志	床次 眞司	IREM
Y-21-14	SOU MAYAH Bachirou	Faculty of Science, University of Douala	Environmental radiation exposure in the Fukushima Prefecture and in a radon prone area of the Adamawa region in Cameroon	SAIDOU BONGUE Daniel Bineng Guillaume Samuel HAMADOU Issa	床次眞司 細田正洋	IREM IREM
Y-21-15	KITCHA SIME Fayette	Faculty of Science, University of Yaoundé I, Yaoundé, PhysicsCameroon	Study of environmental radioactivity in the Fukushima Prefecture, Japan and in the rare-earth element bearing area of Akonolinga, Cameroon	SAIDOU Tchuenti Siaka Yvette Flore Ndjana Nkoulou II Joseph Emmanuel Takoukam Soh Serge Didier	床次 眞司 Chutima KRANROD	IREM IREM
Y-21-16	Hasan Md Mahamudul	東京大学	Spatiotemporal dynamics of natural radon isotopes causing indoor environmental exposures and their effective countermeasures based on model- room- experiments	飯本武志 Qianhao Mark Jin Akihiro Sakoma Miroslaw Janik	細田 正洋 玉熊 佑紀	IREM
Y-21-17	Tran Thanh Mai	Dalat Nuclear Research Institute	Establishment of on-site culture system to evaluate cytogenetic effect on human and wild mice in Fukushima	三浦富智 藤嶋洋平 阿部 悠 Goh Swee Ting Valerie	三浦 富智	IREM
Y-21-18	阿部 悠	長崎大学	染色体異常解析における細胞分裂像取得条件の最適化		藤嶋 洋平 三浦 富智	IREM IREM
Y-21-19	仲宗根 峻也	琉球大学	水中ラドン濃度と湧出量の連続観測に基づく豪雨時の湧泉における降雨流出特性の解明	古川雅英 赤田尚史 城間吉貴 中村夏織	赤田 尚史	IREM

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	受入研究者	所属
Y-21-20	Oktisya Devi Widyaningsih	National Nuclear Energy Agency of Indonesia	Determination Sr-90 in Milk Samples	Kusdiana Eka Djatnika Nugraha	田副 博文	IREM
Y-21-21	VO VAN TIEN	Center for Nuclear technologies	Presence of Cs-137, Cs-134, Sr-90 traces from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident in the seawater and air for baseline date in Viet Nam	Dao Van Hoang Nguyen Van Hoai Nam	田副 博文	IREM
Y-21-22	三浦 輝	電力中央研究所	海洋堆積物由来の放射性セシウム粒子の溶解特性の解明	石丸 隆 神田稜太 伊藤友加里	田副 博文	IREM
Y-21-23	Estiner Walusungu KATENGEZA	東京大学	Clarification of measurement uncertainty of a plastic scintillation fiber (PSF) for in-situ monitoring of the distribution of radiocesium in bottom sediments of	越智康太郎	眞田 幸尚	JAEA
Y-21-24	藤井 竣	東京海洋大学	福島環境モニタリングを目的とした採泥機能を有する小型無人船の開発 (1) 無人船の制御手法開発	田原淳一郎 森戸 誠 小野聡太郎	眞田 幸尚	JAEA
Y-21-25	齋藤 梨絵	ジョージア大学	帰還困難区域内のイノシシを対象とした糞DNAにおけるMIG-seq解析の手法検討	今藤夏子 熊田礼子 James Beasley	玉置 雅紀	NIES
Y-21-26	Zhu Siteng	富山大学	放射性核種を用いた日本海溝周辺海域における沈降粒子輸送状況の評価	張 勁 大塚 進平 片境 紗希	青野 辰雄	QST
Y-21-27	神林 翔太	海洋生物環境研究所	沿岸海域における放射性セシウムの挙動解明に関する研究		青野 辰雄	QST
Y-21-28	田中 草太	秋田県立大学	ミミズが土壌中の放射性セシウムの鉛直分布に及ぼす影響の解明		石井 伸昌	QST

## 霞ヶ浦における放射性セシウムの移行と収支に関する研究

氏名：荒居 博之

受入研究者：恩田 裕一

### 1. 成果

霞ヶ浦及びその流入河川（桜川、恋瀬川）における放射性セシウム（Cs-137）に係る調査結果を整理・解析した。霞ヶ浦では2011～2016年に底質コアの採取・分析を実施し、流入河川では2012～2015年に常時設置型のサンプラーによるSSの採取・分析を実施している。これらの湖沼・河川では原発事故以前にも試料を採取しており、事故前後の状況を比較することが可能である。Cs-137濃度の変化を追跡するとともに、湖内の堆積量（インベントリー）及び河川から湖への流入負荷量を算出し、両者の比較によって調査結果の妥当性を検証した。また、霞ヶ浦における放射性セシウムの移行過程について考察した。Cs-137は、湖内の河口付近に集中的に堆積していた。湖心では、2011～2014年にかけてCs-137が蓄積する傾向にあったが、2014～2016年にかけてはほとんど変化がみられなかった。桜川が流入する土浦入りでは、2012～2014年にかけて表層のCs-137濃度とインベントリーが大幅に減少しており、細粒子の巻き上げ等によるCs-137の移行が示唆された。この減少の速度は2014年以降鈍化し、河川からのCs-137の供給と巻き上げ等によるCs-137の移行が同程度となったためと考えられる。流入河川のSSのCs-137濃度は2012～2015年にかけて減少したが、事故前に比べて1～2桁高い濃度で推移していた。Cs-137濃度をCs-137沈着量で除して標準化した値（Entrainment coefficient）は、当初は恋瀬川の方が桜川より高かったが、恋瀬川の値が急速に減少し、2015年頃には恋瀬川と桜川の値が同程度となった。恋瀬川のCs-137濃度が今後も減少し続ける場合、現状みられる湖北～湖南にかけてのCs-137インベントリーの差は小さくなると予想される。湖全体のCs-137インベントリーの総量は、2012年12月に3.72 TBq、2016年8月に4.18 TBqと推定された。底質分析結果から推定した湖全体のCs-137堆積速度（0.12 TBq、2012年12月～2016年8月）は、河川SS分析に基づく懸濁態Cs-137流入速度（0.13～0.16 TBq）と同程度であり、調査結果の妥当性を確認できた。また、流域から供給される粒子状物質に対する湖の高い捕捉性能が確認された。湖面へのCs-137降下量（航空機モニタリング結果（補正值）を湖内に補間して推定）を利用し、2016年時点で底質中に存在するCs-137の起源を簡易的に推定したところ、大気降下と河川からの流入の寄与が同程度であった可能性が示唆された。

### 2. 論文

Y-21-02

## 流域特性が水文過程に及ぼす影響の評価に資する山地森林流域流出モデル の開発：水文・同位体データを用いて

氏名：亀山 敏顕

受入研究者：恩田 裕一

共同研究者：熊谷 朝臣

### 1. 成果

森林環境での放射性物質動態の現状把握・将来予測には、物質移動を駆動する水循環の再現・予測が重要である。その達成には、観測・実験を通じた現象の理解に加えて、様々な条件で現象を再現できる水循環モデルによる検証が必要である。ただし、従来多用されてきた経験モデルでは気候変動や森林環境の変化を反映した評価が難しいため、物理モデルによる検証が求められている。これまで、森林の多様な水移動プロセスの表現を目指し、様々な物理モデルが開発されてきた。しかし従来の物理モデルでは土壌水分の時空間分布や流出経路（地表・土壌・基岩のどこを通るか）の再現が不十分で、また観測値に合うパラメータの探索によってモデルの適用が試みられてきたため実際の流域特性やその変化を反映した評価が行えてこなかった。そのため本研究は、流域内の各点で物理的に水移動・貯留を計算できる「分布型」のモデルで、かつパラメータ探索を行わずその場所の特性を入力して水循環を再現できるモデルの開発を目的とした。

開発モデルの雛型は、昨年度にかけて申請者が開発した分布型の水循環物理モデル BLADE (Block Aggregation of Darcy's law Elements model) である。BLADE は、近年の研究により重要性が明らかにされながら水循環モデルでは考慮されてこなかった土壌中の鉛直水分分布と基岩地下水のプロセスを考慮している。本年度は BLADE の技術的基盤強化に取り組んだ。具体的には (1) 水移動の駆動力として圧力水頭勾配の追加、(2) 土壌中の鉛直浸透にかかる仮定の修正、(3) 数値計算法の修正 を行なった。そして BLADE を実測データのある流域（神奈川県大洞沢）に適用し、観測された水文データを基に検証した結果、パラメータ探索することなく流域の水分環境の時空間分布を高精度に再現することに成功し、モデル改良前と比べ流出の再現性が向上 (Nash-Sutcliffe Efficiency の変化：0.8396→0.8432) した。また、BLADE の適用予定試験地である栃木県唐沢山試験流域で、モデル適用に必要な土層厚分布の取得のため野外調査およびその準備を行い、簡易貫入試験を実施した。今後、BLADE の更なる改良と複数流域への適用・数値計算を進め、森林環境での水循環の詳細な再現・予測を目指す。

### 2. 論文

## 加速器質量分析による水及び生物試料中の $^{90}\text{Sr}$ の分析

氏名：本多 真紀

受入研究者：坂口 綾・末木 啓介

共同研究者：Martin Martschini・Peter Steier

### 1. 成果

水試料、生物試料中の  $\text{Sr-90}$  (半減期 28.8 年) を分析するには、 $\text{Sr-90}$  が低濃度であるために大量の試料を取り扱わなければならない。本研究は、このような環境試料を運搬及び化学処理するための費用・時間・労力を軽減するために、より効率的に  $\text{Sr-90}$  を分析可能な加速器質量分析 (AMS) による新規の分析手法を確立する目的で実施した。前年度までの研究では、IAEA より頒布されている  $\text{Sr-90}$  濃度既知の土壌と動物の骨を分析し、開発中の新規  $\text{Sr-90}$  分析手法の妥当性を示した。本年は日本分析化学から購入した魚骨 1 g (JSAC 0785: 11.5 Bq/kg, 2014 年 11 月 1 日) を分析した。450°C で灰化した魚骨試料に 1 mg の Sr 担体と 20 mL の濃硝酸を加え、耐圧 PFA 容器を密閉して ~250°C で酸抽出した。抽出液をろ過し、その後 Sr resin (50-100  $\mu\text{m}$ , 2 mL, Eichrom) と陰イオン交換樹脂 (2 mL, MCl Gel CA08P, 120  $\mu\text{m}$ , Mitsubishi Chemicals) で Sr を分離した。分離した Sr にフッ酸を添加してフッ化物沈殿を生成・乾燥し、AMS 用ターゲットとした。 $\text{Sr-90}$  の分析はウィーン大学の加速器施設 (VERA) で実施した。AMS で得た  $\text{Sr-90}/\text{Sr-88}$  原子数比より求めた魚骨の  $\text{Sr-90}$  濃度 [Bq/kg] は認証値と誤差の範囲内で一致した。このことから、AMS による新規の  $\text{Sr-90}$  分析手法は魚試料に適応できることが示された。水試料の  $\text{Sr-90}$  分析に関しては、一般的な淡水試料の  $\text{Sr-90}$  濃度が数 mBq/L であるとして、AMS に必要な試料量は < 20 L と推定される。従って、Sr を効率的に濃縮および粗分離する Sr 吸着材を現在開発中である。Sr 吸着材の性能評価および環境試料への適応に関しては今後報告する。

### 2. 論文

Hain, K., Martschini, M., Gülce, F., Honda, M., Lachner, J., Kern, M., Pitters, J., Quinto, F., Sakaguchi, A., Steier, P., Wiederin, A., Wieser, A., Yokoyama, A. and Golser, R. Developing Accelerator Mass Spectrometry Capabilities for Anthropogenic Radionuclide Analysis to Extend the Set of Oceanographic Tracers. *Frontiers in Marine Science*, 2022, vol. 9, 1-17.

Y-21-04

**Quantify the fire trends and resuspension radionuclides using remote sensing data for radioactively contaminated forests in Ukraine.**

氏名：Jun HU

受入研究者：五十嵐 康記

共同研究者：小槻 俊司

## 1. 成果

Forest wildfires in the Chernobyl Exclusion Zone (CEZ) presented a direct and broad impact on radiation exposure, causing widespread concern from the public. The large uncertainties from the radionuclide emission and corresponding radiation exposure resulted in an inconsistent assessment with a significant distinction. Therefore, the accurate BA is the prerequisite for analyzing radionuclide emission, transport and resuspension. It is necessary to improve the estimation of the BA to minimize the uncertainty of the effects of wildfire in CEZ. In this fiscal year, a widely useful tuning-free BA detection algorithm was developed to optimize the accuracy and compare the results with the existing BA products. In the BA detection, the temporal difference between fire extinction and image acquisition is critical for detecting BA, especially because of the rapid vegetation and cloud cover. Therefore, by considering the image timeliness and acquisition, the research mainly adopted the MODIS surface reflectance imagery to develop a monthly BA detection algorithm. The BA detection algorithm has two steps. The adaptive threshold method was used in the first step to select the potential burned pixels. In the second step, the Random Forest was used to identify the coincident area and optimize the BA accuracy. To compare the accuracy of the tuning-free BA detection algorithm with the existing BA products in CEZ, the results denoted this method successfully detected the burned area in CEZ (Fig. 1), which significantly decreased the omission error by more than 20% for average and increased the kappa accuracy and critical success index by more than 6% and 7%, respectively for average compared with the existing products. The radionuclide emission from the burned biomass in the nuclear accident area is dependent on the biomass burning emission. The estimation of biomass burning is a conservative estimate of the total burned area. The redispersed radionuclides will be predicted based on the current BA products in the next fiscal year.

## 2. 論文

## 横川ダム湖およ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

氏名：舟木 優斗

受入研究者：和田 敏裕

共同研究者：難波 謙二・林 誠二・石井 弓美子

### 1. 成果

東京電力福島第一原子力発電所事故から 10 年以上が経過するが、内水面においては未だに魚類から放射性セシウムが検出されている。漁業再開のための知見を得るには、内水面漁場における放射性セシウムの淡水魚への移行過程を明らかにすることが重要と考えられる。そこで本研究では、炭素窒素安定同位体比を用いて魚類の食性から放射性セシウムの移行について検討した。

調査地は福島県南相馬市を流れる太田川とし、2017 年から 2021 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魚類の採集を行った。ダム湖においては刺し網と釣りにより魚類を採捕した。河川においては電気ショッカーと釣りにより魚類を採捕した。採捕した魚類は全長、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。また、ダム湖内で採捕した魚類については、筋肉部を 0.1g 程度採取し、炭素窒素安定同位体比分析に供した。

本研究では、検体数が十分に得られた 2020 年の 6 月に採捕したダム湖内の魚類を用いて解析を行った。採捕した魚類の炭素窒素安定同位体比を用いて、クラスター分析を行った。なお、分析に際して結合距離にはユークリッド平方距離、結合方法にはウォード法を用いた。結果、既往の食性に準じた雑食性魚類と肉食性魚類に大別することができた。ウグイにおいては、異なる 2 つのクラスターに分かれた。

ウグイのみにおいて、x-means 法による統計的に最適なクラスター数をもとめたところ、最適なクラスター数は 2 つとなった。また、x-means 法により分けられたクラスターは、上記のウォード法によるクラスター分析と同じクラスターに分けられていた。異なるクラスターに分けられたウグイの全長と  $^{137}\text{Cs}$  濃度にはそれぞれ有意差がみられた(Mann-Whitney U-test,  $p < 0.05$ )。

ウグイの全長と窒素安定同位体比の関係には有意な正の相関がみられた。窒素安定同位体比は捕食-被捕食関係を通して濃縮し値が上昇するため、栄養段階の推定に用いられており、横川ダムのウグイは成長に伴いより高次の餌料を食べていることが示唆された。本結果は、長内・田中(1967)が示した消化管内容物調査の結果を支持していた。また、ウグイの全長と  $^{137}\text{Cs}$  濃度の関係は有意な正の相関が認められ、サイズ効果がみられた。一方で、全長と  $^{137}\text{Cs}$  濃度の関係で求めた近似式から大きく外れた値を示す個体も確認された。

これらの結果から、横川ダムにおけるウグイは成長に伴い餌料を段階的に変化させて

おり、それに伴い  $^{137}\text{Cs}$  濃度も上昇したと考えられた。

本研究では、横川ダム内におけるウグイの  $^{137}\text{Cs}$  濃度と炭素窒素安定同位体比との関係を調査し、ウグイの食性の段階的な変化が  $^{137}\text{Cs}$  濃度に影響することを示唆する結果を得た。しかし、ウグイの消化管内容物との関係は不明なため、今後は他魚種も含め消化管内容物を精査が必要である。

## 2. 論文

## 福島県松川浦における魚類の放射性セシウム濃度

氏名：守岡 良晃

受入研究者：和田 敏裕

## 1. 成果

福島県松川浦は、閉鎖性の潟湖であり、アマモ場が発達していることから、カレイ類やメバル類、スズキ等の水産有用種を含め、多くの魚類の成育場となっている。一方で、松川浦は複数の河川から陸域由来とみられる放射性 Cs が流入しており、海底土及び海水中の放射性 Cs 濃度が隣接する相馬周辺海域よりも高いことが明らかになっている。本テーマでは、松川浦に生息するいくつかの魚種及び餌料生物について、採集を行い、その放射性 Cs 濃度、炭素・窒素安定同位体比を調査し、相馬周辺海域と比較することで、松川浦における食物連鎖を通じた魚類への放射性 Cs 移行について明らかにすることを目的とした。

2019～2021 年にかけて松川浦及び外海域で採捕されたスズキについて、全長、体長、体重及び筋肉部の<sup>137</sup>Cs 濃度を測定し、食性や栄養段階を把握するため炭素窒素安定同位体比 ( $\delta^{15}\text{N}$  及び  $\delta^{13}\text{C}$ ) の分析を行った。<sup>137</sup>Cs 濃度について、松川浦と外海域での比較、全長との関係、炭素窒素安定同位体比との関係について検討した。

松川浦では 29 検体、外海域では 68 検体の<sup>137</sup>Cs 濃度を測定した。なお、全長が 180mm 未満の個体は、複数個体を 1 検体として測定を行った。

<sup>137</sup>Cs 濃度は松川浦で 0.7～11.7Bq/kg、外海域では 0.4～2.8Bq/kg で、食品中の基準値 100Bq/kg を大きく下回っていた。

松川浦と外海域の<sup>137</sup>Cs 濃度を比較すると、松川浦の<sup>137</sup>Cs 濃度が有意に高く (P < 0.01 ウィルコクソンの順位和検定)、1.0Bq/kg を下回ったのは 1 検体 (全長 650mm) であった。外海域では 40 検体で 1.0Bq/kg を下回った。

全長と<sup>137</sup>Cs 濃度の関係をみると、全長 357 mm 未満の検体については全ての個体で 1.0Bq/kg を上回っていたが、全長 357 mm 以上の検体では 1.0Bq/kg を下回る検体の割合は 57.0% と<sup>137</sup>Cs 濃度が低い傾向にあった。これは、スズキが稚魚～幼魚期には松川浦などの汽水域を中心に生活し、成長すると外海域を中心に生活する生活史が<sup>137</sup>Cs 濃度に影響しているとみられた。

また、 $\delta^{15}\text{N}$  及び  $\delta^{13}\text{C}$  と<sup>137</sup>Cs 濃度に相関は確認できなかったものの、松川浦と外海域では  $\delta^{13}\text{C}$  の値に違いがみられ、外海域よりも松川浦で  $\delta^{13}\text{C}$  が高い値を示した。

キーワード：ボラ、スズキ、放射性セシウム濃度、松川浦、食性

## 2. 論文

## 深度・温度ロガー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～

氏名：野田 琢嗣

受入研究者：和田 敏裕

共同研究者：三田村 啓理

### 1. 成果

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、ホシガレイ人工種苗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。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。また、再捕された個体の筋肉中の放射性セシウム濃度を測定した。これまでに4個体が再捕され、すべてロガーデータの回収に成功した。1個体は、原発の港湾内で再捕された。当個体の解析により、2ヶ月間にわたる放流場所から原発港湾内までの移動経路が明らかとなり、また、魚類が実際に原発港湾内に入ることが示された。東京電力の公表により、当個体の放射性セシウム濃度はND (<2.0 Bq/kg)であった。今後も放流試験を継続し、移動経路と放射性セシウム濃度の関係の解析を進める予定である。

### 2. 論文

Mitamura, H., Wada, T., Takagi, J., Noda, T., Hori, T., Takasaki, K., Kawata, G., & Arai, N. (2022). Acoustic zone monitoring to quantify fine-scale movements of aquatic animals in a narrow water body. *Environmental Biology of Fishes*, 1-13. Mitamura, H., Nishizawa, H., Mitsunaga, Y., Tanaka, K., Takagi, J., Noda, T., Tsujimura, H., Omi, H., Sakurai, R., Sato, M., Arai, N., & Hori, M. (2021). Attraction of an artificial reef: a migratory demersal flounder remains in shallow water under high temperature conditions in summer. *Environmental Biology of Fishes*, 1-10.

## 淡水域における食物網の上位魚種の移動とその放射能セシウム濃度の 関係説明

氏名：高木 淳一

受入研究者：和田 敏裕

共同研究者：三田村 啓理

### 1. 成果

福島県は、原発事故に伴う淡水魚の放射性セシウム汚染に起因する内水面漁業活動の休止という問題を抱えている。原発事故から早 10 年が経とうとしているが、淡水魚は海水魚に比べて今なお高い濃度で放射性セシウムが検出される。数年以内に活動再開を目指す福島県の内水面漁業にとって、この問題は大きな障害となっている。そこで本研究では、淡水域における食物網の上位魚種の一つであるニホンウナギの行動特性と放射性セシウム濃度の関係を探り、福島県の内水面漁業の復興に資することを目的とした。調査地は、福島県唯一の汽水性の内湾である松川浦と、そこに流入する日下石川を選定した。ニホンウナギの行動を調べるために、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。日下石川から松川浦を通り外海との接続部まで、計 35 台の受信機（VR2W、Innovasea system 社）を設置した。河川で捕獲したニホンウナギ 40 個体（全長  $449.2 \pm 127$  mm、体重  $160.6 \pm 160.4$ ）に超音波発信機（V5、Innovasea system 社）を装着し、2021 年 8 月 31 日に捕獲地点近くに放流し移動を追跡した。11 月中旬の時点で、4 個体が外海へ移出し、2 個体が松川浦内まで移動した。33 個体は河川に残留し、そのほとんどが採捕地点近くに滞在した。また 1 個体はデータ取得ができなかった。次に、松川浦内及び河川内で採取した本種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。結果、放射性セシウム濃度は、松川浦（平均  $1.1$  Bq/kg）に比べて日下石川（ $5.8$  Bq/kg）で有意に高かった。河川のウナギの方が放射性セシウム濃度が高い理由は、海域に比べて Cs 濃度が高い陸域の餌を多く食べていること、海域では淡水域に比べてセシウムの排出が進む生理的メカニズムがあることが考えられる。

### 2. 論文

Mitamura, H., Wada, T., Takagi, J. et al. Acoustic zone monitoring to quantify fine-scale movements of aquatic animals in a narrow water body. *Environ Biol Fish* (2022). <https://doi.org/10.1007/s10641-022-01225-9>

## 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

氏名：渡部 翔

受入研究者：和田 敏裕・高田 兵衛

共同研究者：榎本 昌宏・天野 洋典

### 1. 成果

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 渡部 翔<sup>1</sup>、榎本昌宏<sup>1</sup>、天野洋典<sup>\*1</sup>、渡辺 透<sup>1</sup>、高田兵衛<sup>2</sup>、和田敏裕<sup>2</sup> <sup>1</sup>福島県水産海洋研究センター <sup>2</sup>福島大学環境放射能研究所 \*責任著者:yousuke\_amano\_01@pref.fukushima.lg.jp 底生生物食性魚類において、摂餌の際、海底土が消化器官に混入することがある。本研究では、消化器官に高濃度の放射性セシウム (<sup>137</sup>Cs) を含む海底土が混入した場合、海底土の <sup>137</sup>Cs が消化器官を介して魚体に <sup>137</sup>Cs が移行するか否かについて飼育実験を行い検討した。飼育実験には、底生生物食性のマコガレイ (*Pseudopleuronectes yokohamae*) と魚食性のヒラメ (*Paralichthys olivaceus*) を用いた。飼育魚は自然海水かけ流しで 140 日間飼育し、対照区の供試魚には一般配合飼料を給餌し、試験区では一般配合飼料と福島県沿岸域の海底土を混合した飼料 (以下、沿岸域海底土含飼料; 23.3 Bq/kg) を給餌する区と、一般配合飼料と福島県汽水域の海底土を混合した飼料 (以下、汽水域海底土含飼料; 31.8 Bq/kg) を給餌する区を設定した。サンプルは定期的に各区から 5 個体採取し、筋肉部位をまとめて凍結乾燥または灰化した後、<sup>137</sup>Cs 濃度の測定を行った。沿岸域海底土含飼料を与えた試験区では、飼育期間の経過とともに両種の筋肉中の <sup>137</sup>Cs 濃度が上昇し、最大値はマコガレイで 0.704 Bq/kg、ヒラメで 0.789 Bq/kg を示した。対照区と汽水域海底土含飼料給餌区では両種ともに <sup>137</sup>Cs 濃度が 0.25 Bq/kg 以下であった。飼料に混入させた沿岸域海底土の <sup>137</sup>Cs は消化器官を介して飼育個体の筋肉に僅かに移行するがその程度は低いことを確認した。また、魚食性のヒラメでも濃度が上昇したことから海底土から筋肉への <sup>137</sup>Cs の移行は底生生物食性魚類特有の性質ではないと考えられる。今後は、汽水域海底土の <sup>137</sup>Cs において筋肉への影響が小さかった要因や、消化器官内で海底土の <sup>137</sup>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. 論文

なし

## 帰還困難区域に生息するセミ類の生物多様性評価

氏名：湯本 景将

受入研究者：兼子 伸吾・和田 敏裕

共同研究者：津田 吉晃

### 1. 成果

帰還困難区域を含む阿武隈高地周辺地域は、冷温帯樹種では本地域特有の遺伝構造が検出されるなど (e.g. Tsuda and Ide 2005), 隠れた生物多様性ホットスポットである可能性が高い。一方、原発事故の影響により、これら地域でセミ類をはじめ動物種の個体数が著しく低下したという報告はあるが (Møller et al. 2013), その実態、とくに帰還困難区域の生物多様性は十分に評価されていない。そこで本研究では、セミ類 2 種エゾハルゼミおよびヒグラシを対象に、本地域における現在の生物多様性を評価することを目的に、1) 分布調査およびサンプル採集、2) 集団遺伝学的解析、3) 福島県内・外他地域集団との比較を行った。調査および採集許可を得たうえで、上記 2 種について抜け殻を利用した分布調査および成虫・抜け殻の採集を福島県内複数地点 (エゾハルゼミ：高湯温泉, 安達太良山, 磐梯山 3 地点, ヒグラシ：只見, 南相馬, 南会津 3 地点) で実施した。採集したサンプルから DNA を抽出し、母性遺伝するミトコンドリア DNA について、COI (Folmer et al. 1994) および 16S (Simon et al. 1994) 領域の塩基配列解読を行い、遺伝データを取得した。そして、本研究代表者らで全国各地で別途調査・採集しているエゾハルゼミおよびヒグラシの 2 種の遺伝データと統合し、集団遺伝学的解析を行い、上記 2 種の遺伝的多様性や遺伝構造について評価した。ミトコンドリア DNA に基づく遺伝構造について、まずエゾハルゼミでは、福島県内と福島県外他地域を比較した場合の遺伝的多様性は同程度であった。全国で 72 のハプロタイプが検出され、福島県内でみられたハプロタイプは、東北地域と同様のものが多かった。一方、ヒグラシでは、福島県内と福島県外他地域を比較した場合の遺伝的多様性は同程度で、全国で 8 ハプロタイプが検出された。南相馬の集団では、地域固有なハプロタイプが検出された。いずれの種においても、福島県内のメジャーハプロタイプは福島県外他地域のものと同様であり、遺伝的多様性においても顕著な違いがみられなかったことから、原発事故によるこれらセミ類 2 種への影響は小さいと考えられる。

### 2. 論文

## 沖縄本島に分布する代表的な土壌のラドン散逸率の評価

氏名：中村 夏織

受入研究者：平尾 茂一

共同研究者：古川 雅英・城間 吉貴・仲宗根 峻也

### 1. 成果

沖縄島は、季節によって本州や中国大陸、東南アジア、太平洋からの空気塊を捉えることができ、東アジア地域の気候環境をモニターするためには最適なフィールドである。これまでの研究では、降水物に含まれる  $7\text{Be}$  と  $210\text{Pb}$  をトレーサーとして用いて、沖縄島における大気輸送モニタリングを試みた。その結果、 $7\text{Be}$  と  $210\text{Pb}$  の総沈着量は春季から夏季の初めに相当する 3 月から 6 月に高い値を呈した。その変動要因としては季節風があげられ、大陸由来の  $210\text{Pb}$  が大陸からの季節風によって日本に輸送されるとされてきた。しかし、後方流跡線解析を用いて琉球大学上空 1,500 m 地点における空気塊の動きについて解析を行った結果、 $210\text{Pb}$  の総沈着量が高い値を呈した 3 月から 6 月は、東からの卓越風も確認できたため、一様に大陸からの影響を受けているとは言えなかった。そのため、大陸以外に起源をもつ  $210\text{Pb}$  についても考慮する必要がある。 $210\text{Pb}$  はラジウム系列の放射性同位体であり、その親核種はラドンである。つまり、沖縄県に分布する土壌の中でも比較的ラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ ) が多く含まれているとされる島尻マージからの  $210\text{Pb}$  供給を評価する必要がある。ラドン散逸係数は、土壌から大気中へのラドン移行量を定量的に表す重要なパラメータである。本研究では、近傍起源  $210\text{Pb}$  の影響について推定することを目的として、沖縄県に分布する土壌のラドン散逸係数を実験的に評価した。散逸係数の評価には、土壌中ラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ ) 濃度および密閉容器内の大気中ラドン濃度が必要である。沖縄県喜屋武岬 ( $\text{N}26^\circ$ ,  $\text{E}127^\circ$ ) で採取した土壌を乾燥させ、有機物処理を行ったのち、粒径を 2 mm 以下のものをふるいわけした。ラドン散逸係数評価実験用サンプルは、密閉容器と静電捕集型ラドンモニタを用いて、大気中ラドン濃度の測定を行った。これらの結果からラドン散逸係数を評価し、地表面から大気中へのラドンフラックスを推定した。ただし、ラジウム濃度は同地点で採取された土壌のラジウム濃度を用い、測定前後で攪拌など行っていないため変化はしていないものとして考えた。本研究で得られた  $^{222}\text{Rn}$  の散逸率係数は 0.26 ~ 0.33 であり、日本の国内の他の地域での報告値よりも低い。そのため、沖縄県における大気中降水物中の  $210\text{Pb}$  への影響は少なく、大陸から供給された  $210\text{Pb}$  が空気塊とともに移動してきたことが示唆された。

### 2. 論文

## External Dose Assessment in the High Background Radiation Area, Natural and Artificial Sources

氏名 : Eka Aulia Ardyanti

受入研究者 : 床次 眞司

共同研究者 : HeruPrasetio · Eka DjatnikaNugraha · Kusdiana

### 1. 成果

Ten years have elapsed since the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) in 2011, and the relative contribution of natural radiation is increasing in Fukushima Prefecture due to the reduced dose of artificial radiation. In the case study 'Discriminative Measurement of Absorbed Dose Rates in Air from Natural and Artificial Radionuclides in Namie Town, Fukushima Prefecture' showed that Namie City was radioactively contaminated by artificial radionuclides from the FDNPP accident from the measurement of concentrations of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ . The median annual effective doses of external exposures from natural and artificial radionuclides were found to be 0.19 and 0.40 mSv in the evacuation order cancellation zone, and 0.25 and 3.9 mSv in the difficult-to-return zone from 15 September 2016 to 13 December 2019. (IJERPH,2021)

In the area around FDNPP that was once a community settlement, it is certainly the right of the community to know the radiation dose received. The need for environmental dose evaluation is needed to determine the radiation exposure received from per radionuclide. For this reason, this study will examine the radiation response of the personal dosimeter to the measurement results of the NaI(Tl) scintillation detector. The personnel dosimeters used were Optically Stimulated Luminescence (OSL). The personnel detector is a commonly used personnel detector and can be placed in an area for a long period of time.

Center of Radiation Safety Technology and Metrology has a TENORM area that was once a community settlement, it is certainly the right of the community to know the radiation dose received. Prepare an equal number of Optically Stimulated Dosimeter (OSL) and NaI(Tl) Scintillation detector dosimeters. All dosimeters were confirmed to have been annealed and the initial dose reading was 0 after annealing. All personnel dosimeters are packaged and grouped according to dosimeter placement. Additional in the OSL packaging will be coated with aluminum foil to prevent exposure to outside light due to the dosimeter being sensitive to light.

The placement of dosimeters that have been grouped will be placed in a designated area around the Fukushima TENORM area. The placement will last for 1 month, then all

dosimeters will be read in response to the dose acceptance. OSL will be evaluated with OSL reader using In Light Microstar Reader system. The D-shuttle is an electronic dosimeter that allows you to record results immediately.

The results from OSL which are measurements of radiation exposure reception will be compared with the results from the NaI(Tl) Scintillation detector to get the personal dosimeter response per radionuclide. The result of measurement in TE-NORM area with NaI(Tl) is the TE-NORM area has high background radiation. The highest measurement in TE-NORM area is 2.001  $\mu\text{Sv/h}$ .

## 2. 論文

## 学校での放射線教育を想定した自然放射線源の活用方法の検討

氏名：小池 弘美

受入研究者：床次 眞司

共同研究者：飯本武志

## 1. 成果

本研究では、学校教育における自然放射線源の具体的な活用方法を検討した。ここで対象とする線源は、市販されている物質や食品を用いて作製され、規制をうけることなく、人・場所を問わず使用できる特徴をもつ。本線源の学校での活用には、学習指導要領の記述に基づく理解と整理が重要となろう。具体的には「A 自然放射線源を利用した実験方法の整理」と「B 習熟度別の実験実習の展開」について検討した。

材料の候補として、塩化カリウム、乾燥昆布、インスタントコーヒー、湯の華があり、その中から比放射能が高いものを選ぶこととし、 $\beta$ ・ $\gamma$  線源には塩化カリウムを、 $\alpha$  線源には湯の華を選定した。

A として、線源がつくる近傍の放射線場を、モンテカルロシミュレーションコード PHITS を用いて線種別に評価した。 $\alpha$  線に着目した場合、線源表面から 5 cm 以内の距離で実験を行うことが可能であり、 $\beta$  線であれば距離が増加すると計数率は対数軸で直線的に減少することが確認できた。 $\gamma$  線については、シミュレーションでは距離の逆二乗則が成り立つものの、実測定では、バックグラウンドと比較すると計数率が低く、線源として利用することは難しいことが判明した。したがって、実施可能な実験として、 $\beta$  線を利用する場合、距離依存性実験、アルミ箔の簡易遮蔽実験、本線源自体による自己吸収実験、 $\alpha$  線では距離依存性実験、遮蔽体による吸収実験などが挙げられた。

B として、2017-2019 年に改訂された学習指導要領中の放射線に関する記述を整理した。また、A で得られた実施可能な実験実習と組合せて習熟度別の実験実習の展開例を検討した。ここではその一例として、「アルミ箔を用いた  $\beta$  線の簡易遮蔽実験」を取り扱う。被教育対象を中学生と高校生に分け、考察の項目に重点を置いて実験実習としての具体的な構成を検討した。中学校では、放射線について、「性質を知る」や「身を守る」ための学習が主であり、現象についての原理の理解までは要求されていない。本実験においては放射線の透過性に加え、遮蔽の現象を認識できれば良いため、考察ではグラフの形状に着目させアルミ箔の厚さが増加すると計数率が減少することを確認することを主眼とした。これによれば、計測の不確かさの概念やコンピューターを用いた実験データの基本的な取扱についても学ぶことができ、現在の学習指導要領で重視される統計教育や ICT 教育にもつなげることができる。高等学校では、性質を理解するだけでなく現象の原理まで学ぶ必要がある。アルミ箔の厚さ 600  $\mu\text{m}$  までの測定点群の傾きから求められる飛程と計算で求めた飛程とを比較し、その違いを考えたり、アルミ箔の厚さが増加すると計数率の変化が少なくなる理由を考えさせ、制動放射について学習したりすることができる。同じ線源・道具を用いても、

実験手順や考察の内容を工夫することで、学習の習熟度と教育の目的に適合した教育モジュールを構築できる。これまで座学が一般的であった学校での放射線教育が、このような自然線源の活用により視野が広がるであろう。

## 2. 論文

飯本武志, 高木利恵子, 掛布智久(2021). 日本の原子力・放射線教育の国際展開への貢献 1. アジア太平洋諸国への放射線教育の展開, 日本原子力学会誌, 63(11), 754-756

Y-21-14

## Environmental radiation exposure in the Fukushima Prefecture and in a radon prone area of the Adamawa region in Cameroon

氏名：SOUMAYAH BACHIROU

受入研究者：床次 眞司 ・ 細田 正洋

共同研究者：SAIDOU ・ BONGUE Daniel ・

Bineng Guillaume Samuel ・ HAMADOU Issa

### 1. 成果

#### Introduction

Natural radiation exposure remains a global public health and a radiation protection issue. The project untitled “ENVIRONMENTAL RADIATION EXPOSURE IN THE FUKUSHIMA PREFECTURE AND IN THE RADON PRONE AREA OF THE ADAMAWA REGION IN CAMEROON” granted by the ERAN FY2021 is subdivided in two parts: the first part in Cameroon and the second one in Fukushima, Japan. The aims of this project is to measure radon in soil gas and in the indoor air, natural radioactivity in some environmental samples and the development of techniques of radioactivity measurements and dose assessment.

#### Accomplishments

Concerning the part of the project planned in Cameroon, in- situ radon measurements in soil gas were carried out at thirty sampling points, according the two lithologies (granite and basalt) of the radon prone area of the Adamawa region. Twenty-five soil samples were also collected for analysis. Moreover, RADUET, DRPS and DTPS were deployed in fifty dwellings over three month, for indoor radon, thoron and progenies measurements. These detectors have been collected and will be returned to Hirosaki University and Bhabha Atomic Research Centre in April 2022 for analysis. Data from the radon in soil gas have been analyzed and one publication is being finalized. Radon in soil gas ranged from  $26 \pm 2$  kBq m<sup>-3</sup> to  $166 \pm 10$  kBq m<sup>-3</sup>; the arithmetic and the geometric means are  $80 \pm 5$  kBq m<sup>-3</sup> and  $71 \pm 4$  kBq m<sup>-3</sup> respectively. The radon exhalation rate ranged from  $83 \pm 1.4$  mBq m<sup>2</sup>s<sup>-1</sup> to  $536 \pm 9$  mBq m<sup>2</sup>s<sup>-1</sup>; the arithmetic and the geometric means are  $257 \pm 4.4$  mBq m<sup>2</sup>s<sup>-1</sup> and  $229 \pm 4$  mBq m<sup>2</sup>s<sup>-1</sup> respectively. The geogenic radon potential ranged from 03 kBq m<sup>-3</sup> to 77 kBq m<sup>-3</sup>, the arithmetic and the geometric means are  $19 \pm 1$  kBq m<sup>-3</sup> and  $30 \pm 2$  kBq m<sup>-3</sup> respectively. According to the risk criterion based on Swedish classification (soils exhibiting radon concentration below 10 kBq m<sup>-3</sup>, within 10 and 50 kBq m<sup>-3</sup> and exceeding 50 kBq m<sup>-3</sup> are classified as low, medium, and high risk respectively), 20% of the sampling locations in this study fall within the medium radon risk area and 80% fall within high radon risk areas. However, no sampling areas are classified low radon risk areas. This Cameroon part is successfully completed.

We note that this work have begun a year before the acceptance of this project, and the results of several campaign led to classified the locality as a radon prone area; and have been published on January 2022 (<https://doi.org/10.1093/rpd/ncab183> ).

Publications Soumayah Bachirou; Saïdou; Chutima Kranrod; Ndjana Nkoulou II J.E; Bongue Daniel; Masahiro Hosoda;; Hamadou Yerima A; Kwato Njock Moïse Godfroy; Shinji Tokonami Radon-risk mapping in the radon prone area of the Adamawa region, Cameroon. To be submitted shortly.

#### Conclusion

The part of the work that was planned in Japan has not yet been completed due to the Covid 19 pandemic. Nevertheless, the host team of the University of Hirosaki provided some laboratory equipment corresponding to the 2021 budget in order to compensate for this breach. Finally, this project was carried out halfway, regardless of our willingness, because of the Covid 19 pandemic, which did not allow us to make the trip to Japan. Nevertheless, the part to be carried out in Cameroon has been successfully completed, and publications are being prepared.

## 2. 論文

1. Soumayah Bachirou , Saïdou, Ndjana Nkoulou II Joseph Emmanuel, Haman Félix and Kwato Njock Moïse Godfroy NATURAL RADIATION EXPOSURE AND RADIOLOGICAL HAZARD ANALYSIS IN A RADON-PRONE AREA OF THE ADAMAWA REGION,CAMEROON, <https://doi.org/10.1093/rpd/ncab183>

2. Soumayah Bachirou; Saïdou; Chutima Kranrod; Ndjana Nkoulou II J.E; Bongue Daniel; Masahiro Hosoda; Hamadou Yerima A; Kwato Njock Moïse Godfroy; Shinji Tokonami Radon-risk mapping in the radon prone area of the Adamawa region, Cameroon. To be submitted shortly.

Y-21-15

## Study of environmental radioactivity in the Fukushima Prefecture, Japan and in the rare-earth element bearing area of Akonolinga, Cameroon

氏名：KITCHA SIME Fayette

受入研究者：床次 眞司・Chutima KRANROD

共同研究者：SAÏDOU・Tchuente Siaka Yvette Flore・Ndjana Nkoulou II Joseph

Emmanuel・Takoukam Soh Serge Didier

### 1. 成果

#### INTRODUCTION

Human beings are exposed daily to ionizing radiation of natural and human origin. They inhale and ingest radionuclides from soil, air, water, and food. From the point of view of natural risk, it is necessary to evaluate the natural radioactivity in the environment and to measure the level of natural ambient radiation provided by the earth ; the air, the buildings...The project untitled « study of environmental radioactivity in Fukushima prefecture, japan and in the rare-earth element bearing area of akonolinga, cameroon » granted by the ERAN FY2021 is subdivised in two parts : the first in Cameroon and the second one in Japan. The aim of this work is to measure radon in soil gas and in indoor air, natural radioactivity in some environment samples and development of news techniques of radioactivity measurements and dose assessment.

#### ACCOMPLISHMENTS

Concerning the activities planned in Cameroon, in situ radon measurements in soil gas were carried out at twenty-seven sampling points. RadonEye was used to study variation of indoor radon in six dwellings and thirty- two soil samples where also collected for analysis by gamma spectrometry. Currently radioactivity measurements in soil are on going. Moreover, RADUET and DRPS-DTPS were deployed in fifty dwellings over three months, for indoor radon, thoron and progenies measurements. The detectors have been collected and will be returned to Hirosaki University and Bhabha Atomic Research Center for analysis in the coming days.

Radon in soil gas range from 5,4 kBq.m<sup>-3</sup> to 75,5 kBq.m<sup>-3</sup>. The average value and the standard deviation are 24,31 kBq.m<sup>-3</sup> and 19,9 kBq.m<sup>-3</sup> respectively. The ambient dose rates indoors and outdoors range between 0,11 µSv.h<sup>-1</sup> and 0,26 µSv.h<sup>-1</sup>, and 0,06 µSv.h<sup>-1</sup> to 0,2 µSv.h<sup>-1</sup> respectively.

## CONCLUSION

Finally this project was carried out halfway, regardless of our willingness because of covid-19 pandemic, which did not allow us to make the trip to Japan. Nevertheless, the part to be carried out in Cameroon has been successfully completed and publications are being prepared

## 2. 論文

I don't have a publication yet

Y-21-16

**Spatiotemporal dynamics of natural radon isotopes causing indoor environmental exposures and their effective countermeasures based on model- room-experiments**

氏名：Hasan Md Mahamudul

受入研究者：細田 正洋・玉熊 佑紀

共同研究者：飯本 武志・Qianhao Mark Jin・Akihiro Sakoma・Miroslaw Janik

**1. 成果**

As an environmental pollutant of natural radiation under the existing exposure situation of radiation protection, radon (Rn-222) greatly contributes to causing human radiation exposures. It is noted that, due to the urban development, different indoor aspects-dwelling structures, indoor dwelling facilities (i., e., usage of air conditions, etc.,) or human lifestyles are diversely changed globally; thus, the impact derived from these factors should be newly ascertained in studying the dynamics of radioactive radon in indoors. This research work newly focused on these indoor factors by performing systematic radon surveys in Asian countries (Bangladesh and Japan).

In Japan, the impact of human lifestyle especially the usage of home appliances on the spatiotemporal dynamics and indoor exposures of indoor radon was observed by model room experiments in a dwelling of Okayama prefecture. Radon concentration was measured with an AlphaGUARD monitor; and radon progenies were measured with a WLM monitor simultaneously to determine the radon equilibrium factor, F. The human lifestyles (indoor human activities) were noted during the overall experimental period. As of the preliminary results, usage of air condition reflected the reduction in radon progeny concentration. The average equilibrium factor ranged (F=0.3-0.4). However, coupling with the usage of window/door which are factors of natural ventilation, and the unclear pattern was observed, which possibly ranged F, from 0.1 to 0.9. A new study based on appliances with filtration effects interacting with natural ventilation is thus strongly needed.

Alternatively, in Bangladesh, a preliminary radon survey was conducted in 42 Bangladeshi dwellings considering numerous dwelling factors, human lifestyles, and measurement conditions to understand the radon dynamics and develop effective countermeasures. RADUETs were used for measuring radon concentrations for around one year and a face-to-face questionnaire was used for recording the building-specific factors and residents' lifestyles. Multivariate analysis-principal component analysis (PCA) & factor analysis was applied objectively to ascertain essential parameters relating to indoor radon variation in Dhaka city. As the results, two principal components (PCs) were obtained; component 1 expressed the strong positive loadings for the indoor factors mostly under human activities of kitchen and

bathroom usage (i.e., drinking water sources, water usage/cooking time in different seasons), natural ventilation; and negative loadings of activities/factors in the living room (i.e., air condition usage in different seasons, the sufficiency of airflow in winter). On the other hand, following component 2, a few parameters of the natural environment (i.e., natural ventilation, occupants' satisfaction status) were found to have strong positive loadings. At the same time, indoor artificial resources (i.e., building materials, water usage, or cooking) presented weak negative loadings. As significant factors ( $P < 0.05$ , ANOVA test) affecting indoor radon, dwelling category, building materials, ventilation, water usage, cooking time, adjacent room conditions, outdoor, winter airflow are determined. Based on the PCA analysis, this research concludes that the dwelling parameters, especially under human activities & ventilation, should be deeply studied and adjusted in searching for an alternative/effective countermeasure to reduce radon exposures for multistoried buildings. Thus, this research found different indoor parameters that might affect radon dynamics and possibly be the tools for developing new countermeasures to radon exposures under existing exposure situations.

In future studies, radon surveys in additional 200 Bangladeshi dwellings and model room experiments focusing on home appliances will be carried out in Japan.

## 2. 論文

Y-21-17

## Establishment of on-site culture system to evaluate cytogenetic effect on human and wild mice in Fukushima

氏名：TRAN THANH MAI

受入研究者：三浦 富智

共同研究者：三浦 富智・藤嶋 洋平・阿部 悠・Goh Swee Ting Valerie

### 1. 成果

In this research, our team focused mostly about human whole blood culture in closed condition for on-site protocol.

Biodosimetry is recommended by IAEA to investigate biological effects for radiation victims. In IAEA's protocol, human blood is cultured at 37 °C for 48 h in 5 % CO<sub>2</sub>. Those conditions require electricity and appropriate laboratory with specialized equipment. In a place with limited access after a disaster, transportation of blood samples to that kind of laboratory can be challenging. In this experiment, we propose the on-site culture technique for blood culture. Culture can be performed immediately after blood collection in closed condition. No CO<sub>2</sub> incubator is required as the CO<sub>2</sub> inside the tube can maintain the pH of culture medium required for cell proliferation. To evaluate the applicability to of on-site culture system under closed condition, mitotic index (MI) of blood culture was analyzed after 0 or 2 Gy X-ray irradiation: (1) with (open culture) or without CO<sub>2</sub> provision (closed culture); (2) colcemid treatment at the 0 or 46 h; (3) hypotonic treatment at 20 or 37 oC; (4) percentage of whole blood to medium volume at 10 % and 15 %; (5) different headspace volume inside the tubes. The results prove the ability to reduce time needed for patient triage in radiation medical emergency with closed culture.

We will continue to establish a protocol for on-site culture for human whole blood culture and survey the ability of mice whole blood culture for on-site dosimetry.

### 2. 論文

## 染色体異常解析における細胞分裂像取得条件の最適化

氏名：阿部 悠

受入研究者：藤嶋 洋平・三浦 富智

### 1. 成果

生物学的線量評価は、物理学的線量評価とともに放射線災害等における被ばく者が暴露した線量を知る方法の一つであり、中でも染色体線量評価は最も信頼できる評価法である。正確な被ばく線量評価を行うには、長時間の分裂停止剤処理を伴う末梢血リンパ球の培養が必要である。しかしこの手法では結果が得られるまでに時間を要すること、長時間の分裂停止剤処理によって染色体は過度に凝縮し、熟練者でも判断の難しい染色体像が多く出現する。特にマウスや野生ネズミの解析では染色体凝縮が顕著であり、放射線による環境影響解析をより困難にする要因となっている。そこで本研究では、染色体分析における各種処理条件の再検討を行い、染色体異常解析の高精度化を目指す。

健常者から採取した末梢血リンパ球および培養細胞株に  $\gamma$  線照射 (0, 2 Gy) を行い、培養する。最終培養時間を 48 時間とし、その間、分裂停止剤処理時間を複数とり (例：48 時間、36 時間、24 時間、12 時間、2 時間等)、いずれも培養開始から 48 時間後に細胞を回収し、染色体標本を作製する。また、染色体凝縮度評価のため分裂期関連キナーゼ阻害剤を添加した条件でも培養を行った。解析には、各処理時間の Mitotic Index、第 2 染色体の全長を指標として比較・検討を行った。

細胞分裂像の取得タイミングについては、培養 48 時間未満の検体でも、線量評価に十分な量の分裂細胞を回収できることが示唆された。実験結果から 40 時間以上の培養は必須であるため、検体数を増やし、培養時間と分裂期移行タイミングについて詳細なデータの取得が必要である。染色体の過凝縮現象の確認、緩和効果の検討については、分裂期関連キナーゼ阻害剤を随時リストアップし、緩和効果の確認実験を進めている。本実験結果で緩和効果が確認できた Wee 1 や CK2 $\beta$  は、染色体の構築に間接的に機能するキナーゼであったが、Mps1 のような染色体構築に直接的に機能するとされているキナーゼの阻害では効果が見られなかった。また、多くの阻害剤では長時間の処理によって細胞生存率が低下したことから、短時間処理が有効であることが示唆された。処理濃度および処理時間の検討は今後も進めていく予定である。今回の実験結果を踏まえ血液培養から画像分析までの工程の見直しを進めていくことで、これまで以上に迅速かつ正確な線量評価が可能となる。また、分裂期関連キナーゼ阻害剤による網羅的解析を行うことで染色体形成・凝縮に関する新規メカニズムの解明にも繋がることが期待できる。

### 2. 論文

## 水中ラドン濃度と湧出量の連続観測に基づく豪雨時の湧泉における降雨流出特性の解明

氏名：仲宗根 峻也

受入研究者：赤田 尚史

共同研究者：古川 雅英・赤田 尚史・城間 吉貴・中村 夏織

### 1. 成果

沖縄県における一人当たりの水資源賦存量（理論上人間が最大限利用可能な水資源量、mm/年）は、日本の平均値（3337 mm/年）よりも比較的少ない（1973 mm/年）。その要因として、地理的ならびに気象学的な特徴が挙げられる。例えば、河川は流路が短くて急傾斜であるのが特徴であり、また流域面積が小さいため、降雨の多くがそのまま海に流れ込む。気象学的な特徴として、沖縄県（那覇市）の1981年から2020年の年間平均降水量は2161 mmと日本国内の他地域に比べて多いが、年間平均降水量の範囲は1331～3322 mm（中央値は2028 mm）であり、経年変化が大きい。また、年間の降水量のうち、5月から6月（梅雨期）と8月から9月（台風襲来期）が約50%を占めており、降水量が季節により大きく異なる（気象庁, 2020）。また、沖縄島の水資源はダム水、河川水、地下水、海水であり、水源は主に北部地域に集中しており、消費は人口の多い中南部地域に集中している。水源別日平均取水量は、全体の80%以上をダム水に依存しており、河川水は13%、地下水は4.7%、海水は1.2%である（沖縄県, 2022）。沖縄県における地理的ならびに気象学的な特徴や水資源の水源地域と消費地域の状況を鑑みると、限られた水資源の持続的かつ安定的に供給する環境を整えることは喫緊の課題である。そこで本研究では、陸域から海洋への陸源地下水の湧出地点および湧出量を明らかにするため、沿岸湧水の分布する海岸線において水中ラドン濃度の平面分布および連続観測を実施した。水試料の採取地点は、沖縄島南部の大度浜海岸（26° 05′ 23″ N, 127° 42′ 22″ E）である。水試料は、海岸線沿い（約200 m）の計8地点で採取した。また、既知の陸源地下水湧出地点では、30分間隔で連続的（2021/12/27 10:30-17:30）に水試料を採取した。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。海岸線で採取した水中ラドン濃度の範囲は、N.D.～4.1Bq/Lの範囲であった。既知の陸源地下水湧出地点のラドン濃度の範囲は、2.7～3.4Bq/Lであり、一定の濃度レベルで推移していることが明らかとなった。今回の水中ラドンをを用いた調査において、当該地域において新たな湧出地点が発見された。このことから、湧出地点探索において水中ラドンが有効であることが示唆された。

### 2. 論文

沖縄島における降水中のトリチウム濃度と水素・酸素安定同位体比及び主要イオン濃度との関係

## Determination Sr-90 in Milk Samples

氏名 : Oktisya Devi Widyaningsih

受入研究者 : 田副 博文

共同研究者 : Kusdiana · Eka Djatnika Nugraha

### 1. 成果

Sr-90 analysis has been carried out in milk powder samples which the activity is known. The determination of Sr-90 is based on three main steps: the sample preparation, TEVA and DGA resin pre condition, extraction chromatography and the activity determination of Sr-90 using LSC.

Background:

1. A significant number of volatile radionuclides were emitted into the atmosphere after the Fukushima nuclear accident, with Strontium-90 (Sr) being no exception (Shozugawa etc 2012).
2. Strontium has the same chemical properties as calcium, this allows Sr to enter the human body through the food chain, especially through consumption of milk (Lopes and Madruga 2009).
3. Strontium-90 has high radiotoxicity and is retention in the body, so it can damage bone marrow and is also carcinogenic (Sulaiman 2010).
4. Liquid scintillation counting (LSC) is used in this work for the analysis of Sr-90

Procedure:

#### 1. Sample Preparation

Concentrated HNO<sub>3</sub> and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> were used to leach milk powder samples. Then some chemicals were added and the mixture was filtered using 0.45 micrometer filter. The samples were ready to be eluted. Before, TEVA and DGA resin were pre conditioned using HNO<sub>3</sub>.

#### 2. Extraction chromatography

Chromatographic extraction was performed by passing the samples through a column made up of TEVA and DGA resins, each column prepacked with 2 ml of resin. The sample filtrate was eluted at a flow rate of 1 ml/minute using vacuum pump. Following that, the eluent was directly measured using LSC.

#### 3. Measurement using LSC

Sample was measured using LSC for 400 minutes and 5 cycles.

## Result

Sr-90 Activity Concentration of the target value is 99.9 Bq/kg, and the research value 68.05 Bq/kg. % recovery is 68.12%. The chemical recovery percentage of the sample shows that the procedure was insufficient, indicating that this method requires improvement in order to get higher recovery.

## 2. 論文

Y-21-21

Presence of Cs-137, Cs-134, Sr-90 traces from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident in the seawater and air for baseline date in Viet Nam

氏名 : Vo Van Tien

受入研究者 : 田副 博文

共同研究者 : Dao Van Hoang · Nguyen Van Hoai Nam · Đoàn Thị Thanh Nhan

## 1. 成果

Contamination by radioactive cesium (Cs-134 and Cs-137), which was released by the severe accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) in 2011, still has a great impact on aquatic organisms. In the case of the Chernobyl accident, the rate of decline of Cs-137 in fish and aquatic environments slowed down after some decades. Cs-137 in river systems can be taken up by aquatic animals. In this study, total Cs-137 concentration in the Ukedo River system and Cs-137 presence in dissolved, acid-soluble, and insoluble fractions in river water samples were determined. Total Cs-137 concentration increased going downstream and had the maximum value of 2.08 Bq/kg below the Ogaki Dam in May 2012. When there was no rainfall before sampling, >87% of Cs-137 existed in the dissolved state, and the acid-soluble state and the insoluble state were <13% and the undetectable level, respectively. After the heavy rain event, the particulate fraction (acid-soluble state + insoluble state) was elevated to 65%, which corresponds to twice as much as that in the base flow condition. Particulate Cs-137, especially the acid-soluble Cs, can play a role when taken into the food chain in aquatic ecosystems.

## 2. 論文

## 海洋堆積物由来の放射性セシウム粒子の溶解特性の解明

氏名：三浦 輝

受入研究者：田副 博文

共同研究者：石丸 隆・神田 穰太・伊藤 友加里

### 1. 成果

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. (2020) は福島沖の海洋堆積物から新たなタイプの CsMP を発見した。本研究では、新たなタイプの CsMP の海水中での溶解特性を明らかにすることを目的とした。CsMP の溶解速度は、CsMP 中の Cs の生物への取り込みや、溶存態 Cs 濃度にも影響を与える可能性がある。新たなタイプの CsMP を 16 粒子分離し、内 2 粒子について溶解実験を行った結果、100  $\mu\text{m}$  の CsMP の場合、20°C の海水中では約 10 年で粒子中の Cs の半分が放出されることが示唆された。来年度も引き続き溶解実験を継続することで、より信頼できる CsMP の溶解速度を推定する。

### 2. 論文

- 成果 1) S. Suzuki, Y. Amano, M. Enomoto, A. Matsumoto, Y. Morioka, K. Sakuma, T. Tsuruta, H. Kaeriyama, H. Miura, D. Tsumune, K. Kamiyama, T. Wada, and H. Takata (in revision) Temporal variability of  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in coastal sediments off Fukushima
- 2) 三浦輝, 栗原雄一, 高橋嘉夫 (2021) 福島第一原子力発電所事故により放出された不溶性セシウム粒子の環境動態 —河川から海洋への移行とその影響—, 地球化学, 55, 122-131.
- 3) H. Miura, and Y. Takahashi (2021) Characterization of two types of cesium-bearing microparticle (CsMP) emitted from the Fukushima nuclear power plant accident using multiple synchrotron radiation analyses, Research Frontiers 2020, SPring-8 SACLA, 94-95.
- 4) H. Miura, and Y. Takahashi (2021) Characterization of Two Types of Cesium-Bearing Microparticles (CsMPs) Emitted from the Fukushima Nuclear Power Plant Accident Using Multiple Synchrotron Radiation Analyses, Photon Factory Highlights 2020, KEK, 38-39.
- 5) 三浦輝, 栗原雄一, 高橋嘉夫, 海洋で発見された不溶性 Cs 粒子とその特徴, 科学, 2022 年 3 月号.

Y-21-23

Clarification of measurement uncertainty of a plastic scintillation fiber (PSF) for in-situ monitoring of the distribution of radiocesium in bottom sediments of agricultural ponds

氏名：Estiner Walusungu Katengeza

受入研究者：眞田 幸尚

共同研究者：越智 康太郎

## 1. 成果

Since 2013, a plastic scintillation fiber (PSF) system has been used for in-situ monitoring of the distribution of radiocesium (RCs:  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ ) concentration in bottom sediments of ponds affected by radioactive fallout from the 2011 Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. PSF's counting rate (CR<sub>psf</sub>, s<sup>-1</sup>) was converted to RCs concentration (Bq kg<sup>-1</sup>) by regressing it on the average RCs concentration in the top 10 cm of sediment core sampled from points coinciding with PSF measurement lines. However, in-situ devices' measurement uncertainty can be influenced by the vertical distribution of RCs in bottom sediments including the depth over which the calibration samples are averaged. Accordingly, this study was aimed at clarifying the influence RCs depth distribution on PSF calibration factor and its measurements uncertainty based on RCs monitoring in forty-seven ponds in 2015–2019. Using a dataset (N=206) of PSF and sediment core sample measurements, 32% were used for PSF calibration by first averaging the sediment RCs concentration over varying thicknesses of the core samples, i.e., calibration depth (l<sub>cal</sub>) ranging from 0–5 cm (l<sub>15</sub>) to 0–30 cm (l<sub>30</sub>) in 5 cm increments. Next, the corresponding CR<sub>psf</sub> was regressed on each l<sub>cal</sub> and the result coefficient of determination (IR<sub>2</sub>) was used as an optimization criterion under the hypothesis that an optimal calibration depth (l<sub>optimal</sub>) would maximize IR<sub>2</sub> and minimize measurement uncertainty expressed as normalized mean square error (NMSE), which compared the depth-dependent PSF-derived RCs concentration (PSF<sub>l</sub>) against sediment RCs concentration for all the samples. Additionally, uniformity in RCs concentration by depth was statistically tested using the concentration in successive 5 cm layers of all sediment core samples. The thickness, L<sub>90%</sub>, of sediment containing 90% of the RCs inventory (Bq m<sup>-2</sup>) was estimated from the cumulative sum of the inventory in the sediment core layers for each sample. The peak or plateau of IR<sub>2</sub> occurred mainly at l<sub>15</sub> and l<sub>20</sub> which coincided with the largest proportion of L<sub>90%</sub> among the samples. Consistent with the hypothesized trend for l<sub>optimal</sub>, lowest NMSE tended to occur at l<sub>cal</sub> where IR<sub>2</sub> peaked or began plateau i.e., l<sub>15</sub> and l<sub>20</sub> and increased below or beyond that l<sub>cal</sub>. However, RCs concentration was only statistically uniform (Mann-Whitney test, p>0.05) for the 0-5 cm and 5-10 cm sediment layers were while the rest were heterogeneous. Further, there were no statistically significant differences in

PSF-derived RCs concentration by calibration depth (Kruskal-Wallis H test,  $p > 0.05$ ). On this basis, the currently adopted practice of calibrating against the top 10 cm is considered appropriate for the sampled ponds and period. Revision to calibrating against the top 15-20 cm may be necessary for optimizing PSF measurement uncertainty for unknown homogeneity/heterogeneity in RCs depth distribution.

## 2. 論文

## 福島環境モニタリングを目的とした採泥機能を有する小型無人船の開発(1) 無人船の制御手法開発

氏名：藤井 竣

受入研究者：眞田 幸尚

共同研究者：田原 淳一郎・森戸 誠・小野 聡太郎

### 1. 成果

東京海洋大学及び JAEA 福島を中心とした研究グループは福島県近郊の海域の放射能調査を行うための小型無人船の研究開発を行っている。今までは港湾内に限定して放射能調査のモックアップ試験を蓄積しており、基本的な船の運用技術は概ね確立した。今後、原子力防災ツールや事故後の環境アセスメントに本技術が幅広く活用されるには、沖合での運用技術確立が課題となっている。沖合で放射能調査を行う際は、無人船が目標位置付近で位置と方位角度の保持を行う必要があり、現状ではこれを自動制御によって行っており、港湾内のような静水状態での運用では経験を重ねてきている。しかしながら、今後、沖合で調査を行う際は、港湾内に比べて風や潮流、波などの様々な外乱の影響を受けることになり、従来の制御手法では対応できなくなる可能性が考えられる。そこで、本研究では、沖合でも無人船による放射能調査が行えるような機械学習手法を取り入れた制御手法を考案することを目標とした。本年度、新たな制御手法としては、従来の制御手法に、ニューラルネットワークによる補正入力を加える手法を基礎的に構築した。ニューラルネットワークを使用することにより、補正入力のリアルタイム性が向上し、海況を予測した無人船の制御が可能になると考えられる。構築したアルゴリズムを、MATLAB を用いた計算シミュレーションで確認した結果、従来の制御手法に比べて外乱に対する耐性があることが確認できた。考案した制御手法を無人船に実装し、福島県相馬市追川の沖合にて海域試験を行った。結果、平均風速が 2.0[m/s] で、潮流や波の影響がある中でも、半径 6[m] の円内で位置と方位角度の保持を行うことができた。この結果から、機械学習手法を取り入れた制御手法は、従来の制御手法より、外乱の大きい沖合での制御に適しており、今後、無人船を用いた放射能調査の調査範囲拡大が期待できる。次年度以降、様々な海況条件で、同様な試験を福島沖で重ね、制御パラメータや性能限界について検証するとともに、沖合での放射能調査の実運用に資する知見を提供していく。

### 2. 論文

Shun Fujii, Junichiro Tahara, Shoichiro Baba, Yukihisa Sanada, "Dynamic Positioning Control of Unmanned Surface Vehicle for Core Sampling: Correction Input Using Neural Network," The 32nd International Ocean and Polar Engineering Conference. (受理済)

## 帰還困難区域内のイノシシを対象とした糞 DNA における MIG-seq 解析の手法検討

氏名：齋藤 梨絵

受入研究者：玉置 雅紀

共同研究者：今藤 夏子・熊田 礼子・James Beasley

### 1. 成果

2011年3月に発生した東京電力(株)福島第一原子力発電所事故後、福島県内の避難指示区域内の一部居住が制限されている地域では、人間活動の低下に伴うイノシシの行動範囲の拡大や個体数の増加、高濃度の放射性セシウムを含有するイノシシの他地域への分散が懸念されている。野生動物の移動・分散スケールを把握する有効な手段の一つとして、遺伝的構造をもとにした個体群構造解析が挙げられる。帰還困難区域を含めたイノシシの個体群構造を遺伝的に解析することで、イノシシが増加した際に、移動・分布拡大するおそれのある地域を把握し、福島県及び隣接県も含めた広域におけるイノシシ管理に資する知見を得ること、加えて、野生動物の移動・分散に伴う放射性Csの動態を明らかにできることが期待される。2021年度の私たちのERAN共同拠点の研究では、福島県内外のイノシシの個体群構造を明らかにすることを目的に、イノシシの筋肉から抽出したDNAを利用したMIG-seq解析を行った。その結果、地域特性のあるイノシシの個体群構造が確認され、近年の遺伝子流動を反映した個体群特性を確認することができた。私たちの先行研究より、MIG-seq解析が福島県内外のイノシシの移動や個体群構造の把握に有効であることが示された。しかしながら、これまでのMIG-seq解析には筋肉試料を利用しており、イノシシの捕獲(捕殺)や解体といった労力がかかること、捕獲状況により地点や試料数にバイアスがかかることといった懸念があった。一方、イノシシの糞から抽出したDNA(糞DNA)を使用した場合、動物の捕獲や接触なしに収集することができ(非侵襲的試料)、試料の採集を簡便化し、かつ、より充実した試料の確保が可能となることが期待される。しかしながら、糞には対象種以外のDNA(例えば、食物に由来するDNA)も含まれている。MIG-seq解析においては、多種類の生物種に対応した汎用性の高いPCRプライマーを利用するため、糞DNAを用いた場合、PCRの過程でイノシシ以外のDNAからのPCR産物も増幅されることが懸念される。これまでに糞DNAを用いたMIG-seq解析の報告はない。そこで、本研究では、帰還困難区域内で捕獲されたイノシシ試料を利用し、糞DNAを利用したMIG-seq解析の手法開発を検討した。福島県の帰還困難区域内で捕獲されたイノシシについて筋肉、直腸糞および罠に落ちていた糞(以下、罠糞)を採集し、それぞれの試料からDNAを抽出した。まず、MIG-seq解析に必要な“イノシシのDNA”の存在量を確認するための実験を行った。定量PCRにより一定のシグナル強度に達した時のサイクル数(Cp値)を確認した筋肉DNAについて、一定の割合で希釈系列のDNAを作成し、Cp値を調整した後に、希釈系列DNAについて1stPCRを実施した。1stPCR産物について、電気泳動を行い、Cp値と1stPCRに

よる DNA 断片の増幅成功との関係性を確認した。その結果、Cp 値が 32 付近までは DNA の増幅が確認されたが、それ以上では増幅が確認されなかった。したがって、MIG-seq 解析には、Cp 値が 32 以下の DNA のみを解析に用いるのが適当であることが分かった。筋肉、直腸糞および糞糞にから抽出した DNA について、イノシシに特異的なプライマーを使用した定量 PCR を行い (TAGLN1sus and TAGLN2sus, refer to Ebert et al., 2012)、イノシシの DNA 量を定量化した。いずれの筋肉、直腸糞および糞糞においても、Cp 値は 32 以下であり、MIG-seq 解析を行うにあたり十分なイノシシの DNA 量が含まれていることを確認できた。これらの試料を使用し、MIG-seq 解析を行った。今後、MIG-seq 解析により得られたシーケンス配列について、複数のデータ解析を試行し、糞試料から得られる SNPs (一塩基多型) の評価および手法の確立を目指す。

## 2. 論文

## 放射性核種を用いた日本海溝周辺海域における沈降粒子輸送状況の評価

氏名：Zhu Siteng

受入研究者：青野 辰雄

共同研究者：張 勁・大塚 進平・片境 紗希

### 1. 成果

プレートが沈み込む海溝域では地震活動が活発であり、日本海溝では数 100 年間隔で巨大地震が発生していると報告されている(T.Schwestermann et al., 2021; Ikehara et al., 2016)。日本歴史上最大の 2011 年東北地方太平洋沖地震は日本海溝の西側斜面を震源とし、その地震時変位は水平方向に～50m、鉛直方向に～10m であったと推測されている(Fujiwara et al., 2011; Kodaira et al., 2012)。アウターライズ地震は海溝型地震と連動して発生するとされており(Lay et al., 2011; 地震調査研究推進本部地震調査委員会, 1997)、近い将来日本海溝東側でも大規模な地殻変動が起こること予想される。本研究では 2011 年に起きた地殻変動と繰り返し発生した余震による海溝東側斜面の堆積物輸送状況の変化を評価することで、東斜面の地震に伴う環境変化に関する知見を獲得することを目的とした。コア試料は、2011/7/16–8/4 と 2020/8/24–9/2 の 2 つの期間で採取されたものを使用した。堆積物中の放射性同位体( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ )に加え、炭素窒素安定同位体比及びその含有量の測定を行った。また先行研究のデータと比較、日本海溝の東西斜面に着目して、地震前後の変化を評価した。堆積物の海底面よりも下の層で福島原発事故由来と推定される高濃度の放射性  $^{137}\text{Cs}$  が検出された。また、同時に分析した excess  $^{210}\text{Pb}$  濃度は堆積物表層で過去に同海域で測定された値よりも高くなっていった。この 2 点は最近になって堆積物輸送が強化されたことを示唆している。炭素安定同位体比と TOC/TN 比を用いた解析結果は有機炭素がすべて海洋起源であること示したことから、輸送量増加には近隣地域からの側方輸送が寄与していると考えられた。地震が東側斜面への物質輸送を強化するトリガーである可能性が示されたことは、生物生産性の乏しい外洋への物質輸送という観点で重要な知見であると考えられる。今後、海水中の放射性  $^{137}\text{Cs}$  の分析や調査地点数を増やすなどして、日本海溝周辺の堆積輸送過程を詳細に明らかにしていきたいと考えている。

### 2. 論文

Shota Kambayashi, Jing Zhang, Hisashi Narita(2021) Significance of Fukushima-derived radiocaesium flux via river-estuary-ocean system. Science of The Total Environment, Volume 793, 1 November 2021, 148456. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.148456>

## 沿岸海域における放射性セシウムの挙動解明に関する研究

氏名：神林 翔太

受入研究者：青野 辰雄

### 1. 成果

陸域と海洋をつなぐ河口域や沿岸域は、河川水と海水が混在することによる物理拡散、物質の不溶化、沈降や再溶出などが展開される場であることから、同域における物質循環、特に陸域から海洋への物質輸送過程を理解することは重要である。しかしながら、河口域を通じて海洋へ輸送される粒子の実態は理解されていないことも多い。本研究では、幅広い塩分変動をもつ海跡湖「松川浦」で採取した表層堆積物及び再懸濁粒子の放射能分析及び化学分析を通じて陸域から海洋への粒子の輸送過程や Cs-137 分布状況と陸起源物質との関係について実態把握を行った。

希土類元素パターンからみた粒子の変質作用の度合いは、海底堆積物 > 表層堆積物 ≒ 再懸濁粒子 ≒ 河床堆積物であった。また、無機粒子の起源を推定するための指標である La/Yb 比から、無機粒子に含まれる陸起源粒子の割合は約 7 割と試算された。これらのことから河川から流入する粒子の多くは再懸濁を繰り返して変質作用の影響が少ない状態で海洋へ輸送されていると考えられる。さらに、有機物と無機粒子の双方とも陸起源物質の割合が多いほど Cs-137 濃度が高くなる傾向が確認された。一方で、La/Yb 比と Cs-137 濃度には関係性は確認されなかった。これらのことから表層堆積物に含まれる Cs-137 分布は陸起源無機粒子と陸起源有機物の双方の堆積状況に依存していると考えられる。今後は得られた分析結果を基に多変量解析などを用いることで陸起源無機粒子と陸起源有機物などの寄与率の推定を行うことで、河口域を通じて海洋へ輸送される放射性セシウムを含む種々の物質について、より正確な輸送過程を理解するための基礎データとなることが期待される。

### 2. 論文

## ミミズが土壌中の放射性セシウムの鉛直分布に及ぼす影響の解明

氏名：田中 草太

受入研究者：石井 伸昌

### 1. 成果

ミミズは、土壌表層を攪乱し、有機物を摂食・分解し、団粒を形成することで、土壌構造を改変している。この生態系改変者としてのミミズの働きは、土壌中の放射性セシウムの鉛直分布にも影響を及ぼすことが示唆されている。しかしながら、福島原発事故後の放射性セシウムの土壌鉛直分布に対するミミズの影響を考慮した研究はこれまで実施されていない。事故後 10 年が経過し、定常状態に近づきつつある土壌表層の放射性 Cs の長期動態を予測するうえで、土壌動物による生物攪乱の影響を正確に評価する必要がある。本研究では、フトミミズ科のミミズを対象に土壌表層の放射性セシウムの鉛直分布に与える影響を実験的に明らかにすることを目的とする。調査地は、福島第一原発から北西約 40 km に位置する落葉広葉樹を主とする山林とし、20221 年 8 月 31 日にフトミミズ科の表層種のミミズを見取り法により採集した。放射性 Cs 層（上部 3cm）と非汚染層（下部 12cm）を設定した飼育容器にミミズを 1 匹入れ、0, 1, 3, 7, 14 日間後の放射性 Cs 層の分布をオートラジオグラフィにより可視化した。その結果、実験開始から 14 日間では、ミミズによる放射性 Cs の土壌鉛直方向への明確な移動は認められなかった。したがって、短期的にはミミズの活動は土壌表層の放射性 Cs の鉛直分布に影響を与えないことが示唆された。一方、実環境におけるミミズの生育期間は、本実験期間より長いため、より長期の飼育期間を設けることで、実環境に即した評価を実施する必要がある。今年度は実験系の構築を完了し、ミミズは短期的には、土壌表層の放射性 Cs の鉛直分布に影響を及ぼさないことを明らかにした。今後は、実環境に即した長期の実験期間を設けるとともに、土壌の高さごとの放射性 Cs 濃度をゲルマニウム半導体検出器を用いて定量することで、ミミズが放射性 Cs の土壌鉛直分布に与える影響より正確に評価していく必要がある。

### 2. 論文

Environmental Radioactivity Research  
Network Center  
(ERAN)

FY2021 FINAL REPORT  
【International】

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	受入れ研究者	所属
I-21-01	Mikhailova Rena	Russian Institute of Radiology and Agroecology	Simulation of the absorbed dose rate for Japanese Cedar trees depending on the litter and soil water content		Yuichi Onda	CRIED
I-21-02	Xinchao Sun	Tianjin University	Isotopic evaluation on relative contribution of canopy microbial nitrification to throughfall nitrate in temperate forests		Yuichi Onda	CRIED
I-21-03	Nick Beresford	UK Centre for Ecology & Hydrology	Scoping study to establish a 'Radioecological Observatory' site linked to other worldwide sites	Yuichi Onda Mike Wood Peter Martin	Yuichi Onda	CRIED
I-21-04	Joske Ruytinx	Vrije Universiteit Brussel	Building a culture collection of <i>Suillus luteus</i> , an ectomycorrhizal fungus associated with pine trees		Kenji Namba	IER
I-21-05	James Beasley	University of Georgia	Influences of Rooting Activity by Wild Boar on <sup>137</sup> Cs Bioavailability		Yoshifumi Wakiyama Kenji Namba	IER IER
I-21-06	Debashis Palit	University of Chittagong, Bangladesh	Study of naturally occurred radioactivity in the soil and rocks of Chittagong Hill Tracts area of Bangladesh	Shahadat Hossain	Rahman Ismail Md. Mofizur	IER
I-21-07	Suman Barua	University of Chittagong, Bangladesh	Assessment of radiological contamination of soils due to open-beach ship recycling activities in Bangladesh	Shahadat Hossain	Rahman Ismail Md. Mofizur	IER
I-21-08	Rashedul Islam Ripon	Faculty of Science, Mawlana Bhashani Science and Technology University, Bangladesh.	Design, synthesis and characterization of cobalt(III) and nickel(II) complexes with biogenic chelator triazoles, pyrrole, pyrazole, imidazole and their derivatives.	Mohammad Kahdemul Islam Foni Bushon Biswas	Ismail Md. Mofizur Rahman	IER
I-21-09	Tapashi Ghosh Roy	University of Chittagong	Synthesis, characterization, and radiometric investigations on nickel(II) complexes of a new N-alkyl pendent azamacrocyclic chelator.	Zinnat A. Begum Saswata Rabi	Rahman Ismail Md. Mofizur	IER
I-21-10	Roman Bezhenar	Institute of Mathematical Machines & Systems Problems of National Academy of Sciences of Ukraine (IMMSP)	Investigation of expected radioactive contamination and doses to human in result of potential release of dumped water from Fukushima storage tanks into marine environment by using box modeling	Vladimir Maderich	Hyoe Takata	IER
I-21-11	Olena Burdo	Institute for Nuclear Research National Academy of Sciences of Ukraine	Establishment of FISH probes for dicentric analysis of wild rodents in Chernobyl	Tomisato Miura Yohei Fujishima	Hiroko Ishiniwa	IER
I-21-12	Makhsun	National Nuclear Energy Agency of Indonesia	Monitoring of radon gas in the ground as an early warning system of earthquake	Untara	Shinji Tokonami	IREM
I-21-13	Ceiga Nuzulia Sofyaningtyas	National Nuclear Energy Agency of Indonesia	Determination Cs-137 and Cs-134 in Food Samples	Kusdiana Eka Djatnika Nugraha	Shinji Tokonami	IREM
I-21-14	Dwi Ramadhani	National Nuclear Energy Agency of Indonesia (BATAN)	Evaluation of the Serum Catalase Activity in the Individuals Exposed to High Levels of Radon Concentration: A Pilot Study	Sofiaty Purnami	Tomisato Miura	IREM
I-21-15	IIN KURNIA	Center for Radiation Safety Technology and Metrology	Detection of 8-oxo-dG level in serum and $\gamma$ -H2AX, micronuclei, and apoptosis caspase-3 in lymphocyte of Indonesian Nuclear Reactors	Yanti Lusiyanti Teja Kisananto Devita Tetriana	Tomisato Miura	IREM
I-21-16	Elistina	National Nuclear Energy Agency	Determination of Pu-239/240 in water	Kusdiana Eka Djatnika Nugraha	Naofumi Akata	IREM
I-21-17	Mathew James Bruce Swallow	Mount Royal University	Development and implementation of methods to assess radiocesium transfer in forest soil ecosystems	Yusuke Unno Akira Takeda	Naofumi Akata	IREM
I-21-18	Fei Chen	National Center for Occupational Safety and Health	Gross alpha and gross beta radioactivity concentration in environmental water	Quiang Xiong Lu Zhang	Hirofumi Tazoe	IREM
I-21-19	Shan Xing	China Institute for Radiation Protection	Method development and analysis of refractory radionuclides in seawater samples	Xiongxin Dai Taeko Shinonaga	Hirofumi Tazoe	IREM
I-21-20	Md. Safiur Rahman	Bangladesh Atomic Energy Commission	Capacity building for development of nuclear techniques for analysis of radionuclides in environmental samples collected from Ruppur Nuclear Power Plant (RNPP), Bangladesh	Tasrina Rabiya Choudhury	Hirofumi Tazoe	IREM
I-21-21	Sirtom BURANURAK	Khon Kaen University	Assessment of natural radioactivity and radiological health impact on paleontologists and workers in dinosaur fossil excavation sites containing with high-background radiation		Shinji Tokonami Kranrod Chutima	IREM IREM
I-21-22	Olivier EVRARD	CEA (French Atomic Energy Commission)	High-resolution reconstruction of sediment and radiocesium source contributions in a lake draining the main Fukushima radioactive pollution plume	Anthony FOUCHER Irène LEFEVRE	Seiji Hayashi Hideki Tsuji Yoshifumi Wakiyama	NIES NIES IER
I-21-23	Zhiyong Liu	Medical College of Soochow University	Characteristics of radioisotope fingerprints of forest soils in Changbai Mountain, Northeast China	Li Zhihong Han Xiaoxiao	Jian Zheng	QST
I-21-24	Shaoming Pan	Nanjing University	Simultaneous determination of <sup>237</sup> Np and Pu isotopes in seawater by SF-ICP-MS with a single column chromatographic separation	Shuai Zhang	Jian Zheng	QST
I-21-25	Wang Zheng	Tianjin University	Tracing the sources of Pu and Hg in the deep-sea sediments using Pu and Hg isotopes		Jian Zheng	QST
I-21-26	Hai Wang	University of South China	Studies on the distribution and migration characteristics of Np and Pu in typical karst environment	Renjuan Liu	Jian Zheng	QST
I-21-27	Wu MEN	Third Institute of Oceanography, Ministry of Natural Resources	Analytical method of <sup>135</sup> Cs and <sup>137</sup> Cs in large volume of seawater by ICP-MS spectrometry	Fenfen WANG	Jian Zheng	QST

## Simulation of the absorbed dose rate for Japanese Cedar trees depending on the litter and soil water content

氏名 : Mikailova Rena 受入

研究者 : Yuichi Onda

### 1. 成果

After the accident at the Fukushima NPP, a lot of radioactive materials released into the atmosphere were intercepted by the forested areas. Though the majority of the territories were under remediation, there still are zones with high levels of radioactivity. The purpose of the research was to calculate the absorbed dose rates for the Japanese cedar trees in order to predict possible consequences for the forest ecosystems located in the vicinity of the accident and determine the most significant ecological factors for dose rate formation. Calculation of the dose rates for trees was performed via a dosimetric model [1], modified and parameterized according to the collected data [2-7]. The vertical profile of a forest ecosystem is displayed as a set of layers with certain parameters: layer thickness (m), layer density (kg/m<sup>3</sup>), the concentration of radionuclides in the layer (Bq/m<sup>3</sup>). The model allowed estimating the dose rate resulted from the energy absorbed by the media (in our case – forest ecosystem). The modelling was carried out using Mathcad 15.0 software (PTC Inc.) and data processing was performed in MS Excel. To simulate the absorbed, dose rates it was necessary to consider moisture in litter and soil layers. To determine the water content calculations included data on the precipitation rate and correlation of soil and litter moisture and rainfall. The research by the specialists of Tsukuba University allowed tracing the water content in soil due to measurements of soil moisture and registering the precipitation data from March to July of 2018. The measurements showed good correlations with the effective rainfall index with the  $T_{1/2} = 3$ . The approximation allowed to make a retrospective evaluation of soil moisture during the period from 2011 to 2017. The moisture content allowed performing the retrospective estimation of the dose rate for the Japanese cedar stand. The estimated dose rate for the Japanese cedar stand in 2011 was 32  $\mu$  Gy/day in the upper canopy layers and 39  $\mu$  Gy/day at a height of 0.9 m. By 2017, the values of these indicators decreased to 10 and 13  $\mu$  Gy/day, respectively. The discrepancy between the calculated and measured data is possible due to the inhomogeneity of the contamination densities, which affects the results of monitoring studies and the parameterization of the model. In the first years after the accident, <sup>134</sup>Cs was the main dose-forming radionuclide; by the end of 2013, the dose rates from <sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs became equal. By 2017, <sup>137</sup>Cs had become the main source of dose exposure due to the shorter half-life of <sup>134</sup>Cs. The model allows studying the influence of environmental factors

on the formation of the radiation exposure on the components of the tree layer of the forest. Figure 6 shows the dose rate at a height of 1 m, calculated under the condition of constant soil moisture (40%) and litter moisture of 20% and 80%. At high humidity, the screening capacity of the soil and litter increases by 1.5 times compared to the “low moisture” scenario. The research results allowed us to make a conclusion that significant fluctuations in the dose rate of trees are possible due to the change of environmental factors. Using the model, it was possible to estimate the variability of the dose rate depending on precipitation and water content in soil and litter.

## 2. 論文

① Mikailova, R., Onda, Y., Fesenko, S., and Kato, H.: Absorbed dose rate assessment for the Japanese cedar stand affected after the Fukushima NPP accident., EGU General Assembly 2021, online, 19–30 Apr 2021, EGU21-10529, <https://doi.org/10.5194/egusphere-egu21-10529>, 2021.

② Mikailova R.A., Fesenko S.V., Onda Yu., Kato H., Takahashi J., Spiridonov S.I. Retrospective evaluation of radiation dose rates to coniferous forest after the Fukushima-1 NPP accident. // Technogenic Systems and Environmental Risk: Book of abstracts of IV International (XVII Regional) Scientific Conference / Ed. by A.A. Oudalova. – Obninsk: IATE NRNU MEPhI, 2021. – P. 174-176.

③ Mikailova R.A., Fesenko S.V., Onda Yu., Kato H., Takahashi J., Spiridonov S.I. Evaluation of the influence of environmental factors on the formation of radiation doses of woody plants in the region of the Fukushima-1 NPP // Radioecological Consequences of Radiation Accidents – to the 35th anniversary of the Chernobyl accident: Proceedings of the International Research and Practice Conference, Obninsk, April 22-23, 2021 / Eds. N.I. Sanzharova, V.M. Shershakov. Obninsk: RIRAE, 2021. – P. 102-105

I-21-02

## Isotopic evaluation on relative contribution of canopy microbial nitrification to throughfall nitrate in temperate forests

氏名 : Xinchao SUN  
受入研究者 : Yuichi Onda

### 1. 成果

Forest canopies play a significant role in regulating carbon and water exchanges with the atmosphere, with profound effects on climate. However, the contribution of tree canopies in altering the chemical composition of precipitation and, consequently, the nutrient cycling within a forest has been less investigated. In particular, it is unclear whether the deposition of reactive nitrogen species (N) to canopies is retained, re-emitted and/or altered by chemical or biological reactions and what portion and chemical form of deposited N eventually reaches the soil as washed out N compounds. The application of the dual isotope approach in nitrate, in bulk precipitation and throughfall has provided another important step towards a better understanding of the importance of N and of its cycling in forests. Therefore, this study combined methods of stable isotopes and forest hydrology with the objectives: 1) to examine the changes in concentrations and the isotopic composition of atmospheric N during canopy passage, in addition to their impact factors; 2) to estimate the proportions of biologically and atmospherically derived N in the canopy. We found that a seasonal partitioning between biologically and atmospherically derived nitrate was observed, with a higher proportion ( $\approx 30\%$ ) in TF derived from canopies nitrification in September, indicating processing of N within canopies should not be neglected and needs further exploration, with the combination of multiple isotope tracers. These findings can contribute to achieve an integrated mechanistic understanding of interactions between atmospheric nitrogen deposition and forest canopies, and better assess forest health and function in the context of environmental changes. A more in - depth analysis of these processes will require a larger number of replicates, while further research will be needed to confirm the observed seasonal changes at larger spatial and temporal scale and better quantify the relative contribution of canopy biotransformations to forest N cycling.

### 2. 論文

No

I-21-03

## Scoping study to establish a ‘Radioecological Observatory’ site linked to other worldwide sites

氏名 : Nick A. Beresford

受入研究者 : Yuichi Onda

共同研究者 : Yuichi Onda · Mike Wood · Peter Martin

### 1. 成果

The contaminated areas following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in 2011 are some of the most radioactively polluted sites in the world. The accident resulted in anthropogenically-derived radionuclide depositions across the Fukushima Prefecture and resulted in large scale evacuations of the human population. Government sponsored decontamination activities and natural radionuclide decay are lower ionising radiation exposures below the government set threshold for human occupancy in some evacuated areas, many parts remain uninhabitable. Our project’s initial aim was to select an extensive area to establish a Radiological Observatory similar to that established in the Chernobyl Exclusion Zone. Within the observatory, there should have been ecological similar areas (ie., tree stand species, tree stand density, soil characteristics) with varying levels of radioactive contamination. However, a small part of the entire evacuated area (approximately 1 ha) was selected to conduct preliminary observations and deploy observatory devices. This preliminary site is located in Namie Town (37°33′12.13″N, 140°50′05.5″E) of the Fukushima Prefecture approximately 23 km northwest of the FDNPP and received about 4730 kBq m<sup>-2</sup> of total radiocesium (134Cs and 137Cs) deposition. This preliminary area contains forests, several streams, and has brown forest soils. Forest stands consisted of Japanese Cedar of approximately 3,300 trees ha<sup>-1</sup>. Near the site, multiple radiological studies have been conducted and once data is accessible this area will provide an excellent site to study radioecology in a terrestrial ecosystem. At the preliminary site, we deployed wildlife monitoring surveillance systems that consisted of (I) typical game trail cameras and (II) Wi-Fi based surveillance cameras. These monitoring systems provide essential information to determine species inhabiting the site throughout the year. Eight wildlife cameras (Browning-Trail Cameras Strike Force) were deployed across the observatory to monitor wildlife activity. Data was stored on SD cards and each camera required monthly maintenance. We developed a new Wi-Fi capable system that allows global access to a 24/7 surveillance system that also acquired audio files. Once deployed, wildlife activity is video recorded, stored online, and is soon available for select users to download. Such data availability allows for easy communication between international collaborators. The Wi-Fi capable system used solar power. Monitoring of the preliminary site found that, while both systems successfully

recorded wildlife activity, the game-trail cameras were optimal for Radiological Observatory purposes. The Wi-Fi based system required extensive maintenance, expense, and was not operational in the autumn-winter seasons due to poor sunlight conditions. The number of solar panels needed to be increased in summer due to the increased tree canopy limiting sunlight. These negative conditions outweigh the ability to access audiable cameras 24/7 and directly download monitoring observations. We recommend the use of typical wild-life cameras that have been optimized for wildlife monitoring. Consideration of colocating sound recorders with the game-trail cameras should be considered to enable audio recordings of wildlife.

## 2. 論文

I-21-04

## Building a culture collection of *Suillus luteus*, an ectomycorrhizal fungus associated with pine trees

氏名 : Joske Ruytinx

受入研究者 : Kenji Namba

### 1. 成果

#### 【Objective】

To investigate the role of mycorrhizal fungi in the transfer of rCs to red spruce in a symbiotic culture, we found a diversity of rCs concentrations, transfer coefficients, and accumulation transfer coefficients in *Suillus luteus* and *S.guranulatus*, and attempted to culture the fungi in the laboratory.

#### 【Methods】

Mushrooms and 100 cm<sup>3</sup> of soil at 5 cm depth were collected in Tsushima, Namie Town on 10/22/2020 and 10/15/2021, in Kanayama Town on 9/9/2021 and in Fukushima University Campus on 2021/11/1. Soil and dust were removed from the collected mushrooms, and small pieces were cut from fresh sections and inoculated onto Modified Fries agar medium. The remaining mushrooms and soil samples were dried and measured with a germanium semiconductor detector until the radioactivity error for <sup>137</sup>Cs and <sup>40</sup>K was less than 5%.

#### 【Results】

(1) <sup>137</sup>Cs and <sup>40</sup>K concentrations of *Suillus luteus* and soil in Tsushima, Namie Town

There was no significant difference in <sup>137</sup>Cs concentrations between 2020 and 2021 in *S. luteus* collected in Tsushima. In relation to the <sup>137</sup>Cs concentration in 5 cm of soil surface layer, mushrooms with concentrations around 100 kBq/kg DW were found for soil 2.4-218 kBq/kg DW of soil, while mushrooms with concentrations over 200 kBq/kg DW showed concentrations proportional to those of soil at a range of TF=5-7. The relationship between the concentrations of <sup>40</sup>K and <sup>137</sup>Cs in the *S. luteus* collected in Tsushima showed that the ratio of <sup>137</sup>Cs concentration to <sup>40</sup>K activity (1.5-5.8 kBq/kg DW) was about 100 in four individuals, but in the others, the <sup>137</sup>Cs concentration was almost always below 70 kBq/kg regardless of the <sup>40</sup>K concentration (1.1-4.9 kBq/kg DW). The <sup>137</sup>Cs concentration was almost always below 70 kBq/kg regardless of the <sup>40</sup>K concentration (1.1-4.9 kBq/kg DW).

(2) <sup>137</sup>Cs and <sup>40</sup>K concentrations of *S.luteus* and *S.granulatus* and soil in Fukushima University Campus and Kaneyama Town

The <sup>137</sup>Cs concentrations in *S.luteus* collected in the Fukushima University campus were 0.1-1.8 kBq/kg DW (TF=0.2-10), while 0.5-7.5 kBq/kg DW for *S.granulatus* (TF=1.2-51). The <sup>137</sup>Cs concentration in *S.luteus* did not seem to be related to the <sup>40</sup>K concentration, but

in *S.granulatus*, the lower the 40K concentration, the higher the 137Cs concentration. However, this relationship was not observed in *S.granulatus* in Kanayama Town.

#### 【Discussion】

The two species of the genus *Suillus* collected in this study are mycorrhizal fungi symbiotic with *Pinus densiflora*. These mushrooms showed some diversity in terms of 137Cs transfer coefficient and the relationship between K concentration and 137Cs concentration in the mushrooms. When these mushrooms make symbiosis with *P.densiflora*, it will be interesting to see how the differences in the accumulation capacity of *Suillus* spp. for 137Cs affect *P. densiflora*. In this study, we are developing strains of these fungi, and hope to conduct cultivation experiments using them in symbiosis with red pine.

## 2. 論文

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

氏名 : James C Beasley

受入研究者 : Yoshifumi Wakiyama · Kenji Namba

### 1. 成果

Studies to determine the distribution of radiological contamination within the area impacted by the Fukushima-Daiichi accident are a high priority because that accident represents one of the most significant releases of anthropogenic radiological contamination in history. 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 to a depth of 120 cm. Rooting by wild boar has the potential to alter the soil chemistry, arthropod communities, and vegetation composition, and thus 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. Impacts of wild boar rooting on contaminant bioavailability likely are particularly pronounced in areas contaminated from the Fukushima-Daiichi accident, given their increase in abundance in these areas. Despite their global distribution and potential role in the movement of contaminants, there are currently no studies assessing the impact of wild boar rooting on contaminant bioavailability. Therefore, our objective in this study was to determine whether rooting by wild boar alters Cs-137 bioavailability. We targeted areas within the difficult to return zone for this research, as these areas have the highest densities of boar and greatest levels of environmental contamination. We hypothesize wild boar will alter the distribution of Cs-137 within the soil profile, increasing the bioavailability of this contaminant to biota and the potential for redistribution through erosion. We collected preliminary samples in Okuma town by the support of ERAN in 2020. These samples have yielded promising data in support of our hypotheses, but additional sample collections were needed in 2021 to verify our results. In 2021, we collected soil core samples from 5 sites in Namie town. We targeted former agricultural areas and grassland sites, as well as recent rooting and old rooting [i.e., > 6 months old (which has been subjected to erosion processes)] to investigate the influence of habitat and weathering on accumulation of Cs-137 contamination. In addition, we collected multiple soil cores within each rooted area (3 replicates per site), as

well as control samples from nearby locations to determine differences in the vertical distribution of bioavailable Cs-137 in the surface and sub-surface soil layers for all sampling sites. Radiocesium activity was determined for all collected samples using an Auto-Gamma Counter. Our results indicated that rooting disrupts the vertical distribution of Cs-137 within soil profiles. Almost all Cs-137 in soil cores at the control site was contained in the surface (depth up to 5 cm), whereas areas disturbed from wild boar rooting had more widely dispersed Cs-137 within soil profiles that was present at greater depths (depth of 0–20 cm) than control sites. Our results suggest wild boar rooting may alter bioavailability to plants in impacted areas. This research contributed to a clearer understanding of the environmental impact of wild boar rooting which can better inform appropriate management actions given the growing population of wild boar within the difficult to return zone.

## 2. 論文

I-21-06

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

氏名 : Debashis Palit

受入研究者 : Rahman Ismail Md. Mofizur

共同研究者 : Shahadat Hossain

### 1. 成果

#### 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 having 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 and Measurement of Radioactivity level

The samples were collected from the undisturbed area. The samples were then dried at 1000 C for 24 h in an oven and weighed. The dried samples were then grinded into fine powder. The powdered samples were sieved through 1mm mesh to keep uniform grain size. About 1Kg of the homogenous soil sample then be poured and sealed in an airtight Marinelli beaker and was stored for 4 weeks before gamma-ray analysis. Gamma spectrometric analysis was performed by using a gamma-ray spectrometer with a coaxial HPGe  $\gamma$ -ray spectrometer at Atomic Energy Centre Chittagong.

#### Results and Discussion

The degree of retention of stable radionuclides by soil varies with the physical and chemical characteristics of the element involved, the physical and chemical form of the nuclide, the concentrations of the nuclide and of ions which compete with nuclide ions for retention sites, soil pH, soil organic matter content, soil mineral type, concentrations of chelating agents or other compounds which form complexes with the nuclide, and the time allowed for equilibrium of the nuclide between solid and liquid phase. If we compare the concentrations for all the soil samples of the three districts, we shall find that the  $^{40}\text{K}$  concentrations varied between  $74 \pm 17.02$  and  $610 \pm 73.2$  Bq kg<sup>-1</sup>,  $^{232}\text{Th}$  ranged from  $23 \pm 2.99$  and  $151 \pm 16.61$  Bq kg<sup>-1</sup>, and  $^{226}\text{Ra}$  ranged from  $3 \pm 0.36$  and  $21 \pm 2.94$  Bq kg<sup>-1</sup>. The average concentration of  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{226}\text{Ra}$  is  $242.5 \pm 30.82$  Bq kg<sup>-1</sup>,  $68.68 \pm 8.99$  and

$11.62 \pm 1.92$  Bq kg<sup>-1</sup>, respectively. The anthropogenic radionuclide <sup>137</sup>Cs was also analysed in this study by assuming that it could be deposited in soil of Bangladesh as a result of atmospheric fallout following the Chernobyl disaster on 26 April 1986 and other previous atmospheric tests of nuclear devices by the neighbouring countries. No <sup>137</sup>Cs was detected in any of the samples.

The higher concentration of <sup>226</sup>Ra is related to its original parent concentrations, the environmental mobilities of <sup>232</sup>Th and <sup>238</sup>U, their decay schemes, and the half-lives of the generated decay chain radionuclides. Although thorium has low mobility in the environment, and its level is little affected by weathering, uranium has a high solubility in oxidized environments and may be mobilized from the solid phase.

#### Conclusion

Wide variation in specific activity within each district is observed. This non-uniform behaviour of radionuclides may be attributed to their uneven and irregular distribution in the earth crust, differences of geological structures and also to various topographical and agricultural activities.

## 2. 論文

1. E. Debanath<sup>1</sup>, R. K. Shil,<sup>2</sup> S. Rabi, D. Palit, B. K. Dey and T. G. Roy, "Vanadium(IV) and vanadium(V) complexes with hexamethyl tetraazamacrocyclic ligands: Synthesis, characterization and antimicrobial studies", *Inorganic and Nano-Metal Chemistry*. (Published online) (2022).

2. S. Rabi, Lucky Dey, D. Palit, B. K. Dey, I. M. M. Rahman, E. R. T. Tiekink and T. G. Roy, Crystal structure of [meso-5,7,7,12,14,14,-hexamethyl-1,4,8,11-tetraazacyclotetradecane]nickel(II) diperchlorate dimethylsulphoxide di-solvate, *C<sub>20</sub>H<sub>48</sub>Cl<sub>2</sub>N<sub>4</sub>NiO<sub>10</sub>S<sub>2</sub>*. *Z. Kristallogr. New Crystal Structure*, 236(6), 1243-1245 (2021).

3. L. Dey, S. Rabi, D. Palit, S. K. S. Hazari, Z. A. Begum, I. M. M. Rahman, T. G. Roy. Syntheses, characterization, and antimicrobial studies of Ni(II), Cu(II) and Co(III) complexes with an N-pendant azamacrocyclic chelator. *Journal of Molecular Structure*, 1240(130579), 1-9, (2021).

I-21-07

## Assessment of radiological contamination of soils due to open-beach ship recycling activities in Bangladesh

氏名：Suman BARUA

受入研究者：Rahman Ismail Md. Mofizur

共同研究者：Shahadat Hossain

### 1. 成果

Introduction “Shipbreaking” is the dismantling process of end-of-life ships to recover steel and other valuable materials for reintroducing them into the economic flow. The current study explores the spatial variation in the naturally occurring radionuclides (NORMs) in soils of the shipbreaking and recycling industrial (SBRI) areas in Bangladesh.

The research question is: “Do ship-breaking activities affect the NORMs in soil?” Experimental Soil samples collected from nine locations (one control, S1, and eight SBRI, S2 to S9) are processed and analyzed in high-purity germanium (HPGe) semiconductor detector. Activity concentrations (in Bq kg<sup>-1</sup>) of <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K was used to assess the health hazards via radiological indices, such as radium equivalent activity (Raeq), absorbed gamma dose rate (DR), annual effective dose rate (Eaed), external and internal hazard index (Hex and Hin), and excess lifetime cancer risk (ELCR).

Results and discussion NORMs evoke occupational and public health concerns due to chemotoxicity and radiotoxicity. The Raeq, Eaed, Hex, and Hin values for all studied locations, including the control, were lower than the respective recommended values (Table 1). However, the DR and ELCR were above the recommended limits, representing radiological risks for the SBRI workers. Spatial variations in soil NORMs were observed among the SBRI. However, NORMs in SBRI soils were lower than the control, which indicates a minimal impact of SBRI activities on the NORMs in soil.

### 2. 論文

I-21-08

**Design, synthesis and characterization of cobalt(III) and nickel(II) complexes with biogenic chelator triazoles, pyrrole, pyrazole, imidazole and their derivatives.**

氏名 : Rashedul Islam Ripon

受入研究者 : Ismail Md. Mofizur Rahman

共同研究者 : Mohammad Kahdemul Islam · Foni Bushon Biswas

## 1. 成果

Objectives a) Synthesis and characterization of new cobalt(III) and nickel(II) complexes of biogenic chelators. b) Carrying out a study on their antimicrobial activities. c)

Study on chelation efficiency of biogenic chelators on radioisotopes of Ni and Co.

Synthesis of the complex Cobalt (II) chloride dihydrate (0.82 g; 0.0034 mole) and 1.6 g of the sodium salt of saccharin (0.0078 mol) were dissolved in 100 mL of water. The solution was heated gently on a water bath until the volume is reduced to 50 mL. It was then allowed to stand overnight, whereupon rose red crystals was separated. The mixture was cooled in an ice bath, and the crystals were collected on a filter paper, washed with cold water, and dried. Finally tetra aqua bis(saccharinato) cobalt(II) dihydrate was obtained. The starting tetra aqua bis(saccharinato) cobalt(II) dihydrate (0.18g; 0.37 mmol) and 2-guanidinobenzimidazole (0.2162g; 2 mmol) were dissolved in 15 mL methanol with stirring at 40o -50oC temperature. After that light brown powder was obtained. The light brown powder was collected by filtration. It was then washed with acetone and dried in air. [Co(sac)<sub>2</sub>(2GB)<sub>2</sub>]: Color, Brown. M.W., 769.44. FT-IR (cm<sup>-1</sup>): ν N-H, 3332; ν C=O, 1673; δ ring(N-H) 1641; ν C-N, 1149.1; ν C=C 1471; ν S=O, 1278, ν Co-N, 540. 1H-NMR (δ, ppm in DMSO-d<sub>6</sub>): 2.47 (s, 1H), 6.91 (s, 1H), 7.16 (s, 1H (ring NH)), 7.65 (m, 4H). UV-Vis (λ max in nm): 432, 301, 264 (in DMF).

Summary of Findings a) New cobalt(II) and nickel(II) complexes: [Ni(sac)<sub>2</sub>(2GB)<sub>2</sub>], [Co(sac)<sub>2</sub>(2GB)<sub>2</sub>], [Ni(2MB)<sub>2</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>], [Co(2MB)<sub>2</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>], [Co(sac)<sub>2</sub>(2,2-PB)<sub>2</sub>] have been synthesized and characterized by 1H-NMR, UV-Vis and FT-IR spectroscopy measurements. b) The complexes might adopt an octahedral structure (proposed). c) The ligand is found to act as a very efficient chelator of Ni(II) and Co(III) during complex formation.

N.B: Sac: Saccharine; 2GB: 2-Guanidinobenzimidazole; 2MB: 2-mercaptopyrimidine; 2,2-PB: 2,2-pyridylbenzimidazole.

## 2. 論文

## Synthesis, characterization, and radiometric investigations on nickel(II) complexes of a new N-alkyl pendent azamacrocyclic chelator.

氏名 : Tapashi Ghosh Roy

受入研究者 : Rahman Ismail Md. Mofizur

共同研究者 : Zinnat A. Begum · Saswata Rabi

### 1. 成果

Radioisotopes of Ni (r-Ni) are produced in the structural steels of nuclear reactor vessels and internal components from neutron activation of corresponding naturally occurring stable isotopes. The macrocyclic chelators can be used to isolate Ni from the waste matrix. Moreover, the application and importance of macrocyclic chemistry in coordination and analytical chemistry are proliferating. In this connection, this current research plan was aimed to investigate the ability of the chelators for the selective isolation of r-Ni from the waste matrix. So, a new N-alkyl pendent azamacrocyclic chelator and its Ni(II) complexes have been prepared and characterized. During the complex formation process, the new N-alkyl pendent macrocycle was found to act as a very efficient chelator of Ni(II) ions. The newly formed compounds have been characterized by modern analytical tools, such as IR, <sup>13</sup>C-NMR, <sup>1</sup>H-NMR, mass spectroscopy, molar conductivity data, and magnetic measurements. Most of these compounds were found to act as potential antibacterial and antifungal agents. It is expected that future studies on the efficiency of adsorption of these types of chelators on Ni(II) ions can play a vital role in the development of radiochemistry.

### 2. 論文

1. M. A. Sayed, S. Rabi, P. Paul, L. Dey, B. K. Dey, Z. A. Begum, I. M. M. Rahman and T. G. Roy, "Studies on cobalt(III) complexes of a cyanoethyl derivative of an isomeric hexamethyl tetraazamacrocyclic ligand", *J. Incl. Phenom. Macro. Chem.*, (in press) (2021)
2. S. Rabi, L. Dey, B. K. Dey, D. Palit, I. M. M. Rahman, E. R.T. Tiekink and T. G. Roy, "Crystal structure of [meso-5,7,7,12,14,14,-hexamethyl-1,4,8,11-tetraazacyclotetradecane] nickel(II) diperchlorate dimethylsulphoxide di-solvate, C<sub>20</sub>H<sub>48</sub>Cl<sub>2</sub>N<sub>4</sub>NiO<sub>10</sub>S<sub>2</sub>", *Z. Kristallogr. N. Cryst. Struct.*, 236(6), 1243-1245 (2021).
3. L. Dey, S. Rabi, Z. A. Begum, T. Takase, I. M. M. Rahman, E. R.T. Tiekink, T. G. Roy, "Redetermination of the crystal structure of Redetermination of the crystal structure of bis[N,N'-ethylenebis(acetyl-aceto niminato) nickel(II)] sodium perchlorate, C<sub>24</sub>H<sub>36</sub>ClN<sub>4</sub>NaNi<sub>2</sub>O<sub>8</sub>", *Z. Kristallogr. N. Cryst. Struct.*, 236(6), 1147-1150 (2021).
4. L. Dey, S. Rabi, Z. A. Begum, T. Takase, I. M. M. Rahman, E. R.T. Tiekink, T. G.

- Roy, "Redetermination of the crystal structure of (2E,4Z,13E,15Z)-3,5,14,16-tetra- methyl-2,6,13,17- tetraazatricyclo- [16.4.0.0 7,12 ]docosa-1(22),2,4,7,9,11,13,15,18,20-decaene, C<sub>22</sub>H<sub>24</sub>N<sub>4</sub>". *Z. Kristallogr. N. Cryst. Struct.*, 236(5), 1121-1124 (2021).
5. L. Dey, S. Rabi, D. Palit, S. K. S. Hazari, Z. A. Begum, I. M.M. Rahman, T. G. Roy. 'Syntheses, characterization, and antimicrobial studies of Ni(II), Cu(II) and Co(III) complexes with an N-pendant azamacrocyclic chelator.' *J. Mol. Struct.*, 1240(130579), 1-9 (2021).
  6. S. Rabi, L. Dey, D. Palit, B.K. Dey, I.M.M. Rahman, E.R.T. Tiekink and T.G. Roy, Crystal structure of [meso-5,7,7,12,14,14,-hexamethyl-1,4,8,11-tetraazacyclotetradecane]nickel(II) diperchlorate dimethylsulphoxide di-solvate, C<sub>20</sub>H<sub>48</sub>Cl<sub>2</sub>N<sub>4</sub>NiO<sub>10</sub>S<sub>2</sub>, *Zeitschrift für Kristallographie - New Crystal Structures*, Vol. 236, No. 6, pp. 1243-1245, 2021. [doi: 10.1515/ncrs-2021-0291]
  7. L. Dey, S. Rabi, D. Palit, S.K.S. Hazari, Z.A. Begum, I.M.M. Rahman and T.G. Roy, Syntheses, characterization, and antimicrobial studies of Ni(II), Cu(II), and Co(III) complexes with an N-pendant azamacrocyclic chelator, *Journal of Molecular Structure*, Vol. 1240, pp. 130579, 2021. [doi: 10.1016/j.molstruc.2021.130579]
  8. L. Dey, S. Rabi, Z.A. Begum, T. Takase, I.M.M. Rahman, E.R.T. Tiekink and T.G. Roy, Redetermination of the crystal structure of (2E,4Z,13E,15Z)-3,5,14,16-tetramethyl-2,6,13,17- tetraazatricyclo-[16.4.0.07,12]docosa-1(22),2,4,7,9,11,13,15,18,20-decaene, C<sub>22</sub>H<sub>24</sub>N<sub>4</sub>, *Zeitschrift für Kristallographie - New Crystal Structures*, Vol. 236, No. 5, pp. 1121-1124, 2021. [doi: 10.1515/ncrs-2021-0244]
  9. L. Dey, S. Rabi, Z.A. Begum, T. Takase, I.M.M. Rahman, E.R.T. Tiekink and T.G. Roy, Redetermination of the crystal structure of bis[N,N'-ethylenebis(acetylacetoniminato)nickel(II)] sodium perchlorate, C<sub>24</sub>H<sub>36</sub>ClN<sub>4</sub>NaNi<sub>2</sub>O<sub>8</sub>, *Zeitschrift für Kristallographie - New Crystal Structures*, Vol. 236, No. 6, pp. 1147-1150, 2021. [doi: 10.1515/ncrs-2021-0254]

I-21-10

## Investigation of expected radioactive contamination and doses to human in result of potential release of dumped water from Fukushima storage tanks into marine environment by using box modeling

氏名 : Bezhenar Roman

受入研究者 : Hyoue Takata

共同研究者 : Vladimir Maderich

### 1. 成果

The accident at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) in 2011 led to an uncontrolled release of a significant amount of radioactive material. Additional release of contaminated water was prevented but resulted in a large amount of contaminated water stored near the NPP. In April 2021 around 1.26 million m<sup>3</sup> of contaminated water was stored in tanks containing radionuclides with long and intermediate half-life. The water was processed to reduce its radioactive content; nevertheless, decontamination systems cannot remove all radionuclides from the water and the capacity of the tanks is almost exhausted. As a result, the Japanese authority is now planning for a release of the contaminated water to the Pacific Ocean. This study is aimed to make an assessment of the radiological impact to human and environment. For this purpose the compartment model POSEIDON-R is applied to compute the concentration of activity in the water, bottom sediments, and biota in the north-western Pacific with focus on the area around the FDNPP. The findings are then used to compute the dose to marine organisms and the human dose from seafood consumption. Two release scenarios are considered, assuming a 10 and 40 year release period for all collected activity. The total activity is estimated for 10 dominant radionuclides (<sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C, <sup>60</sup>Co, <sup>90</sup>Sr, <sup>99</sup>Tc, <sup>106</sup>Ru, <sup>125</sup>Sb, <sup>129</sup>I, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs) using available data from present radionuclide concentrations and tank volumes. According to the simulations, <sup>3</sup>H concentration in the seawater is the highest among all radionuclides due to its high activity content in the tanks. The highest concentrations in the marine organisms come from <sup>14</sup>C because of its high bioaccumulation rate, while the highest annual dose rate to humans is expected from <sup>129</sup>I due to its high dose coefficient. Calculated concentrations of activity in marine products will not exceed food safety limits in Japan even in the 4x4 km coastal box around FDNPP. The computed maximum annual dose rate to humans from all radionuclides together is less than 1 μSv. Here <sup>129</sup>I and <sup>14</sup>C are responsible for respectively 82% and 16% of the dose, while the other 8 radionuclides contribute only 2%, half of which is from tritium. For boxes located at larger distances from the FDNPP the dose rate drops by several orders of magnitude. Absorbed doses to non-human biota are expected in the order of 0.05 to 20 μGy per year and

dependent on the aquatic organism and release scenario. The doses are well below any radiation limits for non-human biota, meaning that no deleterious effects from ionising radiation to the sea organisms is expected.D6

## 2. 論文

Bezhenar R., Takata H., de With G., Maderich V. Planned release of contaminated water from the Fukushima storage tanks into the ocean: Simulation scenarios of radiological impact for aquatic biota and human from seafood consumption. *Marine Pollution Bulletin*. 2021. Vol. 173. 112969.

## Establishment of FISH probes for dicentric analysis of wild rodents in Chernobyl

氏名：Olena Burdo

受入研究者：Hiroko Ishiniwa

共同研究者：Tomisato Miura・Yohei Fujishima

### 1. 成果

In Chernobyl where the nuclear accident occurred 35 years ago, a large amount of radioactive materials remain in the environment. Dicentric chromosome analysis, a type of DNA lesion, is important and robust method to evaluate effect of radiation on animals. The frequency of dicentric chromosomes reflect the sum of internal and external exposure doses, therefore it is used as a biological dosimeter. However, dicentric chromosome analysis requires a great deal of time and skilled technique. Especially, most of chromosomes are acrocentric that are extremely short arms, makes analysis much difficult and many rodent species have this type of chromosomes. Bank vole, *Myodes glareolus* ( $2n = 56$ ), is common rodent in Chernobyl also has 54 or 53 acrocentric chromosomes in female or male, respectively. The aim of this study is to establish the fluorescence in situ hybridization (FISH) method that visualize the centromeres of chromosomes for bank vole, simplify the procedure, and shorten the analysis time.

Five bank voles were captured in Ukraine using livetraps baited with oil-fried bread pieces. The livers were removed from euthanized bank voles and immediately stored in 70 % ethanol. The livers were incubated in lysis buffer containing proteinase K at 56 degrees with slow shaking and dissolved. Proteins were removed from the lysate by mixing with phenol and chloroform then DNA were purified by ethanol precipitation. Finally, about 45 micro-g/0.1 mg of genomic DNA of bank voles from each tissue were obtained.

As for the next step, we will make probe using extracted DNA and establish the primary cell culture from bank vole or related species to check whether probe works.

### 2. 論文

I-21-12

## Monitoring of radon gas in the ground as an early warning system of earthquake

氏名 : Makhsun

受入研究者 : Shinji Tokonami

共同研究者 : Untara

### 1. 成果

Radon is one of many geophysical and geochemical phenomena that can be considered to be an earthquake precursor. The successful prediction of earthquakes is yet to be accomplished, in terms of their magnitude, location and time, and much effort has been spent on this goal. Radon emanation from grains depends mainly on their  $^{226}\text{Ra}$  content and their mineral grain size, its transport in the earth being governed by geophysical and geochemical parameters while exhalation is controlled by hydrometeorological conditions. The stress-strain developed within the Earth's crust before an earthquake leads to changes in gas transport and a rise of volatiles from the deep earth up to the surface, resulting in anomalous changes in radon concentration.

This work aims to develop a monitoring system that conduct the systematic radon concentration measurements as early warning system of earthquake. This Research includes measurements of radon concentration in the soil at a depth of 80 cm along Opak and Progo faults, Yogyakarta and Cimandiri fault, Sukabumi. In addition this research carried out the laboratory tests on the homemade prototype of radon monitoring system.

The tests were carried out by monitoring the level of radon concentration in a bore well continuously for approximately three months. The monitoring measured the concentration of radon every hour, sent the data to the internet and storing it in a data logger. The tests were also carried out on solar panels as a source of electricity that used to feed the energy for the prototype device.

The measurements results of radon concentration in the soil in Opak fault ranged from  $1,150 \pm 245 \text{ Bq/m}^3$  to  $10,100 \pm 693 \text{ Bq/m}^3$ , while thoron concentrations ranged from from  $977 \pm 338 \text{ Bq/m}^3$  to  $8,160 \pm 903 \text{ Bq/m}^3$ . The measurements results of radon concentration in the soil in Progo fault ranged from  $432 \pm 165 \text{ Bq/m}^3$  to  $17,100 \pm 896 \text{ Bq/m}^3$ , while thoron concentrations ranged from  $488 \pm 277 \text{ Bq/m}^3$  to  $4,340 \pm 672 \text{ Bq/m}^3$ .

The results on laboratory test of homemade radon monitoring system show that the apparatus could work as expected and there are no obstacles or any damages. The prototype could measure the concentration of radon every hour and send the data to the internet and save it in a data logger. Solar panels and power storage devices could meet energy needs for device operations

## 2. 論文

Heavy Metal Assessments of Soil Samples from a High Natural Background Radiation Area, Indonesia, *Toxics* 2022, 10(1), 39.

## Determination Cs-137 and Cs-134 in Food Samples

氏名 : Ceiga Nuzulia Sofyaningtyas

受入研究者 : Shinji Tokonami

共同研究者 : Kusdiana · Eka DjatnikaNugraha

### 1. 成果

#### Introduction:

Since the Fukushima Daichii nuclear accident 10 years ago, several radionuclides such as Cs-137 and Cs-134 have been released into the environment and even outside Japan. Radionuclide Cs-137 and Cs-134 are two of the fission products of the nuclear fission process in a nuclear facility. Cs-137 and Cs-134 has high toxicity and long half-life. When it enters the human body, Cs-137 and Cs-134 will attack the bones or muscles and can cause cancer. It becomes important to know the content of Cs-137 and Cs-134 which may be present in the environmental samples, especially in food consumed by the population. This is in line with Indonesian government regulations regarding food safety requirements in Indonesia, including foods imported from Japan, by setting limits for radioactive contamination in foodstuffs. For this reason, research to determine the content of Cs-137 and Cs-134 in food samples is necessary.

Method: Using particle size 100-600  $\mu\text{m}$  KNiFC-PAN Resin (EICHROM, USA).

#### Procedures:

1. Resin characterization using mixed standard solution (Merck, Germany).

Mix standard solution containing stable Cs, Fe, Na, K, Mg, Ca, Sr (20 mg kg<sup>-1</sup> each) streamed through 2 ml bed of KNiFC-PAN resin by 1-3 ml min<sup>-1</sup> of flow rate using a peristaltic pump. Every 7 ml of the output were collected and measured using FAAS (Flame Atomic Absorption Spectrophotometer).

Result: Chemical Recovery of Cs = 99.93%

2. Resin Characterization using food samples.

1000 mg kg<sup>-1</sup> of Cs carrier was added into 10 g of dried pineapple sample. The destruction was carried out using HNO<sub>3</sub> and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. The solution then streamed through the resin. FAAS measurements were carried out to compare the Cs concentration in the solution before and after passing through the resin. (Table 1.)

Table 1. Cs Concentration in Food Samples Measured by FAAS

Sample blank -> Before resin: - ; After resin: 0.0461 mg/kg

Sample+Cs carrier -> Before resin: 20,32 mg/kg ; After resin: 1,493 mg/kg

### 2. 論文

## Evaluation of the Serum Catalase Activity in the Individuals Exposed to High Levels of Radon Concentration: A Pilot Study

氏名 : Dwi Ramadhani

受入研究者 : Tomisato Miura

共同研究者 : Sofiati Purnami

### 1. 成果

In Indonesia, Tande-Tande sub-village in Botteng Utara (Northern Botteng) village, Mamuju, West Sulawesi, is known to have a high indoor radon concentration. The indoor radon concentrations in this location can exceed 1,644 Bq/m<sup>3</sup>. People in this area are exposed chronically to high levels of radon. Radon is an odorless and colorless noble gas derived from the uranium decay chain (U-238), which results directly from the decay of radium (Ra-226). Alpha and beta radioactive isotopes are among the radon decay products. Alpha particles, which are made up of two protons and two neutrons, have the capability to ionize and damage the DNA contained in living cells. Ionizing radiation in the form of alpha particles can cause DNA damage from chromosomal aberrations (CA), double strand DNA breaks and generate reactive oxygen species (ROS). As a form of free radical, ROS includes molecules such as singlet oxygen, superoxide anion, hydrogen peroxide, and a hydroxide radical. Several mechanisms exist in the human body for controlling and inhibiting ROS generation. One of them is by producing enzymatic-antioxidant enzymes such as superoxide dismutase (SOD), glutathione peroxidase (GPX), and catalase (CAT). Interestingly, our preliminary study showed that SOD and GPX activities in Tande-Tande sub-village inhabitants did not differ significantly from those in Topoyo inhabitants. Thus, to explore more information on the effects of radon exposure in this area, we assessed the frequencies of CAT concentrations in the sera of Tande-Tande sub-village inhabitants and compared the results to those obtained from populations who live in areas with low indoor radon concentrations. Fifty seven adult subjects from Tande-Tande sub-village, Mamuju and fifty three healthy adult subjects from normal background radiation areas (NBRAs) were enrolled in this study. Blood samples were obtained from the antecubital vein. Sera then were collected by centrifugation at 3600 r.p.m for 15 min and keep at 4° C. The catalase concentration in serum samples then were measured using Catalase ELISA Kit in our study. The median CAT concentration per total protein in the Tande-Tande sub-village inhabitants (0.159) was statistically lower compared to median value found in Topoyo village inhabitants (0.256;  $p < 0.001$ ; Fig. 1). No significant correlation between CAT concentration per total protein and indoor radon concentration, annual effective dose, and cumulative dose in Tande-Tande sub-village inhabitants ( $p = 0.262$ ;  $p = 0.141$ ; and  $p = 0.064$ , respectively), as well as in Topoyo village inhabitants except in CAT

concentration per total protein with annual effective dose ( $p=0.044$ ). Interestingly, the significant correlation between CAT concentration per total protein and indoor radon concentration, annual effective dose, and cumulative dose were found when all data from both groups were pooled ( $p<0.0001$ ;  $p<0.0001$ ; and  $p=0.001$ , respectively).

## 2. 論文

I-21-15

## Detection of 8-oxo-dG level in serum and $\gamma$ -H2AX, micronuclei, and apoptosis caspase-3 in lymphocyte of Indonesian Nuclear Reactors

氏名 : IIN KURNIA

受入研究者 : Tomisato Miura

共同研究者 : Yanti Lusiyanti · Teja Kisnanto · Devita Tetriana

### 1. 成果

Detection of 8-oxo-dG level in serum and  $\gamma$ -H2AX and Annual Occupational Dose, of Indonesian Nuclear Reactors Background: Reactor workers are exposed to long-term low levels of ionizing radiation, which makes them vulnerable to DNA damage. There are potential occupational health hazards from radiation exposure. Purpose : Detection of 8-oxo-dG level in serum and  $\gamma$ -H2AX and Occupational Dose in lymphocyte of Indonesian Nuclear Reactors Materials and Methods: 28 blood samples will be taken from 28 consist reactor workers and other radiation workers(man), follow up from 2020 subject before. and they will be analyzed for the presence of 8-oxo-dG level in serum and  $\gamma$ -H2AX, in lymphocyte, 8-0xo dG will be detected by Elisa and  $\gamma$ -H2AX expression as a biomarker of DNA DSB damage assay were carried out by immunofluorescence microscopy. Result : There was a significant correlation between concentration of 8-oxo-dG level in serum to age and working duration of workers ( $p < 0,05$ ) and no significant correlation between of 8-oxo-dG to expression of  $\gamma$ -H2AX and annual occupational dose (Fig, a,b,c,d) a b c d \*Because of some major situation as Covid 19 Pandemic the Caspase-3 could not be detected and still the validation data of micronucleus expression

### 2. 論文

Have not Published

## Determination of Pu-239/240 in water

氏名 : Elistina

受入研究者 : Naofumi Akata

共同研究者 : Kusdiana · Eka Djatnika Nugraha

### 1. 成果

Plutonium is a radionuclide particularly difficult to measure in environmental and need radiochemical method for determination of  $^{239}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$ . During the analysis, tracer  $^{242}\text{Pu}$  was use to estimate the chemical yield of the plutonium isotope. After suitable pre-treatment of the samples, the plutonium nuclides in solution were co-precipitated with ammonium hydrogen phosphate and calcium nitrate. Recent developments in ion exchange resin and extraction chromatography resins such as Eichrom<sup>®</sup> UTEVA and TRU have resolved the analytical problems but drawbacks such as low recovery and spectral interferences still occasionally occur. The methods able to separate from one same sample, both natural and anthropogenic radionuclides. The method is also suitable for measuring  $^{239,240}\text{Pu}$  in water samples at the  $\mu\text{Bq/l}$  level. Considering the high radio-toxicity of Pu, accurate methods are required to measure activities in the environment. In the publication  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$ , due to the two radionuclides' energy, these are very close together, so the result measurement is a mixture of the two radionuclides, with a composition of 60%  $^{239}\text{Pu}$  and 40%  $^{240}\text{Pu}$ . In that way, radiochemistry analysis have been proposed for the determination of  $^{239,240}\text{Pu}$  in environmental samples. Besides, environmental samples often contain other  $\alpha$ -emitter radionuclides (U, Am, Th and their daughter's products), at much higher activities than Pu.

The radiochemical protocols follow three main steps : sample digestion, chemical separation and measurement. All reagents were of analytical grade. Pre packed columns of UTEVA and TRU resins. Preparation 2 L of water sample was placed into a glass beaker. Then the sample was evaporated until the remaining volume was 500 mL. The evaporated sample was then acidified to pH 2 using concentrated nitric acid. Then  $^{242}\text{Pu}$  tracer, U tracer and Am tracer were added to the sample. The beaker glass containing the sample was then carried out preparation stage until the dark red color changed to a dark yellow color which indicated the reduction of  $\text{Fe}^{+3}$  to  $\text{Fe}^{+2}$ . Actinides separation for this, ion exchange resin and extraction chromatography resins UTEVA to separate U from Am and Pu, TRU to separate Am and Pu. Uranium separation ; the resin to be used is UTEVA (Uranium & Tetravalents Actinide) which can be used to separate uranium, zirconium, and actinide (IV) elements such as Np, Th and Pu. Americium separation ; the resin to be used is TRU (Trans Uranian) which can separate iron and actinide groups. The conditioned resin was then added to the eluent from the elution of the sample using UTEVA resin containing Pu and Am. Plutonium

separation ; the resin used to separate plutonium is TRU resin. The resin that was used to elute the americium. The three eluent are evaporated and form a precipitate dissolved with HNO<sub>3</sub> then input to vial and added cocktail. The final solution was measured using an ultra low-level liquid scintillation spectrometer, Quantulus 1220 Wallac (Perkinelmer, USA).

In this experiment, LSC by radiochemical method for element separation can be successfully applied <sup>239,240</sup>Pu as well as <sup>238</sup>U and <sup>241</sup>Am. The result of the analysis of plutonium radionuclide samples using standard tritium. The counting efficiencies are nearly for <sup>239,240</sup>Pu and <sup>241</sup>Pu. The proposed procedure has been tested for the simultaneous determination of <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu and <sup>241</sup>Pu in water samples. Through this research project, it can be obtained that measurement result for the radiochemical analysis methods and can be used to estimate activity of <sup>239,240</sup> Pu in water samples. This activity is expected to be able to understand environmental radioactivity.

## 2. 論文

-

**Development and implementation of methods to assess radiocesium  
transfer in forest soil ecosystems**

氏名 : Mathew James Bruce Swallow

受入研究者 : Naofumi Akata

共同研究者 : Yusuke Unno · Akira Takeda

**1. 成果**

Initially the plan for this project was for Dr. Swallow to travel to Japan in the fall of 2021 and then January 2022 to conduct the research at Hirosaki University. These plans were drastically altered due to the pandemic resulting in Dr. Swallow not being able to travel to Hirosaki. However, the research team worked diligently since the start of 2022 to ensure progress was made. Consequently, this annual report will reflect the progress under these challenging circumstances. The method to assess radiocesium mobility in soils has fully developed in Canada. Currently running experiments show that the method is able to effectively manipulate water transmission from soil in relation to predetermined levels of soil water activity (-0.5 MPa, -1.0 MPa and -2.0 MPa). In the near future these samples will be tested to see if the manipulated levels of soil water activity result in corresponding increase in water soluble elements being transported out of the soil. Ultimately, this work will generate soil nutrient isotherms that indicate the level of nutrient availability in relation to soil water activity. While this work is being done outside of scope of this ERAN proposal, it will demonstrate that the method should work as a means to determine radiocesium mobility. Current plans are for Dr. Swallow to travel to Hirosaki University in July 2022 and replicate the method on soils from Fukushima. An additional objective was to determine if it is possible to remove radiocesium from soil by creating Prussian blue colloids in-situ and then removing both the Prussian blue colloids and radiocesium. Work done at Mount Royal University in Canada by Dr. Swallow shows that it is possible to generate Prussian blue colloids in-situ and remove the colloidal components from soil. Yet it is still unknown if there is a corresponding removal of radiocesium. On that end, Dr. Akata has coordinated with Dr. Takeda and Dr. Unno to begin work in Japan. This work is ongoing and will continue with the support provided by ERAN this year.

**2. 論文**

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

氏名：Chen Fei

受入研究者：Hirofumi Tazoe

共同研究者：Quiang Xiong · Lu Zhang

### 1. 成果

In this work, the water samples were collected in 2012 from Ukedo River near Fukushima, and gross-alpha, gross-beta, tritium, and  $\gamma$  radionuclides were determined. The purpose of this work is to estimate whether the samples were still harmful to the environment and human body.

The methods were all the standard methods used in China.

From Table 1, we can see the gross alpha and gross beta activity of all samples were at very low level, most of the samples were below the MDL (minimum detection limit) .

From Table 2, we can find the tritium level of all the samples were at environmental background level.

Besides, 12 radionuclides were measured using  $\gamma$  spectrometer, only Cs-137 was found in R3 , R6-12, R14 at the level of 0.32-1.95 Bq/kg.

At last, it can be concluded the received water samples from Ukedo River were at low levels of radioactivity, resulting in little impact on the environment and human health.

### 2. 論文

1.熊强, 闫琳琳, 陈飞\*, 杨胜园, 杨海兰, 张震. 尿样中  $^{14}\text{C}$  的分析方法[J]. 中华放射医学与防护杂志, 2021, 41(11): 843-846.

2.Linlin Yan,, Xiao Ge, Qiang Xiong, Fei Chen\*, Jing Liang, Zhen Zhang, Shengyuan Yang. Uncertainty evaluation for determination of  $^{14}\text{C}$  in urine samples by wet oxidation method [J]. Radiation Medicine and Protection, 2021, 2(4): 171-175.

## Method development and analysis of refractory radionuclides in seawater samples

氏名：Shan Xing

受入研究者：Hirofumi Tazoe

共同研究者：Xiongxin Dai・Taeko Shinonaga

### 1. 成果

Introduction: Pu isotopes are anthropogenic radionuclides with high radiological toxicity and persistence in the environment. They are considered to be one of the major contributors to the internal dose in people. For the analysis of Pu isotopes at femtogram levels or lower in sparse samples, highly sensitive analytical techniques are required and it is very challenging to obtain reliable Pu data. We are accordingly developing the analytical methods for Pu isotopes.

#### Method

The separation method for Pu isotopes was developed using

- co-precipitation method
- anion exchange and extraction chromatography
- ICP-MS/MS equipped with a high sensitivity sample introduction system

#### Results and Discussion

Ø Comparison of the removal efficiency of U interference at different NH<sub>3</sub> flow rates The results showed that the overall interference from uranium in count rates was reduced by a factor of  $< 2.4 \times 10^{-7}$ , shifting U<sup>+</sup> to U(NH<sub>m</sub>)<sub>n</sub><sup>+</sup> and UH(NH<sub>m</sub>)<sub>n</sub><sup>+</sup> under the combined condition: 0.4 mL/min NH<sub>3</sub> – 6.4 mL/min He.

Ø Effect of collision conditions on Pu detection

The results showed high <sup>239</sup>Pu sensitivity: 13,900 Mcps / (mg/L) due to ion focusing effect of Pu by NH<sub>3</sub> and He in the collision/reaction cell. The optimum parameters of AA, He, NH<sub>3</sub> and KED were 1.6 V, 6.4 mL/min, 0.4 mL/min and -11.2 V, respectively.

The detection limits for the method were estimated to be 0.2 fg for <sup>239</sup>Pu, 0.05 fg for <sup>240</sup>Pu and 0.04 fg for <sup>241</sup>Pu.

Ø Applications

The method was applied to determine ultra-trace Pu isotopes in 1g sediment samples for sediment dating.

The method enables an estimation of  $< 1$  mSv dose in urine samples.

## Acknowledgements

Financial supports from ERAN I-21-19 and NSFC (12175201)

are gratefully acknowledged. References

Y. Wu, Y. Xu, S. Xing\*, et al., 2021, *Spectrochimica Acta Part B*.

Y. Xu\*, C. Li, H. Yu, S. Xing\*, et al., 2021, *Talanta*.

## 2. 論文

[1] Y. Xu, C. Li, H. Yu, et al., Rapid determination of plutonium isotopes in small samples using single anion exchange separation and ICP-MS/MS measurement in NH<sub>3</sub>-He mode for sediment dating. *Talanta* (2021) 123152.

[2] Y. Wu, Y. Xu, S. Xing, et al., Rapid determination of ultra-trace plutonium in large volume of urine samples by tandem quadrupole ICP-MS. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 184 (2021) 106259.

Capacity building for development of nuclear techniques for  
analysis of radionuclides in environmental samples collected from  
Ruppur Nuclear Power Plant (RNPP), Bangladesh

氏名 : M. Safiur Rahman

受入研究者 : Hirofumi Tazoe

共同研究者 : Tasrina Rabiya Choudhury

## 1. 成果

Soil samples were collected from ten sampling points surrounded the Rooppur Nuclear Power Plant to determine the metal concentration like As, Pb, Rb, Sr, Zr, Cu, and Zn. The metals concentrations in soil samples were determined by the Energy Dispersive X-ray Fluorescence (EDXRF) technique. The average metal concentrations in the study area were found in the following descending order: Zr (334.84 mg/kg) > Rb (179.35 mg/kg) > Pb (172.77 mg/kg) > Sr (138.86 mg/kg) > Zn (120.54 mg/kg) > Cu (16.96 mg/kg) > As (8.50 mg/kg) respectively. Moreover, the sampling sites were organized according to the total metal concentration as S7 > S3 > S4 > S5 > S11 > S2 > S9 > S1 > S10 > S8 > S12 > S6 respectively. This study showed that the average concentration of As, Sr, and Cu surpassed the suggested standard and average shale value (ASV) limits. In this study, the identification of the soil quality associated with the ecological and human health risk was evaluated using some important indices. The geoaccumulation index (I<sub>geo</sub>) deliberated that most of the sites were not contaminated except for S3 and S7, which were classified as strong contamination and strong to extreme contamination. The enrichment factor (EF) revealed that three sampling points of S3, S4, and S7 were enriched with Pb, which was consistent with the contamination factor (CF) suggested that the study area was contaminated by only Pb and Zn. It might happen due to excess battery rechargeable vehicles in the study area. However, this study revealed that the pollution load index (PLI) for most of the sampling points was lower than 1 (PLI < 1) suggesting good soil quality in the study area. The finding of PLI was similar to the potential ecological risk assessment, which signified that the study area was not in a harmful situation as it did not surpass the limit of 100. Subsequently, the assessment of human health risk suggested that both adults and children would not be exposed to the non-carcinogenic and carcinogenic risks as these remained under the corresponded threshold limits (1 and 10<sup>-6</sup> to 10<sup>-4</sup> respectively). However, this study suggests an action plan for the continuation of further investigation for monitoring the soil quality change due to the nuclear power plant's present ongoing construction work and future operation in the study area

## 2. 論文

Multipotential Trace Metal Concentrations in Soil Associated with the Ecological and Human Health Risk near the Rooppur Nuclear Power Plant, Pabna, Bangladesh

M. Safiur Rahman · M. Mahtab Ali Mollah · M. Rakib - uz - Zaman · Yeasmin N. Jolly · Shirin Akhter · M. Jamiul Kabir · Hirofumi Tazoe · Sayed M. A. Salam

Water, Air, & Soil Pollution volume 232, Article number: 474 (2021)

<https://doi.org/10.1007/s11270-021-05418-3>

**Assessment of natural radioactivity and radiological health impact  
on paleontologists and workers in dinosaur fossil excavation  
sites containing with high-background radiation**

氏名 : Siritorn Buranurak

受入研究者 : Shinji Tokonami · Kranrod Chutima

## 1. 成果

In 2021, the project entitled “Assessment of natural radioactivity and radiological health impact on paleontologists and workers in dinosaur fossil excavation sites containing high-background radiation” received a great opportunity to be granted by the ERAN FY2021. It is the collaborative project between the IREM-HiroDai and the Physics-KKU, aiming to 1) quantify the natural radioactivity in fossil excavation sites and 2) assess the radiological risks caused by inhalation of radon-thoron gases and their progenies. The idea of this project was inspired by the exploratory report informing that the Korat plateau (i.e., where is considered the largest sandstone-type uranium resource in Thailand) has geologically similar to the Colorado Plateau of the United States, where radioactive fossils had been discovered. Even though the exploration of radioactive materials has been previously reported in some areas of Thailand, the study focusing on the assessment of radioactivity in fossil excavation sites and quantification of radioactivity concentration in dinosaur fossil bones has never been presented. For this study, the USB-Inspector (S.E International, Inc., USA) was used to demonstrate radioactivity levels over dinosaur excavation sites. Optically Stimulated Luminescence Dosimeters (OSLDs) were used for seasonal monitoring of gross-gamma radiation, while CR-39 plastic nuclear track detectors were used to monitor radioactive gas to estimate lung cancer risks preliminarily. The overall gamma radiation obtained from both excavation sites was in the range of 0.036 – 0.220  $\mu$ Sv/h and was found to be consistent with the seasonal gamma doses observed by the OSLDs, while seasonal radon gas concentration was in the range of 3.06 – 74.01 Bq/m<sup>3</sup>. Although the radon levels measured from both sites were found to be less than 148 Bq/m<sup>3</sup> of the maximum level allowed by the IAEA standards, some principle safety plans are recommended for safety reasons – for example, using a working-time limit to reduce radiation exposure, using a face shield or mask to prevent radioactive dust from getting into the respiratory system, and improving an airflow system to dissipate the radon concentration.

## 2. 論文

I-21-22

## High-resolution reconstruction of sediment and radiocesium source contributions in a lake draining the main Fukushima radioactive pollution plume

氏名 : EVRARD Olivier

受入研究者 : Seiji Hayashi · Hideki Tsuji · Yoshifumi Wakiyama

共同研究者 : Anthony FOUCHER · Irène LEFEVRE

### 1. 成果

In 2021, because of the travel restrictions due to the covid-19 pandemic, fieldwork in Japan was not possible for the French partners. As an alternative output, the full database of radionuclide activities measured in sediment lag deposits collected along rivers draining the main radioactive plume of Fukushima Prefecture was published in full open access and presented in a specifically dedicated data paper (also available in open access): Evrard, O., Chartin, C., Lacey, J.P., Onda, Y., Wakiyama, Y., Nakao, A., Cerdan, O., Lepage, H., Jaegler, H., Vandromme, R., Lefèvre, I., Bonté, P. (2021). Radioactive dose rates and fallout radionuclide activities in sediment deposits along rivers draining the main Fukushima plume, Japan. PANGAEA, <https://doi.pangaea.de/10.1594/PANGAEA.928594> Evrard, O., Chartin, C., Lacey, J. P., Onda, Y., Wakiyama, Y., Nakao, A., ... & Bonté, P. (2021). Radionuclide contamination in flood sediment deposits in the coastal rivers draining the main radioactive pollution plume of Fukushima Prefecture, Japan (2011–2020). *Earth System Science Data*, 13(6), 2555-2560. In addition, two sediment cores were kindly collected in June 2021 (in midstream and downstream positions) by the Japanese partners from NIES in the Mano Dam Reservoir, in Fukushima Prefecture, and sent for analysis to France (because of the border control procedures, the sediment cores arrived in France in September 2021). The analyses led by Thomas Chalaux, a PhD student who started his thesis in October 2021, included fallout radionuclides by gamma spectrometry, XRF core scanner, elemental XRF (to calibrate the relative signals obtained with the XRF core scanner), laser granulometry, visible colorimetry, Carbon/Nitrogen total contents and stable isotopes (d13C and d15N). Currently, a very high resolution sediment source tracing technique based on the high resolution XRF records is being developed to investigate the changes in sediment source contributions before and after the 2011 accident and the impact of decontamination on source changes. Preliminary results confirm that the entire period between 2011 and 2021 is covered by the sediment archives, which will allow to reach the objectives.

## 2. 論文

Evrard, O., Chartin, C., Laceby, J.P., Onda, Y., Wakiyama, Y., Nakao, A., Cerdan, O., Lepage, H., Jaegler, H., Vandromme, R., Lefèvre, I., Bonté, P. (2021). Radioactive dose rates and fallout radionuclide activities in sediment deposits along rivers draining the main Fukushima plume, Japan. PANGAEA, <https://doi.pangaea.de/10.1594/PANGAEA.928594>

Evrard, O., Chartin, C., Laceby, J. P., Onda, Y., Wakiyama, Y., Nakao, A., ... & Bonté, P. (2021). Radionuclide contamination in flood sediment deposits in the coastal rivers draining the main radioactive pollution plume of Fukushima Prefecture, Japan (2011–2020). *Earth System Science Data*, 13(6), 2555-2560.

## Characteristics of radioisotope fingerprints of forest soils in Changbai Mountain, Northeast China

氏名：Liu Zhiyong

受入研究者：Jian Zheng

共同研究者：Li Zhihong · Han Xiaoxiao

### 1. 成果

$^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{Np}$  and  $^{241}\text{Am}$  in soils and sediments in the Northeast China were analyzed by sector magnetic field electromagnetic inductively coupled plasma mass spectrometry (SF-ICP-MS, ELEMENT 2), and  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  were analyzed by anti-Compton  $\gamma$ -ray spectrometer. Interestingly, the activity of these radionuclides in different soils and sediments varies greatly. In the surface samples, the  $^{239+240}\text{Pu}$  activity in Zhalong Wetland (2.09-10.84 Bq/kg) was higher than that of other sample types (0.05-2.32 Bq/kg),  $^{137}\text{Cs}$  also showed high activity in wetlands. The highest  $^{237}\text{Np}$  activity (2.93 mBq/kg) appeared in lake sediments, and the highest  $^{241}\text{Am}$  activity (1.48 Bq/kg) appeared in river sediments. The inventories of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ , and  $^{241}\text{Am}$  in Zhalong Wetland were 823.9-2468.7, 0.110-0.785, 57.2-1286.7, and 310.9-443.5 Bq/m<sup>2</sup>, respectively, which is very rare in the environment, much higher than other soils. In addition, the convective-dispersion equation model was used to exhibit the convection/dispersion phenomenon of radionuclides in different soils, and it was found that the dispersion process of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  is dominant, while the convection process of  $^{237}\text{Np}$  is dominant.  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atomic ratio showed that the source of  $^{239+240}\text{Pu}$  in Northeast China is mainly global fallout. However, the  $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$  atomic ratio and  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  activity ratio varied widely, mainly because non-isotopic deposition rates vary. This work revealed the background value and source of artificial radionuclides in sediment core in Zhalong Wetland and Chagan Lake, soil core in paddy fields sediment and dry fields soil, surface sediment samples in lakes, rivers, and reservoirs, and surface soil in forest in Northeast China, clarified the differences in the enrichment of radionuclides in the wetland system, and further proposed the importance of studying the distribution pattern and environmental behavior of radionuclides in different environments such as wetlands.

### 2. 論文

I-21-24

## Simultaneous determination of $^{237}\text{Np}$ and Pu isotopes in seawater by SF-ICP-MS with a single column chromatographic separation

氏名 : Shaoming Pan

受入研究者 : Jian Zheng

共同研究者 : Shuai Zhang

### 1. 成果

FY2021 ERAN Final Report (I-21-24) Simultaneous determination of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes in seawater by SF-ICP-MS with a single column chromatographic separation Shaoming Pan (Nanjing Univ. China), Shuai Zhang (Nanjing Univ. China), Jian Zheng (QST)  $^{237}\text{Np}$  is a potential geochemical tracer since it has a similar behavior to  $^{137}\text{Cs}$  in the marine environment and a long half-life ( $2.14 \times 10^6$  y). This project aims to develop a new method for simultaneous analysis of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes in small volume seawater by SF-ICP-MS.  $\text{Fe}(\text{OH})_2$  co-precipitation was used for the preconcentration of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes from 15L seawater sample, and  $\text{CaF}_2/\text{LaF}_3$  co-precipitation and two anion exchange AG MP-1M resin column chromatographic were used to remove the matrix and to separate and purify target radionuclides. Following the optimization of the redox system, the concentration efficiency (%) of  $^{237}\text{Np}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  were  $99.1 \pm 1.0$  (n=3) and  $97.8 \pm 2.2$  (n=3), respectively, in the  $\text{Fe}(\text{OH})_2$  co-precipitation procedure. 20mL conc. HBr with small amount of HF (0.1M) can recover both Pu ( $0.860 \pm 0.002$ , n = 3) and Np ( $0.915 \pm 0.019$ , n = 3) efficiently from two AG MP-1M resins, which indicate that  $^{242}\text{Pu}$  can be used as yield tracer for the simultaneous determination of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes. The high U decontamination of 4.2 or 3.5  $\times 10^6$  was achieved, which made the U interference negligible. This method to effective detection of ultra-trace level  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes in seawater. Further experiments will be performed to validate and evaluate the method by analyzing the standard reference material IAEA-443. Meanwhile, a paper entitled "Vertical distribution characteristics of Pu isotopes,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{237}\text{Np}$  in sediments of Lake Xingkai and their response to catchment environmental changes" has been submitted for publication. And another paper entitled "Method development for rapid analysis of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes in small volume seawater (15L) by SF-ICP-MS" is in preparation.

### 2. 論文

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

氏名 : Wang Zheng  
受入研究者 : Jian Zheng

## 1. 成果

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 two sediment cores from the Southern Ocean near the Ross Island, Antarctica. Ocean plays a critical role in the global mercury (Hg) cycling, due to the in-situ formation of neurotoxic methylmercury (MeHg) in seawater and its bioaccumulation in marine food web, but the source and transformation of Hg in ocean are not fully understood. We measured Hg concentrations and stable isotopes in two deep-sea sediment cores (SX-09 and SX-10) in the North Ross Sea to investigate the source of Hg to the Southern Ocean and the impact of the glacial-interglacial climate change on marine Hg cycling. Sedimentary Hg isotope data suggests significant changes in Hg sources with time. In SX-10, atmospheric deposition via long-range transport was the dominant Hg source before the Last Glacial Maximum (LGM), as evidenced by slightly positive mass independent fractionation (MIF,  $\Delta^{199}\text{Hg}$  and  $\Delta^{200}\text{Hg}$ ) and negative mass dependent fractionation (MDF,  $\delta^{202}\text{Hg}$ ), which is similar to those of modern open-ocean sediments. In contrast, the SX-09 core shows

strongly negative  $\Delta 199\text{Hg}$  but positive  $\Delta 200\text{Hg}$  before LGM, which are similar to the Hg isotope signatures of Antarctic snow. We suggest that the SX-09 core was dominated by Hg input from glacial materials transported from the Antarctic icesheet during the expansion of glacial. However, after LGM,  $\Delta 199\text{Hg}$  and  $\Delta 200\text{Hg}$  in both cores shifted consistently towards zero together with increases of Hg concentration and  $\delta 202\text{Hg}$ , which may have recorded enhanced volcanic Hg emission (near-zero MIF) and terrigenous input (negative MIF) from Antarctica due to the retreat of glacial. Our results show that Hg isotopes in the Southern Ocean can record the historical Hg cycling and its responses to climate changes. In the year of 2022 we expect to publish the above results as 2-3 papers.

## 2. 論文

1. Zheng W, Zhao Y Q, Sun R Y, et al. The mechanism of mercury stable isotope fractionation: a review (in Chinese). *Bull Mineral Petrol Geochemistry*, 2021, 40: 1087-1110+998
2. Zheng W, Chandan P, Steffen A, et al. Mercury stable isotopes reveal the sources and transformations of atmospheric Hg in the high Arctic. *Applied Geochemistry*, 2021, 131: 105002.
3. Zhang Y M, Zheng W, Yuan S L, et al. Analysis of specie-specific isotopic compositions of mercury in sedimentary rocks based on the thermo-desorption technique (in Chinese). *Earth and Environment*, 2022, DOI:10.14050/j.cnki.1672-9250.2022.50.052

I-21-26

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

氏名 : Hai Wang

受入研究者 : Jian Zheng

共同研究者 : Renjuan Liu

### 1. 成果

Studies on the distribution and migration characteristics of Np and Pu in typical karst environment Groundwater in karst aquifers constitutes about 25% of drinking water sources globally. Soils on karst landscapes are typically thin, patchy and extremely fragile. It has been observed that the widespread existence of metal binding and transport by natural organic matter (NOM) in karst drip waters. The distribution and transfer of  $^{237}\text{Np}$  and Pu isotopes in the karst environment remains largely unknown. The radioactivity of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in soils and lake sediment from Hunan province were investigated. The  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratio were  $0.177 \pm 0.003$  in surface soil and  $0.182 \pm 0.011$  in lake sediment and were consistent with the characteristic value of global fallout. Vertical distributions of  $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  indicated the migration velocity was  $\text{Am} \approx \text{Pu} > \text{Cs}$ . Future studies will continue the investigation the regional distribution, vertical distribution profile and migration mechanism of  $^{237}\text{Np}$  and Pu and aim to provide technical support for environmental impact assessment in karst areas during nuclear emergency response.

### 2. 論文

Distributions of fallout  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in a soil core from South China

I-21-27

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

氏名：Wu MEN

受入研究者：Jian Zheng

共同研究者：Fenfen WANG

## 1. 成果

$^{135}\text{Cs}$  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, I filed to find a partner to complete the remaining experiments in China. So the remaining part of the experiments is at a standstill. I hope to complete it once the epidemic is over.      Keywords:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ , seawater, analytical method, ICP-MS

## 2. 論文

no

放射能環境動態・影響評価  
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

FY2021 FINAL REPORT

【拠点間/Within ERAN 共同研究】

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	所属
E-21-01	恩田裕一	CRiED	新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響	高田兵衛 脇山義史	IER IER
E-21-02	加藤弘亮	CRiED	森林源頭部における表流水への溶存態セシウム137の流出経路の推定	新里忠史	JAEA
E-21-03	坂口 綾	CRiED	高マトリクス試料中の極微量放射性核種測定法確立	Jian Zheng	QST
E-21-04	高橋純子	CRiED	福島県山木屋地区における除染後のダイズ連作地と非耕作地の土壤理化学性の比較	脇山義史	IER
E-21-05	山崎 信哉	CRiED	銀電極を用いた定電位電解におけるヨウ素の同位体分別	平尾 茂一	IER
E-21-06	脇山 義史	IER	阿武隈川および新田川における出水時の129I動態	笹 公和 松村万寿美 松中哲也 平尾茂一	CRiED 筑波大学 金沢大学 IER
E-21-07	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	CRiED
E-21-08	赤田 尚史	IREM	液体シンチレーションカウンターを用いたトリチウム分析のためのカクテル剤の検討	田副博文 桑田 遥 藤原健壮 寺島元基 平尾茂一	IREM IREM JAEA JAEA JAEA
E-21-09	田副 博文	IREM	ICP質量分析計を用いた緊急時における水質中のSr-90分析	高貝 慶隆	IER
E-21-10	細田 正洋	IREM	大気中放射性物質の連続モニタリングに資する基礎研究	平尾茂一 床次眞司 赤田尚史 玉熊佑紀	IER IREM IREM IREM

## 新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響

氏名：恩田 裕一

共同研究者：高田 兵衛・脇山 義史

### 1. 成果

福島原発事故により拡散した $^{137}\text{Cs}$ の挙動を調査するには、懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ を追跡すること、すなわち河川内の浮遊砂移行を調査することが重要である。また、 $^{137}\text{Cs}$ フラックスは降水や雪解けによる出水時に増大することから、出水時における浮遊砂移行の挙動を調査する必要がある。そこで、新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響を調査するために Laser In-Situ Scattering and Transmissometry (LISST) Streamside Sequoia Scientific, Inc. Seattle, WA, USA を用いて、時系列の粒度組成調査を行った。その結果、出水に SS が粗粒化する傾向をもたらすことが多く、セシウムのフラックスについて粒度組成を基に、再計算が可能となった。またその粒度分布を基に、海洋での溶脱率についてもより高精度で評価が可能となった。

### 2. 論文

なし

## 森林源頭部における表流水への溶存態セシウム 137 の流出経路の推定

氏名：加藤 弘亮

共同研究者：新里 忠史

### 1. 成果

河川流域の上流部に位置する森林域は、河川水中の溶存態放射性セシウムの供給源になり得る。しかし、従来の Kd 吸脱着モデルでは、河川水中の溶存態放射性セシウムの季節変動や出水時の濃度変動を再現できない等の課題が残っている。

森林源頭部から水系に流出する放射性セシウムは、森林斜面土層内の地下水や土壌水の混合と、河道の堆積有機物からの溶出が混合して形成される。先行研究では、堆積有機物からの溶出の影響を現地観測や室内実験で調査した事例があるが、森林斜面土層内の飽和帯（浅い地下水）の流出の影響に着目した研究はない。そこで本研究では、森林源頭部での詳細な水文観測により、斜面土層からの地下水水流出が表流水の溶存態放射性セシウム濃度の変動に及ぼす影響を解明することを目的として実施した。

調査方法として、帰宅困難区域に位置する福島県浪江町の森林流域を調査対象流域とした。調査対象流域の流域面積は 0.002 km<sup>2</sup> で、流域の平均 137Cs 沈着量は 4700 kBq/m<sup>2</sup> である。調査対象流域において、湧水、表流水、土壌浸透水、及び斜面土層内の飽和帯地下水を定期的に採水した。土壌浸透水はゼロテンションライシメータを用いて採取した。飽和地下水は斜面に設置した井戸及びピエゾメータ内の水を採取した。採水した水試料は 0.45 μm のメンブレンフィルターで濾過した。フィルターで濾過した水試料をマリネリ容器に封入し、ゲルマニウム γ 線検出器を用いて 137Cs 濃度を定量した。なお、本研究では、フィルター通過水に含まれる 137Cs を溶存態の放射性セシウムと定義した。

水試料の採水のほかに、調査対象流域の 2 地点に量水堰と自記水位計を設置して表流水の流量変化を観測した。ピエゾメータは斜面測線上の 4 カ所に設置し、各地点で 4 深度のピエゾ水位を自記水位計を用いて記録することで、平水時及び出水時の斜面土層内の地下水ポテンシャルの変化を推定した。

調査観測結果から、平水時に調査対象流域から流出する表流水の溶存態 137Cs 濃度は概ね 0.1~0.4 Bq/L であった。流水の溶存態 137Cs 濃度は水温により変動する傾向が認められた。また、水温が 10 度変動した場合の溶存態 137Cs 濃度の変動率 (D10 値) は 2018 年から 2021 年の間に徐々に低下する傾向が認められた。一方、土壌浸透水の溶存態 137Cs 濃度はリター通過水で 5~6 Bq/L 程度、リター・土層通過水で 2~3 Bq/L であった。斜面土層内の地下水は 0.1~2.4 Bq/L と、表流水と比べて比較的高い溶存態 137Cs 濃度を示すことが分かった。

降雨-流出時には、流量のピークに先立って表流水の溶存態 137Cs 濃度が上昇することが確認された。表流水の溶存態 137Cs 濃度の変動は、表流水の流量よりも地下水位の変動と対

応していたことから、平水時と出水時の斜面土層内の地下水ポテンシャルの分布からその流動方向を推定した。その結果、平水時には斜面飽和帯の地下水が深部に向かって流動するが、出水時には地下水位の上昇とともに、斜面土層から河道に向かって流動していることが明らかになった。これらの観測結果から、森林斜面の浅い地下水は比較的高い溶存態  $^{137}\text{Cs}$  を有し、出水時には斜面飽和帯の地下水が流出することで表流水の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇に寄与していることが示唆された。

## 2. 論文

## 高マトリクス試料中の極微量放射性核種測定法確立

氏名：坂口 綾

共同研究者：Jian Zheng

### 1. 成果

宇宙素粒子観測装置であるスーパーカミオカンデ(SK)タンク内の超純水に硫酸ガドリニウム( $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$ )を溶解させることで、超新星背景ニュートリノの観測を目指す SK-Gd プロジェクトが進行している。硫酸ガドリニウム中には天然の極微量放射性核種が含まれており、妨害シグナルの要因となることからいくつかの核種において濃度の上限値が定められている。この核種の一つであるラジウム-226( $^{226}Ra$ ,  $T_{1/2}=1600$  年; 上限値  $0.5$  mBq/kg-  $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$ )は既に  $\gamma$  線測定による定量法が確立されている<sup>1)</sup>。しかしこの方法では、極低バックグラウンド環境で約 1 週間の測定時間を必要とするため、SK タンクに導入する約 100 トンの硫酸ガドリニウム全バッチ中の  $^{226}Ra$  を測定するには環境的制約と時間的コストが必要となる。そこで本研究では硫酸ガドリニウム中の  $^{226}Ra$  を質量分析法(ICP-MS)で迅速に測定することを目的として、ICP-MS の高感度化と硫酸ガドリニウムからの  $^{226}Ra$  の抽出・濃縮について検討した。

<ICP-MS 高感度化> プラズマへの試料導入効率向上およびプラズマ中における元素のイオン化効率向上による高感度化を目指し、①試料溶液の脱溶媒を行いドライエアロゾルとして試料をプラズマに導入、②プラズマを発生させるトーチの内径を変更( $2.5$  mm→ $2$  mm)した。更に、試料分析部へのイオン透過効率向上を目的とし、差動排気部の高真空化を図った。また、単位時間当たりの試料導入量に対する感度上昇を目指し、ネブライザーの種類についても検討した。それぞれの条件における装置設定条件の最適化を自作のチューニング溶液で行い、最終的な ICP-MS の感度による  $^{226}Ra$  の定量下限から、必要な硫酸ガドリニウムの量を見積もった。

< $^{226}Ra$  抽出・濃縮> 硝酸系溶液中での Ra 吸着選択制の高い樹脂(AnaLig Ra-01)の利用にあたり、濃度の異なる硝酸に硫酸ガドリニウムを飽和量溶解し、それぞれの溶解度を求めることで最適な硝酸濃度と  $^{226}Ra$  測定に必要な最小試料溶液量を見積もった。先行研究<sup>2)</sup>で Ra の回収率トレーサーとして用いられていた Ba の放射性核種( $^{133}Ba$ )を用い、カラムに充填する樹脂量や通液する溶液の流速等の最適化を行った。また、樹脂に吸着した Ra を質量分析のために回収する方法として  $0.03$  mol/L の EDTA による溶離と濃硝酸+過酸化水素による樹脂分解を試みた。

<ICP-MS 高感度化> 導入試料の脱溶媒化や試料導入速度の検討、トーチのインジェクター一径の決定、高真空化により、最終的な感度は一般的な ICP-MS の約 30 倍に上昇した。この時の  $^{226}Ra$  の定量下限値は  $0.48$  ppq であった。

< $^{226}Ra$  抽出・濃縮> 硫酸ガドリニウムは  $2$  mol/L 硝酸に対して最も溶解性が高く(約

10%)、ICP-MS の感度から  $^{226}\text{Ra}$  測定に必要な溶液量は約 350 mL と計算された。吸着実験に要する時間、吸着率、回収率と、回収溶液を ICP-MS で測定する際のマトリクス効果を考慮した結果、使用する樹脂量 0.75 mL、流速約 5 mL/min で 500 mL の試料溶液を通過し、濃硝酸+過酸化水素による樹脂分解で Ra を回収する方法が現段階で最も効率よく Ra を抽出・濃縮する方法と判断した。この条件における  $^{133}\text{Ba}$  の吸着率は  $89.7 \pm 0.4\%$ 、吸着した Ba の回収率は 85.4 %であった。今後は更なる回収率の向上を目指し改善を行っていくとともに、SK-Gd に導入する硫酸ガドリニウム中の  $^{226}\text{Ra}$  定量を行う。

【参考文献】 1) S. Ito, et al. Prog. Theor. Exp. Phys 2020, 7. ; 2) S. Ito, et al. Prog. Theor. Exp. Phys 2018, 6.

## 2. 論文

## 福島県山木屋地区における除染後のダイズ連作地と非耕作地の 土壌理化学性の比較

氏名：高橋 純子  
共同研究者：脇山 義史

### 1. 成果

土壌侵食による Cs-137 流出に関するモニタリングとして、事故直後より福島県川俣町山木屋地区を中心に USLE プロットによる観測が行われてきた。2011 年 7 月から 2014 年 7 月まで、さらに除染作業を挟み、2014 年 12 月から 2020 年 12 月まで山木屋地区内の畑地で継続された調査によって、除染前の未耕作畑では、時間とともに流出する土砂中の Cs-137 濃度が減少し、さらに除染によって、流出する土砂中の Cs-137 濃度は一桁程度減少し、その後は明確な時間変化は認められないことが明らかにされた。さらに、土砂侵食量に関しても、除染前後で比較すると除染後の方が単位侵食力あたりの土砂流出量が低下している傾向にある。本共同研究では、モニタリングの終了にあたり、USLE プロット内で土壌断面調査を実施し、除染前後の耕作地・未耕作地における土壌の理化学性（三相分布、飽和透水係数、粒径組成、粒径別 Cs-137 濃度等）の測定を行い、これまでの結果を補完する情報を提供することを目的とした。

Cs-137 濃度の深度分布に関しては、除染前は深さに伴い指数関数的に減少していたが、除染後は 20cm 深度までほぼ均一の濃度となった。特に、最表層 0-1cm の濃度は除染により約 2% (45 Bq/g から 0.96 Bq/g) にまで減少していた。除染後の Cs-137 存在量も約 100 kBq/m<sup>2</sup> であり、除染前の約 4 分の 1 であった。

土壌の理化学性に関しては、本地点は除染前から造成された土地であり、A 層の発達はやや弱い傾向にあった。除染前は気相率が 2.7% と低く、飽和透水係数も  $2.9 \times 10^{-4}$  cm/秒 と低い傾向にあったが、除染により物理性が改善され（気相率 33~38%）、飽和透水係数も上昇していることが示された ( $2.1-3.4 \times 10^{-3}$  cm/秒)。また、除染によりレキ・粗砂画分が増加しており、除染前はレキ+粗砂の重量割合が 20.8% だったのに対し、除染後は 38.1% であった。湿式篩別および沈降法により有機物分解後の土壌を 2 mm 以上、0.5-2 mm、0.2-0.5 mm、0.063-0.2 mm、0.020-0.063 mm、0.002-0.020 mm、0.002 mm 以下の 7 つに分画し、それぞれの画分中の Cs-137 濃度を測定したところ、除染前・除染後ともに細粒なほど Cs-137 濃度が高い傾向が認められた。とくに、除染前の比表面積  $S(\text{m}^2/\text{g})$  と Cs-137 濃度  $C(\text{Bq}/\text{kg})$  の関係は  $C=15164S^{0.61}$  と非常に高い精度で近似され、He and Walling (1996) がイギリス南西部の土壌で示した係数 0.65 と近い値であった。一方、除染によってクリーンかつ粒径の粗い粒子が投入されたことを反映し、除染後の比表面積と Cs-137 濃度の関係は  $C=723S^{0.90}$  と変化していることが明らかとなった。

### 2. 論文

## 銀電極を用いた定電位電解におけるヨウ素の同位体分別の検討

氏名：山崎 信哉

共同研究者：平尾 茂一

### 1. 成果

#### 【序論】

放射性ヨウ素は再処理施設や原発事故などにより環境中に放出される。ヨウ素-131 は半減期の短さから被ばく影響の観点で重要である一方、減衰が早いため事故直後などに測定しなければならない。一方でヨウ素-129 は半減期が長いため長期におけるモニタリングが容易であるが、化学状態別の定量に至っていない研究が多い。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及びその変化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、環境レベルの濃度では放射線計測が困難であり、質量分析 (加速器質量分析 AMS、誘導結合プラズマ質量分析 ICP-MS) を用いた測定が試みられている。これらの質量分析を行うために、溶媒抽出法などを用いた前処理が行われている。しかし、この方法では全ヨウ素をヨウ化物イオンに変換して回収するため、化学状態別定量ができない。そこで、本研究では放射性ヨウ素の存在状態の解明を行うこと目的として、電気化学的手法によるヨウ素の回収法の構築を試みた。本課題ではヨウ化物イオンを対象として銀電極表面へのヨウ化物イオンの濃集挙動について検討した。

#### 【実験】

NaI 検出器によるヨウ素-125 の回収率を求めるため、ヨウ素 125-I を 3-3000 Bq/10mL となるように調製し、測定を行った。

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。10 ppb ヨウ素-127 溶液 (pH 7.0) について +0.20V で定電位電解 (CPE) を最大 60 分間行った後、リニアスイープボルタンメトリー (LSSV) をにより還元電流を測定した。さらに、ヨウ素-125 の回収率を求めるため 300 Bq/ 10 mL とするよう 10 ppb ヨウ素-127 溶液に加えた。この溶液について 0.2 V で CPE を 30-180 分間行い、測定後の溶液について NaI で放射能測定を行った。

#### 【結果】

NaI の検出効率はおおよそ 40%と求まった。また、放射能濃度が 10 Bq/ 10 mL を下回ると検出効率の誤差が大きくなったため、この濃度を今回の条件における検出限界とした。

ヨウ素-125 の溶液について CPE の時間を変えて電極への回収率を求めた結果、おおよそ 30 分で一定となった。この結果はヨウ素-127 における回収率の時間依存性と同様の傾向を示

した。また、ヨウ素-125の回収率は80%程度であり完全に回収はできなかった。これはヨウ素の濃度が電気化学反応に寄与するためと考えられる。このことからヨウ素-127の濃度とヨウ素-125の回収率との相関を今後検討する必要がある。また、時間を変えてCPEを行ったときのヨウ素-125とヨウ素-127の回収率には直線関係が成り立った。このことから今回の実験条件下では、CPE時の同位体分別は起こらないと結論づけられた。今後は、上記の検討を行ったうえで環境試料に適用してヨウ素を回収するための条件について検討する。

## 2. 論文

Shinya Yamasaki, Hikaru Saito, Tsukasa Nakamura, Kazuya Morooka, Keisuke Sueki, Satoshi Utsunomiya, Gravitational separation of  $^{137}\text{Cs}$  contaminated soil in Fukushima environment: Density dependence of  $^{137}\text{Cs}$  activity and application to volume reduction. *Journal of Environmental Radioactivity*, 246, 106846, 10 pages, 2022.

Shinya Yamasaki, Satoshi Utsunomiya, A review of efforts for volume reduction of contaminated soil in the ten years after the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 59(2), 135-147, 2022.

## 阿武隈川および新田川における出水時の 129I 動態

氏名：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. 成果

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。申請者らは 2019 年度、2020 年度に阿武隈川で採取した水試料について分析を行い、137Cs に比べて、129I は溶存態として流出する割合が高いことなどを示した。これらの結果に基づいて、European Geoscience Union General Assembly 2021 および日本地球惑星科学連合大会 2021 において発表を行なった。昨年度まで分析対象とした阿武隈川中流では 129I の沈着量が相対的に低かったことから、2021 年度は、浜通り地域の 129I の沈着量が高い新田川で採取した試料を分析対象として阿武隈川を対象とした分析結果との比較を行った。分析対象としたのは 2016 年 8 月 16～17 日の出水イベント時に新田川下流の原町地点で採取した水試料である。採取地点における集水面積は 206 km<sup>2</sup>、平均 129I 沈着量は 0.093 Bq m<sup>-2</sup> であった。水試料をろ過して得た浮遊土砂およびろ液試料について、昨年度までと同様の方法で、前処理を行い、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。溶存態 129I 濃度の平均値は  $1.8 \times 10^{-4}$  mBq L<sup>-1</sup> (n=4)、懸濁物質の 129I 濃度の平均値は  $4.1 \times 10^{-3}$  Bq kg<sup>-1</sup> (n=4) であり、見かけの分配係数 K<sub>d</sub> の平均値は  $2.2 \times 10^4$  L Bq<sup>-1</sup> であった。129I/127I 比の平均値は、溶存態では  $5.6 \times 10^{-9}$ 、懸濁物質で  $28 \times 10^{-9}$  であり、懸濁物質で高かった。129I の流出量は  $2.5 \times 10^4$  Bq であり、流域内の総 129I 沈着量の 0.13% に相当した。これらの値を阿武隈川 2018 年 10 月の出水イベントで採取された試料の分析結果と比べると、溶存態 129I 濃度の平均値は 2.3 倍高い値であり、流域平均 129I 沈着量の比 (新田川：阿武隈川 = 2.6 : 1) と同程度であった。このことから、溶存態 129I 濃度が、流域の 129I 沈着量に応じて高くなることが示唆される。一方で、懸濁物質の 129I 濃度は新田川で 9.4 倍高い値であり、前述の 129I 沈着量の比を大きく上回っていた。また、見かけの分配係数の平均値が阿武隈川では 103 L kg<sup>-1</sup> のオーダーであったのに対して、新田川では 104 L kg<sup>-1</sup> のオーダーにあったこととも符合する。これらの結果からは、新田川では 129I が懸濁態として移行しやすいことが示唆される。その原因としては、両流域における 129I 沈着量の違い、土地利用構成や面積といった特性の違い、あるいは対象としたイベントの降雨規模の違いが反映された可能性が考えられる。今後の継続的な試料分析により、河川に通じた 129I 動態の支配要因を明らかにしていきたい。

### 2. 論文

## 河川から海洋への放射性セシウムの寄与と挙動の解析

氏名：高田 兵衛

共同研究者：青山 道夫

### 1. 成果

はじめに

東電福島第一原発事故発生から 10 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のみならず、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がある。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

2019～2021 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。一方、海水においても河川河口付近の漁港においては、溶存態放射性セシウム濃度が 20 Bq/m<sup>3</sup> を超えるような値が確認され、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。また、河川中の粒子態放射性セシウムのうち、イオン交換態および有機態のセシウムの割合求めたところ、河川ではイオン交換態の割合が海水に比べ高く、一方、有機態セシウムの割合は共に数%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. 論文

## 液体シンチレーションカウンターを用いたトリチウム分析のための カクテル剤の検討

氏名：赤田 尚史

共同研究者：田副 博文・桑田 遥・藤原 健壯・寺島 元基・平尾 茂一

### 1. 成果

#### 背景

低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターは低濃度トリチウムを測定する際に広く利用されている。測定の際には水試料とシンチレーションカクテル剤を混合するのが一般的である。しかし、欧州地域で制定された化学物質の総合的な登録・評価・認可・制限の制度である REACH 規則により、その多くが製造中止になる可能性がある。そのため、継続的に利用可能な代替シンチレーションカクテルを使用することが望まれる。本研究では代替シンチレーションカクテル剤を決定するために、継続的に利用可能な Gold Star LT<sup>2</sup>と、国内で現在使用されている Ultima Gold LLT、Insta-Gel Plus、Ecocint Ultra の3つのシンチレーションカクテル剤を用いた性能の比較試験を行った。

#### 方法

性能評価ではそれぞれのシンチレーションカクテル剤につき10本の異なる混合比の標準溶液を用意し、液体シンチレーションカウンター(LSC-LB5)で400分測定を行った。そして、得られた結果を基にクエンチングの補正曲線を作成し、シンチレーションカクテル剤の性能を評価するための値である FOM 値(Figure of merit)を求め、それぞれのシンチレーションカクテル剤の最適な混合比、計数効率、バックグラウンドカウントの比較を行った。

#### 結果

比較試験を行った結果、Gold Star LT<sup>2</sup>は Ultima Gold LLT と同程度の高い計数効率を示し、バックグラウンドカウント値も低かった。しかし、試料とカクテル剤の混合比において試料量が50%を超えてしまうと試料が分離してしまうため、試料調製の際には試料量を50%以下にすることが必要である。また、Gold Star LT<sup>2</sup>は Ecocint Ultra 及び Insta-Gel Plus より低いバックグラウンドカウント及び高い計数効率を示した。そのため、Gold Star LT<sup>2</sup>は環境試料中のトリチウムの濃度を測定するうえで、今後継続的に利用できる代替シンチレータとして有効であることを確認した。

### 2. 論文

Haruka Kuwata, Hirofumi Tazoe, Chutima Kranrod, Kenso Fujiwara, Motoki Terashima, Makoto Matsueda, Shigekazu Hirao, Naofumi Akata (2022) PERFORMANCE EVALUATION OF COMMERCIAL SCINTILLATION COCKTAILS FOR LOW-LEVEL TRITIUM COUNTING by HIGH-CAPACITY LIQUID SCINTILLATION COUNTER, Radiation Protection Dosimetry, accepted.

## ICP 質量分析計を用いた緊急時における水質中の Sr-90 分析

氏名：田副 博文

共同研究者：高貝 慶隆

### 1. 成果

Research has been conducted to speed up and simplify the  $^{90}\text{Sr}$  analysis method in water samples based on the importance of Sr-90 measurement for environmental monitoring in the event of a radiological incident. To optimize the measurement with ICP-MS, which enables rapid analysis, we examined the pre-treatment conditions when cation exchange resin chromatography and Sr Resin solid-phase extraction were used. Sr was quantitatively recovered by cation exchange resin from 1 L synthetic water samples, and anionic components such as Ge and Se were efficiently removed. In addition, under the elution condition using 3 M  $\text{HNO}_3$ , it is possible to suppress the elution of Zr with a small volume of eluent. The eluate from cation exchange chromatography can be used for successive solid-phase extraction of Sr-Resin directly, which provides further Sr purification and concentration sufficient for Sr-90 determination by ICP-MS. Verification was performed on real samples including high hardness bottled water. We confirmed that the results of the synthetic sample analysis were reproduced, and that Sr was quantitatively recovered (96-100%) and coexisting elements were removed sufficiently so as not to interfere with the measurement of Sr-90. Sr-90 was concentrated by a factor of 100 during chemical separation procedure without any evaporation step. Processing time for more than 10 samples was 3 hours, which is fast enough for emergency response in the case of radiological incident.

### 2. 論文

H. Tazoe, Y. Tomisaka, N. Akata, B. Russell, P. Ivanov, M. Hosoda, S. Tokonami, Rapid Chemical Separation Protocol for Optimized  $^{90}\text{Sr}$  Determination by ICP-MS in Water Samples for Radiological Incident. *Radiation Environment and Medicine* 11(1) 7-15 2022

## 大気中放射性物質の連続モニタリングに資する基礎研究

氏名：細田 正洋

共同研究者：平尾 茂一・床次 眞司・赤田 尚史・玉熊 佑紀

### 1. 成果

福島第一原子力発電所事故後 10 年以上が経過し、人工放射性核種濃度が減少したことにより住民に対する事故起源の放射性核種による被ばく線量評価には天然放射性核種の影響を定量的に評価することが重要になってきた。自然界には原発事故以前よりラドンをはじめとする天然放射性核種が存在しており、その変動を正確に評価することは人工放射性核種の高い測定精度での測定につながると考えられる。日本分析センターの調査により我が国の大気中のラドン濃度の平均値は約 5 Bq/m<sup>3</sup> 程度あることが明らかとなった(Oikawa et al J. Environ. Radioact. 2003)。つまり、大気中ラドン濃度の変動を捉えるためには、より検出下限値が低いラドンモニタが必要である。現在、検出下限値が 0.5 Bq/m<sup>3</sup> 程度のラドンモニタが市販されており、これまでも大気中ラドンの連続観測に用いられてきた(Iida et al Environ. Int. 1996)。このラドンモニタは大気中ラドンの捕集に静電捕集法が用いられているが、この手法の欠点として大気中の湿度の影響を受けて測定値が過小評価されることである。そこで、連続測定を実施する際には、十酸化四リン(P<sub>4</sub>O<sub>10</sub>)のような吸湿剤を介して測定器内に乾燥 空気を取り入れる必要があった。しかし、十酸化四リンは吸湿により液体となるため、長期間の測定を実施する場合その管理が問題となる。そこで、本研究では大気中ラドンの連続観測に用いられる静電捕集型ラドンモニタの湿度特性を明らかにするとともに、十酸化四リンの代わりに硫酸カルシウム(Drierite)を使用した場合の除湿効果について検討した。本研究で用いた静電補集型ラドンモニタの捕集容器の容積は 16.8 L であり、正に帯電しているラドンの子孫核種である Po-218 を捕集電極へ収集するための -3000V の印加電圧がかけられる。Po-218 からの  $\alpha$  線の検出には 1700 mm<sup>2</sup> のプレーナシリコン半導体検出器が用いられている。静電補集型ラドンモニタを Drierite を介して弘前大学被ばく医療総合研究所のラドン曝露場に接続した。その際、直列に接続する Drierite の本数を 1 本から 3 本まで変化させた。ラドン濃度の基準値はラドン曝露場内に設置されている電離箱式ラドンモニタ (AlphaGUARD) で得られた値とした。AlphaGUARD で得られたラドン濃度に対する静電補集型ラドンモニタで得られたラドン濃度の比は、相対湿度の増加に伴い減少傾向を示した。さらに、Drierite の本数が 1 本、2 本及び 3 本としたときのラドン濃度の比はそれぞれ  $0.94 \pm 0.07$ 、 $0.97 \pm 0.04$  及び  $0.95 \pm 0.04$  であり、Drierite の本数には依存しなかった。また、静電捕集型ラドンモニタで測定されるラドン濃度は 4 時間程度の遅れがあることが明らかとなったが、応答の遅れは乾燥剤の数に依存しなかった。今後は、静電捕集型ラドンモニタを用いて大気中ラドンの連続測定を開始し、そのベースラインデータと変動幅に関する情報を蓄積するとともに、大気汚染物質などの大気輸送に関するトレーサ利用の可能性についても検討を進める計画である。

### 2. 論文 なし