

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)	氏名	NGUYEN THANH HAI
学位授与の要件	学位規則第 4 条第①・2 項該当		
論文題目			
Properties of the Soil in Rice Fields and Transfer of Cesium to Rice Plants (水田土壌の性質とセシウムの米への移行)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	中島 覚 (自然科学研究支援開発センター)	
審査委員	教 授	水田 勉	
審査委員	教 授	井上 克也	
審査委員	教 授	石坂 昌司	
〔論文審査の要旨〕			
<p>2011 年 3 月に発生した東京電力福島第一原子力発電所(FDNPP)の事故では、環境中に大量の放射性物質が放出された。この放射性物質は環境中を移行しながら生物にも取り込まれ、外部被ばく、内部被ばくの原因となる。特にコメは、日本やアジアの国々の主食であるため、放射性セシウムの水田中の移動を知り、さらにコメへの移行を明らかにすることは、放射線災害復興を推進するフェニックスリーダー育成プログラムにとって重要な研究課題であり、放射化学が貢献できるところである。</p> <p>2013 年度、日本放射線安全管理学会では福島市の近接する 4 枚の水田（上流から順番に A,B,C,D とする）を調査し、その中の 1 枚の田（B の田）で収穫されたコメで比較的高い放射性セシウムが検出された。水田中にカリウムが多いと汚染米の発現が抑制されることはすでに分かっていた。しかしながら、この相関から外れる場合があることも知られていた。水田土壌の粒径も放射性セシウムのコメへの移行に影響を及ぼすことが理解されつつあった。そこで本研究は近接する上記 4 枚の水田の土壌の性質を明らかにすることを目的とした。さらに、4 枚の田のうち、2 枚の田は 2015 年以降休耕したので、休耕の効果が残り 2 枚の田に及ぼす影響についても明らかにすることとした。</p> <p>まず標準線源を用いて様々な試料の厚さでの Ge 半導体検出器の検出効率曲線を作成し、測定結果から正確に放射能が算出されるようにした。γ線スペクトルの 605 keV 及び 662 keV のピークよりそれぞれ ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能を算出した。^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能濃度の関係をサンプリング時に減衰補正した。FDNPP 事故時の ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能濃度比は 1:1 であることが分かっているので、両核種の半減期を考慮した強度比を比較することにより、正しく測定できていることを確認した。</p> <p>2014 年に 4 枚の田の各 5 点で土壌と稲穂のサンプリングを行い、放射能測定を行った。2013 年の日本放射線安全管理学会の調査と同様に、B の田の表面付近の土壌の放射性セシウムの濃度は他の田に比べて低く、^{40}K 濃度も低いことが分かった。そして、B の田の稲穂からのみ放射性セシウムがわずかに観測されることが分かった。これらの水田土壌の放射能の深度依存性を評価したところ、前年に田を鋤いているにもかかわらず、均一ではなく、表面付近で放射性セシウム濃度が高いことが分かった。これは田を鋤いた後でも放射</p>			

性セシウム含量の高い粒径が小さな成分はゆっくりと沈降するためであると考えた。それぞれの田の ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{40}K の深度分布を調べると、A, B の田では、粒径の小さな成分が少ないことは別の研究で分かっていたが、 ^{137}Cs , ^{134}Cs は C, D の田に比べて深くまで浸透していることが分かり、田の土壌の性質の違いが分かった。

2015 年以降は A, B の田は休耕されたが、2015 年以降もすべての田の調査を行った。2014 年までは C, D の田の稲穂での ^{137}Cs , ^{134}Cs はほぼ検出限界以下であった。しかしながら、2015 年の調査では、C, D の田の水が入ってくる地点の稲穂の ^{137}Cs , ^{134}Cs 濃度が少し高くなることが分かった。これは、粒径の小さな成分が水の流入により移動し、その地点の粒径分布が変化し、粒径の比較的大きな成分の割合が増加したためであると考えた。休耕するまでは、この流出分が A, B の田から畔を超えて補充されていたと推測した。このように休耕の効果が示唆された。

次に田の土壌の性質をさらに明らかにするために土壌に含まれる鉄をプローブとして土壌の酸化的/還元的環境を調査した。 ^{57}Fe メスバウアースペクトルを測定すると、Fe(II), Fe(III), 磁性成分が観測された。磁性成分は大部分がヘマタイトであったが、マグネタイトと考えられる成分がわずかに観測されることがあった。特に、Fe(II), Fe(III)の面積強度に着目すると、B の田では他の田に比べて Fe(II)の割合が小さく、B の田は他の田に比べて酸化的であると考えられた。B の田では他の田に比べて粒径の大きな成分が比較的多く、大きな粒間に閉じこめられた酸素により酸化的になると推測された。また酸化的な雰囲気では系中の K が溶出しにくくなり、K と競争的なセシウムが溶け出し、稲穂へ移行しやすくなったものと推測した。

2014 年に採取した土壌を $75\mu\text{m}$, $250\mu\text{m}$, $850\mu\text{m}$ のふるいを使って粒径ごとに分類した。それぞれの粒径で ^{57}Fe メスバウアースペクトルを測定した。その強度を比較するために、使用するサンプル量は同じにし、測定ジオメトリーも同じにした。そのためスペクトルの強度は鉄の含有量に比例することになる。そしてその吸収強度は $75\mu\text{m}$ 未満の土壌で強く、粒径が大きくなると強度が弱くなり、この順番で鉄の含有量が下がってくることが分かった。これらの ^{57}Fe メスバウアースペクトルを A, B, C, D の田で比較した。吸収強度は $75\mu\text{m}$ 未満の土壌では A, B, C, D の田で違いが認められなかったが、 $850\mu\text{m}$ 以上の粒径のスペクトルで違いがみられた。即ち、A, B の田では C, D の田に比べてスペクトルの強度が強く $850\mu\text{m}$ 以上の粒径の土壌の鉄の含有量が高いことが分かった。これより土壌中の鉄が放射性セシウムの溶出に影響を及ぼすことが推測された。

2018 年に採取した土壌についても $75\mu\text{m}$, $250\mu\text{m}$, $850\mu\text{m}$ のふるいを使って粒径ごとに分類し、 ^{57}Fe メスバウアースペクトルを測定した。吸収強度の違いがより顕著になり、これも休耕の効果と考えられた。

土壌の粒径の違いが放射性セシウムの深度分布に影響を及ぼすこと、そして土壌の酸化的/還元的な雰囲気にも影響を及ぼし、放射性セシウムのコメへの移行のしやすさが変わることが分かった。さらに休耕の効果に反映されるような特に小さな粒径の土壌のダイナミクスもコメへの移行に影響を及ぼすことが考えられた。

以上、審査の結果、本論文の著者は博士（理学）の学位を授与される十分な資格があるものと認める。

公表論文

1. Nguyen, H. T., Tsujimoto M., Miyashita, S., and Nakashima, S., Depth Distribution of Radioactive Caesium in Soil after Cultivating and the Difference by the Year of the Uptake of Radioactive Caesium in Rice in Fukushima Prefecture after the Nuclear Accident, *Radioisotopes*, **68**, 13–18 (2019).
2. Nguyen, H. T., Tsujimoto M., and Nakashima, S., Study on Paddy Soil in Fukushima Using Mössbauer Spectroscopy, *Hyperfine Interactions*, **240**, 122 (2019).

参考論文

1. Tsujimoto, M., Miyashita, S., Nguyen, H. T., and Nakashima, S., A correlation between the transfer factor of radioactive cesium from soil into rice plants and the grain size distribution of paddy soil in Fukushima, *Radiation Safety Management*, **15**, 1–8 (2016).