

除染にともなう土壤中微量元素の損失

矢永誠人¹、後藤祥子²、世良耕一郎³

¹ 静岡大学大学院理学研究科化学専攻
422-8529 静岡市駿河区大谷 836

² 日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

³ 岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

1 はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方北太平洋沖地震及びその後の津波により、東京電力福島第一原子力発電所は冷却機能を失い、その結果、多量の核分裂生成物である放射性物質が自然環境中に放出された。現在、公共施設や住宅、住宅近辺の山林など人の居住地域、生活拠点を中心とした除染活動が進められているが、外部被ばくの防止にかかる空間線量率の低減化や食生活にともなう内部被ばくの防止、そして風評被害を根絶するための有効な住環境や田畑からの放射性物質の除去は、今なお我が国の喫緊の課題であると言える。ここで、田畑については、農作業に携わる者の被ばく線量の低下や農作物への放射性物質の移行防止のために反転耕や天地返しなどが行われているが、これは本質的な除染とは異なる。しかしながら、もし、汚染土をそのまま除去するならば、その量は膨大なものとなり、とてもそれを保管管理する場所を確保することはできない。そこで、セシウム-137などの特定の核種をターゲットにした除染が期待される。しかしながら、特に化学的手法を用いて除染を行った場合には、その作業にともなって作物あるいはヒトにとって必須な微量元素が放射性物質とともに失われる可能性が高い。そこで本研究では、化学的手法による除染作業が田畑の土壤中の生体微量元素濃度に与える影響を調べることにした。

2 実験

2.1 模擬試料の作製

50 mLの遠心管5本のそれぞれに市販の黒ボク土を5gずつ入れた。次に、40 mLの純水、1M KNO₃、1MKI、2M KIまたは0.1M HNO₃を加え、25℃で一昼夜振盪した。それぞれについて遠心分離・静置の後、上澄みを取り除いた。残った土壌について、40 mLの純水を用いた攪拌・洗浄、遠心分離・静置、上澄みの除去を5回繰り返した後、105℃で8時間乾燥したものを模擬除染土壌試料とした。

2. 2 PIXE分析

上記の各模擬除染土壌試料に、内部標準として Pd = 10,000ppm となるようにパラジウムカーボンを加え、メノウ乳鉢内でホモジナイズした。その 1 mg を 4 μm 厚の Prolene 膜上に乗せ、少量の 1% コロジオン溶液で固定し、ターゲットとした。同一の試料からそれぞれ 3 個のターゲットを作成した。

日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンターの小型サイクロトロン（島津製作所 MCY-1750）により加速された 2.9 MeV の陽子ビームをターゲットに照射した。発生した X 線を、低エネルギーの X 線を吸収させる 500 μm 厚の Mylar 膜を装着した検出器および計数率を調整するためのコリメータを装着した検出器、計 2 台の Si(Li) 半導体検出器を用いて検出した。また、Fe が多く含まれていたため、この妨害を防ぐための特殊吸収体を装着しての測定も行った。

3 結果および考察

3. 1 標準試料についての分析結果

本研究では、定量精度および確度について検討するために日本地質調査所（現：産総研 地質調査総合センター）で調製された標準土壌試料 JSO-1（黒ボク土）についての分析も行った。標準土壌 2 分画について試料調製を行い、それぞれから 3 個ずつのターゲットを作成して分析した。各分画についての分析値の平均（定量値）と標準偏差を文献値²⁾に対する比として図 1 に示した。

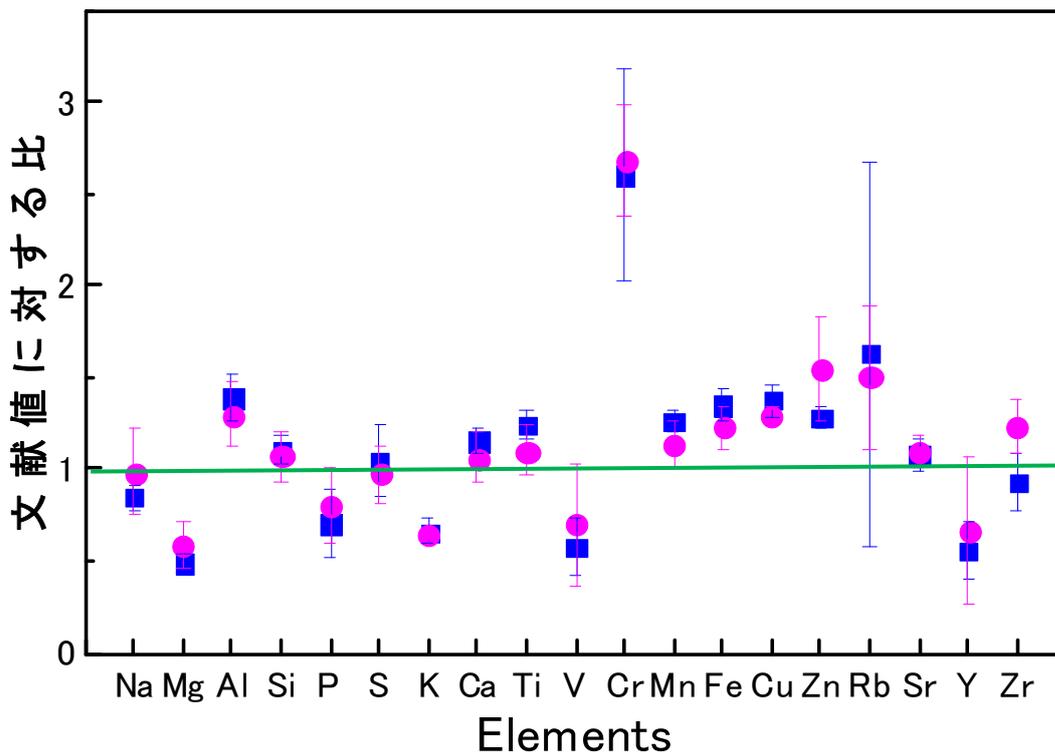


図 1 標準土壌 JSO-1 の文献値と定量値との比較

図 1 に見られるように、本研究での定量値は概ね文献値と一致している。しかしながら、含有量、イベント数が少なくばらつきの大きい V、Cr、Rb、Y は文献値との解離が特段の規則性もなく大きくなっ

ていた。その一方で、統計は充分と思われる Mg および K の定量値は、文献値と比べて低値を示していた。特に低エネルギー領域では自己吸収によりマイナスの誤差が生じる可能性が考えられるが、この 2 元素の周辺の元素についてはそのような傾向は認められない。JSO-1 の標準試料としての定量値（保証値）がまだ確定されていないことを考慮すると、本研究での定量値（Mg: $6250 \pm 700\text{ppm}$, $7440 \pm 1630\text{ppm}$, K: $2080 \pm 210\text{ppm}$, $2020 \pm 30\text{ppm}$ ）の方が真の値に近い可能性が高いとも言えよう。

3. 2 模擬除染試料についての分析結果

市販の黒ボク土に対して模擬汚染処理を行った試料についての分析結果を、濃度の高い元素のグループを図 2 に、濃度の低い元素のグループを図 3 に示した。それぞれ、平均値（定量値）と標準偏差を示す。模擬除染処理を行った土壌中に含まれる元素のうち、本研究で定量できたほぼ全ての元素について、模擬除染処理を行っていない試料（無処理 1 および無処理 2）と比較して濃度が低下する傾向、すなわち、除染処理による損失は認められなかった。しかしながら、微量元素としては比較的濃度が高い Mn については、1M ヨウ化カリウム水溶液で処理したものおよび 2M ヨウ化カリウム水溶液で処理したものの両者について、その濃度が有意に低下していた。この Mn に認められた傾向は、別に行った機器中性子放射化分析法による分析でも同様であった。

Mn 濃度の低下、すなわち模擬除染処理に伴う Mn 損失の原因については、カリウムイオンまたはヨウ化物イオンの影響を考えるのが自然なことであるが、1M 硝酸カリウム水溶液で処理したものについては Mn の損失が認められないことから、ヨウ化物イオンの影響と考えることができる。このヨウ化物イオンと黒土ボク中の Mn との関係については、今後の検討課題である。

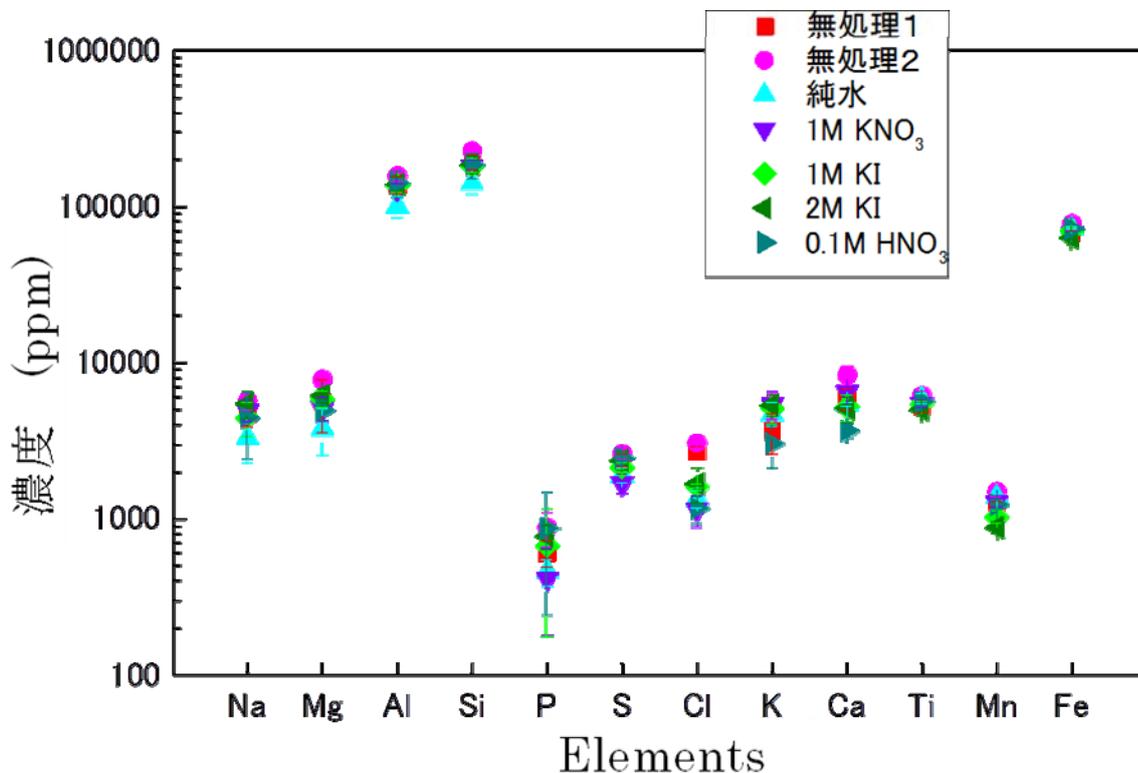


図 2 黒ボク土についての分析結果 1 (高濃度グループ元素)

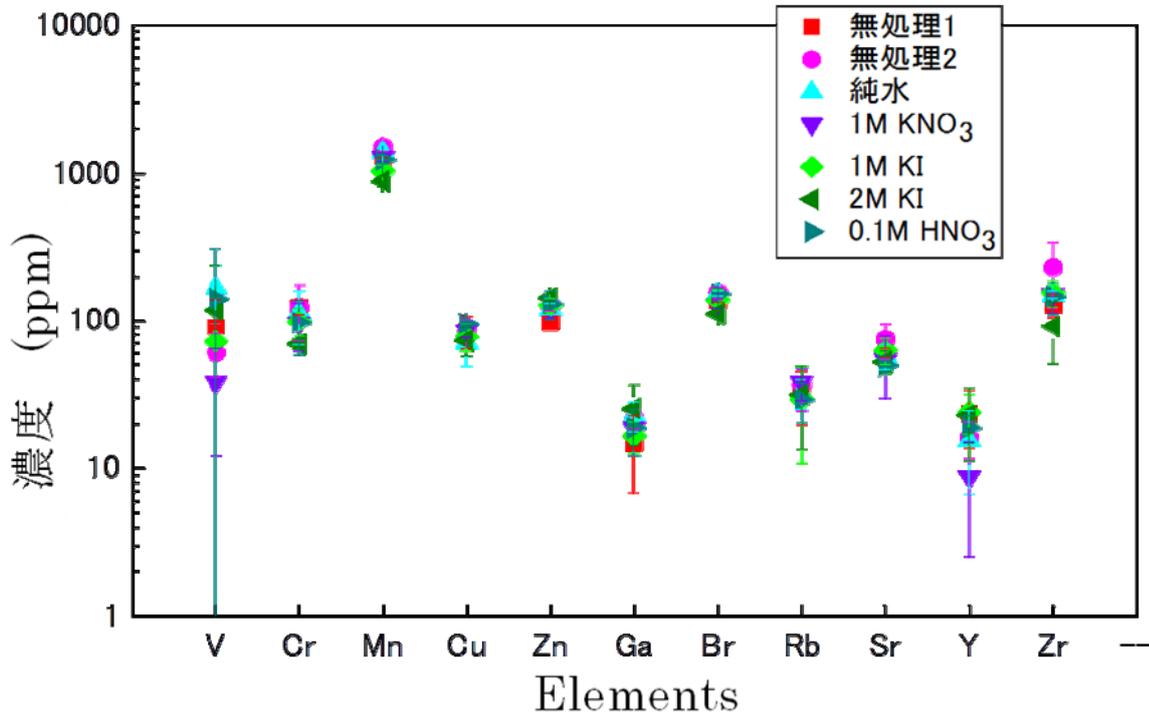


図3 黒ボク土についての分析結果2 (低濃度グループ元素)

参考文献

- 1) K. Sera and S. Futatsugawa (1995) "Effects of X-ray Absorbers Designed for Some Samples in PIXE Analyses", *International Journal of PIXE*, 5, 181-193.
- 2) S. Terashima, N. Imai, M. Taniguchi, T. Okai and A. Nishimura (2002) "Preparation and preliminary characterisation of four new GSJ geochemical reference materials: soils, JSO-1 and JSO-2 soil; and marine sediments, JMS-1 and JMS-2", *Geostandards Newsletter*, 26, 85-94.

Decontamination and loss of trace elements in soil

M. Yanaga¹, S. Goto² and K. Sera³

¹Department of Chemistry, Graduate School of Science, Shizuoka University
836 Ohya, Suruga-ku, Shizuoka 422-8529, Japan

²Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

³Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

A large quantity of radioisotopes was released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in March 2011. As a result, decontamination of radioactive materials in the soil became a pressing issue. However, if contaminated soil is merely removed, the quantity of radioactive wastes will become enormous, and it will be impossible to find places to keep all the wastes. Therefore, it is very important that only radioactive materials (mainly radioactive cesium) adhering to soil is separated, so that the quantity of radioactive waste is reduced. However, not only radioactive cesium in soil but also essential trace elements may be removed when chemical decontamination methods are adopted. Therefore, in the present work, concentrations of trace elements in soil after simulated decontamination processing were determined in order to examine whether trace elements are lost or not.

Five grams of commercially obtained *Kuroboku* soil (andosol, a crumbly black topsoil) were placed into five centrifuge tubes. Then, 40 mL of pure water, 1M KNO₃, 1M KI, 2M KI, or 0.1 M HNO₃ were added and the mixture was stirred for one day at 25 °C. After centrifugation, each supernatant was removed. Each sample was dried after five times of washing using 40mL of pure water, then, subjected to PIXE analysis.

Manganese concentration in the soil treated with 1 M and 2 M KI solution was lower than that in the other processed. This may indicate that not only the radioactive cesium in contaminated soil but also the essential trace elements will be removed depending on a way of extraction.