

Title	福島県における樹木放射性セシウム汚染とその減衰
Sub Title	Forest contamination by radioactive cesium in Fukushima Prefecture and its attenuation.
Author	母里, 彩子(Mori, Ayako) 島村, 安俊(Shimamura, Yasutoshi) 井上, 浩義(Inoue, Hiroyoshi)
Publisher	慶應義塾大学日吉紀要刊行委員会
Publication year	2014
Jtitle	慶應義塾大学日吉紀要. 自然科学 (The Hiyoshi review of natural science). No.56 (2014. 9) ,p.13- 20
JaLC DOI	
Abstract	Forest contamination by radioactive cesium released by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident that occurred in March 2011 has affected the lives of the residents. In particular, the fallen leaves in forest have been focused as a source of recontamination by a new radioactive cesium to the farmland that has finished decontamination. In this study, with the cooperation of the Fukushima Prefecture Michinoku Adachi agricultural cooperative, the fallen leaves divided into layers close to the surface and the layer close to the surface soil in Nihonmatsu city of Fukushima prefecture were taken in December 2011. The radioactivity of fallen leaves was measured. Further, the radioactivity of (1) the water that washed the leaves, and (2) the water that was filtered after being corrupt at 40 °C were measured. As a result, the elution step of radioactive cesium from the fallen leaves to the water became clear. In addition, we also succeeded in treating the radioactive cesium containing water with Prussian blue drilling woven.
Notes	原著論文
Genre	Departmental Bulletin Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=AN10079809-20140930-0013

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the Keio Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

福島県における樹木放射性セシウム汚染とその減衰

母里彩子*・島村安俊**・井上浩義**,#

Forest Contamination by Radioactive Cesium in Fukushima Prefecture and Its Attenuation.

Ayako MORI, Yasutoshi SHIMAMURA and Hiroyoshi INOUE

Summary—Forest contamination by radioactive cesium released by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident that occurred in March 2011 has affected the lives of the residents. In particular, the fallen leaves in forest have been focused as a source of recontamination by a new radioactive cesium to the farmland that has finished decontamination. In this study, with the cooperation of the Fukushima Prefecture Michinoku Adachi agricultural cooperative, the fallen leaves divided into layers close to the surface and the layer close to the surface soil in Nihonmatsu city of Fukushima prefecture were taken in December 2011. The radioactivity of fallen leaves was measured. Further, the radioactivity of (1) the water that washed the leaves, and (2) the water that was filtered after being corrupt at 40 °C were measured. As a result, the elution step of radioactive cesium from the fallen leaves to the water became clear. In addition, we also succeeded in treating the radioactive cesium containing water with Prussian blue drilling woven.

Key Word: fallen leaves, wasing water, corruption, Fukushima dai-ichi nuclear power plant accident, radioactive cesium

1. 諸言

2011年3月に発生した福島第一原発事故で放出された放射性物質は、沸騰した薬缶から蒸

* 慶應義塾大学医学部薬理学教室 (〒160-8582 東京都新宿区信濃町35番地) : Department of Pharmacology, Keio University School of Medicine, 35, Shinanomachi, Shinjuku, Tokyo 160-8582, Japan. E-mail: ayamori@a5.keio.jp

** 慶應義塾大学医学部化学教室 (〒223-8521 神奈川県横浜市港北区日吉4-1-1) : Department of Chemistry, Keio University School of Medicine, 4-1-1, Hiyoshi, Kohoku, Yokohama, Kanagawa 223-8521, Japan. E-mail: hiroin@z5.keio.jp [Received April 3, 2014]

慶應義塾大学医学部 (信濃町キャンパス) 放射線取扱主任者

気が立ち上るように、原子炉から上空に蒸発飛散した量が最も多く、東京電力の試算では 5.2×10^{17} Bq であった。これは原子炉の爆発および空気爆発を防ぐために3回行ったベント（意図的な放出）によってもたらされた。もうひとつは、福島第一原発の冷却水あるいは事故後の溜まり水が海洋に放出されることによる放射性物質の海中拡散である。この漏水による海洋への放出は東京電力の発表によれば、 1.8×10^{16} Bq である。一見すると、海洋への放射性物質の放出は大気中への約 $1/30$ であるが、実際には、上記のように大気中に放出された放射性物質も多くが海洋に降り注いだために、放射性物質の海洋汚染の深刻度は小さくない。

さて、私たち陸上生活者の生活圏へは、放射性物質は空から降ってきた（放射性降下物あるいはフォールアウトと呼ぶ）。このため、今回の福島第一原発事故での放射能汚染は、事故時の風向きにより地域的な偏りが生じている。具体的には、事故当初の西風に乗り太平洋側へ向かっていた放射性物質が、その後北風によって南側に一時的に拡散し、さらに南東風によって福島市側へ流れ、最後に北東の風に乗って福島県中通りを南下したと推定されている。

この福島第一原発事故で放出された放射性物質は数十種類あるが、主なものは3種類である。ひとつは事故直後、東京都金町浄水場でも検出され、水道水の放射能汚染として危惧されたヨウ素 131 である。このヨウ素 131 は半減期が8日であるので、事故後3年以上が経過した今日ではほぼ消滅し、検出されなくなっている。このヨウ素 131 はチェルノブイリ事故時に有意に増加した小児甲状腺がんの原因物質である。他の2種は両方とも放射性セシウムで、セシウム 134 とセシウム 137 の同位体である。この両者はほぼ同量が原子炉から放出されたが、前者は半減期が2年と短く、例えば10年を経ると3%程度に減少するが、後者は半減期が30年と長く、10年を経ても20%程度しか減らない。

福島第一原発からの新たな放射性物質の放出がない現在、市街地、宅地、農地などへの新たな放射性セシウムの供給源として、森林が注目されている。森林における放射性セシウムは、同じアルカリ金属元素ということでカリウムとほぼ同じ動態を示す。すなわち、空から自然落下によって、あるいは雨とともに降下する放射性セシウムは一般的に樹冠の葉にいったん沈着し、降雨による洗い落としや落葉・落枝（リター）とともに林床に移行する。また、樹冠に葉がない場合には林床に直接沈着する¹⁾。この放射性セシウムによる森林汚染は、さらには生活圏の森林除染（林縁部からおおむね20m程度の範囲）が一昨年度から進展していることから、その沢水などへの溶出も問題となっている。著者らは、福島県みちのく安達農協の協力を得て、福島県二本松市の山林の落葉を表土に近い層と表面に近い層に分け、2011年12月に採取し、その放射能を2012年1～4月に測定した。また、①当該落ち葉を洗浄した水、および②当該落葉を40°Cで腐敗させたのち、水を加え濾過した濾過水について放射能を測定した。さらには、これら放射性セシウム除去のためのプルシアンブルー不織布の開発を行い、その効果を検証した。

2. 実験方法

2-1. 落葉サンプル

福島県二本松市の落葉広葉樹林から、2011年12月に堆積落葉の表層（表面より15 cm）および地面接触層（地面より15 cm）を、福島県みちのく安達農協の協力により20 kg採取した。その後、当該各10 kgをブレンダーにより機械的に混和した。この後、100 gを所定の容器に入れ、測定に供した。

2-2. 表面洗浄

採取された落葉サンプルに当該サンプル質量の2倍のイオン交換水を加え、1分間、器械にて転倒混和したのち、濾紙（No. 4C）により濾過することにより洗浄水を採取し、その中から100 gを所定の容器に入れ、測定に供した。

2-3. 落葉腐敗

採取された落葉サンプルと同質量の水を加え、恒温槽（40°C）で120日間保管することにより腐敗させ、濾紙（No. 4C）で濾過した。この後、濾液をさらに10分間、3000 rpmで遠心分離し、上清をデカンテーションにより採取し、その中から100 gを所定の容器に入れ、測定に供した。

2-4. 放射能測定

放射能測定は、ガンマ線についてゲルマニウム半導体式検出器（SEIKO EG&G 株式会社）で36000秒（10時間）測定を行った。測定は、セシウム134およびセシウム137について行った。実験は3サンプルについて行い、それぞれのサンプルは2回ずつ測定し、平均して結果とした。

最後に、すべての放射能を、2012年4月1日の放射能として減衰補正を行って正式な測定値とした。なお、このときに使用した半減期は、セシウム134は2.06年、セシウム137は30.1年とした。

2-5. プルシアンブルー製品吸着試験

(1) プルシアンブルーを練り込んだ不織布（以後、プルシアンブルー不織布という）およびプルシアンブルーを被覆したゼオライト粒子（以後、プルシアンブルー被覆粒子という）は、宇部日東化成株式会社と共同開発したものである（図1）。放射性セシウム含有水重量に対して1重量%のプルシアンブルー不織布をカラムに詰め、上部より接地層落葉から洗浄抽出した放射性セシウム含有水を滴下し、透過液を採取した。

(2) 1と同様の放射性セシウム含有水の重量に対して1重量%のプルシアンブルー被覆ゼオ

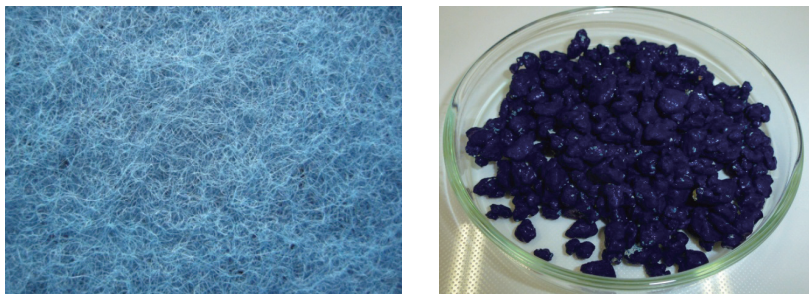


図1. プルシアンブルー不織布 (左) およびプルシアンブルー被覆粒子 (右)

ライト粒子をビーカーに入れ、30分間攪拌した。その後、濾紙 (No. 4C) で濾過したのち、濾液を 3000 rpm で 20 分間遠心分離し、上清を採取した。

(3) 上記 1 および 2 の採取液および当初の接地層落葉から洗浄抽出した放射性セシウム含有水を、ゲルマニウム半導体式検出器 (SEIKO EG&G) で 36000 秒 (10 時間) それぞれについて測定を行った。測定は、セシウム 134 およびセシウム 137 について行った。

(4) 同様の測定を 2 回行い、その平均をとった。

3. 結果および考察

本研究においてサンプリングした福島県二本松市の落葉試料では、堆積落葉の下層 (接地層) の放射能は、表面層の約 10 倍の大きさであった (図 2)。この差については、セシウム 137 とセシウム 134 との間に大きな差はなかった。下層になるほど放射能が高くなることは私たちの研究における他の地点のサンプルでも確認された (データは示さない)。先行する研究でも、落葉に付着した放射性セシウムは、落葉から徐々に溶脱が進み、下方へ進み、最終的に落葉の最下層 (土壌と接している落葉層) に蓄積し、長期間保持される傾向にあることがわかっている²⁾。冷戦時代に原子爆弾・水素爆弾がオープン空間で実験されていたころの森林へのフォールアウト後の蓄積についてわが国で測定された結果がある³⁾。それによると、セシウム 137 とストロンチウム 90 の分布が松林で調査されたが、全沈着量のうちセシウム 137 の約 80%、ストロンチウム 90 の約 63% が深さ 5 cm までの表層土壌に存在していた。これは、日本の土壌では、表層に粘土層や赤土層が存在し、このような細粒土壌は通常陰イオン性を有し、土壌粒子が小さいので表面電荷密度も大きい。このため、この粘土層や赤土層には放射性セシウムが吸着されやすい。条件によっては、分配係数は 1000 を超える場合があると報告されている⁴⁾。

落葉サンプルを純水によって表面洗浄した場合、溶出されたセシウム 137 およびセシウム 134 とともに、表面層落葉では 5% 程度、接地層落葉では 8% 程度と少量であり、単純に落葉表面に放射性セシウムが付着しているのではなく、雨程度では簡単には洗い流されないことが明らかとなった (図 3)。Yoshida らの研究によれば、有機層に蓄積された放射性セシウムは、

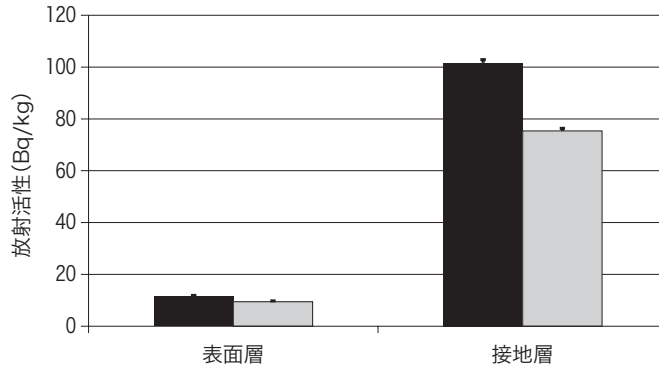


図 2. 表面層（表面から 15 cm）と接地層（地表から 15 cm）の落葉の放射能
左の黒いカラムはセシウム 137 を、右のグレーのカラムはセシウム 134 を示している。

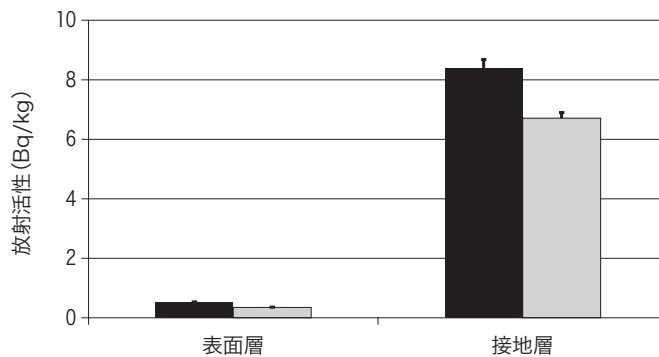


図 3. 表面層と接地層の落葉を純水で洗浄したときの洗浄水の放射能
左の黒いカラムはセシウム 137 を、右のグレーのカラムはセシウム 134 を示している。

森林生態系の栄養塩サイクルに伴うセシウムの循環に乗り、土壌表層および有機層（落葉最下部を含む）の放射性セシウムは植物によって経根吸収されて葉に至り、これが再び落葉あるいはリターして林床に帰ることが確認されている²⁾。このことから、放射性セシウムは葉の表面だけでなく、内部にも栄養として摂り込まれていることは明らかであり、このため本研究において簡単な水洗浄では放射性セシウムが脱離しないのかもしれない。

本研究では、落葉を水とともに 40°C で 120 日間保管し、落葉の腐敗を試みたが、残念ながらこの条件では十分な腐敗は行われなかった。しかし、腐敗により溶出放射性セシウム量が増加したことから（図 4）、落葉の放射性セシウムの多くが、上記に考察したように葉の組織に取り込まれている可能性が示唆された。

現在進んでいる福島県における生活圈除染では、家屋近辺の森林も除染対象に含まれる。その中には、フォールアウトが多く付着していると思われる樹冠の枝打ちと落葉を含む下草の除去が含まれる。これらの除去を行った場合、放射能が高い下層の落葉層が表面露出し、雨など

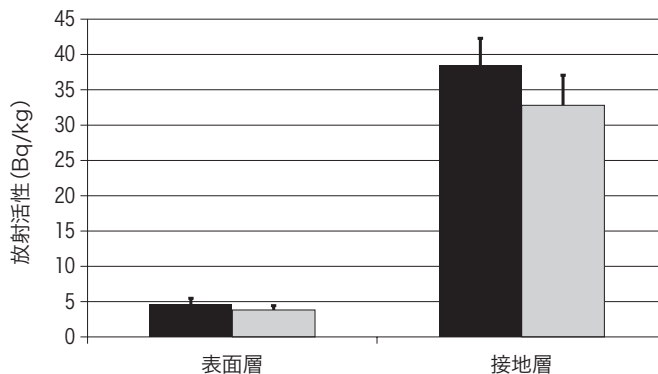


図4. 表面層と接地層の落葉を40°Cで120日間腐敗させたときの漏出水の放射能
左の黒いカラムはセシウム137を、右のグレーのカラムはセシウム134を示している。

により流される可能性がある。その雨水が雨水升あるいは貯水槽に溜まり、かえって生活圏に放射性セシウムを露呈させるという批判もある。このため、落葉層から流れ出る放射性セシウム含有水あるいは升や槽に貯留する汚染土壌の減容化のためにも、放射性セシウムだけを吸着する素材の開発が必要となる。周知のように、今回の福島第一原発事故によって放出された放射性物質は200gにも満たず、体積ではコップ半分にも満たない。つまり、放出された放射性セシウムを100%回収できれば、小型金庫でも保管可能である。

放射性セシウム汚染物の減容のための放射性セシウム吸着剤としてはさまざまなものが開発・研究されており、ここで示すゼオライトやプルシアンブルーのような化合物のほかに細菌や藻類などの微生物が知られている。放射性セシウムを取り込む細菌や藻類は数十種類報告されているが、残念ながら現状では、生育の問題や取り込んだ後の細菌や藻類の回収の問題から実用化されていない。また、これら吸着剤・吸着微生物とは異なり、限外濾過膜(UF)などの膜技術の適用も精力的に検討されているが、後に示すように研究室レベルでの研究では成功しているが、土壌などが混在する環境での適用は現状では困難といわざるをえない。

そのような中で、最も利用が進んでいるのはゼオライトである。ゼオライトの欠点は、放射性セシウムだけを吸着するのではなく、他のアルカリ金属イオンも同じように吸着することである。たとえば、農地にゼオライトを散布すると、放射性セシウムよりも多量に存在するカリウムを吸着してしまう。そのため、農地などにゼオライトを散布すると、カリウムが土壌から消失し、作物の育成に支障が生じる。このため、農地には最初にゼオライトが散布され、その後カリ肥料が散布されている。

私たちは、このゼオライトよりも選択吸着性が高いプルシアンブルー(Prussian Blue)について研究を進めてきた。プルシアンブルーは、ヘキサシアノ鉄(II)酸化カリウム鉄(II)で、化学式は $\text{KFe}[\text{Fe}(\text{CN})_6]_3$ であり、分子量は306.9である。プルシアンブルーはフェロシアン化第2鉄に属し、一般的には青色顔料としてペンキ、インク、クレヨンなど身近なところで使

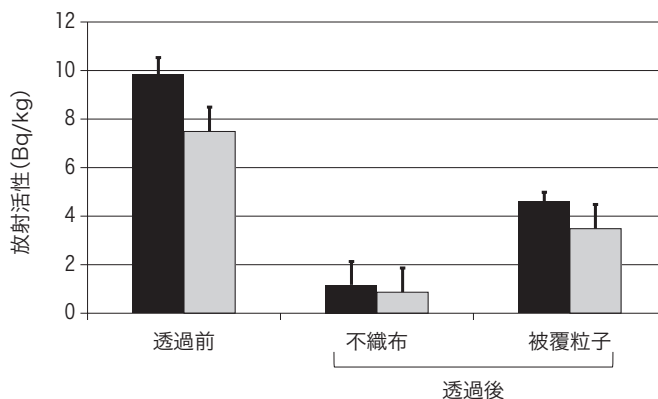


図5. 接地層落葉の洗浄水を用いたプルシアンブルー製品の放射性セシウム吸着特性
不織布はプルシアンブルーを練り込んだ不織布を示し、被覆粒子はゼオライトにプルシアンブルーを被覆した粒子を示す。左の黒いカラムはセシウム 137 を、右のグレーのカラムはセシウム 134 を示している。

用されている。このプルシアンブルーは、セシウムに対する結合選択性が高く、カリウムなどとはほとんど結合しないため、ゼオライトなどに比べて使用する量がかなり少なく済む。また、プルシアンブルーを農地に散布した場合、農作物の実りが多い。これはプルシアンブルーに含まれる鉄や窒素によるものと考えられている。なお、このプルシアンブルーは、わが国では平成 22 年 10 月 27 日に厚生労働省から医薬品として承認されている（承認番号 22200AMX 00966000）。ただし、安易な使用を防ぐために、全例調査の実施が義務づけられている。

接地層落葉洗浄水を用いた吸着実験では、プルシアンブルー不織布を用いた場合には約 88 % の放射性セシウムを除去することができ、プルシアンブルー被覆ゼオライト粒子では、約 53 % の放射性セシウムを除去することができた（図 5）。この結果についてはセシウム 137 とセシウム 134 の間に差は生じなかった。

4. まとめ

福島第一原発事故から 3 年が経過し、浜通りを中心に生活圏の除染作業は順次進行している。また、そのための除染技術も日進月歩の進捗を見せている。現状の除染活動の中心である土壌剥離は、放射性物質を回収し、1カ所に集め、集中管理することを目的としている。これは正しく、理想的である。しかし、今回の福島第一原発事故による放射能汚染は広範かつ大量であり、これを容易に実現させてはくれず、困難が続くことが予想される。とくに、本論文で示した森林汚染については、その蓄積量は膨大であり、すでに森林生態サイクルに入り込んだ放射性セシウムも少なくない。今後は、身近な生活環境の除染に合目的な素材・形状の除染基材を生み出し^{5,6)}、住民の健康不安に対する安全・安心につながるような利用を促すことが望まれる^{7~9)}。

5. 謝辞

本研究の一部は、平成 25～26 年度とうきゅう環境財団助成金 (No. 2013-07 号) および平成 25～27 年度 JSPS 科研費基盤研究 (C) (No. 25350264) の助成を受けました。また、本研究の放射能測定にご協力いただきました慶應義塾大学医学部放射線安全管理室 (信濃町キャンパス) の皆様に御礼を申し上げます。

6. 参考文献

- 1) Schell WR, Linkov I, Myttenaere C, Morel B: A Dynamic Model for Evaluating Radionuclide Distribution in Forests from Nuclear Accidents. *Health Physics*, **70**, 318-335 (1996).
- 2) Yoshida S, Muramatsu Y, Dvornik AM, Zhuchenko TA, Linkov I: Equilibrium of radiocesium with stable cesium within the biological cycle of contaminated forest ecosystems. *J. Environ. Radioact.*, **75**, 301-313 (2004).
- 3) Yamagata N, Matsuda S, Chiba M: Radioecology of Cesium-137 and Strontium-90 in a Forest. *J. Rad. Res.*, **10**, 107-112 (1969).
- 4) 石川奈緒・内田滋夫・田上恵子：放射性セシウムの水田土壌への吸着挙動における粘土鉱物の影響. *Radioisotopes*, **56**(9), 519-528 (2007).
- 5) 井上浩義・母里彩子・久保田真理：放射性物質の除染技術. *HEDORO*, **115**(9), 14-19 (2012).
- 6) 井上浩義：放射性セシウムの中への溶出と吸着剤の開発. *HEDORO*, **116**(1), 19-30 (2013).
- 7) 井上浩義：放射線障害の機構. 日本抗加齢医学会雑誌, **7**(5), 671-675 (2011).
- 8) 母里彩子・井上浩義：低線量放射線と疫学調査. 日本抗加齢医学会雑誌, **7**(5), 682-685 (2011).
- 9) 井上浩義：わが国での今後の放射線教育はどうあるべきか? 薬学雑誌, **134**(2), 163-168 (2014).