

Kyoto University
Research Reactor Institute



Institute of Environmental Radioactivity
at Fukushima University



第4回
京都大学原子炉実験所
原子力安全基盤科学研究シンポジウム

福島への復興に向けての 放射線対策に関する これからの課題

京都大学 原子炉実験所
原子力安全基盤科学研究プロジェクト

シンポジウム報告書

第4回 京都大学原子炉実験所
原子力安全基盤科学研究シンポジウム

福島復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題 報告書

開催日：平成27年5月30日（土）～31日（日）

場所：福島市、パルセいいざか

編集

高橋 千太郎

高橋 知之

塚田 祥文

福谷 哲

佐藤 信浩

仲谷 麻希

ISBN-978-4-9906815-6-2 (書籍) C0053
ISBN-978-4-9906815-7-9 (CD) C0853
ISBN-978-4-9906815-8-6 (from Web) C0853
¥0E

© KUR Research Program for Scientific Basis of Nuclear Safety
京都大学原子炉実験所 原子力安全基盤科学研究プロジェクト

京都大学原子炉実験所
京都大学原子炉実験所 原子力安全基盤科学研究プロジェクト
〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西2丁目

E-mail: anzenkiban@ri.kyoto-u.ac.jp
Tel: 072-451-2432
Fax: 072-451-2639

第4回 京都大学原子炉実験所
原子力安全基盤科学研究シンポジウム
福島への復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題 報告書

開催日：平成27年5月30日（土）～31日（日）

場所：福島市、パルセいいざか

主催

京都大学原子炉実験所

後援

福島大学 環境放射能研究所

福島県

福島県教育委員会

福島市

日本原子力学会

日本放射化学会

日本放射線影響学会

日本保健物理学会

協賛・協力

飯坂温泉観光協会

飯坂温泉旅館協同組合

福島コンベンション協会

福島民友新聞社

福島民報社

組織委員会

委員長	川端 祐司
副委員長	高橋 隆行
副委員長	高橋 千太郎
	稲葉 次郎
	内田 滋夫
	占部 逸正
	斎藤 公明
	酒井 一夫
	中島 健
	百島 則幸
	山澤 弘実
	山名 元
	米田 稔

プログラム委員会

委員長	高橋 知之
副委員長	塚田 祥文
	飯本 武志
	大迫 政浩
	杉浦 紳之
	服部 隆利
	伴 信彦
	福谷 哲
	山西 弘城
	八島 浩
	横山 須美
	吉田 聡

事務局

事務局長	佐藤 信浩
副事務局長	仲谷 麻希
	窪田卓見
	芝原雄司
	中村秀仁

はじめに

平成23年東日本大震災及び東京電力福島第一原子力発電所の事故によって被災された皆様方に謹んでお見舞い申し上げますとともに被災地の1日も早い復興をお祈り申し上げます。

京都大学原子炉実験所では、研究炉を保有している大学附置研究所という特徴を活かし、原子力利用を支える安全基盤科学研究と教育を包括的に進めるための研究教育拠点を形成し、原子炉利用に対する社会的な理解の獲得に資する事業「原子力安全基盤科学研究プロジェクト」を、平成24年から4年間に亘り実施しております。このプロジェクトでは、原子力安全基盤科学研究として、原発事故関連データの検証と集約や、統合原子力安全科学研究に取り組むとともに、人材育成の観点から包括的原子力安全基盤教育に取り組んでおります。

このプロジェクトの一環として、毎年度1回テーマを決め、国際シンポジウムを開催しております。これまで、「東京電力福島第一原子力発電所事故後の環境モニタリングと線量評価」、「福島原子力発電所事故後の核燃料バックエンド問題と核変換技術の役割」、及び、「福島原子力発電所事故後の地震・津波と原子力リスク」をテーマとして、京都大学芝蘭会館において3回のシンポジウム開催し、多くの皆様にご参加いただいて議論を深めることができました。

最終年度となります4回目は、「福島の復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題」をテーマとし、福島市の飯坂温泉にて開催させていただき、2日間で述べ668名方にお越し頂きました。14名の方からの講演と2回のパネルディスカッション、80件のポスターセッションによる研究発表がありました。専門家だけでなく、一般の方にもご参加頂き、講演やパネルディスカッション、ポスターセッション等を通して、福島の復興に向けて今後取り組むべき課題について議論させていただきました。特に2日目のポスターセッションはサイエンスカフェ形式として、これまでに分かったこと、疑問に思っていること、そして将来に向けての課題などについて、専門家と一般の方が一緒に十分に時間をかけて話し合い、大変有意義な時間を過ごさせていただきました。

この報告書はご発表頂いた中から、福島の復興へ向けての研究を取り纏めたものです。

これらの活動が、福島のさらなる復興への一助になれば幸いです。そして、一日も早く福島が復興し、これまで以上に魅力ある福島となることを祈念いたします。

京都大学原子炉実験所 所長
組織委員会委員長

川端 祐司

Content

Part 1 除染・廃棄物

除染すべき場所の同定、除染の実施、分別、輸送、処理処分等

- 1 粘土鉱物に吸着したセシウムのNMR 構造解析
徳田陽明、法川勇太郎、正井博和、上田義勝、二瓶直登、藤村恵人、小野勇治 1
- 2 マイクロバブル処理を施したケイ酸ナトリウム洗剤によるセシウムの減容化について
上田義勝、徳田陽明、後藤裕 4
- 3 低濃度放射性セシウム汚染水の浄化システム
横田かほり、新井志緒、小川秀樹、中村立子、吉田博久 7
- 4 2011 年に採取した福島環境試料中の放射性セシウムの同位体比
窪田卓見、芝原雄司、太田朋子、福谷哲、藤井俊行、高宮幸一、水野哲、山名元 11
- 5 福島県下で採取した環境試料中のセシウム・ストロンチウム分析への質量分析法の適用性の検討
芝原雄司、窪田卓見、福谷哲、藤井俊行、高宮幸一、太田朋子、柴田知之、芳川雅子、紺野慎行、水野哲、山名元 15
- 6 福島県林業研究センターにおける幹材部からの放射性セシウム除去の試み
小川秀樹、伊藤博久、村上香、横田かほり、新井志緒、吉田博久 18
- 7 森林廃棄物の安全な燃焼処理システム
吉田博久、小川秀樹、新井志緒、横田かほり、伊芸滋光、中村立子 22

Part 2 環境放射線・外部被ばく評価

外部被ばく線量の測定・評価、将来予測、低減化等

- 1 CZT 検出器を用いた高線量率地域における in-situ 環境放射能測定
古渡意彦、窪田卓見、芝原雄司、藤井俊行、高宮幸一、水野哲、山名元 26
- 2 サーベイメータ等を用いた環境中における空間線量率測定の課題
津田修一、斎藤公明 30

Part 3 環境放射能・内部被ばく評価

環境中移行、農畜水産物、吸収抑制、内部被ばく線量推定等

- 1 **ダイズの放射性セシウム吸収に及ぼす窒素施肥の影響**
二瓶直登、広瀬農、田野井慶太郎、中西友子 34
- 2 **南相馬市で栽培された野菜、米、果物および飲料水中の放射能**
静間清、桜井雄志 37
- 3 **福島第一原発事故後の¹³⁷Csの沈着量と野生山菜への¹³⁷Csの移行割合**
清野嘉之、赤間亮夫 43
- 4 **山菜と果実の調理・加工による放射性セシウムおよびカリウムの除去割合について**
田上恵子、内田滋夫 47
- 5 **事故後初期における飲食物の I-131 濃度の検討**
河合理城、義澤宣明、平川幸子、村上佳菜、滝澤真理、佐藤理、高木俊治、宮武裕和、高橋知之、鈴木元 51
- 6 **浄水発生土の園芸用としての再利用の可能性**
石井伸昌、田上恵子、内海弘美、内田滋夫 55
- 7 **福島県新田川河口沖における海水と堆積物中の放射性セシウム濃度分布**
福田美保、山崎慎之介、青野辰雄、吉田聡、石丸隆、神田穰太 59
- 8 **食品および土壌粒子由来の放射性セシウムの人・動物における胃腸管吸収率**
岩田佳代子、八島浩、木梨友子、高橋知之、高橋千太郎 63
- 9 **福島第一原子力発電所事故による放射性セシウムのミミズへの移行**
田中草太、高橋知之、藤原慶子、高橋千太郎 67
- 10 **放射性セシウムの植物葉中における挙動**
大澤良介、杉原真司、百島則幸 70

Part 4 その他

- 1 **福島の復興に向けた放射線教育の試み — 小中学校の児童生徒を対象として**
幸浩子 73
- 2 **福島原子力発電所事故により汚染された土壌中放射性セシウムの深度分布の変遷からの見掛けの拡散係数 (Da) 及び収着分配係数 (KD) の導出**
佐藤治夫 79

トピックス 1

除染・廃棄物

粘土鉱物に吸着したセシウムのNMR構造解析

徳田陽明^{1*}, 法川勇太郎¹, 正井博和¹, 上田義勝², 二瓶直登³, 藤村恵人⁴, 小野勇治⁵

1) 京都大学化学研究所 京都府宇治市五ヶ庄

2) 京都大学生存圏研究所 京都府宇治市五ヶ庄

3) 東京大学大学院農学生命科学研究科 東京都文京区弥生 1-1-1

4) 農研機構東北農業研究センター 福島県福島市荒井字原宿南 50

5) 福島県農業総合センター 福島県郡山市日和田町高倉字下中道 116

* tokuda@noncry.kuicr.kyoto-u.ac.jp

福島第一原発事故により放射性セシウムが環境中に放出され、土壌などへの固定化が進んでいる。本研究では、固体NMRを用いることにより、粘土鉱物（イライト、カオリナイト）に吸着したセシウムの構造解析を行った。塩化セシウム水溶液に浸漬した粘土のNMRスペクトルには2つのピークがあることがわかった。表面に吸着したセシウムは-30 ppm付近に、粘土層間のセシウムは-100 ppm付近にピークを与えると考えた。また、セシウム吸着した粘土鉱物を塩化カリウム水溶液によって再イオン交換すると、ピークが消失することを見いだした。この結果は、先のNMRピークの帰属が正しいことを示唆している。今後、土壌の解析を進めることにより、土壌から植物へのセシウム移行のメカニズムを明らかにし、福島農業再生に資する知見を得たい。

キーワード 固体NMR, 粘土鉱物, XAFS, セシウム

1. 緒言

2011年3月11日に発生した東京電力福島第一原発事故によって、大量の放射性核種（主に¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs）が環境中に放出した。これらのうち¹³⁷Csは半減期が長い環境中に長く留まることが知られている[1]。多くは土壌に留まっているが一部は根から吸収され植物へと移行することが知られている。このような移行を防ぐためにはセシウムの植物への移行経路についての理解が重要であるが、未だ不明な点が多い。近年の研究では、同じ放射線量の土壌で栽培したとしても、作物の吸収係数が異なると報告されている[2, 3]。このような作物への移行の違いの一つの原因は、粘土鉱物に付着しているセシウムの形態が異なるためだと考えられる。

セシウムの吸着・固定化に関わる粘土鉱物は、1:1型層状ケイ酸塩鉱物、2:1型層状ケイ酸塩鉱物などが知られている。これらの粘土鉱物に負電荷があるため、表面や粘土シート層間にセシウムイオンが吸着する[4]。特に2:1型ケイ酸塩鉱物の場合には、膨潤層と非膨潤層との境界に存在するくさび形に開いた部分（フレイドエッジサイト、FES）にセシウムイオンが固定化することが知られている[5, 6]。これらのサイトに固定化されているセシウムの構造を知ることによって、土壌から作物への移行の理解の手助けになると考えた。

環境中に存在するセシウムの量は数ppbよりも小さいため、ある特定の核種だけに着目できる手法でなければ精度良く観察することができない。このような場合、放射光施設を用いたXAFSが有効である[7, 8]。非常に有効な手法であるが、ラボレベルで利用で

きる手法ではないため、他の相補的な手法を利用する必要がある。

固体NMRはある特定の核種のみ得ることができるという特徴があり、XAFSと同様に低濃度の核種の情報を得ることができる。我々はケイ酸塩ガラスにおけるアルカリイオンの構造を理解するために¹³³Cs NMRを用いた構造解析を行ってきた[9]。その結果、低配位数セシウムは低磁場シフトし、高配位数セシウムは高磁場シフトすることを見いだした。この知見を利用することによって粘土鉱物におけるセシウムの吸着状態についての知見を得ることができると考えた。また、過去にも粘土鉱物の測定例があり、表面と層間のセシウムを観測した例が知られている[10-12]。本研究では固体NMRを用いることにより粘土鉱物へ吸着したセシウムの局所構造解析を行い、セシウムの吸着状況を調べることとした。

2. 実験手法

用いた試薬は、カオリナイト（和光純薬）、イライト（G-O networks）、¹³³CsCl（和光純薬）、KCl（和光純薬）、超純水（和光純薬）である。

イライト5gを塩化セシウム水溶液50mlに1日後、1か月、半年間、2年間、浸漬した。遠心分離によってイライトと水溶液を分離した。このイライトに超純水を加えて攪拌の後に遠心分離することを2回くり返した。洗浄したイライトを40°Cで1晩乾燥させた。比較のため、カオリナイトについての同様の操作を行った。ただし、浸漬した期間を1日、1か月、半年間とした。

セシウムでイオン交換したイライトからのセシウ

ム脱離を調べるために、塩化カリウムを用いて再イオン交換試験を行った。2年間イオン交換を行ったイライト 1 g を 0.01 mol/L の塩化カリウム水溶液 50 ml に浸漬し、2 日間で取り出した。浸漬した試料を遠心分離した。イライトに水を加えて攪拌の後に遠心分離することを 2 回くり返した。表 1 にこれらの試料についてまとめた。

表 1 試料名の表記方法

表記	CsCl(aq)への浸漬期間	KCl(aq)への浸漬期間
illite_pristine	—	—
illite_1d	1 日	—
illite_6m	6 ヶ月	—
illite_2y	2 年	—
illite_2y_KCl2h	2 年	2 時間
illite_2y_KCl2d	2 年	2 日
kaolinite_pristine	—	—
kaolinite_1d	1 日	—
kaolinite_6m	6 ヶ月	—

3. 解析方法

Cs の K 吸収端を用いた XAFS 測定を SPring-8 の BL14B2 にて行った。蛍光法によって行い、積算を 4 時間行った。得られたデータを Athena によって解析した[13]。粘土鉱物中のセシウム の局所構造解析のために ^{133}Cs MAS NMR 測定を行った。 ^{133}Cs MAS NMR 測定は Chemagnetics 社 CMX400 および 4mm プロブで行い、回転数を 10 kHz に設定した。印加外部磁場は 9.4 T であり、 ^{133}Cs の共鳴周波数は 52.9 MHz であった。また、1 M CsCl 水溶液の化学シフトを 0 ppm に設定した。

4. 結果

illite_2y, illite_2y_KCl2h の k 端の EXAFS を図 1 に示す。両者の構造に違いがあることを見いだした。フーリエ変換した RDF における第一ピーク、第二ピーク、第三ピークが Cs-O, Cs-Si, Cs-Cs に帰属できると報告されているが、S/N 比が十分でないため、詳細な解析を行わない。

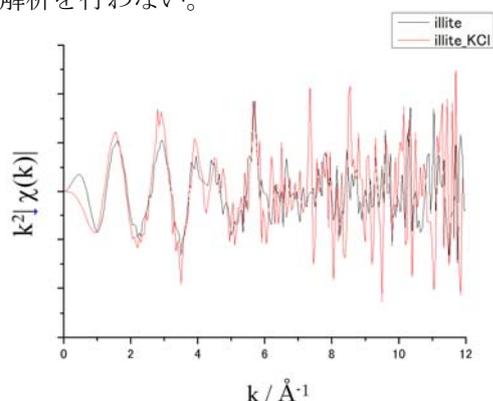


図 1 illite_2y, illite_2y_KCl2h の k 端の EXAFS

イオン交換試料の ^{133}Cs MAS NMR の測定結果を

Fig. 2, 3 に示す。イライトでは、いずれの試料でも -30 ppm 付近と -100 ppm 付近にピークが現れた。ただし、イオン交換の日数によってピーク面積の比に違いがあった。また、カオリナイトでは -30 ppm 付近のみにピークが現れたが、半年間イオン交換したものについては -100 ppm 付近にもピークが現れた。

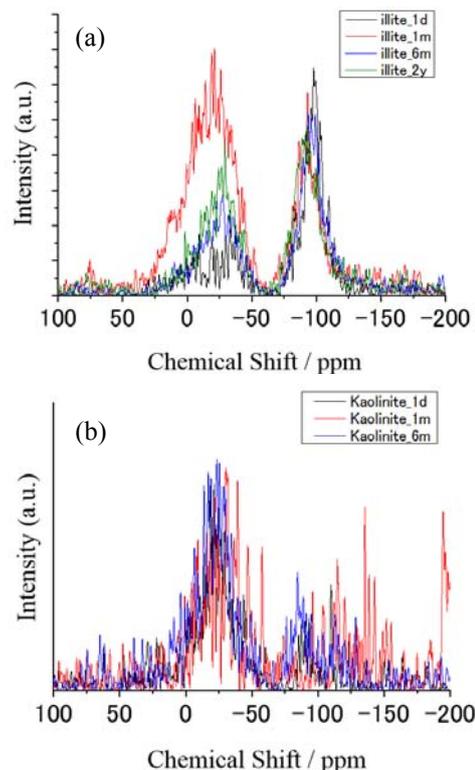


図 2 セシウムを吸着させた粘土の ^{133}Cs MAS NMR スペクトル(a)イライト, (b)カオリナイト

セシウムの吸着したイライトからのセシウム脱離の効果を確認するため、イライト (再イオン交換) の ^{133}Cs MAS NMR 測定を行った (図 3)。塩化カリウム水溶液 10 ml に 2 時間再イオン交換することにより、ピークが減少することがわかった。

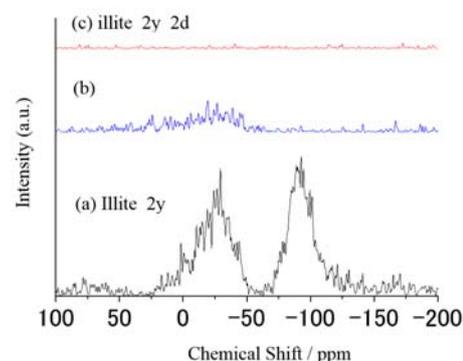


図 3 塩化カリウム水溶液により再イオン交換したイライトの ^{133}Cs MAS NMR スペクトル

5. 考察

図2に示したNMRスペクトルにおいてイライトとカオリナイトにおける2つのピークは、表面への吸着と層間への吸着だと考えた。特にカオリナイトにおいては-30 ppm付近のピーク割合が大きく、-100 ppm付近のピークは半年間イオン交換した試料にのみ現れた。カオリナイトは表面に負電荷サイトを持つことから、-30 ppm付近のピークが表面へ吸着したセシウム、-100 ppm付近のピークが層間へ吸着したセシウムの化学シフトであると考えた。イライトにおいては一日の浸漬により-100 ppm付近のピークが現れた。これはイライトがイオン交換しやすいカリウムイオンを層間に有することと一致している。ゆえに-30 ppmが粘土鉱物表面、-100 ppmのピークが粘土鉱物シート層間によるものだという帰属を確認することができた。また、高配位数のセシウムが高磁場の化学シフトを与え、低配位数のセシウムが低磁場の化学シフトを与えるという帰属[9]とも矛盾しない。

1日イオン交換したイライトのスペクトル(図3)が、取り出し後の時間経過に伴って-30 ppm付近のピークの割合が上昇した。水溶液から粘土鉱物を取り出したため、粘土鉱物表面でのセシウムの濃度が下がり、平衡条件によって層間のセシウムが表面へと移動したためであると考えた。

イライトの再イオン交換実験により、長時間再イオン交換をおこなったイライトのNMRの2つのピークは消滅し、フレイドッジサイトのピークが観測されていないことがわかった。

以上よりFESは観測されず-30 ppm付近のピークは表面へ吸着したセシウム、-100 ppm付近のピークは層間へ吸着したセシウムであると帰属した。用いた試料は乾湿をくり返して調製したのではなく水溶液に浸漬したものでありエイジングの効果が異なること、実環境とは異なり大量のセシウムに浸漬させた実験であること、の2点から環境中でのセシウムの状態とは異なることを留意すべきであるが、吸着サイトを理解する上で有用な情報が得られたと考えている。

6. 結言

固体NMRを用いて粘土に吸着したセシウムの吸着状態の解析を行った、その結果以下のような結論を得た。粘土に吸着したセシウムのNMRスペクトルには2つのピークがあった。2つのピークは粘土の表面と層間へ吸着したセシウムのものであると示唆された。FESは観測されなかった。

今後は土壤中のセシウムの構造解析を行うことにより植物へ移行しにくいセシウムについての知見を得て、福島県の農業再生に繋げていく。

7. 謝辞

本研究は、京都大学化学研究所共同利用・共同利用共同研究拠点(No. 2015-68, 70)、京都大学生存圏研

究所、クレハトレーディングの支援により行った。また、XAFS測定にあたってはSpring-8のBL14B2(No. 2015A1662)を利用した。

8. 参考文献

- 1) IAEA, in: Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and their Remediation: Twenty Years of Experience, 2006.
- 2) N. Kato, N. Kihou, S. Fujimura, M. Ikeba, N. Miyazaki, Y. Saito, T. Eguchi, S. Itoh, Potassium fertilizer and other materials as countermeasures to reduce radiocesium levels in rice: Results of urgent experiments in 2011 responding to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *Soil Sci Plant Nutr*, 61 (2015) 179-190.
- 3) S. Ehlken, G. Kirchner, Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: a review, *J Environ Radioactiv*, 58 (2002) 97-112.
- 4) N. Yamaguchi, T. Y., H. K., I. S., K. M., E. S., Y. S., S. A., A. K., W. R., M. T., A. I., H. S., Behavior of radiocaesium in soil-plant systems and its controlling factor (in Japanese), *Bulletin of National Institute for Agro-Environmental Sciences*, 31 (2012) 75-129.
- 5) A.J. Fuller, S. Shaw, M.B. Ward, S.J. Haigh, J.F.W. Mosselmans, C.L. Peacock, S. Stackhouse, A.J. Dent, D. Trivedi, I.T. Burke, Caesium incorporation and retention in illite interlayers, *Applied Clay Science*, 108 (2015) 128-134.
- 6) M. Okumura, H. Nakamura, M. Machida, First-principles studies of cesium adsorption to frayed edge sites of micaceous clay minerals, *Abstr Pap Am Chem S*, 248 (2014).
- 7) Q. Fan, N. Yamaguchi, M. Tanaka, H. Tsukada, Y. Takahashi, Relationship between the adsorption species of cesium and radiocesium interception potential in soils and minerals: an EXAFS study, *J Environ Radioact*, 138 (2014) 92-100.
- 8) B.C. Bostick, M.A. Vairavamurthy, K.G. Karthikeyan, J. Chorover, Cesium Adsorption on Clay Minerals: An EXAFS Spectroscopic Investigation, *Environmental Science and Technology*, 36 (2002) 2670-2676.
- 9) T. Minami, Y. Tokuda, H. Masai, Y. Ueda, Y. Ono, S. Fujimura, T. Yoko, Structural analysis of alkali cations in mixed alkali silicate glasses by ^{23}Na and ^{133}Cs MAS NMR, *Journal of Asian Ceramic Societies*, 2 (2014) 333-338.
- 10) Y. Kim, R.T. Cygan, R.J. Kirkpatrick, Cs-133 NMR and XPS investigation of cesium adsorbed on clay minerals and related phases, *Geochim Cosmochim Acta*, 60 (1996) 1041-1052.
- 11) Y. Kim, R.J. Kirkpatrick, Na-23 and Cs-133 NMR study of cation adsorption on mineral surfaces: Local environments, dynamics, and effects of mixed cations, *Geochim Cosmochim Acta*, 61 (1997) 5199-5208.
- 12) Y. Kim, R.J. Kirkpatrick, R.T. Cygan, Cs-133 NMR study of cesium on the surfaces of kaolinite and illite, *Geochim Cosmochim Acta*, 60 (1996) 4059-4074.
- 13) B. Ravel, M. Newville, ATHENA, ARTEMIS, HEPHAESTUS: data analysis for X-ray absorption spectroscopy using IFEFFIT, *J Synchrotron Radiat*, 12 (2005) 537-541.

マイクロバブル処理を施したケイ酸ナトリウム洗浄剤によるセシウムの減容化について

上田 義勝^{*1)}、徳田 陽明²⁾、後藤 裕³⁾

1) 京都大学生存圏研究所 京都府宇治市五ヶ庄

2) 京都大学化学研究所 京都府宇治市五ヶ庄

3) 株式会社クレハトレーディング東京都中央区日本橋堀留町 1-2-10 イトーピア日本橋 SAビル 6・7 階

* yueda@rishi.kyoto-u.ac.jp

我々は、東日本大震災で放射性核種に汚染された環境物質の物理除染に対する新しい材料として、ケイ酸ナトリウムを主体とした洗浄剤(SMC)を用いた除染実験を行い、その洗浄効果と、減容化に繋がる研究成果について検討を行った。砂利、及び不織布を用いた洗浄試験をこれまでにを行い、付着した放射性セシウムが大幅に洗浄される事がわかった。また、洗浄後の洗浄溶液を塩酸及びエタノールにて中和処理する事で、沈殿したケイ酸ナトリウムへの放射性セシウムの移行を確認し、減容化にも成功している。このSMCは、放射性セシウムの除去に有効であり、かつ洗浄後の廃液の減容化・再利用が期待できる。

キーワード マイクロバブル、ケイ酸ナトリウム、減容化

1. はじめに

生存圏環境における問題として、自然災害や人工的災害も含めた複合的な被害が発生する状況が身近に存在する。特に、2011年3月11日の東日本大震災による原発事故の影響は大きく、主に福島県内の放射性物質による土壌・水質汚染は、現在も復旧途中の状態にある。報道等で知られている様に、現地の人々の生活は落ちついてきているとはいえ、未だに大きな不安を与えており、農林水産業にも影響が残っているため、早急な対策が必要である。

福島原発事故によって種々の放射性核種が飛散したが、半減期の長さや、含有量の多さのため、中長期的には放射性セシウムの人体へ与える影響が最も大きい。そのため、生活圏・農業圏内における放射能除染は放射性セシウムの除去が主目的となる。現在、国を挙げての除染(放射性セシウムの除去)が行われているが、生存圏における放射能問題は解決しているとは言い難く、

現在も種々の方法が提案されている。その一例として、除染に化学物質などを使う方法は、経済的な問題以外にも、使用する薬剤によっては土壌や森林、河川、生態系、ひいては人類への悪影響が懸念される。また、大規模な土木工学的な除染(表面除去など)は確かに有効な手法であるが、個人で気軽に利用可能な手法とは言い難く、より簡便な手法が求められる。そこで、自然界にも存在する化学物質として、我々はケイ酸ナトリウムに着目した。使用薬品には、メタ珪酸ナトリウムを主剤とし、マイクロバブル・超音波処理を施す事で薬剤の安定化を行った洗浄剤(SMC)を用いた¹⁻³⁾。ケイ酸ナトリウムは、その水溶液を中和することによってゲル化することが良く知られており(図1)、固液分離による減容化が可能である。排水処理プラントなどでの汚水の処理方法である共沈法(塩化鉄などの共沈剤を加えて、目的とするイオンを分離する方法)と同様の効果を示す事もわかっており、今後の大規模実証試験に期待が持てる。

2. 実験

我々は、土壌に関する除染について東日本大震災直後から調査を開始し、その浄化技術に関する基礎データを集めてきた⁴⁻⁵⁾。昨年3月11日の事故以来、幾多の風雨に晒されたにもかかわらず、放射性セシウムが建物外壁や道路等の構造物に未だに存在している。これはセシウムが樹木などの多孔質面や、比表面積の大きい砂粒や塵に多く吸着していることに由来する。特に土壌に含まれる雲母類等の鉱物には、セシウムがイオン交換によって化学吸着するため、鉱物の付着した構造物が高い放射線密度を示したと考えている⁶⁻⁷⁾。

放射性セシウムの物理的な除染に対する新しい材料として、ケイ酸ナトリウムを主体とした洗浄剤を用いた除染実験を行った。ケイ酸ナトリウム水溶液は基本特性として電解水とは異なる洗浄力を有した水を主成分とした、無機質、水性洗浄剤になるものであり、界面活性剤を含



図1. ゲル化試験(SMC 10ml, 中和滴定による)

んでいないため、泡が立たない。また、その成分から硬水、軟水、海水を問わず使用が可能であり、中性洗浄剤およびアルカリ洗浄剤との併用が可能で無色透明、無臭のである。また、洗浄特性としては有機溶剤等の溶解洗浄と異なる『剥離洗浄』であるため、気泡、噴流、高圧、超音波、スプレー洗浄に適しており、その応用利用が期待される。

(1) 不織布洗浄試験³⁾

本実験では、サンプル対象として 2011 年の原発事故フォールアウト以後、福島県下で屋外にさらされていた農業用の不織布(商品名「パオパオ」、材質はポリプロピレン)を洗浄試験として用いた。この不織布は屋外で風雨にさらされていたにも関わらずセシウムによる放射能汚染度が高く、なおかつ通常の水では溶出されない事がわかっている。

この不織布の背景放射線強度を京都大学放射性同位元素センター分館所蔵のゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した。検出器本体は高純度ゲルマニウム検出器(EG&G ORTEC 社, GMX-18200-S)でゲルマニウム結晶の大きさは 10^2cm^3 、相対効率(^{137}Cs 662 keV γ 線に対して NaI(Tl) (76×76mm) 結晶の効率との相対比)は 22.3 % である。放射線の入射窓は 0.5 mm 厚のベリリウム板で 3 keV 以上の X 線および γ 線を高い効率で測定できる。エネルギー分解能は 55Fe 5.9 keV (Mn K α) に対して 0.54 keV, ^{60}Co 1.33 MeV γ 線に対して 1.8 keV である。測定には所定の容器(100cc)を用い、容器に不織布を入れて(平均 2.79g) CPS 値として 2012 年に測定を行った。

洗浄方法としては同様に所定の容器(250cc)に不織布と洗浄液 100cc を入れ、6 時間静置による浸漬洗浄の後に純水による濯ぎを行って乾燥した後、再度容器(100cc)に入れて放射線強度を測定した。同様に洗浄後溶液についても放射線強度を測定する事で、放射性セシウムの移行についても検討を行った。また、濃度別の洗浄効果を見るため、100wt%、10wt%、1wt%、純水の濃度の違う水溶液を用い、それぞれの洗浄後の放射線強度を測定する事で、放射性セシウムの除去率を求めた。各濃度に於ける測定誤差をなくすため、それぞれ 7 サンプルずつ洗浄し、その平均の除去率とエラーバーを評価した。

(2) 砂利洗浄試験^{1,2)}

郡山市にて採取した砂礫約 161g(平均)を、100wt%、10wt%SMC、及び 100wt%SMC と同濃度の NaOH、メタケイ酸ナトリウム水溶液を用いて(1)と同じ容器にて洗浄し(各 100cc)、12 時間静置した後、砂礫と洗浄剤を分離した。分離された洗浄剤のうち、SMC については 1N HCl を滴下してゲル化させ、固液分離した。洗浄前後の砂礫、分離前後の洗浄剤の放射線強度を同様に高純度ゲルマニウム半導体検出器によって測定した。

(3) 減容化試験³⁾

放射性セシウムの減容化に関する評価試験として、カリウムイオン電極(Horiba 製 LAQUA F-73, 8202-10C)を用いて、 ^{133}Cs 標準液(Wako, 030-21341)を用いた中和に

よるゲル化試験を行った。カリウムイオン電極を用いればイオン半径の近いセシウムイオンの濃度を検量により評価する事が可能である。本実験では、比較のためメタケイ酸ナトリウムを溶かした物(0.47mol/L, PH=13.1 と SMC とを用いて塩酸による中和後のセシウムイオン濃度を 3 回平均値として測定し、液中に残存する濃度を求めた。

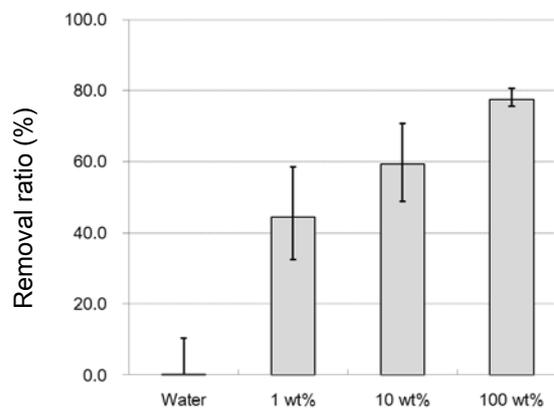


図 1. 砂礫洗浄の ^{137}Cs の平均除去率(純水、1wt%、10wt%および 100wt%の各濃度の SMC)

3. 結果と考察

(1) 不織布洗浄試験³⁾

不織布洗浄実験において、純水ではほとんど落ちないセシウムに関して、100wt%のジェイバルでは除去率が平均値で 77.2%となり、非常に効率よくセシウムを除染出来る事がわかった(図1)。また、10wt%、1wt%の濃度依存性についても良い相関がみられ、それぞれ平均値で 59.4%、44.5%という結果となった。それから、1wt%のジェイバル水溶液については、複数回洗浄による若干の除染率低下がみられており、全体としての 3 回の複数洗浄で 71.2%となり、水溶液の濃度を低く抑えた場合でも十分な除染が行う事が出来る事がわかった。また、浸漬時間についての詳細な検討はまだ行っていないものの、現状では 6 時間程度の浸漬で十分な除染が出来る事を示

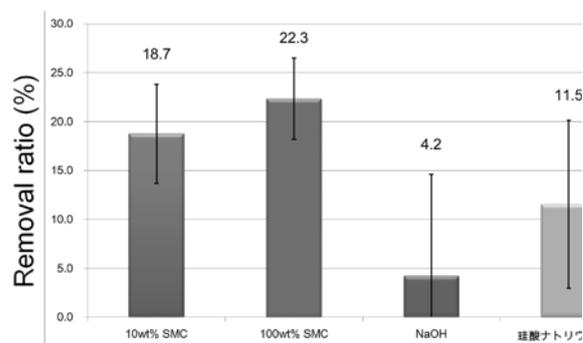


図 2. アルカリ洗浄剤の ^{137}Cs 平均除去率(10wt%、100wt%SMC、NaOH(pH=14)、ケイ酸ナトリウム溶液(pH=14))

表1 SMC と、メタケイ酸ナトリウム溶液における、塩酸中和による ^{133}Cs の減容化試験。 ^{133}Cs のイオン濃度はカリウム濃度計を用いて換算し、ppm として測定。

HCl concentration (g)	Aqueous sodium metasilicate	SMC
0.36	7.2	0.4
3.6	7.5	0.4
36	4.4	0.0

しており、実際の使用の際(こすり洗いや高圧洗浄等)にはさらに短時間での効率化が可能であると見込める。

(2) 砂利洗浄試験^{1,2)}

洗浄前後の砂礫の放射性セシウムの除去率を図2に示す。測定結果はそれぞれ7点測定した平均値をエラーバー付きの棒グラフで表している。これより、濃度が低い場合でも静置するだけで20%程度の放射性セシウムが除去できている事がわかった。また、同じpHの水酸化ナトリウム水溶液と比較しても、高い洗浄率を示すことがわかる。また、塩酸によるSMCのゲル化処理により、放射性セシウムが固体中に捕捉される(約94%)事がわかった。

(3) 減容化試験³⁾

セシウム標準液による塩酸を用いた減容化試験においては、通常メタ珪酸ナトリウム水溶液では初期濃度(約7ppm)から換算するとほとんど液中に残存していたが、一方でSMCを用いた場合、ゲル化によるメタ珪酸ナトリウムの析出と一緒にセシウムイオンも析出して液中のイオン濃度が10%以下に低下している。この結果は不織布洗浄後液を用いた減容化試験と一致する結果であり、SMCがもつ特性を表したものである(表1)。

4. まとめ

ケイ酸ナトリウムを主剤とする洗剤を用いる事で、非常に効率よく放射性セシウムを除染出来る事がわかった。この溶液は、1wt%程度の溶液であっても通常の水で落ちない放射性セシウムを除染する事が出来るため、将来の同様の複合的災害に使用する事が出来る洗浄剤である。

また、ケイ酸ナトリウム水溶液を使つての砂利洗浄についても初期実験において不織布と同等の洗浄効果が得られることもわかっており、これらの結果から、セシウムが何らかの形でケイ酸ナトリウム水溶液に溶出する可能性が示唆され、今後の応用利用が期待される。また減容化についての実験効果も確認されている事から、水で単純に除染出来ない場所に対する効果がみられ、またその事が現在開始されている都市部・森林部等での除染作業に対する大きな貢献を果たすと考えられる。

参考文献

1) Y. Ueda, Y. Tokuda, H. Goro, "Remediation technology for cesium using microbubbled water containing sodium silicate, Proceedings of Radiological Issues for Fukushima's Revitalized

Future, Fukushima, Japan, in print.
 2) Y. Ueda, Y. Tokuda, H. Goto, T. Kobayashi, and Y. Ono, "Removal of radioactive Cs using aqueous sodium metasilicate with reduced volumes of waste solution", ECS Trans., 58(19), 35 (2014).
 3) Y. Ueda, Y. Tokuda, H. Goto, T. Kobayashi, and Y. Ono, "Removal of Radioactive Cs from Nonwoven Cloth with Less Waste Solution Using Aqueous Sodium Metasilicate", J. Soc. Remed. Radioact. Contam. Environ., 1, 191 (2013).
 4) Y. Ueda, Y. Tokuda, S. Fujimura, N. Nihei, and T. Oka, "Cesium Transfer from Granule Conglomerate Using Water Containing Nano-Sized Air Bubbles", ECS Trans., 50(22), 1, (2013).
 5) Y. Ueda, Y. Tokuda, S. Fujimura, N. Nihei, and T. Oka, "Removal of radioactive Cs from gravel conglomerate using water containing air bubbles", Water Sci. Technol., 67, 996 (2013).
 6) I. Raskin and B. D. Ensley, Editors, Phytoremediation of Toxic Metals: Using Plants to Clean Up the Environment, John Wiley & Sons, New York (2000).
 7) N. Willey, Editor, Phytoremediation: Methods and Reviews, Humana Press, Totowa (2007).

低濃度放射性セシウム汚染水の浄化システム

横田かほり¹ 新井志緒¹ 小川秀樹^{1,2} 中村立子^{1*} 吉田博久¹

1) 首都大学東京 都市環境科学研究科 東京都八王子市南大沢 1-1

2) 福島県林業研究センター 福島県郡山市安積町成田字西島坂 1

* ritsuk_n@tmu.ac.jp

低濃度の放射性セシウム(Cs)を含む汚染水から、選択的に放射性Csを選択するフィルターを開発した。このフィルターは表面状態の異なる二種類の羊毛繊維表面にプルシアンブルー (PB) ナノ結晶を物理的に担持したもの(疎水性;PB-O、親水性;PB-T)で、染色堅牢度試験と溶出シアン試験から羊毛繊維担体からPBが離脱しにくい構造を持つ。このPB担持羊毛フィルターを用いて、三種類の汚染水、燃焼ガス洗浄水(600 L、2 Bq/L、pH6)、スラッジ処理水(700 L、1.3 Bq/L、pH7)、燃焼灰処理水(1 L、120 Bq/L、pH10)から放射性Csの除去試験を行った。ろ過時間は、処理量の多い燃焼ガス洗浄水とスラッジ処理水は2時間、燃焼灰処理水は2分である。PB担持羊毛フィルターによるろ過で、水溶液中の放射性Cs濃度は測定下限値(0.2 Bq/L)以下になった。また、処理によって除去された放射性CsはPB担持羊毛フィルターに吸着されていた。燃焼ガス処理水には油分を含むスス、スラッジ処理水には微細な木屑などが分散していた。燃焼灰処理水には水溶性の放射性Csが含まれている。水素イオン濃度(pH)や放射性Csを含む様々な懸濁物が混合している低濃度の汚染水から、PB担持羊毛フィルターを使うことで効率的に放射性Csを除去することができた。

キーワード 水溶性放射性セシウム、プルシアンブルー染色羊毛フィルター、汚染水処理

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所事故から4年が経過したが、環境中に放出された放射性セシウム(Cs)の多くは土壌や森林などにいまだに残っている¹⁾。土壌中でほとんどの放射性Csは粘土などに吸着されているため、水系で検出される水溶性の放射性Csは少量になった。森林では主に樹木の樹皮や針葉樹の葉などに吸着していて、葉面吸収や経皮吸収あるいは経根吸収によって樹体内部に一部取り込まれている²⁾。経根吸収は水溶性の放射性Csが土壌中でも存在することを示唆していて、生体系への影響は大きいと、今後も水溶性(イオン状態)の放射性Csのモニタリングを継続する必要がある。

福島県の広範囲の市町村では、除染によって生じた大量の土壌や草木類が放射性廃棄物としてゴムコーティングしたポリプロピレン製コンテナバックに詰められた状態で、仮置場に保管されている。今後、これらの減容化が焼却によって行われる予定であるが、保管の長期化に伴い草木系廃棄物の生分解によって、水に可溶性形態の放射性Csの発生が懸念される。

第一原発敷地内の土壌や建屋を汚染した放射性物質の一部が、雨水によって敷地外に流出することが発生している。敷地内の雨水の計測では、放射性Csの懸濁体に対する溶存体の割合が他の地域よりも高い場合が多く³⁾、土壌の汚染濃度が高いことや、地盤保護に敷かれている鉄板など放射性Csとイオン交換する可能性のある金属イオン源が多いことも要因として考えられる。

炉心冷却水とは異なりこれらの汚染水(8,000 Bq/kg 以

下)の主な放射性物質は放射性Csで、食品規制値に相当する低濃度であっても全体量が多いため、早急な措置が必要である。そのためには低濃度汚染水から選択的に水溶性の放射性Csを効率的に吸着するフィルターが必要とされている。イオン化したCsを選択的に吸着するプルシアンブルー(PB)を利用した特許は、原発事故後多く出されているが、実用段階までに至るものは少ない^{4,6)}。これはPBが顔料であるため、物質に化学結合で担持させることが困難で安定な吸着素材にならないことや、放射性Csの吸着量が少ないこと、吸着速度が遅いことなどが原因である。

我々は、羊毛の高エネルギー表面層を反応場として利用したPBの二段階反応によって、担体表面に物理的に埋包されたPBナノ結晶を得た^{7,8)}。実験室レベルでの吸着特性評価から、このPB担持羊毛繊維は5gで1Lの汚染水(100 Bq/L)を2分のろ過時間で初期濃度の1/10にすることが可能である⁹⁾。また、繊維状であるため表面積の広い様々な形状のフィルターに加工することができるのも特徴である。本研究では、PB担持羊毛フィルターを用いて、出自の異なる種々の汚染水の放射性Cs除去実証試験の結果を報告する。

2. 実験

(1) PB担持繊維フィルター

表面状態の異なる二種類の羊毛繊維の高エネルギー表面層にフェロシアン化ナトリウムを水溶液から酸性条件、室温で吸着させた。表面に吸着した過剰な溶液を除去した後、硫酸鉄(II)と硫酸アンモニウム水溶液中に浸

漬、75℃までゆっくり加温して、PB 結晶を得た。PB 担持繊維を水で洗浄し、乾燥して試料を得た。疎水性表面の PB 担持繊維を PB-O、親水性表面の PB 担持繊維を PB-T とする。PB-O と PB-T 繊維の水による接触角は 135° (PB-O) と 10° 以下 (PB-T) であった。

PB 担持繊維で作成した布の染色堅牢度試験 (JIS L 0844, JIS L 0849) を実施し、洗濯堅牢度及び摩擦堅牢度試験において、各々 4 及び 5 級で、市販の染色繊維製品と同レベルの良好な染色堅牢度を持つ。また、両繊維のシアン流出試験を環境省告示 13 号 (JIS K 0102) に従って行い 0.1~0.2 mg/L で、水質汚濁防止法におけるシアン化合物濃度 (1 mg/L) ならびに福島県条例 (0.5 mg/L) よりを下回った。これらの試験から PB 担持羊毛繊維から PB が離脱しないことが示された。

(2) ろ過装置

図 1 にろ過装置の概要を示す。1,100 L (直径: 1 m、高さ: 1.5 m) のステンレス容器に架台を入れ、その上にステンレスメッシュかごを設置した。ステンレスメッシュかご (直径: 30 cm、高さ: 50 cm) にポリエチレンテレフタレート製のバグフィルター袋 (メッシュサイズ: 2 μm、大きさ: 250 mmφ、長さ: 400 mm) を入れ、バグフィルターの中に 800 g の PB-O 繊維を入れた。必要に応じて 5 g の PB-O ならびに PB-T をポリエチレンテレフタレート製のメッシュ袋に詰めて、PB-O 繊維の上に置き、吸着放射能濃度を測定し、経時変化及び各々のフィルターの性能を調べた。

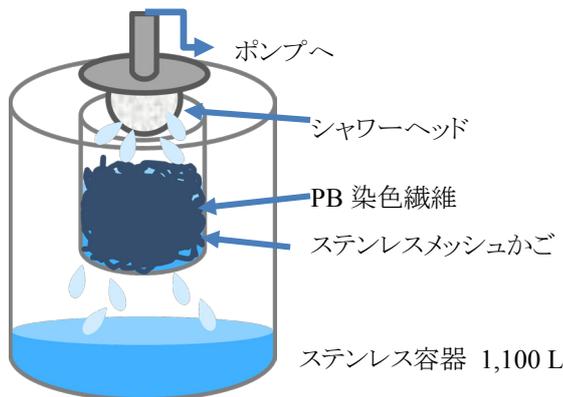


図 1 ろ過装置模式図 ステンレス容器内のステンレスメッシュかごに PB 染色繊維を設置する



図 2 汚染水ろ過システムの外観 右手前のステンレス容器では大きな粒子を取り除き、左奥の容器で放射性セシウムを除去する

図 2 にろ過システムの外観を示す。2 台のステンレス容器で構成され、右手前の 1 台では大きな粒子径の混合物を二種類のバグフィルターでろ過し、放射性セシウムの除去は左奥の 1 台で行う。1 個の容器内にステンレスメッシュかごが 4 台設置されている。各配管系列で流量、圧力をモニターして自動制御している。ステンレス容器内の汚染水を水中ポンプ (KOSHIN ポンスター、PSK-53210) で吸引して PB-O 繊維の上に均一に降りかかるようにシャワーノズルから放出し、圧力負荷と水深レベルで自動制御されている。汚染水は、所定時間放射性セシウム吸着フィルターを循環することで処理される。

(2) 実証試験

三種類の汚染水を用いて実証試験を行った。2011 年に福島県林業研究センター内で採取したマツ葉 16.5 kg (10,000~30,000 Bq/kg)、スギ樹皮 (10,000 - 15,000 Bq/kg) と広葉樹端材 (10 Bq/kg 以下) を 2014 年 7 月に燃焼減容化した時の燃焼ガスを洗浄処理した水 (燃焼ガス洗浄水、約 600 L、pH6)、2012 年 5 月に燃焼減容化した果樹剪定枝の燃焼灰処理水 (燃焼灰処理水 1 L、pH10)、2014 年 3 月に広葉樹の樹皮を酸化アルミナ粉末分散水の高速ジェットで研磨し、酸化アルミナと樹木スラッジを分離した水 (スラッジ処理水、約 700 L、pH7) である。

放射能濃度の測定は、高純度ゲルマニウム半導体検出器 (SEIKO EG&G 社製 SEG-EMS) を用いて、固体試料は U8 容器 (100 ml) に試料を入れて検出下限値が 1 - 2 Bq/kg になるように測定時間を 10,000 - 50,000 秒で行った。液体は 2 L のマリネリ容器に入れて、検出下限値が 0.2 Bq/L になるように測定時間は 10,000 秒で行った。放射能減衰は 2014 年 5 月 1 日を基準日として補正した。

3. 結果

(1) スラッジ処理水 (pH7)

キノコの原木栽培などに利用される広葉樹の樹皮は直接フォールアウトによって汚染されたため、事故前に林内に設置された植菌済みのホダ木から採取されたキノコ実体は規制値を超える放射性 Cs が検出されている。事故直後から福島県産の原木栽培キノコは出荷が制限されている。2011 年の広葉樹の汚染は樹皮と葉が顕著で、樹木内部の汚染はわずかであった。落葉広葉樹では 2011 年の落葉からは高濃度の放射性 Cs が検出されたが、2012 年以降は落葉の汚染は顕著に減少している。広葉樹をキノコ栽培用原木や燻製用燃料として用いるには、汚染された広葉樹樹皮表面から放射性 Cs を取り除くことが必要になる。

2012 年 2 月に内閣府の除染実証試験¹⁰⁾としてウェットブラストによる道路除染を、8 月に環境省の除染実証試験¹¹⁾で、ウェットブラストによるがれきの除染を実施した。ウェットブラストは金属表面の研磨を行う手法で、研磨剤 (酸化アルミナなどの無機粒子) を分散した水を高圧で物質にあてて、表面を研磨する手法である。利用する高圧水の圧力と研磨剤を調整することで、コンクリートのよう

に固い物質から木材のように柔らかい物質まで研磨することが可能である。

がれきの除染をしている時にあぶくま広葉樹活用組合と共同で、ウェットブラストをキノコ原木の表面の除染に応用する可能性を検討した。空間線量の異なる森林から集めたコナラの表面を手動ウェットブラストで研磨し、表面線量計を用いて除染効果を検討したところ、キノコ原木の表面除染に有効な手法であることが明らかになった。¹²⁾

樹木表面に対するウェットブラスト条件の最適化によって、樹皮表面の約 2 mm を研磨することで樹皮に吸着した放射性 Cs の約 80% を除去することができた。樹木除染では除去された放射性 Cs に加え、研磨剤や樹皮の削りかすがスラッジとして処理水に混在する。第一段階では処理水中の固形物を、湿式サイクロンと粗いメッシュサイズのバグフィルターで分離し、第二段階で処理水中の放射性 Cs を吸着除去する。放射性 Cs の大部分は第一段階でろ過したスラッジに含まれていて、スラッジを除いた処理水の濃度は 1.3 Bq/L であった。

第二段階でのスラッジ処理水 (700 L, 1.3 Bq/L, pH7) のろ過を 2 時間行った。処理前後での処理水中の放射性 Cs 量を図 3 に示す。低濃度ではあるが、PB-O フィルターで検出下限値 (0.2 Bq/L) 以下になった。スラッジ処理水から除去された放射性 Cs のほぼ全量が PB-O フィ

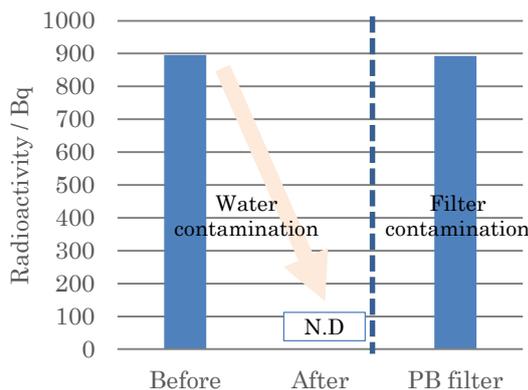


図 3 スラッジ処理水の放射性 Cs 除去試験結果
700 L の処理水を 2 時間 PB-O フィルターでろ過

ルターに吸着した。

(2) 燃焼ガス洗浄水 (pH6)

マツ葉を燃焼した燃焼ガスには油分を含むススが混合していて、燃焼が終了した直後の洗浄水の表面には空気相を取り込んだ発泡状態のススが浮かんでいた。燃焼後 1 晩放置して、処理水上のススを取り除いた洗浄水 (約 600 L, 2 Bq/L, pH6) から放射性 Cs の除去試験を行った。ろ過時間は 2 時間で、ろ過前後での洗浄水中の放射性 Cs 量を図 4 に示す。洗浄水中の放射性 Cs はろ過によって検出下限値以下 (0.2 Bq/L) になったが、PB-O フィルターの放射能量はろ過前の洗浄水中の放射能量よりも低い。これは油分のあるススの一部が洗浄水に含まれていて、これがバグフィルターや PB-O フィルターの一部に付着したことが原因であると考えられる。

洗浄水の表面から回収したススの放射能濃度は、乾燥

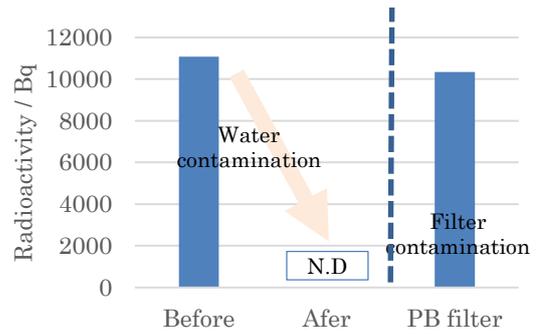


図 4 燃焼ガス洗浄水の放射性 Cs 除去試験結果

質量換算で 313,650 Bq/kg-DW であった。乾燥後の質量は 1~2 g であった。不完全燃焼によって生じたススは洗浄水の他に燃焼炉からスクラバーまでの煙道に付着していて、放射性廃棄物を処理する燃焼炉では燃焼炉と煙道の汚染レベルを監視する必要がある。

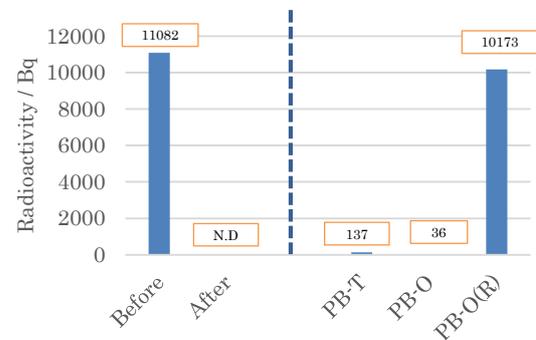


図 5 燃焼ガス洗浄水の洗浄水の放射能濃度変化と各フィルターに付着した放射性 Cs 濃度

洗浄水に含まれた高濃度の放射性 Cs を含むススが付着した PB-O フィルターを回収して、ススが付着した部分と付着していない部分に分けて、放射能濃度測定を行った。同時に 5 g のモニター用 PB-O と PB-T フィルターの濃度を測定した。洗浄水と各フィルターの放射性 Cs 量を図 5 に示す。PB-O(R) はススが付着したフィルターの濃度で換算した場合で、PB-T、PB-O は 5 g のフィルターでの値である。フィルターに付着したススは油分を含み粘性があり、フィルターの目詰まりの原因となる。洗浄水の分散する油性成分を除去するために疎水性の繊維状オイルフィルターを併用するなどの対策が必要である。

フィルターの容積が大きい場合は、場所によって放射性 Cs 濃度が異なるため吸着速度や吸着量の評価が困難である。そのため本試験では 5 g のモニター用 PB-O と PB-T フィルターを用いて場所と時間を共通にして、フィルターの洗浄水に対する放射性 Cs 吸着特性を評価した。PB-O よりも PB-T が 3~4 倍の吸着量で、これは水処理の場合、親水性表面のフィルターでは接触面積が広くなるためと考えられる。

木質系廃棄物が不完全燃焼すると、リグニン成分の熱分解によってカルボン酸 (木酢と称される複数の有機酸) が生成する。弱酸性条件 (pH6) で油性成分を含む低濃

度汚染水から効率的に放射性 Cs を除去することが可能であった。

(3) 燃焼灰処理水 (pH10)

ブドウ果樹園の剪定枝ならびに汚染した樹木を燃焼減容化した時の燃焼灰から抽出した処理水 (1 L, 118 Bq/L, pH10) からの放射性 Cs 除去試験をカラムろ過法で行った。処理水は分散している燃焼灰を 1 μm のろ紙で除去し、イオン性の放射性 Cs のみを含む。放射性 Cs 除去は 5 g の PB-O と PB-T フィルターを用いてろ過速度 500 ml/min で行った。

PB-O と PB-T を使った場合のろ過前後での洗浄水中の放射性 Cs 濃度を図 6 に示す。同じろ過条件での放射性 Cs の除去効率は、PB-O が 30 %、PB-T が 90 % で親水性フィルターの除去効率が低い。また汚染水から除去された放射性 Cs はほぼ全量がフィルターに吸着されていた。

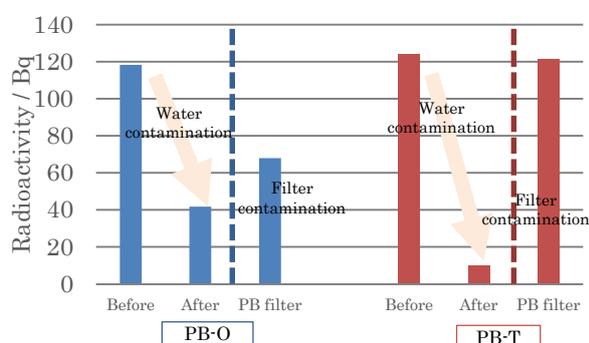


図 6 PB-O ならびに PB-T をフィルターとして使用した時の果樹剪定枝を燃焼減容化した時に発生した燃焼灰処理水の放射性 Cs 除去試験結果

4. まとめ

表面特性の異なる羊毛の高エネルギー表面相で PB 合成を行うことで、PB の微結晶を表面に担持した二種類 (疎水性と親水性) の PB 担持羊毛繊維フィルターを作成した。このフィルターを使って水素イオン濃度 (pH) と様々な懸濁物が混合している三種類の低濃度 (120 Bq/L 以下) 汚染水を用いて、放射性 Cs の除去を行った。条件の異なる低濃度汚染水から放射性 Cs を効率的に除去することができた。本技術は今後の福島における除染活動の推進に大きく貢献できると考えられる。

5. 参考文献

- 1) 吉田博久, “原発事故による土壌と植物の汚染分析”, *ケミカルエンジニアリング*, 250 (2012)
- 2) 小川秀樹 他, “東京電力福島第一原子力事故由来の放射性物質によるスギの初期汚染状況”, 福島県研究報告
- 3) 東京電力株式会社, “K 排水路に関する調査と今後の対策について” <http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima>

- np/handouts/2015/images/handouts_150325_04-j.pdf
- 4) 斉藤恭一, “福島第一原発汚染水処理用の吸着繊維の放射線グラフト重合法による実用化”, 平成 27 年度繊維学会年次大会, 船堀, 10-12 June 2015, 2D08
 - 5) D. Parajulu, A. Kitajima, etc., “Prussian Blue Nanoparticles for the Enrichment of Radioactive Cesium in Solutions”, WM2013 Conference, February 24-28, 2013, Phoenix, Arizona USA, 13275
 - 6) 南公隆, 川本徹 他, “放射性物質の処理方法および処理システム”, 特開 2014-066647
 - 7) 塩野剛司, 福西興至, “放射性セシウム吸着性布帛”, 特開 2013-61220
 - 8) 特許願 2014-0023
 - 9) K. Yokota, etc., “Prussian blue dyed wool and its decontamination ability for radiocesium”, International Symposium on Fiber Science and Technology 2014, September 28 to October 1, PG3-01
 - 10) 内閣府原子力被災者生活支援チーム, “平成 23 年度「除染技術実証試験事業」の結果概要”, http://josen.env.go.jp/material/link/pdf/20120501_02.pdf
 - 11) 松原幸人 他, “ウェットブラスト除染技術の実証”, *デコミッショニング技法 環境回復技術開発 特集号*, 12 (2013)
 - 12) 鈴木金一 他, “ウェットブラストによるシイタケ原木の除染”, 第 63 回日本木材学会, 盛岡, 27-29 March p.82

2011年に採取した福島環境試料中の放射性セシウムの同位体比

窪田卓見*¹ 芝原雄司¹ 太田朋子² 福谷哲¹ 藤井俊行¹
高宮幸一¹ 水野哲³ 山名元¹

- 1) 京都大学原子炉実験所 大阪府泉南郡熊取町朝代西2丁目
 - 2) 北海道大学工学研究院 北海道札幌市北区北13条西8丁目
 - 3) 福島県生活環境部 福島県中町8番2号
- * t_kubota@rri.kyoto-u.ac.jp

福島第一原発事故により環境中に放出した放射性セシウムの同位体比を、ゲルマニウム半導体検出器および表面電離型質量分析計(TIMS)により測定した。事故発生直後の同位体比を得るため、2011年5月から9月に採取した環境試料(土壌、リター、海藻および海水)を分析した。土壌、リター、海藻は灰化後、硝酸に溶解しリンモリブデン酸アンモニウムにより、セシウムを精製した。海水中のセシウムはAMP-PAN樹脂(Eichrom Technologies社)を用いて回収した。セシウム同位体比は、試料の種類や採取場所によらず同じ値となり、2011年3月11日に補正して、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ はそれぞれ、0.07および0.36となった。大気核実験由来の値は、それぞれ0および2.7であり、福島第一原発事故由来のものとは異なる。セシウム同位体比の値は由来により異なるため、特に ^{134}Cs が減衰した後では、 $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の同位体比が環境試料中の放射性セシウムの起源の推定には重要な値となる。

キーワード セシウム135, セシウム137, セシウム同位体比, 表面電離型質量分析計, 福島第一原発事故

1. 序論

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う津波により、福島第一原子力発電所から大量の放射性物質を放出する事故が起きた。比較的揮発性の高いセシウムが事故原発より放出し、主として降雨により東日本に広く沈着することになった¹⁻³⁾。事故後、数カ月経過すると、空間線量に支配的に寄与するのは放射性セシウムとなったが、原発事故以前から日本には人工の放射性物質が降下していた。その大部分は、大気圏核実験によるものである⁴⁾。また、毎年春に日本へ飛来する黄砂も核実験由来の放射性物質により汚染されている⁵⁾。今後、日本およびその周辺において大規模な放射性物質の放出を伴う原子力災害が発生しなければ、日本で検出される放射性物質の由来として、大気圏核実験と福島第一原発の2つを考えることになる。ある場所において検出された放射性物質が大気圏核実験由来と判別できれば、その場所では原発事故の影響を受けていない、つまり福島原発事故以前の状況と変わっていないと言える。長期間にわたり、福島原発事故由来の放射性物質の移行挙動を把握することは、事故の終息を判断する材料のひとつとなる。西日本など福島原発事故の影響が少ない地域で発見される放射性物質が核実験由来か福島原発事故由来かを判断できることは、これからの福島を考える上で重要なことである。

核分裂反応を利用することで、複数の放射性セシウムが生成する。原子炉も核実験も核分裂の利用であり、結

果として放射性セシウムを生成するが、両者において生成の履歴が異なるため、同位体比($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$)は異なる。 ^{134}Cs ($T_{1/2} = 2.065 \text{ y}$)は、核分裂により直接生成されるものはほとんどなく、核分裂で生成する ^{133}Cs が長期間の中性子照射を受けて生成する。それゆえ、短時間のうちに核分裂反応が終わる核実験では ^{134}Cs の生成は無視できるため、 ^{134}Cs の存在は、原子炉由来の放射性物質であることを示す。 ^{135}Cs ($T_{1/2} = 2.3 \times 10^6 \text{ y}$)は、 ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30.08 \text{ y}$)と同様に核分裂によって直接生成されるが、原子炉由来と核実験由来では $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の同位体比が異なる。 ^{135}Cs の親核種である ^{135}Xe は巨大な中性子吸収断面積を持つため、原子炉の様に継続的に中性子の照射を受けるような環境では、その一部が核反応し ^{136}Xe となり結果として ^{135}Cs の生成量が減る。また、 ^{135}Xe が比較的長い半減期(9.14時間)を持つことも、この ^{135}Cs 生成量減少に寄与する。つまり、 ^{135}Xe として原子炉内に存在する時間が長いので、 ^{135}Cs に壊変する前に、中性子を吸収して ^{136}Xe になる割合が増加することになる。ゆえに、放射性セシウムの同位体比を分析することで、その放射性物質の由来を推定できる。

放射性セシウムの同位体比は、ガンマ線スペクトロメリーと質量分析法により測定できる。ガンマ線スペクトロメリーでは、原理的には非破壊分析として、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の測定が可能である。ただし、ベータ線のみを放出する ^{135}Cs の測定は行えない。また、 ^{134}Cs が減衰すると、同位体比分析が不可能となる。質量分析法では、化学処理によるセシウムの精製が必要となるが、 ^{134}Cs 、 ^{135}Cs および ^{137}Cs の測定が可能である。 ^{134}Cs が減衰しても、

^{135}Cs を用いて同位体比測定が行える。質量分析法は、同重体による測定の影響を考慮する必要がある。本研究で用いる TIMS は、測定対象を熱でイオン化させて分析を行う。同重体（バリウム）は、イオン化する温度がセシウムと異なるため、この温度を制御することで同重体の影響を抑えた分析が行える⁶⁾。 ^{134}Cs が減衰した後でも同位体比分析が行える TIMS は、福島原発事故発生から長期間にわたる環境試料の分析に適している。

TIMS による汚染源の推定には、福島原発事故当時の同位体比が初期値として必要となる。さまざまな試料中（土壌だけでなく、海藻や海水等）の初期値を確定することは、セシウムの動態を考える上で重要である。本研究では、2011 年に福島県内で採取された環境試料の同位体比をガンマ線スペクトロメリーと TIMS により算出する。

2. 材料と方法

環境試料は 2011 年 5 月から 9 月にかけて採取を行い、そのうちの 4 試料について分析を行った。リター試料は、放射性物質による著しい汚染を受けた飯舘村長泥地区の国道 399 号線沿いにおいて採取を行った。海水試料および海藻試料は、いわき市の松下海岸において採取した。土壌試料は、福島県庁の試料採取地点のひとつであり、また原発事故の汚染が少ない桜枝岐村において採取した。

採取した試料は、以下の処理を施した後、分析を行った。土壌試料は、105℃で乾燥させた後、フルイ(2 mm)にかけて小石や木の根等のゴミを取り除き、450℃で灰化処理を行った。リター試料は、乾燥後、ピンセットによりゴミを除去したのち、灰化処理を行った。海藻試料は特に洗浄処理を施さず、乾燥および灰化処理を行った。これら灰化した試料は、硝酸で処理した後、リンモリブデン酸アンモニウムを用いてセシウムの精製回収を行った。海水試料は、0.1 M HNO_3 溶液に調製したのち、AMP-PAN 樹脂に通し、セシウムを吸着させた後、アンモニア水で溶離することで精製回収を行った⁶⁾。

試料中の放射性セシウム同位体比は、ガンマ線スペクトロメリーおよび TIMS 測定から求めた。ガンマ線スペクトロメリーでは、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用い、標準線源(^{137}Cs および ^{60}Co)を用いて検出効率の校正を行った⁷⁾。試料と測定器との間を離すことで、 ^{134}Cs のコインシデンス・サム効果の影響を抑えた。測定により得た放射能比と半減期の値から、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の同位体比を算出した。TIMS 測定では、2 つの同位体比($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$)を測定した。測定の効率を上げるために、試料に酸化タンタルを添加した⁶⁾。

3. 結果と考察

図 1 に TIMS 測定で得られたリターおよび海水のマススペクトルを示す。リター試料は放射性セシウムの比放射能が高いため、 ^{134}Cs 、 ^{135}Cs および ^{137}Cs のピークを検出できた。一方、海水試料は比放射能が低いため、放射性セシウムに対して天然の ^{133}Cs の割合が大きくなる。そのため、 ^{133}Cs のピークのテール部分が ^{134}Cs の測定を妨

害した。しかし、 ^{135}Cs および ^{137}Cs の分析には影響せず、両方のピークを検出できた。質量数 136 の位置に、小さなピークが見られ、 ^{136}Ba の寄与が考えられる。バリウムの同位体比 $^{138}\text{Ba}/^{136}\text{Ba}$ は 9.1 であるが、質量数 138 の位置には、質量数 136 のピークを卓越するピークがみられないことより、質量数 136 のピークはバリウムの影響ではないと判断できる。本研究の TIMS 測定では、バリウムの同重体(^{134}Ba 、 ^{135}Ba および ^{137}Ba)の影響を受けることなく、セシウム同位体比分析を行えた。

放射能測定および TIMS 測定により得られたセシウム同位体比および試料採取地点(福島第一原発からの方角と距離)を表 1 に示す。また、先行研究の結果⁶⁾もあわせて記載する。TIMS による海水のセシウム同位体比($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$)の値が無いのは、前述の通り、天然セシウム(^{133}Cs)による妨害のためである。土壌および海藻のセシウム同位体比については、妥当なマススペクトルが得られなかったため、同位体比を算出していない。原因は

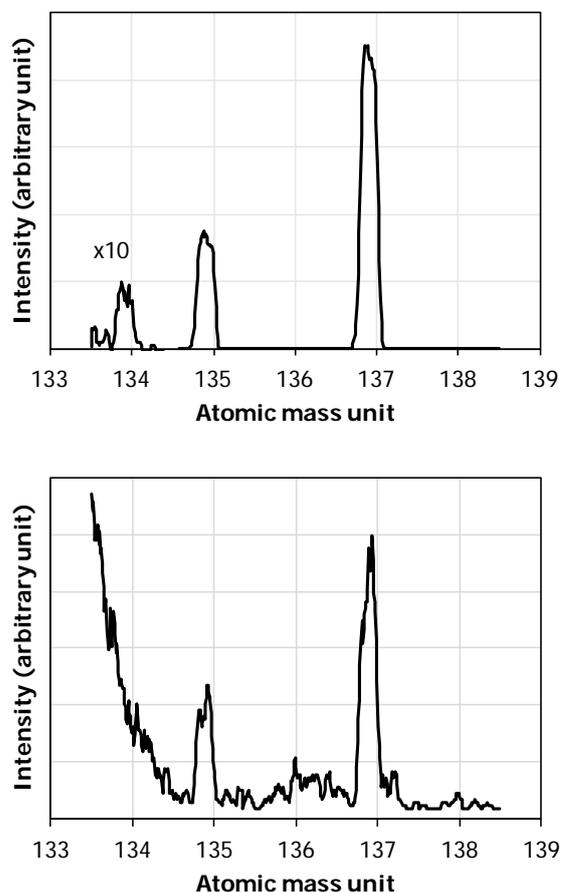


図 1 TIMS 測定によるマススペクトル⁸⁾
(上)リター、(下)海水

それぞれ、セシウム回収量の不足およびセシウムの精製純度の不足である。これら以外の試料については、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の同位体比は試料によらず、0.07 および 0.36 であった(2011年3月11日に減衰補正)。これらの値が福島第一原発事故由来のセシウム同位体比となる。 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の同位体比について、ガンマ放射能測定と TIMS の結果を比較すると、TIMS による測定結果が高精度の値を得ることができた。また、TIMS で得られた $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比は、ICP-MS/MS により測定された値(0.333 - 0.375)⁹⁾ともよく一致した。試料の種類によってはセシウム精製方法を改良する必要があるが、原発事故由来の放射性セシウム同位体比(特に $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$)の値を示すことができた。

福島第一原発事故由来の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ は、前述の通り、それぞれ 0.07 および 0.36 と求められた。一方で、核実験由来の同位体比はそれぞれ 0 および 2.7 である⁶⁾。セシウム同位体比が起源により異なるので、同位体比分析によりその由来を推定できる。 ^{134}Cs を放射能測定により検出できる間は、原発事故由来の放射性セシウムの存在を容易に言及できるが、事故から 10 年経過した 2021 年には、その放射能は 1/30 程度となり、多くの試料においてその検出が困難となる。2021 年において、福島第一原発由来および核実験由来の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ はそれぞれ 0.44 および 3.40 となる。 ^{135}Cs および ^{137}Cs の半減期は長いため、TIMS により ^{137}Cs を検出できる試料であれば ^{135}Cs も検出できるので、セシウム同位体比($^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$)から汚染の由来を推定できる。TIMS は高精度の測定が行えるので、放射性セシウムの由来を推定するための強力なツールとなることが期待される。

4. 結論

半減期の長い ^{135}Cs の分析から放射性セシウムの起源

を推定する方法を検討するために、2011 年に福島県内で採取した環境試料の同位体比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) の値を TIMS により測定した。得られた値とガンマ線スペクトロメトリー ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) との比較から、TIMS による環境試料中のセシウム同位体比分析が可能であることが示された。また、放射性セシウムの同位体比 ($^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) の値は福島第一原発事故由来と大気圏核実験由来で異なることより、TIMS による汚染源の区別が可能であることが示された。原発事故由来の放射性セシウムの移行挙動は、福島の復興を考える上で重要なテーマであるが、TIMS を用いたセシウム同位体比の分析結果が有用な情報を与えると期待できる。

謝辞

本研究は、原子力安全基盤科学研究プロジェクトとして実施されたものである。

参考文献

- 1) K. Hirose, "2011 Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident: summary of regional radioactive deposition monitoring results", *J Environ Radioact*, **111**, 13 (2012).
- 2) T. Ohta et al, "Prediction of groundwater contamination with ^{137}Cs and ^{131}I from the Fukushima nuclear accident in the Kanto district", *J Environ Radioact*, **111**, 38 (2012).
- 3) K. Tagami et al, "Specific activity and activity ratios of radionuclides in soil collected about 20 km from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant: Radionuclide release to the south and southwest", *Sci Tot Environ*, **409**, 4885 (2011).
- 4) K. Hirose et al, "Analysis of the 50-year records of the atmospheric deposition of long-lived radionuclides in Japan", *App Radiat Iso*, **66**, 1675 (2008).

表 1 環境試料中のセシウム同位体比⁸⁾

試料	セシウム同位体比 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$		セシウム同位体比 $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	試料採取地点 福島第一原発 からの位置	参考文献
	ガンマ放射能測定	TIMS			
土壌	0.059± 0.005	Not Detected	Not Detected	WSW, 160 km	本研究
リター	0.073± 0.001	0.0691± 0.0014	0.3574± 0.0020	NW, 34 km	
海藻	0.067± 0.003	Not Evaluated	Not Evaluated	SSW, 55 km	
海水	0.068± 0.003	Not Evaluated	0.3617± 0.0051	SSW, 55 km	
植物	0.069± 0.009	0.0722± 0.0004	0.3622± 0.0006	NW, 42 km	
樹皮	0.067± 0.002	0.0698± 0.0005	0.3663± 0.0005	NNW, 3 km	
根	0.069± 0.001	0.0684± 0.0008	0.3586± 0.0008	WNW, 8 km	
コケ	0.070± 0.000	0.0713± 0.0003	0.3663± 0.0007	SSW, 2 km	

- 5) T. Fukuyama et al, "Contribution of Asian dust to atmospheric deposition of radioactive cesium (^{137}Cs)", *Sci Tot Environ*, **405**, 389 (2008).
- 6) Y. Shibahara et al, "Analysis of cesium isotope compositions in environmental samples by thermal ionization mass spectrometry – 1. A preliminary study for source analysis of radioactive contamination in Fukushima prefecture", *J Nucl Sci Tech*, **51**, 575 (2014).
- 7) T. Kubota et al, "Removal of radioactive cesium, strontium, and iodine from natural waters using bentonite, zeolite, and activated carbon", *J Radioanal Nucl Chem*, **296**, 981 (2013).
- 8) T. Kubota et al, "Isotopic ratio of $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Fukushima environmental samples collected in 2011", *Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future (Ed. T. Takahashi)*, (in press).
- 9) J. Zheng et al, " $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Isotopic Ratio as a New Tracer of Radiocesium Released from the Fukushima Nuclear Accident", *Environ Sci Tech*, **48**, 5433 (2014).

福島県下で採取した環境試料中のセシウム・ストロンチウム 分析への質量分析法の適用性の検討

芝原雄司^{1*}, 窪田卓見¹, 福谷哲¹, 藤井俊行¹, 高宮幸一¹, 太田朋子², 柴田知之³,
芳川雅子³, 紺野慎行⁴, 水野哲⁴, 山名元¹

- 1) 京都大学原子炉実験所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目
 - 2) 北海道大学大学院工学研究院 北海道札幌市北区北 13 条西 8 丁目
 - 3) 京都大学地球熱学研究施設 大分県別府市野口原 3088-176
 - 4) 福島県原子力安全対策課 福島県福島市杉妻町 2-16
- * y-shibahara@rri.kyoto-u.ac.jp

表面電離型質量分析装置 (TIMS) を用いた質量分析法の福島第一原子力発電所事故評価への適用性についての検討を行った。環境試料中のCsおよびSrの質量分析を行うための各元素の回収・分析法を検討するために、京都大学研究用原子炉での天然Uの中性子照射により生成した放射性CsおよびSrの分析を行った。その後、今回検討した手法の福島県で採取した環境試料分析への適用性を検証した。

キーワード 福島第一原子力発電所事故, ストロンチウム, セシウム, クロマトグラフィー, 質量分析法, 同位体比

1. はじめに

福島第一原子力発電所事故による放射性核種である核分裂生成物および核燃料物質の放出後の環境動態解析や起源解明等の評価のため、現在、核分裂生成物から Cs および Sr, 核燃料物質から U および Pu に注目した同位体比の測定による分析を進めている。

放射性 Cs の分析に関して、 ^{134}Cs ($T_{1/2} = 2.06$ y) および ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30.2$ y) が γ 線測定を基に進められている。放射性 Cs に関しては、 ^{135}Cs ($T_{1/2} = 2.3 \times 10^6$) も生成されている。 ^{134}Cs および ^{137}Cs に加えて ^{135}Cs も測定することで、3 種の核種の比から、放出源の特定などの詳細な分析ができる¹⁾と期待できるがその半減期の長さから放射線計測による分析が難しい核種となる。一方、放射性 Sr の分析に関して、 ^{90}Sr ($T_{1/2} = 28.9$ y) が β 線測定を基に進められている。 β 線測定により、量的な評価は可能となるが、この測定には ^{90}Sr と ^{90}Y との平衡を待つ必要がある等の課題がある。

質量分析装置を用いた分析方法は長寿命核種やエネルギー分解が難しい β 核種等の分析に適した方法であるが、福島第一原子力発電所の事故評価に関した報告例はまだ少ない。本研究は、同事故により放出された放射性核種の分析法として質量分析法を適用することにある。そのため、まず京都大学研究用原子炉での中性子照射による放射性 Cs および Sr の生成を行い、生成した核種の分離・分析法の検討を行った。次に、検討した分離・分析法の福島県で採取した環境試料の分析への適用を試みた。

2. 実験

(1) 京都大学研究用原子炉での天然 U の中性子照射

天然 U (UO_2) 10 mg を京都大学研究用原子炉で中性子照射 (中性子束密度: $5.5 \times 10^{12} \text{ n s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$, 照射時間: 3 hr) し、濃硝酸に溶解・乾固した。ORIGEN-II コード²⁾を用いた計算より、放射性 Cs および Sr の主要核種の生成量はそれぞれ $7.4 \times 10^{-11} \text{ g}$ (^{137}Cs) and $4.5 \times 10^{-11} \text{ g}$ (^{90}Sr) と見積もられる。

照射 U を 2 日間の静置の後に 8M 硝酸で溶解・乾固し、再度 8M 硝酸で溶解した。 H_2O_2 を加えて 8M 硝酸 / 0.3% H_2O_2 溶液に調製したものから、UTEVATM-resin を用いた抽出クロマトグラフィーによる U, Pu などのアクチノイド元素の分離³⁾を行った。その後、Sr-resin⁵⁾ およびリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を用いた Sr および Cs¹⁾ の回収を行った。回収した Sr および Cs はそれぞれ乾固の後に 10 μL および 20 μL の 1M 硝酸で再度溶解し、質量分析用試料とした。

Sr および Cs の質量分析は、質量分析用試料をそれぞれ 1 μL を TaO とともにフィラメントに塗布し、TRITON-T1 を用いて行った。なお、各元素の主要核種の生成量と質量分析用試料の使用量との関係より、分析は二次電子増倍管 (SEM) 検出器を用いて行った。また、Sr の質量分析においては、SRM987 を標準試料として用いた。

(2) 福島県で採取した環境試料の分析

環境試料として、2012 年 11 月と 2013 年 5 月に採取した植物試料を準備した。これらの環境試料は図 1 に示すポイントから採取している。水洗い・乾燥を

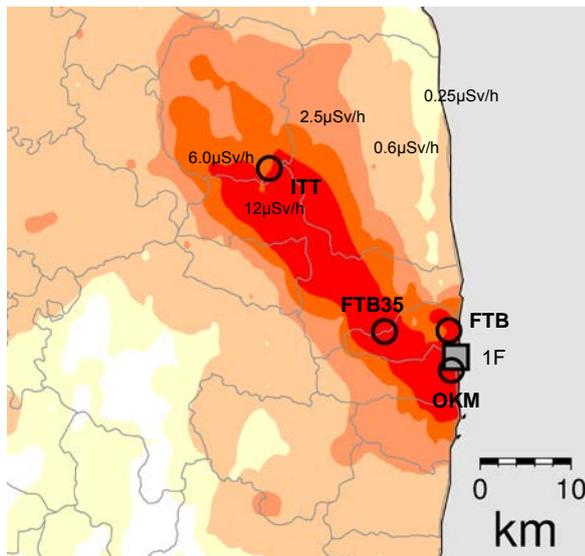


図1 試料採取場所と空間線量率.
空間線量率は2011年6月当時を示す⁴⁾.

済ませた環境試料 2.5g を 873K で灰化させ、濃硝酸を加えた後に 403K で乾固させた。その後、20mL の 8M 硝酸で溶解し、上述の方法を用いて Cs および Sr を回収した。

Sr の同位体比分析のために、ICP-QMS を用いた ⁸⁸Sr の定量とチェレンコフ光測定による ⁹⁰Sr の定量⁵⁾を行った。一方、Cs は γ 線測定による定量を行った。Sr の質量分析は、⁸⁸Sr を 50ppm・1M 硝酸溶液に調製した試料溶液を用い、Cs の質量分析は ¹³⁷Cs を 5000Bq/mL・1M 硝酸に調製したものをを用いた。上述と同様、放射性 Sr および Cs の質量分析は SEM を用いて行ったが、安定同位体の質量分析は存在量が多

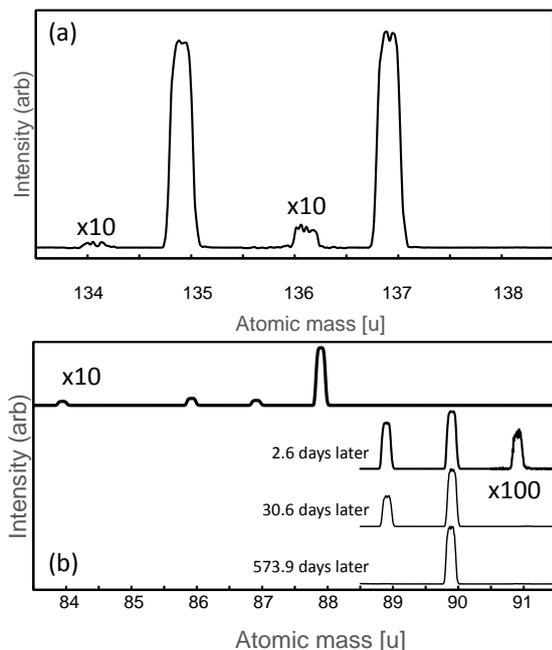


図2 Cs および Sr のマスペクトル⁶⁾。(a)Cs, (b)Sr. Sr のマスペクトルのうち、最上段の安定同位体は SRM987 標準試料を用いて観測した。

いのでファラデーカップ検出器を用いて行った。

3. 結果と考察

(1) 照射した天然 U から回収した Cs および Sr

照射した天然 U から回収した Cs および Sr のマスペクトルを図 2 に示す。

Cs のマスペクトル観測 (図 2(a)) では、¹³⁵Cs, ¹³⁶Cs($T_{1/2} = 13.2$ d) および ¹³⁷Cs のピークを観測した：¹³⁴Cs は、本照射条件では生成量が極微量であったため、観測できない：¹³⁴Cs の主要な生成過程は、U の核反応により生成した安定同位体である ¹³³Cs の中性子捕獲によるものであるため、今回の照射条件では ¹³⁴Cs の生成は検出下限以下となる。上述の ORIGEN-II コード¹⁾による生成量の評価結果とフィラメントへの塗布量との関係より、 3.7×10^{-12} g 程度 (¹³⁷Cs として) の塗布による同位体比分析では、小数点以下 4 桁目まで求めることができることを確認した： $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 0.9103 \pm 0.0008$ ($\pm 2\sigma$)。

Sr のマスペクトル観測 (図 2(b)) では、照射後 2.6 日目では ⁸⁹Sr ($T_{1/2} = 50.5$ d), ⁹⁰Sr に加えて、⁹¹Sr ($T_{1/2} = 9.5$ h) のピークも観測した。各同位体のピークは照射後の時間の経過とともに変化し、31 日後では ⁹¹Sr が 574 日後には ⁸⁹Sr がそれぞれ検出下限以下となった。Cs の場合と同様に、ORIGEN-II コードによる生成量評価とフィラメントへの塗布量との関係より、 4.5×10^{-12} g 程度 (⁹⁰Sr として) の塗布による同位体比分析では、小数点以下 4 桁目まで求めることができることを確認した： $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr} = 0.7949 \pm 0.0003$ ($\pm 2\sigma$)。

Cs, Sr ともに主要核種が 10^{-12} g 程度の塗布では十分な強度のマスペクトルを観測することができることを確認できる。この時、図 2(a) および (b) の副成分核種である ¹³⁶Cs および ⁹¹Sr はそれぞれ 5.5×10^{-14} g および 4.0×10^{-14} g であるので、同程度の量までは検出が可能であると推測できる。また、質量分析法による Cs の分析では、¹³⁵Cs/¹³⁷Cs 比を用いた場合、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比を用いた場合より 10 倍以上の期間 Cs の観測が可能となる。

(2) 環境試料から回収した Cs および Sr

図 1 に示す 4 か所で採取した植物試料中 Cs の質量分析の結果 (表 1), 照射した天然 U より回収した Cs (図 2(a)) では観測されなかった ¹³⁴Cs を確認した^{1,6)}。また、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 同位体比から得た放射能比として 1.000~1.055 (2011 年 3 月 11 日換算) を得た。この値は、ORIGEN-II コードを用いた福島第一原子力発電所での生成量の計算結果⁷⁾の示す範囲と一致しており、観測した ¹³⁴Cs は同発電所由来のものであると確認できる。一方、¹³⁵Cs/¹³⁷Cs 比 0.359~0.367 の範囲を示した (2011 年 3 月 11 日換算)。こちらの値も ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs と同様同発電所由来ものと一致している。また、日本国内で観測しうる放射性 Cs の起源として、同発電所事故以外にはチェルノブイリ原子力発電所事故および核実験によるフォールアウトの 2 成分が考えられるが、観測した ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs 比はこれら 2 つの成分 (チェルノブイリ原子力発電所事故： ~ 0.5 , 核

実験：～2.7. とともに 2011 年 3 月 11 日換算)とは異なっている。このため、 ^{134}Cs が検出できない条件下 (^{134}Cs の消失後、あるいは放射能濃度が極めて低い場合など)でも $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比による福島第一原子力発電所由来の放射性 Cs の分析が可能となる。

表 1 Cs 同位体比測定結果

Sample ID	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}^{**}$	$^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}^{***}$
OKM01*	1.040(3)	0.3669(2)
OKM02	1.037(3)	0.3655(3)
FTB*	1.020(7)	0.3663(5)
FTBR35*	1.000(12)	0.3586(8)
ITT*	1.055(5)	0.3662(6)

*: 参考文献 1)より抜粋。

** : 放射能比 (2011 年 3 月 11 日換算)。

*** : 同位体比 (2011 年 3 月 11 日換算)。

Cs と同様分析した植物試料中の Sr の質量分析では、安定同位体である $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比に差は見られたが、放射性 Sr は検出下限以下であった⁶⁾。今回観測した $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比が福島第一原子力発電所事故により放出されたものである場合、数 10 MBq/g の ^{90}Sr が存在する必要があるが、チェレンコフ光測定でも 1 Bq/g 以下であることを確認しているため⁴⁾、植物が生息している土壌等の他の要因が関与していると思われる。また、照射した天然 U より回収した Sr の質量分析の結果、放射性 Sr 同士での分析は 580 日以降では難しいことを確認している。このため、安定同位体を用いた分析等が必要になるが、本分析法でのダイナミックレンジの関係から、検出は放射性 Cs の場合よりも難しくなることが予測される。

4. まとめ

福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された Cs および Sr の分析への質量分析法の適用性を検討するため、京都大学研究用原子炉での U の中性子照射による放射性 Cs および Sr の生成を行い、Cs および Sr の分離・分析プロセスの検討を行った。両元素共に 10^{-14} g 程度の塗布量の核種を検出可能であることを確認した。

検討した方法を福島県下で採取した植物試料に適用し、Cs および Sr の分離・分析を試みた。Sr の分析では、福島第一原子力発電所事故による放射性 Sr を今回分析した試料からは確認されなかった。分析方法のさらなる検討により、検出下限の改良が期待できる。Cs の分析の結果、同事故に由来する放射性 Cs を観測し同方法の有用性を確認した：① ^{134}Cs , ^{135}Cs , ^{137}Cs が確認できている期間中は、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ および $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比および同位体比の 2 次元分析による放出源の同定、② ^{134}Cs が検出下限以下になった場合でも、 ^{135}Cs の分析より、同事故に由来する放射性 Cs の分析が可能であることを確認した。

参考文献

- 1) Shibahara Y., Kubota T., Fujii T., Fukutani S., Ohta T., Takamiya K., Okumura R., Mizuno S., Yamana H. (2014) J. Nucl. Sci. Technol. 51: 575-579.
- 2) Shibahara Y., Kubota T., Fujii T., Fukutani S., Ohta T., Takamiya K., Okumura R., Mizuno S., Yamana H. (2015) J. Radioanal. Nucl. Chem., 303: 1421-1424.
- 3) Ludwig S. B., Renier J. P. Standard- and Extended-Burnup PWR and BWR Reactor Models for the ORIGEN2 Computer Code: Oak Ridge National Laboratory; 1989, ORNL/TM-11018.
- 4) http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chousa/gijyutu/017/shiryo/_icsFiles/afiedfile/2011/09/02/1310688_1.pdf (accessed on Dec. 16, 2013).
- 5) Kubota T., Shibahara Y., Fujii T., Fukutani S., Ohta T., Takamiya K., Okumura R., Mizuno S., Yamana H. (2015) J. Radioanal. Nucl. Chem. 303: 39-46.
- 6) Shibahara Y., Kubota T., Fukutani S., Fujii T., Takamiya K., Ohta T., Shibata T., Yoshiwaka M., Konno M., Mizuno S., Yamana H., Application of mass spectrometry for analysis of cesium and strontium in environmental samples obtained in Fukushima prefecture-Analysis of Cesium Isotope Compositions in Environmental Samples by Thermal Ionization Mass Spectrometry-2, Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future, Springer, in press.
- 7) Nishihara K., Iwamoto H., Suyama K. (2012) JAEA-Data/Code 2012-018 [in Japanese]

福島県林業研究センターにおける 幹材部からの放射性セシウム除去の試み

小川秀樹^{1,2)} *、伊藤博久¹⁾、村上香¹⁾、横田かほり²⁾、新井志緒²⁾、吉田博久²⁾

¹⁾福島県林業研究センター

²⁾首都大学東京大学院都市環境科学研究科

* ogawa_hideki_01@pref.fukushima.lg.jp

福島県林業研究センターでは木材に含まれる放射性セシウム (Cs) を除去あるいは低減する方法について様々な検討を行っている。既報の小試験体を用いた試験では、65 °Cあるいは90 °Cの乾燥により小試験体表面への放射性Csの移動が確認され、また小試験体を各種溶液に浸漬することで溶液中に放射性Csが溶出することを確認している。小試験体の試験結果から得られた知見を元に、スギ成木の材部の放射性Cs汚染を葉枯乾燥により軽減する方法を検討した。葉枯乾燥は葉の蒸散作用を利用した木材乾燥方法であり、この乾燥を行った際の材部の放射性Cs濃度への影響を調査した。2013年10月に二本松市の調査地で38年生のスギを3本伐倒し、8ヶ月間林内に存置した。2本は葉枯乾燥を行い、1本はコントロールとして枝葉をすべて除去した。その結果、葉枯乾燥木の含水率はコントロールに比べて減少したが、含水率の減少に応じた放射性Cs濃度の変化は確認されなかった。しかし、葉枯乾燥木の辺材の放射性Cs濃度は先端では増加し、中央及び根元では減少した。このことから葉枯乾燥による辺材中の水分の移動に伴い、放射性Csも先端方向に移動したと推察された。また心材では葉枯乾燥による明らかな汚染軽減効果は確認されなかった。

キーワード 放射性セシウム、スギ、材、葉枯乾燥、汚染

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所 (FDNP) 事故による放射性セシウム (Cs) は、事故から4年が経過しても東日本の各都県で広く観測されている。

福島県の70%を占める森林も広く汚染され、事故直後から森林や樹木の汚染状況調査が実施されている。林野庁は事故の半年後から福島県内の3サイトで土壌や落葉層、樹木の葉や樹皮を調査し、空間線量率と各種部位の放射性Cs濃度に正の相関があることを示している¹⁾。また、筆者らは樹木の汚染状況を調査し、材部の放射性Cs濃度は、樹皮や枝葉の放射性Cs濃度に比べると非常に低いレベルにあること²⁾、スギの材部の放射性Cs濃度が、同一樹木内でも辺材や心材、あるいは高さ方向で異なる事を報告している³⁾。さらにMahara *et al.* (2014) は、スギ及びコナラ材の放射性Cs濃度の推移をシミュレートし、経根吸収による材の放射性Cs濃度の増加の可能性は低いものの、放射性Csの土壌への移行や根の分布状況によっては、将来的に放射性Cs濃度が増加する可能性があることを示唆している⁴⁾。

製材品の利用については放射性物質に関する基準は現在定められていない。しかし、一方でより放射性物質を含まない木材を求める消費者心理や材濃度の将来的な推移の可能性も考慮し、福島県林業研究センターでは、材部に含まれる放射性Csを除去する方法を事故直後から検討している。また、材部の放射性Csの除去方法に関する調査は、材中の放射性Csの

存在状況に関する基礎的な知見が得られる可能性もある。このような知見は、例えばきのこ栽培用のコナラ等原木の汚染軽減方法の検討等、多様な分野への応用の可能性がある。

福島県林業研究センターで実施してきた既報の小試験体を用いた試験結果を紹介し、さらにそれらの試験結果を元にした成木レベルでの調査結果を報告する。

(1) 乾燥処理による小試験体からの放射性Cs除去の試み⁵⁾

製材の過程で一般的に実施されている人工乾燥処理による材中の放射性Csの移動効果を調査した。小試験体 (85 * 85 * 70 mm) を65 °Cあるいは90 °Cで24時間乾燥処理を行った後に、小試験体の表面を5 mm切削した。表面切削部の放射性Cs濃度を、未乾燥の小試験体のもものと比較したところ、乾燥処理をした場合の放射性Cs濃度は未乾燥の場合に比べ約30%高い傾向を示した。このことから、乾燥が進む中で材に含まれる水分が試験体表面に移動するとともに、放射性Csも一部が表面に移動したと推察された。ただし、試験体サイズが大きくなるにつれて、その効果は減少すると考えられた。

(2) 浸漬処理による小試験体からの放射性 Cs 除去の試み⁶⁾

小試験体を各種溶液に浸漬することによる放射性 Cs の溶出効果を調査した。小試験体 (55 * 55 * 80 mm) を各種溶液に 30 日間浸漬し、小試験体に含まれる放射性 Cs 量の変化を数日間隔で測定した。その結果、いずれの溶液でも放射性 Cs の溶出が確認された。特に 1.0 % のリン酸二水素カリウム水溶液に浸漬した際の溶出割合が最も高く、浸漬 30 日間で小試験体に含まれる ¹³⁷Cs 量は、スギは溶出前の約 20 %、ミズナラは約 30 % にまで減少した。

(3) 葉枯乾燥による樹木からの放射性 Cs 除去の試み

浸漬試験の結果から材中の放射性 Cs の多くは水に可溶性な状態で存在し、さらに乾燥試験の結果から乾燥時の水分の移動とともに放射性 Cs も移動することが確認された。これらの特性を元に、スギ成木から放射性 Cs を除去する方法を検討した。

葉枯乾燥は、伐採木を枝葉が付いたままの状態の数ヶ月間林内に放置し、葉の蒸散作用により材部の含水率を低下させる乾燥方法の一つである。葉枯乾燥を行った材は材色向上、防虫効果から一般的な材に比べて取引価格が高く、また乾燥や運搬コストが低減するといわれている⁷⁾。葉の蒸散に伴い材部の水分を数ヶ月かけてゆっくりと移動させる方法であることから、材の含水率の低下に伴い材部の放射性 Cs が低減する、あるいは水の移動に伴い放射性 Cs が移動する効果を期待し調査を実施した。

2. 調査方法

2013 年 10 月に福島県二本松市の森林において、隣接して生育するほぼ同様の樹高及び直径の 38 年生のスギを 3 本伐倒し、2014 年 6 月までの 8 ヶ月間、林内で葉枯乾燥を行った。森林内の空間線量率は地上高 1 m で 0.63 μ Sv/h であった。各立木の樹高等データを表 1 に示す。3 本のうち 2 本 (No. 1, No. 2) は枝葉を付けたままとし、残りの 1 本はコントロールとして枝葉をすべて除去した。心材及び辺材の含水率及び放射性 Cs 濃度を 2 回 (伐採直後、伐採から 8 ヶ月後) 測定した。測定箇所は立木の先端からの距離が 5 m、10 m、15 m の 3 カ所とした。5 m は立木の先端部、10 m は中央部、15 m は根元部に位置し、木材生産のため利用価値が高いのは中央部及び根元部となる。なお、測定箇所を根元からの距離ではなく先端からの距離とした理由は、筆者らの調査により、スギ材部の汚染分布が立木先端からの距離に依存することが明らかとなったためである³⁾。

表 1 試験に供したスギ立木の特徴

	樹高 m	* ¹ 枝下高 m	* ² 直径 cm
No. 1	18.1	12.7	26
No. 2	17.2	10.2	24
コントロール	16.8	未測定	23

*¹ 地表面から最下の生枝までの距離

*² 地上高 1.2 m 位置における直径

伐採木からの材の採取方法は以下のとおりとした。伐採直後の採取では、立木の上面の樹皮を 10 cm * 10 cm で剥皮し、成長錐 (直径 12 mm, 長さ 300 mm) を立木の中心方向に陥入し、中心から形成層までの円柱形の材を採取した。伐採から 8 ヶ月後の採取では、チェーンソーを用いて立木を切断し、厚さ 30 cm の円盤を採取した。円盤の樹皮を剥離後に、幅 20 mm、高さ 20 mm、長さが形成層面から髓心までの直方体サンプルを採取した。いずれのサンプルも辺材と心材の境界を色調から判断して切断した。

それぞれのサンプルを 100 °C で 24 時間乾燥して含水率を求め、その後粉碎してゲルマニウム半導体検出器 (CANBERRA : GC2518) で 3,000 ~ 14,400 秒で乾燥重量あたりの ¹³⁷Cs 濃度を測定した。なお、含水率は以下により算出した。

$$\text{含水率 (Wc) [\%]} = (\text{生重量} - \text{乾燥重量}) / \text{乾燥重量} \times 100$$

3. 結果および考察

(1) 葉枯乾燥による材の含水率への影響

葉枯乾燥による含水率の低減の効果を確認するため、先端から 5 m、10 m、15 m 位置における、伐採時及び 8 ヶ月後の含水率を図 1 に示す。辺材では No. 1、No. 2、コントロール、いずれの立木でも含水率の減少が認められたが、葉枯乾燥を行った No. 1、No. 2 の方が、コントロールに比べてより顕著に含水率は減少していた。No. 1 及び No. 2 はともに含水率が 40 % 程度に減少し、また採取位置による大きな違いも無かった。

心材では No. 1 のすべての位置、及び No. 2 の 15 m 以外で含水率が減少したのに対し、コントロールでは 5 m 及び 10 m で含水率が上昇していた。このことから、心材においても葉枯乾燥の効果が確認された。一方、No. 2 に比べて No. 1 の方が含水率は大きく減少し、さらに No. 1 では先端に近い位置ほど減少幅は大きかった。これは葉枯乾燥前の No. 1 の心材含水率がその他の立木より高めで、また 5 m の位置で特に含水率が高かったためと考えられる。

以上から、8 ヶ月間の葉枯乾燥により辺材及び心材どちらにおいても含水率の低減効果が確認された。このことから葉の蒸散にともない材中の水分が枝葉方向に移動したと考えられた。なお、コントロールでは辺材の含水率は低下したものの、心材の 5 m 及び 10 m で含水率が上昇しており、葉枯乾燥とは異なる水分移動が推測された。

(2) 葉枯乾燥による材の ^{137}Cs 濃度への影響

葉枯乾燥による材の ^{137}Cs 濃度への影響を確認するため、伐採時及び8ヶ月後の辺材及び心材の ^{137}Cs 濃度を図2に示す。No. 1 および No. 2 の辺材濃度の変化傾向は共通しており、5 m で増加、10 m および 15 m で減少していた。一方コントロールの辺材では5 m および 15 m で減少、10 m では増加し、葉枯乾燥した立木と増減傾向が異なっていた。

心材の ^{137}Cs 濃度の変化は辺材に比べると小さく、また増減傾向はそれぞれの立木で異なっていた。No.1 では5 m 及び 10 m で濃度は減少したのに対し、15 m では増加していた。また、No. 2 ではほとんど変化は無く、コントロールでは増加傾向にあった。

以上から、No. 1 及び No. 2 の辺材 ^{137}Cs 濃度の変化は葉枯乾燥の影響であると考えられたが、心材では明らかな葉枯乾燥の影響は確認できなかった。

(3) 葉枯乾燥による材の含水率と ^{137}Cs 濃度の関係性

含水率と ^{137}Cs 濃度の関係性を検討するために、伐採時から8ヶ月後に至る含水率及び ^{137}Cs 濃度の変化を図3に示した。それぞれの変化量は、8ヶ月後の値を伐採時の値に対する比率(%)で表した。

その結果、No. 1 及び No. 2 の辺材の含水率は、いずれの採取位置でも伐採時の30%ほどに減少していたが、辺材の ^{137}Cs 濃度は10 m および 15 m で60-90%程度に減少、さらに5 m では180%の増加し、含水率と ^{137}Cs 濃度の変化率は一致しなかった。心材も同様で、それぞれの立木や採取位置で、含水率及び ^{137}Cs 濃度の変化率はほとんど一致しなかった。このことから、材の含水率の低下がそのまま ^{137}Cs 濃度の低下に繋がらないことが明らかとなった。

No. 1 及び No. 2 の辺材では5 m で ^{137}Cs 濃度が増加、10 m 及び 15 m で減少しており、この傾向はコントロールとは異なっていた。葉の蒸散に伴い辺材中の水は先端方向に移動したと考えられるが、辺材での濃度変化は、水の移動に伴い放射性Csも一部先端方向に移動した為であると推測された。心材ではそれぞれの立木で ^{137}Cs 濃度の増減傾向が異なっており、葉枯乾燥による放射性Csの移動効果は不明であった。

なお、コントロールの5 m 及び 15 m で辺材の ^{137}Cs 濃度の減少が確認されたが、心材の ^{137}Cs 濃度がすべての位置で増加していることから、辺材中の放射性Csが心材方向に移動した為であると推察された。心材の5 m 及び 10 m における含水率の上昇もこの移動を示唆している。このことから、枝葉無しのまま林内に残置しても、汚染軽減効果は期待できないと考えられた。

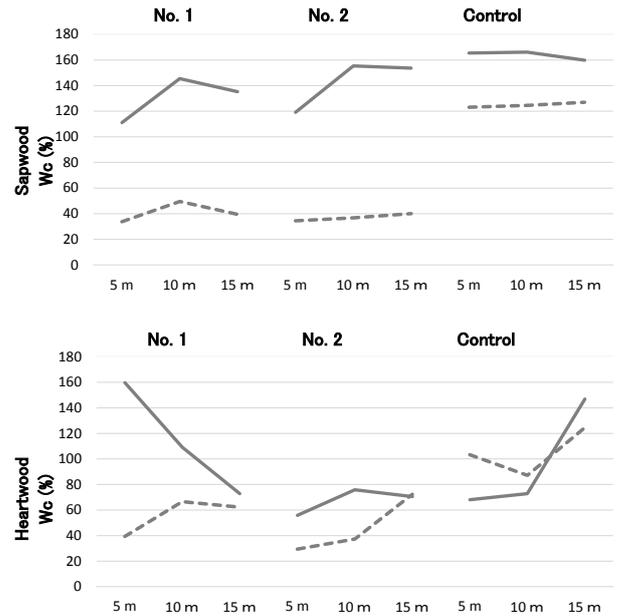


図1 先端からの距離が5 m、10 m、15 m の位置における辺材（上図）及び心材（下図）の含水率 (Wc)。伐採時の値を実線で、葉枯乾燥8ヶ月後の値を破線で示した。

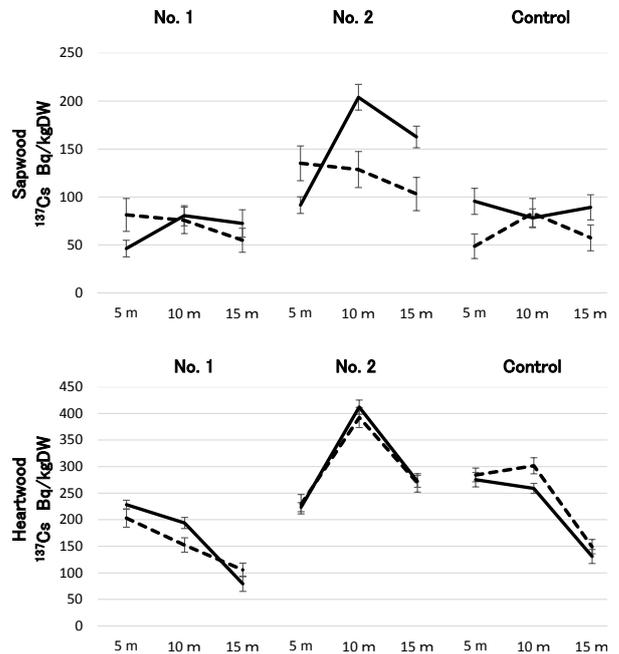


図2 先端からの距離が5 m、10 m、15 m の位置における辺材（上図）及び心材（下図）の ^{137}Cs 濃度。伐採時の値を実線で、葉枯乾燥8ヶ月後の値を破線で示した。

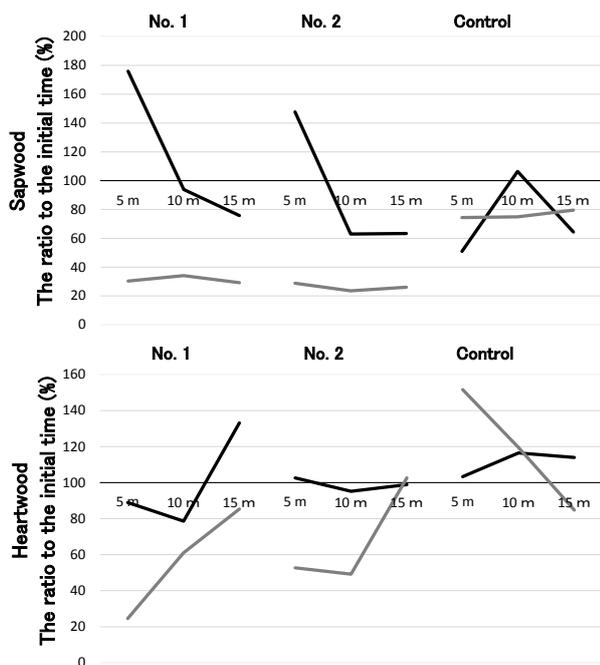


図3 先端からの距離が5 m、10 m、15 mの位置における辺材(上図)と心材(下図)の¹³⁷Cs濃度(黒)と含水率(灰)の変化率。変化率は伐採時の値に対する葉枯乾燥8ヶ月後の値の比率。

4. まとめ

当センターでは、製材品利用者の放射性Csに対する不安を軽減する観点から、木材中に含まれる放射性Csを除去あるいは汚染を低減する手法について検討してきた。既報では、木材の小試験体を65℃あるいは90℃で乾燥することで放射性Csが材表面に移動する現象や、リン酸二水素カリウム水溶液への浸漬により材中の放射性Csが溶出する現象を確認し、これまで報告を行ってきた^{5,6)}。これらの結果は、材中の放射性Csが可溶性で比較的動きやすい状況にあることを示していると考えられる。

これらの結果を踏まえ、木材を製材できるサイズのスギ成木の材部から、葉枯乾燥によって放射性Csを除去する方法を検討した。その結果、葉枯乾燥による含水率の減少に応じた¹³⁷Cs濃度の減少は見られなかったが、葉の蒸散作用により辺材中の水分が先端方向に移動するに伴い、¹³⁷Csも先端方向に移動したと推察される現象が確認された。また、木材として利用するのは主に樹木の中央及び根元部であることから、葉枯乾燥は木材の辺材の放射性Cs濃度低減には有効な可能性があると考えられた。

ただし、葉枯乾燥による心材中の¹³⁷Cs濃度の低減効果については、今回の調査では確認されなかった。また筆者らはスギ立木内では放射性Csが辺材から心材方向に移動していることを報告していることから³⁾、スギにおいては葉枯乾燥の効果は限定的と考えられた。しかし、心材への移行が進んでいない他の樹種

では葉枯乾燥が有効となる可能性もあることから、引き続き調査を進めたい。

福島県林業研究センターでは今後とも福島県産木材の安心安全な利用を進めるための試験研究を進めていく予定である。

5. 参考文献

- 1) 林野庁, 2011. 森林内の放射性物質の分布状調査結果について(第二報). http://www.rinya.maff.go.jp/j/press/hozen/111227_2.html (accessed 20 Aug 2015)
- 2) 小川秀樹, 伊藤博久, 村上海, 熊田淳, 平野由里香, 伊芸滋光, 横田かほり, 吉田博久, “東京電力福島第一原子力事故由来の放射性物質によるスギ初期汚染状況”, *福島県林業研究センター研究報*, **47**, 2014, <http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/95864.pdf> (accessed 20150722).
- 3) 小川秀樹, 伊藤博久, 村上海, 熊田淳, 平野由里香, 伊芸滋光, 横田かほり, 吉田博久, “フォーアウト1年度におけるスギ幹材部の放射性Cs濃度分布”, *Proceedings of the 15th workshop on environmental radioactivity*, **7**, 252-260, 2014.
- 4) Mahara, Y., Ohta, T., Ogawa, H., Kumata, A., 2014. Atmospheric direct uptake and long-term fate of radiocesium in trees after the Fukushima nuclear accident. *Scientific Reports*, **4**, 7121.
- 5) 村上海, 小川秀樹, 伊藤博久, 熊田淳, 田中孝, 川井安生, “スギ木片の乾燥処理による放射性セシウム汚染の低減効果”, *福島県林業研究センター放射性物質関連研究発表会要旨*, 2014, http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/life/110976_210768_misc.pdf (accessed 20150722).
- 6) 伊藤博久, 小川秀樹, 村上海, 熊田淳, “原木における放射性セシウム汚染軽減技術の開発”, *福島県林業研究センター放射性物質関連研究発表会要旨*, 2013, <http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/13330.pdf> (accessed 20150722).
- 7) 徳島県, “スギ葉枯らし乾燥の手引き一付加価値向上のために”, *徳島県*, 1988.

森林廃棄物の安全な燃焼処理システム

吉田博久^{1*} 小川秀樹^{1,2} 新井志緒¹ 横田かほり¹ 伊芸滋光¹ 中村立子¹

1) 首都大学東京 都市環境科学研究科 東京都八王子市南大沢 1-1

2) 福島県林業研究センター 福島県郡山市安積町成田字西島坂 1

* yoshida-hirohisa@tmu.ac.jp

放射性物質を含む樹皮や枝葉などの森林廃棄物を燃焼減容化する時に発生する燃焼ガスならびに燃焼灰の処理システムを開発した。実験室規模の燃焼試験では燃焼温度が800℃以上の完全燃焼では、樹皮に含まれている放射性セシウムの30～35%が燃焼ガスに移行した。燃焼ガス中の放射性セシウムは水による洗浄で補足することが可能であった。小型燃焼炉(100 kWh)を対象とした燃焼ガス処理システムを構築し、放射性セシウムを含む樹皮や葉の燃焼実証試験を行った。燃焼実証試験における放射性セシウムならびに物質収支から、森林廃棄物に含まれる放射性セシウムの38%が燃焼ガスに移行した。燃焼ガスを水で洗浄しガス中の放射性セシウムを回収した。燃焼灰には放射性セシウムが約28倍に濃縮され、減圧吸引によって燃焼灰を回収した。燃焼灰ならびに燃焼ガスの洗浄によって95%の放射性セシウムを回収することができた。

キーワード 森林廃棄物, 放射性廃棄物, 燃焼, 燃焼ガス処理, 燃焼灰処理

1. はじめに

原発事故によって東日本一帯に放射性物質による環境汚染が生じた。福島県の二大産業である農業と林業は大きな被害を受け、4年が経過して農業の復興は進んでいるが、県土の70%(約970,000 ha)を占める森林が汚染されているため林業の復旧は遅れている。事故後、福島県内ではほとんどの森林作業が停滞し、整備されないままに放置される森林が多く、山火事などによる放射性物質の拡散が懸念されている。特に避難区域を含む阿武隈山地では、沈着した放射性セシウムの多くが樹木の樹皮、枝葉に残存しており、今後の森林経営に大きな問題となる可能性がある¹⁻³⁾。福島県は計画的間伐を2013年から開始し、森林整備を進めている。通常の間伐では、1000 haのスギ林に対して立木の10%(150,000 m³)が間引きされ、間伐された立木の枝や葉(30,000 m³)は林地に残され、製材所で樹皮(15,000 m³)が取り除かれる。事故前は樹皮や葉、小枝は農業用あるいは林地の堆肥として利用されていたが、事故後これらは放射性物質を含むため利用は制限されている。間伐によって発生する樹皮などは年間で3,445,000,000 m³になると予想され、安全な減容化が求められている。

非汚染バイオマスであれば、堆肥化に加えバイオマス発電や発酵によるガス化などの方法が可能であるが、放射性物質を含み水分の多い樹皮や枝葉の安全で有効な処理方法は必ずしも確立されていない。樹皮が集積する製材所には小型(100～500 kWh)の焼却施設があり、樹皮や端材が焼却処理されていたが、燃焼の排気ガス規制が厳しくなってからほとんどの製材所で稼働していない。これらの焼却炉は脱硫設備や飛灰集塵設備が備わっていないことも多く、放射性物質を含む森林廃棄物

処理には利用することはできない。

我々は、放射性物質を環境中に放出することなく、また取り扱う作業員の被ばくを低減することを目指した、既設の小型焼却施設に設置する燃焼処理システムを設計し、実験室での実験とミニプラント規模の実証試験を行ってきた。本報告では、試作した処理システムの概要と実験室レベルの燃焼試験ならびに実証試験の結果を述べる。

2. 実験

(1) 試料

福島県林業研究センターで2011年に採取したマツ葉、スギ葉、スギ樹皮、スギ辺材を用いた。試料は60℃で3日間乾燥してから熱分解測定ならびに燃焼試験に用いた。乾燥前の質量を基準に各試料の水分率はスギ樹皮(28.6%)、スギ葉(56.8%)、スギ辺材(61.8%)、スギ心材(54.3%)、マツ葉(10%)であった。

(2) 測定

試料の熱分解挙動を明らかにするため、熱重量/示差熱分析(日立ハイテクサイエンス社製TG/DTA7200)に発生気体分析用にフーリエ変換赤外分光計(日本分光製FTIR650、MCT検出器)を接続して測定した⁴⁾。乾燥窒素ならびに乾燥空気雰囲気、走査速度20 K/minで室温から900℃まで昇温し、発生気体のFTIR測定は4℃毎に行った。

燃焼灰の電子顕微鏡観察ならびに元素分析は、電界放射型透過型電子顕微鏡(日本電子製JEM-3200 FS、300 kV)を用いて行った。

試料の放射能濃度は高純度ゲルマニウム半導体検出装置(SEIKO EG&G社製SEG-EMS)を用いて、固体試料はU8容器(100 ml)に試料を入れて検出下限値が1-2 Bq/kgになるように測定時間を10,000 - 40,000秒で、

液体試料は 2 L マリネリ容器に入れて検出限界値が 0.2 Bq/L になる条件で行った。放射能減衰は 2012 年 3 月 1 日を基準日として補正した。

(3) 燃焼試験

実験室規模の燃焼試験は石英ガラス製の燃焼容器を用いて、10 g のスギ樹皮 (20,000 Bq/kg) をアルミナるつぼに入れて酸化雰囲気で行った。燃焼温度は 300～900℃で行い、燃焼ガスはアスピレータで吸引し水冷の熱交換器を経由して、全量を 2 L の水で洗浄した。放射能濃度測定は、燃焼試験の前後でアルミナるつぼごと U8 容器に入れて行った。

燃焼実証試験は後述する燃焼用装置を用いて 2014 年 3 月に福島県林業研究センターで行った。2 回の燃焼試験を 2.3 kg の松葉、3.5 kg のスギ樹皮、0.4 kg のスギ端材を用いて行った。

3. 結果と考察

(1) 実験室での試験

酸化雰囲気 (完全燃焼条件) ならびに不活性雰囲気 (不完全燃焼条件) でのスギ樹皮の TG/DTA 曲線を図 1 に示す。どちらの条件でも質量減少は 200℃以下、200～400℃、400℃以上の三段階で進行する。TG/DTA に接続した発生気体分析から、第一段階の質量減少のうち、150℃以下での減少は水の脱離によるもので、第二段階の質量減少は主にセルロースとヘミセルロースの熱分解によることが判った。400℃以上の温度では主に脱水素反応によって樹皮の燃焼が進行する。

酸化雰囲気での熱分解による発熱は、200～400℃と

400℃の二段階で起こる。松葉、スギ葉、辺材では二段階の発熱が明確に分離されるが、樹皮では 200～550℃の温度範囲で連続的な発熱が観察された。不活性雰囲気では、水の蒸発熱のみでほとんど発熱が観察されない。酸化雰囲気では観察された熱分解エンタルピー (熱分解発熱量 ΔH を各段階の減少質量 ΔW で除した値の和) は、樹皮が最も高く (12.2 kJ/g)、スギ辺材 (11.6 kJ/g)、スギ葉 (10.6 kJ/g)、マツ葉 (6.9 kJ/g) であった。窒素雰囲気での不完全燃焼では、スギ樹皮の 890℃での残渣が 29%なのに対し、完全燃焼条件では 1.7%であった。

実験室規模の酸化雰囲気での燃焼試験での質量減少率ならびに ^{134}Cs と ^{137}Cs 濃度の減少率を表 1 に示す。質量ならびに放射性セシウムの減少率は燃焼前後の樹皮と燃焼灰の質量ならびに ^{134}Cs と ^{137}Cs 濃度から求めた。質量減少率は TG/DTA 測定結果とほぼ同じで、燃焼試験が完全燃焼条件で行われたことを示唆している。燃焼ガス温度は熱交換器の後では 80～100℃であった。放射性セシウムは ^{134}Cs 、 ^{137}Cs どちらも燃焼温度が高くなると気体として流出する量が増える。非放射性セシウムの蒸気圧 (0.011 Pa / 302 K) を考えると ^{134}Cs 、 ^{137}Cs も 100℃では同程度の蒸気圧であると考えられる。500℃以上の燃焼温度では、気化した ^{134}Cs 、 ^{137}Cs は樹皮に含まれていた量の 30～35%になる。

燃焼試験で発生した燃焼ガスは 2 L の水で全て洗浄して、すべての燃焼試験終了後の洗浄水の放射性セシウム濃度は 153 Bq/L (^{137}Cs : 90 Bq/L, ^{134}Cs : 63 Bq/L) であった。これは燃焼ガス中の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の 98%に相当する。未回収の 2%の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs は熱交換器などに付着していると考えられる。

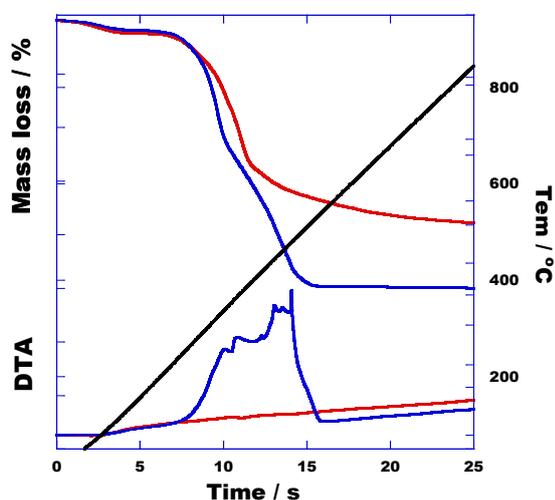


図1 スギ樹皮の酸化雰囲気 (青) と窒素雰囲気 (赤) での TG/DTA 曲線、温度変化 20 K/min (黒)



図2 燃焼ガス処理システムの外観、挿入写真はスクラバー、下段はジェット水流、上段は三口コネクター

表 1 スギ樹皮の酸化雰囲気での燃焼による質量減少率と放射性セシウム減少率

燃焼温度(℃)	300	350	400	450	500	800	900
質量減少率(%)	54	65	85	86	87	98	99
^{134}Cs 減少率(%)	2	13	27	22	34	35	36
^{137}Cs 減少率(%)	1	15	24	30	31	32	31

(2) 燃焼ガス処理システムの概要

実験室での燃焼試験で燃焼ガスに含まれる ^{134}Cs 、 ^{137}Cs は水で洗浄することで回収できることを確認できたので、実証試験規模の燃焼炉への設置を目指した燃焼ガス処理システムを設計した⁵⁾。一般的な燃焼炉の燃焼温度 $800\sim 900^\circ\text{C}$ と発熱量 100 kWh を想定した設計を行った。燃焼ガス洗浄用の水は 550 L で、燃焼中は自然冷却で水温上昇を抑えることにした。発熱量が大きい場合は熱交換器か小型冷却器が必要になる。燃焼発熱量の大きいスギ樹皮であれば1時間当たり約 40 kg を燃焼処理できる条件である。

燃焼ガス処理システムの外観を図2に示す。処理システムは、燃焼炉、燃焼ガス吸入部、洗浄用水槽、燃焼ガス洗浄水のろ過システム、燃焼灰処理システムで構成される。燃焼炉にはウッドストーブ 1630CB (Morsø社製, Finland) を用いた。燃焼炉の煙突に燃焼ガス処理システムへの導入口を装着し、燃焼ガスはスクラバーにおいてポンプで加圧された水流によって吸引・洗浄される。洗浄水は水槽に送りこまれポンプで循環して洗浄を繰り返す。洗浄水は燃焼試験終了後にプルシアンブルーを担持したフィルターでろ過して放射性セシウムを除去し、再利用が可能である。

スクラバーには上段に三口コネクターが接続していて、燃焼ガス、洗浄水ろ過システム、燃焼灰吸引システムが接続される。現段階では、燃焼ガス処理、洗浄水ろ過、燃焼灰処理は独立して行うが、燃焼ガス処理と洗浄水ろ過は同時に行うことができる。

(3) 実証試験

この燃焼ガス処理システムを利用して、実証試験を行った。1回目はマツ葉 2.3 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: $22,000\text{ Bq/kg}$) とスギ樹皮 1 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: $10,800\text{ Bq/kg}$) で、2回目はスギ樹皮 2.5 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: $15,000\text{ Bq/kg}$) とスギ辺材 0.4 kg ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$: 50 Bq/kg) を燃焼処理した。燃焼時間は1回目が40分、2回目は50分であった。1回目の燃焼開始時にはマツ葉から黒い煙が出ていて、低燃焼温度ではマツ葉は不完全燃焼であった。燃焼炉の温度が高くなると完全燃焼に近い条件で燃焼試験が進行した。赤外線放射温度計で測定した燃焼温度の変化は約15分で $400\sim 700^\circ\text{C}$ に上昇した。燃焼炉の外側温度は燃焼開始後20分で 150°C になり、その後はほぼ一定温度であった。

燃焼ガスは処理装置のスクラバーで高速ジェット水流による洗浄を行った。燃焼試験の外気温度は $4\sim 6^\circ\text{C}$ で水温は燃焼開始には 5°C であったが、燃焼終了後には 45°C になっていた。また約 5 L の水が蒸発していた。燃焼ガスによる熱エネルギーは 2.9 kWh で全発熱量の約20%であった。製材所などに設置されている小規模燃焼炉 ($100\sim 500\text{ kWh}$) で木質系バイオマスとして利用する場合、熱エネルギーとして用いるのが最もエネルギー効率が良い。

2回の燃焼終了後に洗浄水タンク中の水の表面に、マツ葉の不完全燃焼によって生じたと考えられるススが浮かんでいた。燃焼試験終了後、1晩放置して表面のススを回収した。燃焼炉とスクラバー間の煙道を解体し、内部に付着しているススを 100 L の水で回収した。

2回の燃焼実証試験における放射性セシウムと質量の収支の概要を図3に示す。燃焼ガスならびに煙道に付着したススの回収は水を利用しているため、燃焼炉から流失した気体ならびに固体の放射性セシウムは水に分散した状態で物質量を L で示している。森林廃棄物から燃焼によって気化した放射性セシウムは煙道内部に付着したススに高濃度で吸着していた。ススは結晶化度が低く非晶性の活性炭として放射性セシウムを吸着したと考えられるが、現在放射性セシウムを吸着したススの構造解析を進めている。

2回の燃焼試験で生じた燃焼灰の量は燃焼に用いた森林廃棄物の2.25%で、これは 750°C での完全燃焼条件の残渣に相当する。赤外線放射温度計で測定した燃焼炉温度は最大で 700°C であったが、実際の燃焼はそれよりも高い温度であったと考えられる。ススは燃焼初期の低温燃焼条件で発生したと考えられる。実証試験での質量減少と放射性セシウムの移行を考慮した、燃焼灰への放射性セシウムの濃縮倍率は27.6倍であった。

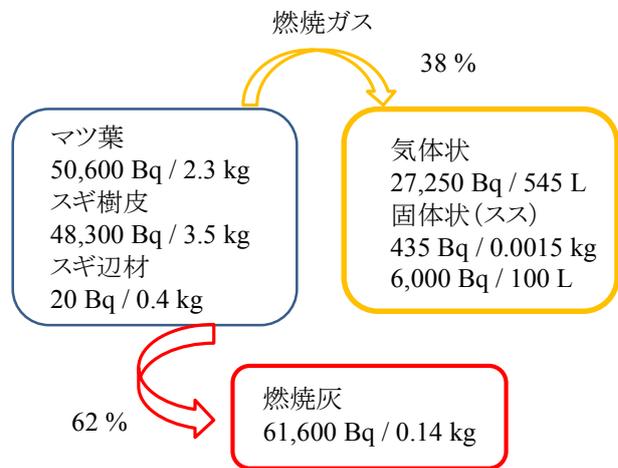


図3 燃焼実証試験における放射性セシウムの移行量と物質収支。

焼却灰に残存した放射性セシウムは燃焼に用いた森林廃棄物に含まれていた量の62%で、38%が燃焼ガスに含まれていた。完全燃焼条件では、燃焼温度が高くなるほど気体状態の放射性セシウムが多くなる。これらの値は実証試験での実際の最高燃焼温度は 900°C よりも高かった可能性を示している。森林廃棄物に含まれていた放射性セシウム ($98,920\text{ Bq}$) の95%が燃焼ガス処理水 ($22,685\text{ Bq}$) と燃焼灰 ($61,600\text{ Bq}$) として回収された。この差の放射性セシウムは、燃焼炉ならびに洗浄できなかった煙道に残存していると考えられる。放射性物質を含む廃棄物を燃焼処理する施設では、施設の設定の汚染状況を把握し、将来の設備廃棄に備える必要がある。

燃焼ガスを洗浄した水 (545 L , 50 Bq/L) と煙道を洗浄した水 (100 L , 60 Bq/L) はプルシアンブルーを担持した吸着フィルター⁶⁾ で2時間処理することで、 0.2 Bq/L 以下まで浄化することができた。

(4) 燃焼灰処理

回収した燃焼灰 ($440,000\text{ Bq/kg}$, 0.14 kg) に対して、広

角 X 線回折による粉末結晶解析ならびに透過型電子顕微鏡観察とエネルギー分散 X 線分光解析 (EDX) を行った。粉末結晶解析から、燃焼灰の主成分は酸化カルシウムであった。また、EDX では複数の元素が検出された。最も多い成分元素はカルシウム (3.69 keV, CaK α) で、多い順番にアルミニウム (1.487 keV, AlK α)、銅 (8.0 keV, CuK α)、リン (2.01 keV, PK α) であった。含有量は少ないがガリウム (9.24 keV, GaK α)、鉄 (6.38 keV, FeK α)、ホウ素 (0.183 keV, BK α)、マンガン (5.89 keV, MnK α)、マグネシウム (1.25 keV, MgK α)、シリカ (1.74 keV, SiK α)、ストロンチウム (14.1 keV, SrK α)、亜鉛 (8.63 keV, ZnK α) が含まれていた。しかしセシウム (30.85 keV, CsK α) は検出されなかった。440,000 Bq/kg (^{137}Cs : 255,800 Bq/kg, ^{134}Cs : 184,000 Bq/kg) は濃度換算すると 0.8 ppb に相当し、放射性セシウムが微量で EDX の検出限界値以下であることならびに不均一な分散をしているなどが EDX で検出されなかった要因と考えられる。これらの元素の内、カルシウム、リン、マグネシウム、マンガン、亜鉛は樹木組織由来の元素であるが、シリカなどの土壌由来の元素も検出されていて、樹皮に土壌粒子が付着していることを示す。

電子顕微鏡観察からは焼却灰は長さ 10~20 μm 、幅 0.5~1 μm 程度の鋭敏な多角形の形状をしており、作業者が吸引によってアスベストと同様の健康被害を生じる可能性がある。さらに放射性物質が約 30 倍に濃縮されている焼却灰を処理するために、燃焼灰を減圧吸引し自動で真空パックする処理システムを開発した。燃焼ガス処理システムの三口コネクターを利用して、減圧で燃焼灰を吸引し Fig.4 に示す燃焼灰処理装置に送入する。吸引された燃焼灰はサイクロン (A) で分級され、真空パック装置 (B) に設置されたポリエチレン製バックに集まる。1 回の操作で 300 g までの燃焼灰を処理することができる。燃焼灰を吸引した排気は燃焼ガス処理システムの水によって洗浄されるため、飛灰の発生は極力低減されている。

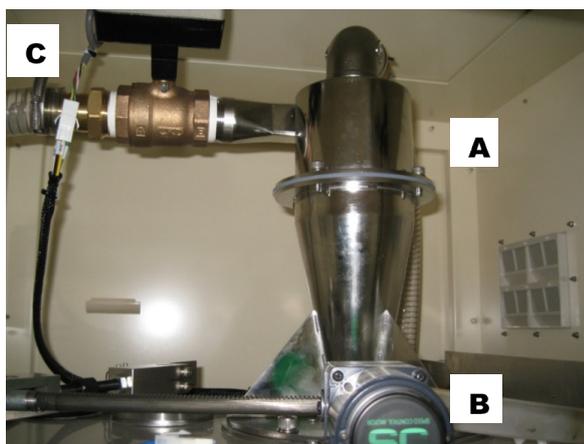


図 4 燃焼灰処理装置の内部。A;サイクロン分級器、B;真空パック装置、C; 燃焼ガス処理システムへの接続

4. まとめ

放射性物質で汚染された森林廃棄物の燃焼処理を実験室規模ならびにミニプラント規模で検討した。汚染森林廃棄物を TG/DTA 測定し、燃焼によって獲得する熱エネルギーの基礎データを取得した。バイオマスを小型燃焼炉で利用する場合は、熱エネルギーとしての利用が有利である。汚染樹皮の実験室規模での燃焼試験で、完全燃焼条件では燃焼温度が高くなると燃焼ガス中の放射性セシウム量が増加し、800°C以上の燃焼温度では 30~35 %の放射性セシウムが燃焼ガスに移行した。燃焼ガス中の放射性セシウムは水による洗浄でほとんどを捕捉することができる。小型燃焼炉に設置する処理システムを開発し、福島県内で実証試験を行った。処理システムは燃焼ガス処理システム、洗浄水ろ過システム、燃焼灰処理システムで構成されている。汚染した森林廃棄物を燃焼処理し、放射性セシウムと物質収支を調査した。放射性セシウムの 95%を回収し、燃焼ガスならびに燃焼灰を安全に処理するシステムが開発できた。

5. 参考文献

- 1) T. Nakanishi, K. Tanoi (eds) (2013) "Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident", Springer Tokyo.
- 2) 吉田博久, "原発事故による土壌と植物の汚染分析", ケミカルエンジニアリング, 6, 250 (2012)
- 3) 小川秀樹, 伊藤博久, 村上香, 熊田淳, 平野由里香, 伊芸滋光, 横田かほり, 吉田博久, "東京電力福島第一原子力事故由来の放射性物質によるスギ初期汚染状況", 福島県林業研究センター研究報, 47, 2014
<http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/95864.pdf> (accessed 20150722).
- 4) R. Kinoshita, Y. Teramoto, H. Yoshida, "TG-DTA/FT-IR method for analyzing thermal decomposition mechanism of polyesters", J. Thermal Analysis, 40, 605 (1993)
- 5) 首都大学東京, "閉鎖系排煙処理システム", 特開 2013-224831
- 6) K. Yokota, etc., "Prussian blue dyed wool and its decontamination ability for radiocesium", International Symposium on Fiber Science and Technology 2014, September 28 to October 1, PG3-01

トピックス 2
環境放射線・外部被ばく評価

CZT 検出器を用いた高線量率地域における in-situ 環境放射能測定

古渡 意彦^{1*} 窪田 卓見² 芝原 雄司² 藤井 俊行² 高宮 幸一² 水野 哲³
山名 元²

1) 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所 放射線管理部 319-1195 茨城県那珂郡東海村白方2-4

2) 京都大学原子炉実験所 590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西2丁目

3) 福島県環境生活部原子力対策課 960-8670 福島県福島市杉妻町2-16

*kowatari.munehiko@jaea.go.jp

高線量当量率地域の復興をいち早く達成するための研究の一環として、除染効果検証に利用可能な *in situ* 環境放射能分析を迅速かつ簡便に行うため、小型軽量で外部電源を要しない CZT 検出器の適応を提案し、高線量当量率域下 ($40 \mu\text{Sv h}^{-1}$ 程度) での適用可能性について検証した。 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の地表面沈着量 (kBq m^{-2}) について、2011 年 3 月 11 日当時の換算で、 $10,000 \text{kBq m}^{-2}$ を超える測定結果が得られたが、この結果は国の実施したモニタリング結果と比較して妥当である。さらに、測定点での空気カーマ率を、測定で得られた波高分布から G(E) 関数法から推定し、地表面沈着量から推定される結果と比較した。特に、高線量当量率地域での結果は、お互いに 4% 以内で一致した。一連の結果からは、CZT 検出器を使用することで、現在も一部に残る高線量当量率地域での迅速な *in situ* 放射能分析及び継続的な定点モニタリングが可能であることを示唆している。

キーワード *in situ* 環境放射能測定, CZT 検出器, 環境モニタリング, ^{137}Cs , ^{134}Cs , 空気カーマ率

1. 緒言

福島原子力事故後の環境モニタリングの枠組みの下、文科省、福島県等を中心に、その場の観測手法の一つである、Ge 半導体検出器 (以下、「Ge 検出器」という。) を用いた *in situ* 環境放射能測定により、土壤表層における放射性物質の沈着量が、東日本全域で観測されている (<http://radioactivity.nsr.go.jp/en/>)。この手法はすでに一般化されており、信頼できる結果が得られることが広く知られている^{1),2)}。一方で、Ge 検出器を用いる *in situ* 環境放射能測定を行う場合、1) 可搬型 Ge 検出器への液体窒素補給等による常時冷却が必要であること、2) 液体窒素デューワーを含めた検出部全体が大きく、それに伴う測定機材一式が大掛かりであること、及び 3) 検出下限値が小さい、という特徴は、高線量当量率地域での運用時には不利に働く場合がある。高線量当量率地域では、測定作業員への被ばく低減の観点から、環境モニタリング作業自体を迅速に行う必要があり、大型の検出器ではセッティングに時間がかかり、実際の測定に長時間を割くことができない。冷却及び電源の問題からも、稼働時間に制限が加わる。さらに、測定及び評価上の問題として、Ge 検出器は γ 線感度が高すぎて、高線量当量率地域では周辺からの影響によって、対象とする γ 線による波高ピークが重なりあい、正当な放射能濃度決定が行えないケースがある。一方で、高線量当量率地域の迅速な除染には、効果的な除染対策に加え、除染効果を適切に検証する

ための測定技術が不可欠である。環境 γ 線測定で利用されるサーベイメータ等の線量計では、迅速にその場で線量率を表示できるが、測定点における γ 線情報の詳細を入手できない。除染前後における測定点での線量率の変化が、必ずしもその地点の除染効果を直接反映するとは限らない点も考慮すると、土壤、施設等の表面に沈着した放射性物質の濃度測定が可能な *in situ* 環境放射能測定は、残留する放射性セシウムが十分除去されているか、除染効果を直接検証できるため、大変有用なツールとなり得る。しかしながら、著者らの事前測定³⁾では、数十 $\mu\text{Sv h}^{-1}$ の周辺線量当量率が観測されるような、高線量当量率地域では、Ge 検出器は *in situ* 環境放射能測定で要求される性能を發揮できない。

そこで、著者らは、*in situ* 環境放射能測定を迅速かつ簡便に行う研究の一環として、*in situ* 環境放射能測定で使用される NaI(Tl) 検出器及び Ge 半導体検出器に代わり、小型軽量で外部電源を要しない CdZnTe 半導体検出器 (以下、「CZT 検出器」という。) を、 $40 \mu\text{Sv h}^{-1}$ 程度の高線量当量率域下での *in situ* 環境放射能測定へ適用することを試みた。測定に先立ち、国際的な放射線防護線量計測の中心的施設の一つである、日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所放射線標準施設棟 (以下、「原子力機構 FRS」という。) において、*in situ* 環境放射能測定に必要な CZT 検出器の特性評価を行った後、福島県内の帰宅困難区域での測定を行った。

2. 測定方法及び評価

(1) CdZnTe 半導体検出器

本研究では、英国 Kromek 社製 GR-1™ プローブを使用した (図 1 参照)。この検出器は、本来、X 線画像診断等の分野で利用されてきた CZT 検出器をアルミ製筐体に ADC とセットにして組み込み、USB で駆動するよう設定されている。CZT 検出器からの放射線に由来する電気信号を専用のモジュールで処理して、電気パルスの波高を得る、といった、煩雑な計測は必要ない。使用した検出器に組み込まれている CdZnTe 半導体の結晶のサイズは、 $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ である。CdZnTe 半導体結晶の前面には、放射線の入射を妨げないように、薄い入射窓が設けられており、入射窓の反対側に、プラスチック保護材及びアルミの仕切り板を挟んで、信号処理回路、電源供給回路が筐体内に収められている。



図 1 使用した CZT 検出器の外観図 (http://www.kromek.com/products_gr1spectrometer.aspから引用)

CZT 検出器は、本来低いエネルギーの γ 線に対して感度が高く、1 MeV 以上の高エネルギーの γ 線に対して感度が低い。この点は、3 MeV 程度以下までのエネルギーの γ 線に対し十分な感度を有することを要求する、国等の環境モニタリング指針で定められている γ 線検出器の性能要求を満足するのは難しい。一方で、環境中に常に存在する ^{40}K 、ウラン系列及びトリウム系列の天然放射性核種からの γ 線には、1.46 MeV の ^{40}K からの γ 線等があり、事故由来の人工放射性核種の汚染に対する除染効果を把握する場合、これらの天然放射性核種は全てじょう乱要因となる。高エネルギーの γ 線に対して低い感度であるために本質的に影響を除外できる、という点は、CZT 検出器の除染効果検証のための *in situ* 環境放射能測定への適応時には利点として働くことになる。なお、低線量率地域での環境 γ 線測定においては、同検出器の適応例がある⁴⁾。

(2) *in situ* 環境放射能測定による放射能濃度評価

本研究で行う、*in situ* 環境放射能測定での土壌における放射性物質の沈着量 $A_a(\text{kBq m}^{-2})$ は、CZT 検出器で得られたパルス波高分布上の対象となるエネルギー $E(\text{keV})$ の γ 線に由来するピーク計数率 $N_f(\text{cps})$ を、当該ピークの効率 $P_{eff}(\text{cps (kBq m}^{-2})^{-1})$ で除することで得られる。これは参考文献 1 及び 2 で広く紹介されている方法である。

$$A_a = \frac{N_f}{P_{eff}} \quad (1).$$

また、当該ピークの効率は、以下の(2)式に従って

評価した。

$$P_{eff} = \frac{N_0 N_f \phi}{\phi N_0 A_a} \quad (2).$$

(2)式の効率は、検出器の種類のみならず、Ge 検出器については個体差があり、事前に個別に測定しておく必要がある。

CZT 検出器を用いる *in situ* 環境放射能測定を行う前に、(2)式における各項について、事前の評価を行った。エネルギー $E \text{ keV}$ の入射 γ 線に対するピーク効率 $N_0/\phi(\text{cps (cm}^{-2} \text{ s}^{-1})^{-1})$ 、 γ 線の入射角度に対する検出器感度の変化を示す N_f/N_0 、及び単位放射能当たりの測定点における入射 γ 線フルエンス $\phi/A_a(\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$ ($\text{kBq m}^{-2})^{-1}$) について、規制対象外放射線源を用いた測定、モンテカルロ計算及び解析的な評価を組み合わせ求めていく。測定は、原子力機構 FRS で行っている。

図 2 に、 γ 線エネルギー $E \text{ (keV)}$ の変化に対する、入射 γ 線に対するピーク効率 $N_0/\phi(\text{cps (cm}^{-2} \text{ s}^{-1})^{-1})$ を示す。測定は、規制対象外の放射能の ^{152}Eu 、 ^{60}Co 及び ^{137}Cs チェッキング線源を使用し、 γ 線放出率と距離の逆 2 乗側から測定点である、線源から 100 cm 離れた位置での γ 線フルエンス率を求め、異なるエネルギー毎のピーク効率を求めた。計算は、点等方線源を仮定し、CZT 検出器内部を模擬した体系を作成した。使用した計算コードは EGS4 である。 ^{137}Cs からの 662 keV γ 線に対し、ピーク効率は、概ね 0.06 ($\text{cps (cm}^{-2} \text{ s}^{-1})^{-1}$) であり、一般的に使用される Ge 検出器と比較しておよそ 1/10 程度であった。さらに天然放射性核種 ^{40}K からの γ 線(1460 keV)に対しては、0.02 ($\text{cps (cm}^{-2} \text{ s}^{-1})^{-1}$)程度と計算シミュレーションから求められている。このことは、後述のとおり、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs に注目した沈着量の定量及び線量評価を行う上で、外乱要因である既存の天然放射性核種からの影響を適切に除外できることを示唆している。

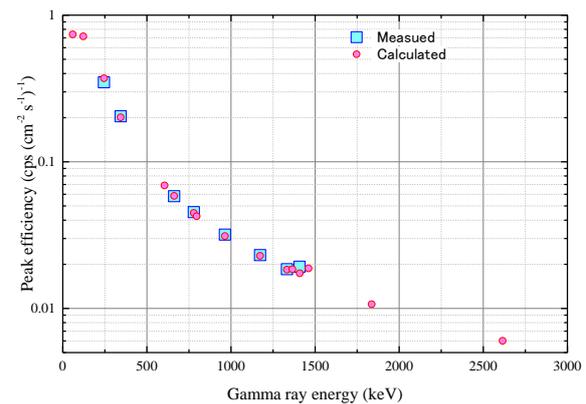


図 2 測定及び計算で得られた CZT 検出器のピーク効率

検出器に入射する γ 線のピーク効率の角度依存性は、環境中において真横や斜め横方向から検出器へ入射する γ 線のピーク効率が大きく変化していないか、変化する場合はどの程度変化するのか、把握する必要があるために評価される。ピーク効率の角度依存性は、 γ 線エネルギーの他、特に検出器の有感

領域の形状及びサイズで変化し、直径と長さが等しい円筒形の検出器は、この効果は小さいとされている²⁾。本研究で使用した CZT 検出器の有感領域の形状は、1 cm の立方体である。本研究では、ピーク効率と同様に、規制対象外線源を使用した測定とモンテカルロ計算を組み合わせて、入射 γ 線エネルギーごとのピーク効率の角度依存性を評価した。計算は MCNP-4C コードを用い、得られた結果について、図 3 に示す。²⁴¹Am 線源からの γ 線(59.6 keV)については計算のみの評価となっている。なお、測定時の鉛直方向にあたる入射窓を測定対象に向けた軸方向を 0° とし、 90° を水平方向と定義し、 0° で得られたピーク効率に対する割合で規格化している。また、EGS4 及び MCNP-4C で、 0° 方向のピーク効率の比に差がないことを事前に確認した。特に、¹³⁷Cs 及び ⁶⁰Co からの γ 線に対する計算シミュレーション結果は、実際の測定で得られた結果をよく再現している。また、 0° から 90° で、ピーク効率の割合の変化は、概ね $\pm 10\%$ の範囲内であり、極端な角度依存を見いだせない。そこで、本研究では、 γ 線の入射角度に対する検出器感度の変化を示す N_p/N_0 を 1 とし、放射性物質の沈着量を評価した。

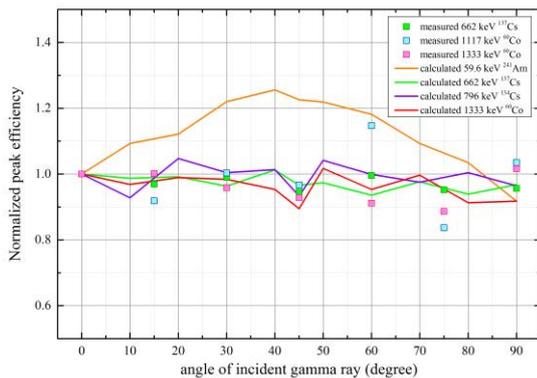


図 3 測定及び計算で得られた CZT 検出器のピーク効率の角度依存性

単位放射能当たりの測定点における入射 γ 線フルエンス ϕ/A_a は、地表面表層に沈着して次第に地中へ沈降する人工放射性核種に対する評価と対象となる地中に一様に分布する天然放射性核種に対する評価で異なってくる。本研究では後述する通り、測定点で観測される空気カーマ率（実用量である 1cm 線量当量率とは異なる）が支配的である、¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs に対して解析的に評価した。この時、地表面に沈着した ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の地中への沈降の度合いを表すパラメータを relaxation mass β (g cm^{-2}) と呼び、沈着後 2~3 年経過した場合の β を、参考文献 2 に従って $\beta = 3.0$ で評価を行った。

(3) CZT 検出器の波高分布からの線量率評価

CZT 検出器によって、環境中で行うその場測定で検出器に入射して相互作用する γ 線に起因する電気信号の波高分布を取得することができる。この波高

分布を、波高分布全体に演算子を適応する G(E)関数法と呼ばれる手法⁵⁾を用い、その場の空気カーマ率を推定した。G(E)関数法では、いくつかの単色 γ 線の検出器への入射に対する、波高分布の関数（応答関数）のマトリックスを EGS4 で作成し、演算子を求めた。G(E)関数の検証は、原子力機構 FRS で運用中の ¹³⁷Cs γ 線校正場での比較測定で実施した。基準線量当量率 $56.3 \mu\text{Sv h}^{-1}$ に対し、CZT 検出器と G(E)関数を組み合わせた方法では、 $57.5 \mu\text{Sv h}^{-1}$ と 2% 以内で一致した。

(4) CZT 検出器を用いる in situ 環境放射能測定試験

CZT 検出器を in situ 環境放射能測定に適応するに当たり、特に ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の地表面への沈着量の定量に注目して測定を行った。これは、沈着後の 2~3 年を経過し、高線量当量率地域での線量率への寄与が大きい核種は、これら ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs であるためである。さらに、高線量率地域で CZT 検出器による in situ 測定での定量が可能か、得られた沈着量を 2011 年 3 月 11 日当時に換算して他のモニタリング結果と比較した。

測定は、2013 年 5 月に実施しており、実証試験及び予備測定の観点で測定を行っている。測定地点には、いずれも周囲が開けた平坦な裸地を可能な限り選択し、測定時間は測定者の被ばくを考慮し 10~20 分で終了するように調整した。CZT 検出器は入射窓を鉛直下向きに地面に向け、検出器を鉛直になるよう支持した。地面と検出器中心の高さは、測定点によって 70 cm または 100 cm で支持した。

3. 測定結果及び考察

表 1 では、CZT 検出器を用いた in situ 放射能測定で得られた ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の地表面への沈着量の比較を示す。沈着量は 2011 年 3 月 11 日当時に換算している。表 1 には、¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の沈着量から推定

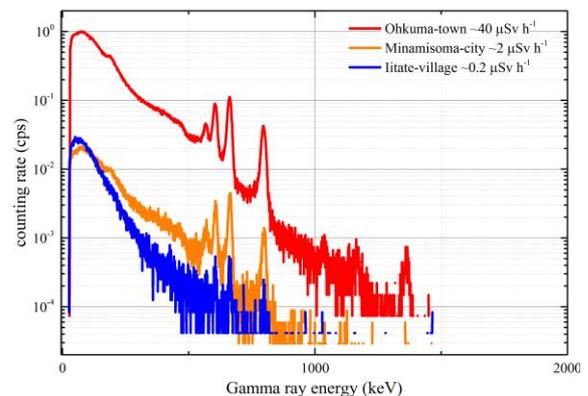


図 4 異なる線量率地域での測定で得られた CZT 検出器からの波高分布の比較

される空気カーマ率に加え、G(E)関数法により波高分布から推定した空気カーマ率を示している。また、測定点の線量当量率について、参考値として、環境

表 1 CZT 検出器を用いた *in situ* 放射能測定で得られた ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の地表面沈着量及び空気カーマ率

Location	Coordinate of location	Distance from FDNPS (km)	Measured surface deposition density on soil at 11 th March, 2011 (kBq m ⁻²)		Estimated air kerma rate due to ^{134}Cs and ^{137}Cs at measuring date ($\mu\text{Gy h}^{-1}$)	Estimated air kerma rate by the G(E) function method ($\mu\text{Gy h}^{-1}$)	Ambient dose equivalent rate by the conventional NaI(Tl) scintillation survey meter ($\mu\text{Sv h}^{-1}$)
			^{134}Cs	^{137}Cs			
Ohkuma-town, Chuodai	37:25:26 N 141:00:08 E	2.7, W	$(1.10\pm 0.02)\times 10^4$	$(1.05\pm 0.03)\times 10^4$	35.8 ± 0.5	37.1	45.3 ± 0.4
Ohkuma-town, Ohno station	37:24:32 N 140:59:07 E	4.4, WSW	$(3.29\pm 0.24)\times 10^3$	$(3.37\pm 0.08)\times 10^3$	10.7 ± 0.5	14.1	12.9 ± 0.1
Futaba-town, Kamihatori	37:27:25 N 140:59:22 E	5.6, NW	$(1.89\pm 0.13)\times 10^3$	$(1.88\pm 0.05)\times 10^3$	6.11 ± 0.26	3.29	1.63 ± 0.02

モニタリングで広く使用されている日立アロカメディカル社製 NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータで測定した結果を記載している。

得られた沈着量について、土壌試料を採取して行った国のモニタリング結果（福島第一原子力発電所から 2.4 km 地点で、 ^{134}Cs で 1.4×10^4 kBq 及び ^{137}Cs で 1.5×10^4 kBq m⁻²）と比較し、非常に良く一致している。また、空気カーマ率を比較したところ、特に高線量当量率地域で取得された結果で、4%以内で一致している。これは、波高分布の計数率の統計精度の観点からも妥当な結果といえる。低線量当量率地域での測定結果は、ピーク面積も小さいため計数誤差が大きい。参考値の線量当量率と比較しても、沈着量を過大に評価している可能性がある。

図 4 では、一般環境レベルの線量当量率から高線量当量率地域での *in situ* 測定で得られた CZT 検出器からの波高分布を比較する。高線量率地域でも CZT 検出器からのパルス信号の数え落としは 3%以下であり、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs からの γ 線のピークを明瞭に分離でき、かつ妥当なピーク面積の定量が可能であった。また、低線量当量率地域での測定でもピーク自体は十分判別可能である。ピーク面積の低減誤差を低減することを考慮し、測定時間を 15 分から 60 分以上とより長時間にすることで精度の良い沈着量の定量が可能となる。

なお、2013 年 5 月の実証試験を受け、2013 年 12 月には *in situ* 環境放射能測定をより広範囲で実施しており、参考文献 7 において結果を報告済みである。

4. 結言

高線量率地域の復興をいち早く達成するための研究の一環として、高線量当量率地域での除染効果検証を確実にを行う測定手法について検討を進めている。本研究においては、*in situ* 環境放射能分析を迅速かつ簡便に行うため、従来広く利用されている NaI(Tl)検出器及び Ge 半導体検出器に置き換わる検出器の候補の一つとして、小型軽量で外部電源を要しない CZT 検出器の利用を提案し、本検出器を高線量当量率域下 ($40 \mu\text{Sv h}^{-1}$ 程度) で運用し、*in situ* 環境放射能測定への適用可能性について検証した。得られた結果は、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs について、2011 年 3 月 11 日当時の換算で、 $10,000 \text{ kBq m}^{-2}$ を超えるものであり、国のモニタリング結果と比較して、矛盾のない結果が

得られている。さらに、得られた波高分布から、1) 沈着量からの推定、及び 2) G(E)関数法による推定、と異なる方法で測定点での空気カーマ率を推定した。高線量当量率地域で得られた結果は、いずれの線量評価手法でもお互いに 4%以内で一致している。一連の結果からは、CZT 検出器を使用することで、現在も一部に残る高線量当量率地域での迅速な *in situ* 放射能分析及び継続的な定点モニタリングが可能であることを示唆している。

謝辞

本研究は、原子力安全基盤科学研究プロジェクトの一部として実施されたものである。著者らは関係各位に謹んで謝意を示します。

参考文献

- 1) Beck, H. L., DeCampo, J. and Gogolak, C. In situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry for the measurement of environmental radiation. USAEC Report HASL-258 (New York, NY: USAEC) (1972).
- 2) International Commission on Radiation Units and Measurements. Gamma-ray spectrometry in the environment. ICRU Report 53 (Bethesda, MD: ICRU) (1994).
- 3) Shibahara, Y., Kubota, T., Fujii, T., et al. Analysis of cesium isotope compositions in environmental samples by thermal ionization mass spectrometry - 1. A preliminary study for source analysis of radioactive contamination in Fukushima prefecture. J. Nucl. Sci. Technol., 51 (5), 575-579 (2014).
- 4) Kurosawa, T., Iwase, H., Saito, H., et al. Field photon energy spectra in Fukushima after the nuclear accident. J. Nucl. Sci. Technol., 51 (5), 730-734 (2014).
- 5) Moriuchi, S and Miyanaga, I., A Method of Pulse Height Weighting Using the Discrimination Bias Modulation. Health Phys. 12(10), 1481-1487 (1966).
- 6) International Commission on Radiological Protection (ICRP), Conversion coefficients for use in radiological protection against external radiation. ICRP Publication 74 Ann. ICRP 27(4), Pergamon Press, London and New York (1997).
- 7) Kowatari, M., Kubota, T., Shibahara, Y., et al. Application of a CZT detector to in situ environmental radioactivity measurement in the Fukushima area. Radiation Protection Dosimetry (2015), doi:10.1093/rpd/ncv277.

サーベイメータ等を用いた環境中における空間線量率測定の課題

津田 修一^{1*} 齋藤 公明¹

1) 日本原子力研究開発機構 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4
* tsuda.shuichi@jaea.go.jp

環境中の空間線量率測定に広く用いられているNaI(Tl)およびCsI(Tl)シンチレーション式の測定器について、測定値に対する光子入射方向の影響をシミュレーション計算手法によって評価した。半無限平板状の土壌表面に沈着した光子線源を作成し、地上高さ100 cmに設置した各測定器の波高スペクトルを計算し、空気カーマに対するスペクトル線量変換演算子 ($G(E)$ 関数)を導出した。環境中での波高スペクトルと理想的な照射条件(前方, 等方および回転)での $G(E)$ から線量を算出し、それらを比較した結果、結晶底面の照射条件で最大約30%環境中の線量を過大評価するが、照射する面を適切に選択することによって、±10%以内で環境中の線量を再現できることがわかった。

キーワード サーベイメータ, コンピュータシミュレーション, 空間線量率, $G(E)$ 関数, 方向特性

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所事故(以下, 東電福島事故)後, 福島県をはじめ東日本の広域において, 国や地方自治体, 大学等の研究機関によって, 環境中の空間線量率測定等が継続的に実施されている。東電福島事故で環境中に放出された放射性セシウム等によって, 多くの地点で事故前よりも空間線量率が高められており, その程度は場所によって異なることがわかってきた。東日本を含む広域の地点において測定された空間線量率は, 線量率マップとして定期的に公開されている¹⁾。

空間線量率の測定には, 原子力発電所等で通常使用されるシンチレーションサーベイメータ等が現在も用いられている。それらの多くは一方向から(多くは測定器の前方に)の照射条件を基準として, 校正場と呼ばれる既知の放射線場における線量の値付けや, サーベイメータ等に内蔵されている線量導出用の係数の決定が行われている。これらの測定器の有感部には方向依存性の少ない形状が好ましいが, 元来, 様々な方向から放射線が測定器に入射する環境中での空間線量率測定を想定していないため, 入射方向に関する特性を評価する必要がある。

そこで本研究では, 実際に空間線量率測定に活用されている測定器の入射方向特性を評価するために, 半無限平板状の土壌表面に放射性核種が沈着した光子線源(以下, 環境線源)に対する波高スペクトルを計算し, 導出したスペクトル線量変換演算子 ($G(E)$ 関数)から算出した線量に基づいて, 種々の照射条件での結果と比較した。

2. 計算

(1) スペクトル線量変換演算子: $G(E)$ 関数

ある場の線量は, エネルギースペクトルの情報と国際放射線防護委員会(International Commission on Radiological Protection, ICRP)等が勧告するフルエンス

当たりの線量換算係数を掛けあわせて算出できるが, エネルギースペクトルの測定は, 一般に容易ではない。一方, $G(E)$ 関数による線量導出手法では, 測定器の波高スペクトルと線量換算係数に基づいてあらかじめ導出した $G(E)$ 関数を用いて, 直接的に高い精度で線量を評価できる²⁾。以下, 簡単に原理および導出方法について述べる。

a) 原理

ある単色エネルギー E_0 の光子に対して, 波高スペクトルと線量を関係付ける荷重関数 $\alpha(E)$ が存在する場合, フルエンス当りの線量換算係数 $h(E_0)$ は, フルエンスを $\phi(E_0)$, 検出器の応答関数を $n(E, E_0)$ とすると以下のように表すことができる。

$$h(E_0) = \int_0^{\infty} n(E, E_0) G(E) dE \quad (1)$$

よって, 種々のエネルギー E_i の光子混在場における全線量 D は, 波高スペクトルを $N(E)$ とすると, (1)式を用いて以下のように書ける。

$$\begin{aligned} D &= \sum_i \phi(E_i) h(E_i) \\ &= \int_{E_{min}}^{E_{max}} N(E) G(E) dE \end{aligned} \quad (2)$$

このように全線量 D は, 場のエネルギースペクトルを解析することなく, 測定される波高スペクトルと $\alpha(E)$ 関数から算出することができる。

ICRP の勧告する代表的な照射体系である等方(ISO), 回転(ROT)および一方向からの照射条件における $\alpha(E)$ 関数については, (1)および(2)式を用いて導出した。一方, 環境線源については, (1)および(2)の左項を, 地上高さ100 cmにおける光子フルエンスと線量換算係数に基づく線量に置き換えたのち, 同様に算出した。

b) $G(E)$ 関数の導出

単色エネルギーの光子に対するシンチレーション検出器の波高スペクトルの計算には, 核反応モデルや核データなどを用いてあらゆる物質中での様々な放射線挙

動を模擬する汎用モンテカルロ計算コード PHITS³⁾を用いた。評価した NaI(Tl)サーベイメータおよび CsI(Tl)シンチレーション検出器の仕様を表1に示す。日立アロカメディカル製の TCS-172B⁴⁾は広く空間線量率の測定に用いられ、また浜松ホトニクス製 C12137 シリーズ⁵⁾は車走行サーベイシステム KURAMA-II⁶⁾に搭載されるシンチレーション検出器である。結晶だけでなく周囲の構造を可能な限り詳細に再現した体系において、40~3000 keV の16点の単色エネルギー光子を照射し、結晶内に沈着するエネルギー分布(波高スペクトル)を計算した。しきいエネルギーを40keVとして、高次多項式で表した空気カーマ用の $G(E)$ 関数を、離散化した(2)式の逆行列を解く手法によって決定した。

表1 評価したシンチレーション検出器

測定器	結晶種類・形状(mm)	光増幅
TCS-172B	NaI(Tl), 円柱, φ25.4 x 25.4	光電子増倍管
C12137-00	CsI(Tl), 直方体, 13 x 13 x 20	MPPC (マルチピクセル フォトカウンタ)
C12137-01	CsI(Tl), 直方体, 38 x 38 x 25	

(2) 無限平板状の線源の作成

環境線源の作成には、PHITS の反射境界機能を用いた手法⁷⁾を用いた。計算体系を図1に示す。測定器の下面(地上深さ0.5g/cm²)に、等方的な光子線源を配置し、垂直な四方の面を反射境界面に設定した。放出された光子のうち、反射境界面において全反射された光子を、無限平板上から到達した別の光子とみなし、反射境界面上に粒子ごとのエネルギー、位置、方向を記録した線源ファイルを作成した。各単色エネルギー光子について作成した線源ファイルを用いて、各測定器の波高スペクトルを計算した。

その他、ISO等の代表的な照射条件における波高スペクトルを計算し、各 $G(E)$ 関数を得た⁸⁾。

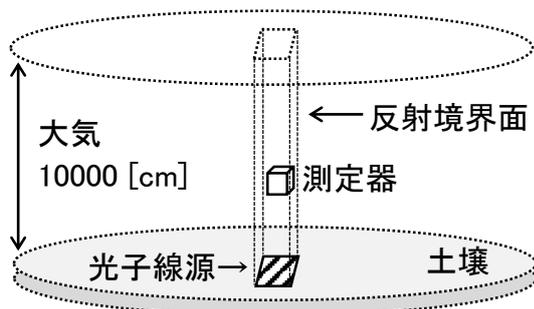


図1 無限平板状の線源の計算体系

3. 結果および考察

(1) 地上高さ100 cmにおける光子フルエンス

環境線源を用いて計算した地上高さ100 cmにおける光子フルエンスを図2に示す。40~3000 keVの光子については、土壌中から放出された光子の40~50%は、土壌および大気中で散乱され、地上高さ100 cmに設置し

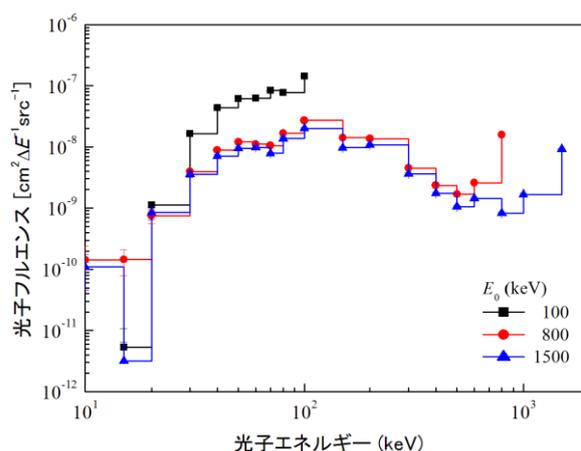


図2 環境線源に対する地上高さ100 cmにおける光子フルエンス

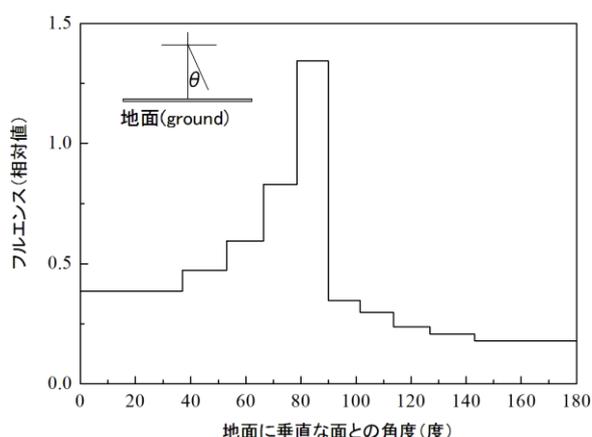


図3 環境線源(662 keV単色エネルギー)に対する地上高さ100 cmの光子入射角度分布

た検出器(タリー)に到達するまでにエネルギーの一部を失う。

光子の入射角度分布の計算結果を図3に示す。地上面から直接測定器に入射する光子のうち、遠方から到達する90度方向からの光子の寄与が最も多い。また90度以上の上空から入射する光子は大気中で散乱されたものであり、環境線源の入射方向はISOまたはROTに比較的似ている。これらの結果は他の報告^{9,10)}とも矛盾しないことを確認した。

(2) シンチレーション検出器の波高スペクトル

表1に示したNaI(Tl)およびCsI(Tl)シンチレーション検出器を地上高さ100 cmに設置して計算した波高スペクトルの例を、結晶底面を一樣に照射する条件の結果とともに図4に示す。いずれの分布も、全吸収ピークのカウントで規格化している。環境線源の場合、フルエンス全体の40~50%を占める散乱された光子が結晶に直接入射するために、しきいエネルギー近傍までの低エネルギーの沈着割合は結晶底面の照射条件よりも大きい。

(3) $G(E)$ 関数

空気カーマに対して計算したNaI(Tl)サーベイメータの $G(E)$ 関数を図5に示す。5つの異なる照射条件について、約300 keV以上の光子エネルギー範囲では照射

条件による違いは小さい。これはエネルギーの高い光子による結晶内のエネルギー付与は、ほぼ体積に依存するためと考えられる。一方、 ~ 200 keV 以下では、結晶内での相互作用回数が増加しどの方向から入射しても大部分のエネルギーが吸収される確率が高くなるため、エネルギー付与は表面積に比例する。その結果、照射面積の小さい円柱形状の底面を照射する場合と、側面を照射する場合で $G(E)$ 関数に違いがあり、側面照射条件の $G(E)$ 関数は、底面照射条件より小さく、環境線源の $G(E)$ 関数に近い。また、ISO および ROT の結果は環境線源に対する結果とほぼ重なっている。これは図 3 で示した入射方向特性で考察したように、ISO および ROT の入射方向特性が環境線源に似ていることに起因する。

(4) 光子入射方向の影響

一般的な照射条件において導出した $G(E)$ 関数を用いて、どの程度環境線源による線量を再現するかを評価するために、環境線源に対する単色エネルギー光子の波高スペクトルを共通の入力として、種々の照射条件の線量を算出し、環境線源による線量と比較した。

a) NaI(Tl)サーベイメータ

円柱形状の NaI(Tl) について、各照射条件の線量と環境線源による線量の比を図 6 に示す。すべての照射条件において、 ~ 200 keV 以上の光子エネルギーでは、 $\pm 10\%$ 以内で環境線源に対する線量を再現する。これは高エネルギー光子の場合、沈着するエネルギーは体

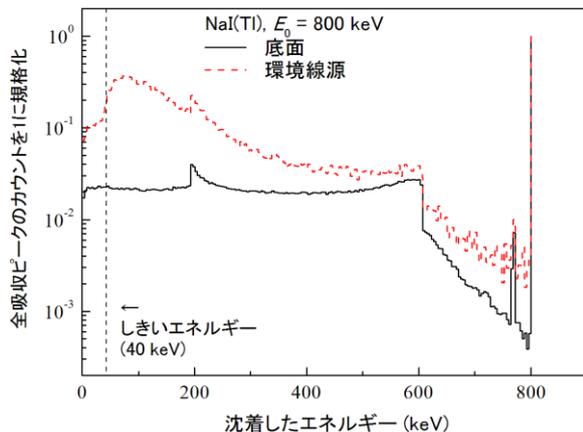


図 4 フルエンスあたりの NaI(Tl)サーベイメータの応答関数の例

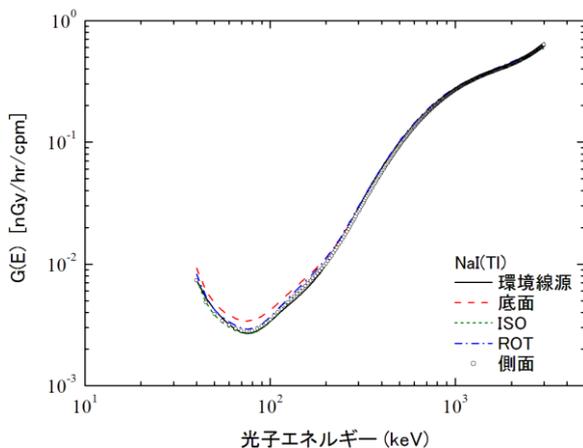


図 5 空気カーマに対する NaI(Tl)サーベイメータの $G(E)$ 関数

積に依存することを表している。約 200keV 以下では、結晶の底面照射条件(図中, ■)は最大約 30%過大評価である。これは、図 5 に示すように相対的に大きい $G(E)$ 関数を乗じて線量を算出しているためである。一方、結晶の側面照射条件の場合(図中, □), ISO および ROT と同様にほぼ $\pm 10\%$ 以内で環境線源に対する線量と一致する。これは相対的に表面積の大きい面の照射によって、結晶底面の照射条件と比較して環境線源に対する波高スペクトルに近くなったためである。この結果は、一方向からの照射条件であっても、照射する結晶の面を適切に選択することによって、等方照射に近い照射条件の線量を測定できることを意味する。

b) CsI(Tl)シンチレーション検出器

各照射条件の線量と環境線源による線量の比を図 7 に示す。直方体形状 ($13 \times 13 \times 20$ mm³) の CsI(Tl) 結晶については、 13 mm \times 13 mm の面を一樣に照射した場合、 ~ 100 keV 付近で過大評価し、 $\pm 10\%$ 以内で環境線源に対する線量を再現するエネルギー範囲は、約 800 keV 以上に限られることがわかる。これは、直方体と比較して円柱形状の方が等方性に優れるためと考えられる。結晶の別の面 (13 mm \times 20 mm, 図中, □) を照射する場合、ほぼ $\pm 10\%$ 以内で環境線源に対する線量と一致する。

東電福島事故後に、事故現場周辺において KURAMA-II で取得したデータに基づく評価結果を表 2 に示す。線量率の異なる2つの条件で測定した波高スペ

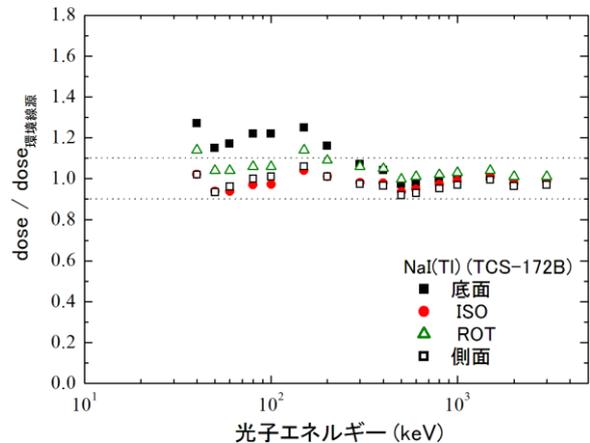


図 6 環境線源による線量に対する、各照射条件の $G(E)$ 関数から求めた線量の比 (NaI(Tl))

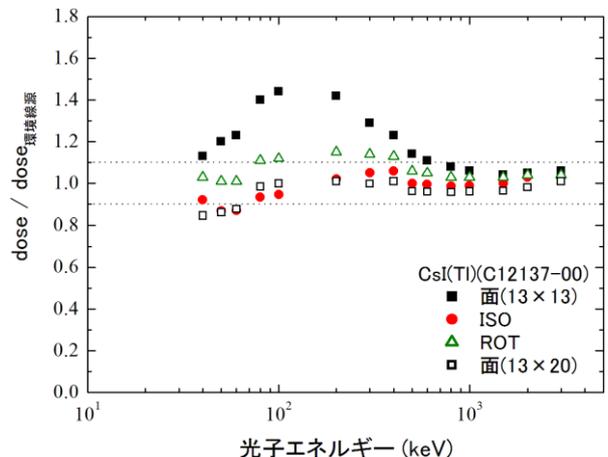


図 7 環境線源による線量に対する、各照射条件の $G(E)$ 関数から求めた線量の比 (CsI(Tl))

クトルデータを用いて CsI(Tl)シンチレーション検出器の線量を算出し、比較した結果、13 mm x 13 mm の面を一樣に照射する条件の $G(E)$ を用いると 15~16%の過大評価となり、ISO および ROT では±10%以内で環境線源に対する線量と一致した。また、結晶の13mm x 20mm サイズの面を照射した場合、比は 0.98 となり、計算から推定した特性とほぼ同じように、環境線源用の $G(E)$ 関数から算出した線量をよく再現することがわかった。

4. まとめ

東電福島事故後、環境中の空間線量率測定に用いられているシンチレーション検出器の光子入射方向に対する影響を、シミュレーション計算によって評価した。正円柱形状の結晶を有する NaI(Tl)サーベイメータについては、中心軸に対して平行に照射する条件で作成した $G(E)$ 関数を用いた場合、最大約 30%線量を過大評価するが、中心軸に対して垂直な方向に照射する条件であれば、環境線源に対する線量を±10%以内で再現することがわかった。また、直方体形状の CsI(Tl)シンチレーション検出器についても、NaI(Tl)サーベイメータとほぼ同様の結果を得た。さらに放射性セシウムの沈着した環境で実測したデータに基づいて評価した結果、正円筒形状の結晶底面を照射する条件において約 15%線量を過大評価することがわかった。これらの結果は、サーベイメータ等を用いた測定は安全側の評価を与えることを意味する。また、 $G(E)$ 関数を作成する際に用いる検出器の応答関数計算において、照射する結晶面を適切に選択することによって、一方向からの簡易な照射条件であっても、ISO や ROT に近い環境中の線量を評価できることがわかった。今後、結晶の大きさや形状を変えた場合についてより詳細に光子入射方向の影響を検討し、測定器の線量校正の方法を含めて、より正確な空間線量率を測定できる手法を提案したい。

4. 参考文献

- 1) 文部科学省, 放射線量等分布マップ拡大サイト, <http://ramap.jaea.go.jp/map/>
- 2) 森内茂, “スペクトルー線量演算子による線量評価法とその演算子の決定”, JAERI 1209 (1970).
- 3) T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, S. Noda, T. Ogawa, H. Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, T. Furuta and L. Sihver, “Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52”, J. Nucl. Sci. Technol. 50:9, 913 (2013).

- 4) 日立アロカメディカル株式会社, <https://www.hitachi-aloka.co.jp/products/data/radiation-002-TCS-171172>
- 5) 浜松ホトニクス株式会社, <http://www.hamamatsu.com/jp/ja/C12137.html>
- 6) M. Tanigaki, R. Okumura, K. Takamiya, N. Sato, H. Yoshino, H. Yoshinaga, Y. Kobayashi, A. Uehara, and H. Yamana, “Development of KURAMA-II and its operation in Fukushima”, Nucl. Instr. and Meth. A781, 57 (2015).
- 7) T. Furuta and F. Takahashi, “A computational approach using reflection boundaries for dose calculation in infinitely expanded radiation field”, Radiat. Prot. Dosim. 10.1093/rpd/ncu337 (2015).
- 8) 津田修一, 堤正博, “種々の大きさの CsI(Tl)シンチレーション検出器の γ 線に対するスペクトルー線量変換演算子 ($G(E)$ 関数) の計算と評価”, 保健物理, 47(4), 260 (2012).
- 9) Saito K, Petoussi N, Zankl M, Veit R, Jacob P, Drexler G: Calculation of organ doses from environmental gamma rays using human phantoms and Monte Carlo methods. Part I: Monoenergetic sources and natural radionuclides in the Ground. (1990) GSF-Bericht 2/90.
- 10) N. Petoussi, P. Jacob, M. Zankl, and K. Saito, “Organ Doses for Foetuses, Babies, Children and Adults from Environmental Gamma Rays”, Radiat Prot Dosimetry 37 (1), 31 (1991).

謝辞

NaI(Tl)サーベイメータの構造データの取得に関して、公益財団法人放射線計測協会の江幡芳昭氏、佐藤義高氏、また PHITS を用いた環境中の波高スペクトルの計算に関して、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の古田琢哉氏にご協力いただきました。ここに感謝いたします。

表 2 測定した波高スペクトルに $G(E)$ 関数を掛けあわせて算出した線量の比較 (C12137-00)

	照射条件(面)	環境線源	面(13 x 13)	ISO	ROT	面(13 x 20)
#1	dose ($\mu\text{Sv/h}$)	4.09 ± 0.07	4.71 ± 0.15	4.14 ± 0.10	4.39 ± 0.10	4.01 ± 0.07
	比	1.00	1.15 ± 0.04	1.01 ± 0.03	1.07 ± 0.03	0.98 ± 0.02
#2	dose ($\mu\text{Sv/h}$)	0.39 ± 0.01	0.45 ± 0.02	0.40 ± 0.01	0.42 ± 0.01	0.39 ± 0.01
	比	1.00	1.16 ± 0.05	1.02 ± 0.04	1.08 ± 0.04	0.98 ± 0.03

トピックス 3

環境放射能・内部被ばく評価

ダイズの放射性セシウム吸収に及ぼす窒素施肥の影響

二瓶直登^{*1}、広瀬農¹、田野井慶太郎¹、中西友子¹

1) 東京大学大学院農学生命科学研究科 東京都文京区弥生 1-1-1

* anaoto@mail.ecc.u-tokyo.ac.jp

放射性物質(主に放射性セシウム)が東京電力福島第一原子力事故により飛散し、土壌や農作物が汚染した。作物の放射性セシウム吸収を抑制する手段の一つとして、カリウム施肥が行われている。一方、カリウムとともに作物生育に大きな影響を及ぼす窒素が放射性セシウム吸収に与える影響については、ほとんど報告はないため、本報告では窒素施肥によるダイズのセシウム吸収の影響を検討した。窒素施肥濃度の異なる条件で栽培した結果、ダイズ(幼植物、子実)の放射性Cs濃度、吸収が窒素施肥により増加することを確認した。また、窒素形態別では、硫酸アンモニア>硝酸アンモニア>硝酸カルシウムとなり、アンモニア態窒素が硝酸態窒素よりセシウム吸収の増加効果は高いと考えられた。また、アンモニウム施肥で土壌から抽出される放射性セシウムは増加したため、ダイズのセシウム吸収が増加したのは、土壌固相に強く吸着していたセシウムを、セシウムとイオン半径の近いアンモニアが置換し、ダイズが吸収しやすいセシウム量を増加したことが一因と考えられた。

キーワード 放射性セシウム、ダイズ、窒素、アンモニア

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の事故により多量の放射性物質、特に放射性セシウムが環境中に放出され、農耕地を経由して農作物に移行することが懸念されている^{1,2}。福島県などで行われている農産物のモニタリング検査によると、事故後4年が経ち、100Bq/kgを超えるサンプルは一部の農作物に限られている^{3,4}。穀類のうち、ダイズはイネとともに土地利用型作物であるが、イネと異なり高い傾向がみられており、その要因解明も行われている^{5,6,7}。移行を抑制するための方策の一つとして施肥による吸収抑制が検討されており、これまでの知見からカリウム施肥が農作物の放射性セシウム濃度抑制に有効であることが明らかになっている^{8,9}。一方、窒素施肥が放射性セシウム吸収に与える影響については、イネで吸収を促進するとの報告^{10,11}もあるが、ダイズでの報告はない。

本報告では、形態別の窒素施肥が、ダイズ幼植物の放射性セシウム吸収に与える影響を検討した。

2. 材料と方法

窒素施肥によるダイズ(*Glycine max*)のCs吸収に対する影響を検討するため、窒素施肥の影響を圃場(福島県飯舘村)にて検討した(試験1)。窒素量を3段階(0kg/ha、50kg/ha、100kg/ha、それぞれ non-N、Low-N、High-N)に設定し、硝酸アンモニウムにて散布した(写真1)。播種は2014年6月16日に行い、9月2日に葉をサンプリングした。供試土壌の放射性セシウム濃度は約13,000Bq kg⁻¹、交換性カリは15.8mg 100g⁻¹、pHは6.2であ

った。

また、原子力事故で汚染した地域の土壌(放射性セシウム約30,000Bq/kg、交換性カリ13.4mg 100g⁻¹、pH6)を用いて、次の試験を行った。試験2として、窒素処理を変えた土壌を1Lポットに詰め、ハウス内で成熟期まで栽培した。窒素量を2段階(0.4g/pot、1.3g/pot、それぞれ Low-N、High-N とする)設定し、硝酸アンモニウムにて施肥した(写真2)。成熟期に子実を採取し、子実の放射性セシウム濃度を測定した。

さらに、窒素形態別のダイズ幼植物への影響を検討(試験3)するため、小容器(6.5cm×6.5cm×6.5cm)に土壌を詰め、18日間バイオトロン内(30℃、16h/8h)でダイズを栽培し、地上部を採取した(写真3)。供試窒素として、硝酸カルシウム、硝酸アンモニウム、硫酸アンモニウムを用い、窒素量を3段階(0g/1区、0.01g/区、0.05g/区、それぞれ non-N、Low-N、High-N とする)設定した。採取したダイズの放射性セシウム濃度は NaI シンチレーションカウンター(アロカ社 AM-300)で測定した。試験3のサンプルは、酸分解後 ICP-OES (Perkinelmer 社、Optima 7300)で各塩基も測定した。反復は3で行った。

さらに、窒素施肥を行った土壌の放射性Csの抽出量を検討した(試験4)。試験2,3,4と同じ原発事故で汚染した土壌に窒素0.5g/kgを硫酸アンモニウムにて添加し、25℃で静置した。水分は圃場容水量の60%とした。窒素添加後、1、5、15日目にサンプリングを行った。採取した土壌を1N・塩化カルシウムで抽出し、フィルター(0.2μM、ミリポア社)でろ過後、NaI シンチレーションカウンター(アロカ社 AM-300)で測定した。



写真1 現地試験の様子(試験1)



写真2 室内試験の様子(左;試験2、右;試験3)

3. 結果

図1にポット試験の結果を示した。窒素施肥量が多いほど、圃場で試験を行った着莢期の葉(試験1)、ポットで試験を行った成熟期の子実(試験2)とも放射性セシウム濃度は増加した。Table2に窒素形態別の施肥によるダイズ幼植物のCs濃度の結果を示した(試験3)。ダイズ幼植物の放射性セシウム濃度は、窒素施肥を行った区で行わなかった区より増加した。窒素形態で比較すると、硫酸アンモニウム区が最も高く(無施肥区の約2.6倍、以下同)、次いで硝酸アンモニウム区(約2倍)、硝酸カルシウム区(約1.3倍)となった。また、カリウム、カルシウム、マグネシウムの増加はみられなかった。図3に硝酸アンモニウムを施肥した土壌から塩化カルシウムで抽出したCs量を示した(試験4)。抽出する放射性セシウム量は硝酸アンモニウム添加1日後が最も高く、添加後15日でも高い値を維持していた。

4. 考察

ダイズ(幼植物、子実)の放射性Cs濃度、吸収が窒素施肥により増加することを、ポット、圃場試験で確認した。また、ダイズ幼植物のCs吸収に対する窒素形態別の影響は、硫酸アンモニウム>硝酸アンモニウム>硝酸カルシウムとなり、アンモニウム態窒素が硝酸態窒素よりCs吸収の増加効果は高いと考えられた。これまでイネで指摘されていた結果^{12,13}と同様に、原発事故で汚染した福島の土壌を用いたダイズの試験でも窒素施肥、特にアンモニウム

態窒素施肥でCs濃度が増加することを確認した。

また、図2より、硫酸アンモニウム施肥で土壌から抽出される放射性セシウムは増加した。したがって、表1で硫酸アンモニウム施肥によりダイズのセシウム吸収が増加したのは、土壌固相に強く吸着していたセシウムを、セシウムとイオン半径の近いアンモニウムが置換し、ダイズが吸収しやすいセシウム量を増加したことが一因と考えられる。

なお、アンモニウムイオンはセシウムイオンと同じ一価カチオンであり、ダイズがセシウムを吸収する際に土壌中に存在していれば競合によりセシウム吸収を阻害することが予想される。また、同様に同じ一価カチオンのカリウム吸収も抑制し、その結果セシウムの吸収に影響を与えることも考えられた。しかし、本試験は畑条件であり、アンモニウムイオンは栽培期間中に酸化され硝酸イオンに変化すると予測される。また、表1の各試験区のカリウム濃度は低下していないことから、本実験ではアンモニウムイオンによるセシウム吸収抑制や、カリウム欠乏によるセシウム吸収に影響はないと考えられた。なお、土壌からのセシウム溶出はアンモニウム施肥1日後に増加が確認されている(図2)ため、アンモニウムが酸化される前の早い時期にセシウム置換をしたものと考えられる。

事故から4年が経過し、今後、避難地域でも農業が順次再開される。農業の復旧・復興のため、作物の放射性セシウム吸収メカニズムや吸収を抑制する栽培法の開発や、再開時の注意点など早急に明らかにする必要がある。しばらく作付のなかった休耕田や、水田から畑への転換時には、通常より土壌中に可給態窒素が多く存在している可能性がある地域の栽培では放射性セシウムの移行に特に注意が必要であると考えられる。

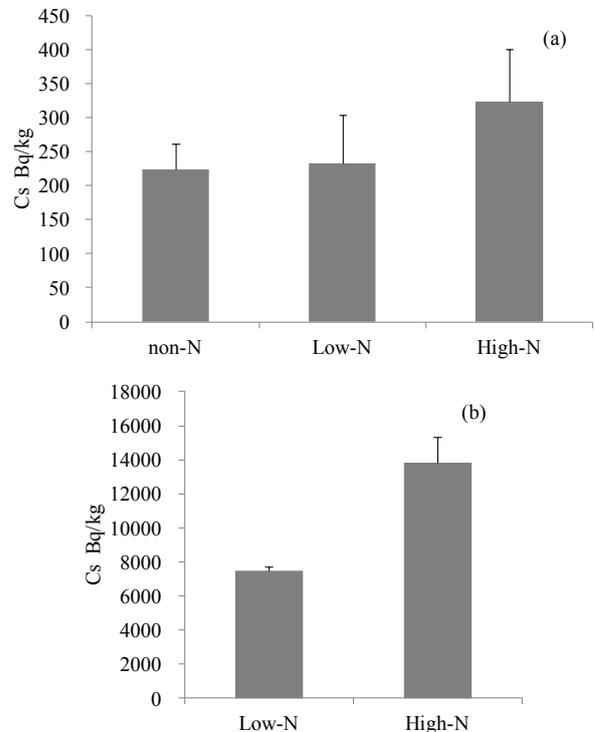


図1 窒素施肥処理別のダイズの放射性セシウム濃度 (a;試験1、b;試験2)

表 1 ダイズの放射性セシウム吸収に及ぼす形態別窒素施肥の影響(試験 3)

treatment		Cs Bq kg ⁻¹	K mg g ⁻¹	Ca mg g ⁻¹	Na mg g ⁻¹	P mg g ⁻¹	Dry weight g plant ⁻¹	Height cm
Control		440	21	3.3	0.09	2.0	1.6	28
Calcium nitrate	Low-N	464	22	4.8 **	0.09	2.0	1.6	30
	Hihg-N	984	24	8.1 **	0.22 *	1.5	1.3	17 *
Ammonium nitrate	Low-N	642	22	3.6	0.12	2.6	1.4	25
	Hihg-N	1077 **	19	3.4	0.09	2.3	1.6	29
Ammonium sulfate	Low-N	750	21	3.5	0.09	2.0	1.6	30
	Hihg-N	1634 **	21	3.1	0.12	2.9	1.5	25

*p < 0.05, **p < 0.01 compared to the control (Dunnet's test).

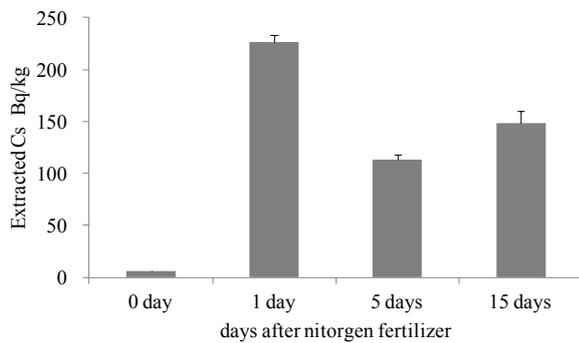


図 3 窒素施肥後日数と放射性セシウムの抽出量 (試験 4)

5. 謝辞

本研究の一部は、京都大学生存圏研究所の生存圏科学萌芽研究からの助成を受けて実施した。

6. 参考文献

- 1) Yasunari T. J., Stohl A., Hayano R. S., Burkhart J. F., Eckhardt S., and Yasunari T., Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident. Proc. Natl. Acad. Sci. USA. 108, 19530(2011).
- 2) Zheng J., Tagami K., Bu W., Uchida S., Watanabe Y., Kubota Y., Fuma S., and Ihara S., ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs Isotopic Ratio as a New Tracer of Radiocesium Released from the Fukushima Nuclear Accident. Environ. Sci. Technol. 48, 5433(2014).
- 3) Nihei N., "Radioactivity in agricultural products in Fukushima, Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident, Ed, Tomoko M. Nakanishi・Keitaro Tanoi", Springer, p.73-85, 2013
- 4) Hamada N., Ogino H., and Fujimichi Y., Safety regulations of food and water implemented in the first year following the Fukushima nuclear accident. Radiat. Res. 53, 641(2012).
- 5) Fukushima Prefecture (Toward a new future of Fukushima):

<<http://www.new-fukushima.jp/monitoring/en/>> Date of access 10/5/2015.

- 6) Nihei N., Monitoring inspection in Fukushima prefecture and radiocesium absorption of soybean (in Japanese) Isotope News.73. 118-23(2015).
- 7) Nihei N., Tanoi K. and Nakanishi T. M., Inspections of radiocesium concentration levels in rice from Fukushima Prefecture after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Scientific Reports 5, Article number: 8653-8658(2015/3).
- 8) Zhu Y. G., Shaw G., Nisbet A.F., and Wilkins B.T., Effects of External Potassium Supply on Compartmentation and Flux Characteristics of Radiocesium in Intact Spring Wheat Roots. Annals of Botany 85, 293-298(2000).
- 9) Sanchez A.L., Wright S.M., Smolders E., Naylor C., Stevens P. A., Kennedy V. H., Dodd B. A., Singleton D. L., and Barnett C. L., High Plant Uptake of Radiocesium from Organic Soils Due to Cs Mobility and Low Soil K Content. Environ. Sci. Technol. 33, 2752-2757(1999).
- 10)Cline J. F. and Hungate, F. P., Accumulation of Potassium, Cesium137, and Rubidium86 in Bean Plants Grown in Nutrient Solutions. Plant Physiol. 35, 826; DOI: 10.1104/pp.35.6.826 (1960).
- 11)Evans E. J. and Dekker A.J., Effect of nitrogen on cesium 137 in soils and its uptake by oat plants. Can. J. Soil Sci., 49, 349-355(1969).
- 12)Tensyo K., Yeh K., L., and Mitsui S., The uptake of strontium and cesium by plants from soil with special reference to the unusual cesium uptake by lowland rice and its mechanism. Soil and Plant Food. 6, 176(1961).
- 13)Ohmori Y et al. Difference in cesium accumulation among rice cultivars grown in the paddy field in Fukushima Prefecture in 2011 and 2012. Journal of Plant Research. 127, 57-63(2014)

南相馬市で栽培された 野菜、米、果物および飲料水中の放射能

静間 清^{1)*} , 桜井雄志²⁾

1) 広島大学大学院工学研究院 739-8527 広島県東広島市鏡山 1-4-1

2) NPO 法人ふるさと 975-0033 福島県南相馬市高見町 2-144-6 Japan

*shizuma@hiroshima-u.ac.jp

福島第一原子力発電所事故のあと南相馬市で2014年に6ヶ所の実験畑を設定し、15種類の野菜を栽培した。生産された野菜の¹³⁷Cs、¹³⁴Cs、⁴⁰Kの放射能濃度を測定し、土から野菜、土から米への移行係数を測定した。一つの実験水田において田の土と籾の¹³⁷Csと⁴⁰Kの濃度を測定し、移行係数を測定した。また、2013年と2014年において同一の樹木から柿と栗を採取し、¹³⁷Csと⁴⁰Kの濃度を測定し結果を比較した。さらに南相馬市において上水と井戸水を採取し、測定結果を飲料水の基準値と比較した。これらの測定の結果、野菜と籾に含まれる放射性セシウムの濃度は一般食品の基準値(100 Bq/kg)より大幅に低いことがわかった。栗については一部に基準値を超えるものがあった。また、柿、栗については2013年に比べて、2014年は¹³⁷Csの放射能濃度は約半減した。上水と地下水からは¹³⁷Csが検出されたが飲料水の基準値(10 Bq/L)より大幅に低いことがわかった。放射性セシウムの環境中での移動について情報を得るためにさらに測定の継続が必要である。

キーワード: 野菜と米の放射性セシウム、移行係数、果物の放射性セシウム、飲料水の放射性セシウム

1. はじめに

2011年3月11日の東京電力(株)の原子炉事故から4年が経過した。この原子炉事故により膨大な量の核分裂生成物¹⁾が環境に放出された。短寿命放射性核種(≤30d)、たとえば^{129m}Te、¹²⁹Te、¹³¹I、¹³²Teなどは数ヶ月のうちに崩壊してしまうが、長寿命の放射性核種は長い間環境中に留まり、汚染地域に住む人々に外部および内部被曝²⁾を与える。

南相馬市は東京電力福島第一原子力発電所から10-40 kmの北西方向にあり、市内の北西および南の地域では高い放射能汚染³⁾が生じた。市内の農業生産物や飲料水の放射能汚染は住民の内部被曝をもたらすおそれがある。本研究の目的は南相馬市内で生産された農産物や飲料水にどの程度の放射能が含まれているか明らかにすることである。このために、2014年度に我々は市内6ヶ所に実験畑を準備して15種類の野菜を栽培し、土と野菜に含まれる放射能濃度の測定を行い、¹³⁷Csおよび⁴⁰Kの移行係数を求めた。一つの実験水田について土とそこで採れた稲の籾の¹³⁷Cs濃度を測定し、土から籾への移行係数を決定した。また、柿と栗については同一樹木について2013年度と2014年度にサンプルを採取し、放射能濃度を測定して年度変化を調べた。さらに上水と地下水サンプルを集めて¹³⁷Csの測定を行った。得られた結果は食品に対する放射能汚染の不安の解消のために住民に報告した。

2. 実験と方法

2.1 野菜

6ヶ所の実験畑の位置を図1に示す。各畑の広さはおよそ10m×10mである。実験畑F1の写真を図2に示す。畑はよく耕運されている。各畑の6-9カ所から土のサンプルを採取した。土はドライオープンにより80℃で約24時間乾燥させた。その後、2mmメッシュのふるいを通して小石や枯れ草などを除き、約60gの土をポリスチレン容器(U9容器、直径4.8cm×高さ3.0cm)に詰めてガンマ線測定サンプルとした。



図1. 南相馬市内の実験畑F1-F6



図2 実験畑 F1

ガンマ線測定は低バックグラウンド Ge 検出器 (Seiko EG&G, GEM-110225)で行った。ガンマ検出効率の校正は 9 核種の混合容積線源 (MX-033, 日本アイソトープ協会製) を測定して決定した。放射能濃度は ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{40}K について求めた。栽培した野菜はミニトマト、じゃがいも、インゲン豆、にんにく、玉ネギ、なす、ピーマン、キュウリ、ニラ、モロヘイヤ、かぼちゃ、さつまいも、白菜、ダイコン、白ネギである。野菜の例を図3に示す。これらの野菜は 2013 年 7 月から 11 月にかけて収穫した。野菜は乾燥させず、生のままで小さく刻み、U9 容器に詰めてガンマ線測定試料とした。例として実験畑 F1 で収穫されたキュウリのガンマ線スペクトルを図4に示す。



図3 実験畑 F5 で収穫された野菜の例

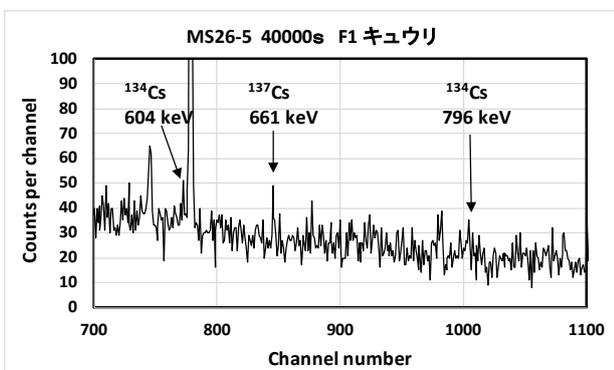


図4 実験畑 F1 で採れたキュウリのガンマ線スペクトル

2.2 米

福島県の 2011 年の米のモニタリング調査において

500Bq/kg を超えるものが見られたことから 2012 年以降、米の作付制限^{5,6,7}が行われている。南相馬市でも米の作付・流通は制限されており、一部で福島県の試験栽培のみが行われている。本研究では図5に示された南相馬市中太田地区の5ヶ所の田 (P, Y, N, E, D これらの水田は耕運されている) について 2014 年 8 月に土の放射能測定を行った。これらの水田の中で D については米の栽培が行われた。2014 年 10 月に米の収穫時に稲の 7 株について根の周りの土と稲穂の採取を行った。図6に写真を示す。土と籾は 80°C で 24 時間乾燥させた。土は砕いた後、2mm のふるいを通したのち、約 40 g をガンマ線測定試料とした。籾は約 22 g を直接 U9 容器に詰めた。

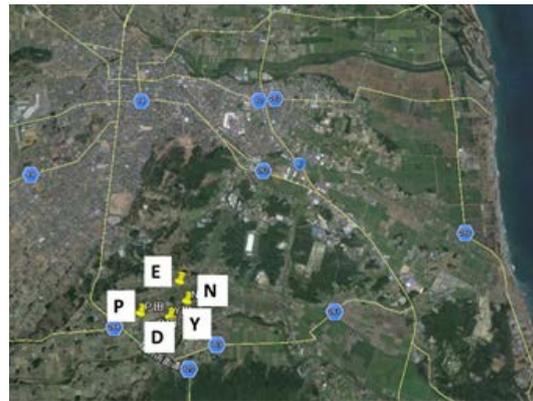


図5 南相馬市中太田地区の5ヶ所の水田



図6 稲株の根の周りの土 (左) と籾の採取 (右)

2.3 柿と栗

柿と栗はそれぞれ、同一の 3 本の樹木から 2013 年と 2014 年に採取した。樹木の位置を図7に示す。柿の木は P1-P3、栗の木は C1-C3 に示す。P3 および C3 は放射能汚染の高い小高地区に存在している。柿と栗の実の写真を図8に示す。果肉は生のまま細かく刻んで U9 容器に詰めてガンマ線測定試料とした。

2.4 上水と地下水の採取

南相馬市の上水は3ヶ所の上水場から供給されている。それらは牛越上水場、大谷上水場、矢川原上水場である。これらの上水場の水源には地下水が使用されている。南相馬市内の民家ではこれらの上水の他に、多くの民家では所有地内にボーリング井戸を掘り、地下水が生活用水に利用されている。6ヶ所の上水サンプルの採取場所 (T1-T6) と 11 ヶ所の地下水 (G1-G11) の採取場所を図9に示す。



図7 南相馬市内の柿 (P1-P3)と栗(C1-C3)の採取場所



図8 柿の実と栗の実の写真

水の採取は現場において 1L の水をポリエチレン容器に直接採取した。試料水はメスフラスコにより正確に 1L をとり、以下の方法で蒸発乾固させた。まず、ホットプレート上にステンレスパットを置き、その上にナフロンシートを敷き、そこに水を注いだ。温度を 100 °C に設定し、約 6 時間加熱すると蒸発乾固試料が得られる⁸⁾。蒸発乾固したナフロンシートを折りたたんで直径 15 mm × 高さ 40 mm の円筒形試料とし、井戸型 Ge 検出器によりガンマ線の測定を行った。

3. 結果と考察

3.1 野菜

6ヶ所の実験畑の土の ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{40}K の放射能濃度および $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比を表1に示す。土の ^{137}Cs の放射能濃度は 2014 年 7 月で 791-1909 Bq/kg であった。また、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は平均で 0.34 であった。土の ^{40}K の放射能濃度は 391-565 Bq/kg であった。6ヶ所の実験畑において野菜の ^{137}Cs と ^{40}K の放射能濃度は決定できたが、 ^{134}Cs の放射能濃度は低いために決めることができなかった。

本研究では移行係数を次のように定義した。

$$TF = \frac{^{137}\text{Cs}(\text{Bq/kg} - \text{fresh weight}) \text{ in plant}}{^{137}\text{Cs}(\text{Bq/kg} - \text{dry weight}) \text{ in soil}}$$

一般に移行係数 $TF^{9,10,11)}$ は植物の乾燥重量あたりの放射能濃度(Bq/kg) と乾燥土壌の放射能濃度の比で定義される。植物の乾燥重量ではなく生の重量について移行係数を求めた例もある¹²⁾。また、IAEA-TRS-472¹¹⁾ には一

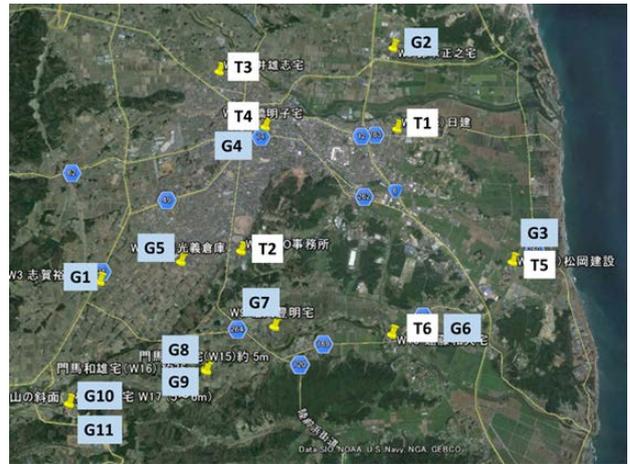


図9 6ヶ所の上水 (T1-T6) と11ヶ所の地下水(G1-G11)の採取場所

表1 実験畑 F1-F6 の土の ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{40}K の放射能濃度。

実験畑	^{137}Cs (Bq/kg)	^{134}Cs (Bq/kg)	$^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$ (Bq/kg)	^{40}K (Bq/kg)	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$
F1	1249 ± 30	448 ± 9	1697 ± 31	422 ± 15	0.358
F2	1034 ± 24	336 ± 7	1370 ± 25	385 ± 14	0.341
F3	1263 ± 30	429 ± 8	1692 ± 31	465 ± 16	0.338
F4	1905 ± 48	674 ± 13	2579 ± 50	565 ± 19	0.353
F5	826 ± 22	271 ± 6	1097 ± 23	489 ± 17	0.332
F6	791 ± 18	271 ± 7	1033 ± 19	391 ± 14	0.345

部の植物について生の場合と乾燥させた場合の植物の重量比の表も示されている。本研究では食材としての野菜に含まれる放射性セシウムの濃度が食品基準値と比較してどの程度かを知るために生の食材中の放射性セシウムの濃度を求めた。また、 ^{40}K の移行係数についても求めた。実験畑 F1 で収穫された野菜について ^{137}Cs と ^{40}K の移行係数を図10 に示す。 ^{137}Cs の移行係数は約0.001 であり、 ^{40}K の移行係数は約0.020 であることがわかる。

実験畑 F1-F6 についてすべての野菜の ^{137}Cs と ^{40}K の平均濃度と移行係数を平均した値を表2に示す。野菜の ^{137}Cs 放射能濃度 1.2-2.8 Bq/kg であり、一般食品の基準値 100 Bq/kg より大幅に低いことがわかる。 ^{40}K の平均濃度は 68-128 Bq/kg で ^{137}Cs よりも高く、移行係数も 0.166-0.287 で ^{137}Cs の移行係数 0.0009-0.0018 よりも高い。

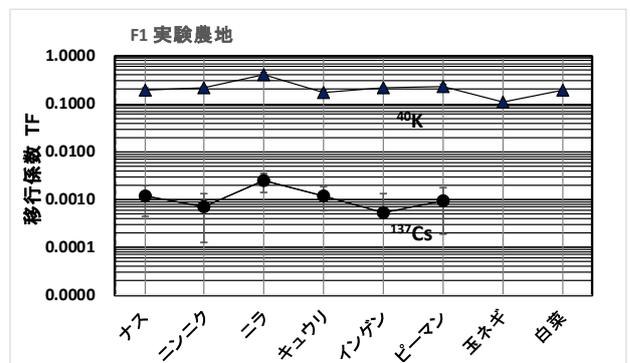


図10 実験畑 F1 の土から野菜への ^{137}Cs と ^{40}K の移行係数

表2 実験畑 F1-F6 についての野菜の ¹³⁷Cs と ⁴⁰K の放射能濃度と移行係数

実験畑	¹³⁷ Cs (Bq/kg)	⁴⁰ K (Bq/kg)	移行係数 TF			
			¹³⁷ Cs		⁴⁰ K	
F1	1.2 ± 0.3	68 ± 3	0.0009 ± 0.0003	0.181 ± 0.009		
F2	1.4 ± 0.4	84 ± 4	0.0014 ± 0.0004	0.240 ± 0.010		
F3	2.1 ± 0.4	82 ± 4	0.0012 ± 0.0003	0.197 ± 0.008		
F4	2.8 ± 0.4	86 ± 3	0.0014 ± 0.0002	0.166 ± 0.007		
F5	1.6 ± 0.3	128 ± 3	0.0018 ± 0.0003	0.287 ± 0.010		
F6	1.4 ± 0.4	81 ± 5	0.0011 ± 0.0003	0.191 ± 0.007		

塚田ら¹⁰⁾は精米において土の安定カリウムの濃度と¹³⁷Cs および安定 Cs の吸収には逆比例関係があることを報告した。田上と内田¹³⁾はフキとスギナにおいて¹³⁷Cs と⁴⁰K の挙動は異なることを報告した。本研究では安定カリウムと安定セシウムの含有量の分析は行っていないが、野菜に含まれる¹³⁷Cs と⁴⁰K の濃度の相関を調べたところ相関係数は+0.365であった。このことは¹³⁷Cs と⁴⁰K には弱い相関があることを示している。

3.2 米

5ヶ所の実験田の土に含まれる¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ⁴⁰K の濃度と¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比を表3に示す。¹³⁷Cs の濃度は2014年8月で824-1102 Bq/kg であり、⁴⁰K の濃度は394-666 Bq/kg であった。米の作付は実験田Dのみで行われた。籾の¹³⁷Cs、⁴⁰K の放射能濃度および移行係数を表4に示す。¹³⁷Cs 濃度は11.6±1.6 Bq/kg であり、一般食品の基準値100 Bq/kg に比べて大幅に低い値であった。また、土から籾への移行係数は¹³⁷Cs と⁴⁰K についてそれぞれ、0.011±0.001、0.071±0.004 であり、⁴⁰K の方が7倍高い移行係数であった。

塚田ら¹⁰⁾は2005年に土から精米への移行係数として0.0016を報告した。駒村と津村¹⁴⁾は1994年に0.003を報告した。これらの移行係数は1950-1980年代の核実験フォールアウトと1986年のチェルノブイリ原子炉事故のフォールアウトに含まれた¹³⁷Cs についての移行係数である。福島原発事故以後については遠藤ら¹⁵⁾は2012年に精米について0.006-0.013、籾について0.019-0.026を報告した。

表3 水田P-Dの土の¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ⁴⁰K の放射能濃度

水田	¹³⁷ Cs (Bq/kg)	¹³⁴ Cs (Bq/kg)	¹³⁷ Cs+ ¹³⁴ Cs (Bq/kg)	⁴⁰ K (Bq/kg)	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs
P	826 ± 22	285 ± 8	1111 ± 24	557 ± 21	0.345 ± 0.020
Y	1076 ± 29	369 ± 10	1445 ± 31	666 ± 24	0.343 ± 0.020
N	824 ± 30	286 ± 11	1110 ± 31	591 ± 17	0.346 ± 0.026
E	968 ± 35	333 ± 12	1301 ± 37	394 ± 12	0.344 ± 0.026
D	1102 ± 34	350 ± 11	1453 ± 35	650 ± 29	0.320 ± 0.012

表4 水田Dの土から籾への¹³⁷Cs および⁴⁰K の移行係数 TF (2014年度).

水田	¹³⁷ Cs (Bq/kg)		TF (¹³⁷ Cs)	⁴⁰ K (Bq/kg)		TF (⁴⁰ K)
	籾	土		籾	土	
D	11.6 ± 1.5	1102 ± 80	0.0115 ± 0.0008	46 ± 5	650 ± 70	0.071 ± 0.004

藤村ら¹⁶⁾はポット実験から精米について2011年に0.011、2012年に0.0061を報告した。また、水田での実験として2011年に0.0008-0.17を報告した。大森ら¹⁷⁾は

2011年に0.0008-0.01を報告した。我々の経験では籾から玄米にすると¹³⁷Cs 濃度は約半分に減少し、精米にすると1/4に減少し、さらに白米を水で洗浄すると1/8に減少する。従って、本実験の籾への移行係数と精米についての移行係数のこれまでの報告とは一致している。

水稻の放射性セシウムの吸収抑制対策としてカリウム肥料やゼオライトの効果について多くの報告^{18,19,20)}がある。天然放射性同位元素である⁴⁰K は安定カリウムの中に0.00117%含まれている。⁴⁰K の食品中の放射能濃度については規制対象となっていないが表2や表4に示されたように野菜や米に含まれる⁴⁰K の放射能濃度は¹³⁷Cs よりもかなり高い。後藤ら²⁰⁾により指摘されているように⁴⁰K は食品を通して人に内部被曝をもたらすので、カリウム肥料の追肥による米の⁴⁰K の含有量の増加の有無についても検討が必要である。

3.3 柿と栗

柿と栗に含まれる¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ⁴⁰K の放射能濃度について2013年度の結果を表5に示し、2014年度の結果を表6に示す。また、これらの結果を図11と図12に年度ごとに比較して示す。柿の¹³⁷Cs+¹³⁴Cs 濃度は2014年度で3-43 Bq/kg であり、一般食品の基準値に比べて大幅に低いが、栗についてはC3で¹³⁷Cs+¹³⁴Cs 濃度が208 Bq/kg であり、一般食品の基準値を超えている。栗については野菜や柿などよりも放射性セシウム濃度が高い傾向がある。C3の

表5 柿と栗の¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ⁴⁰K の放射能濃度 (2013年)

果実 (2013)	場所	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs+ ¹³⁴ Cs	⁴⁰ K	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs
		(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	
柿	P1	13.1 ± 2.6	5.6 ± 2.1	19 ± 3	73 ± 10	0.43 ± 0.18
	P2	58.0 ± 4.6	18.0 ± 2.0	76 ± 5	79 ± 9	0.31 ± 0.04
	P3	30.1 ± 2.3	9.2 ± 0.8	39 ± 2	0 ± 0	0.31 ± 0.04
栗	C1	37 ± 4	16 ± 3	53 ± 5	101 ± 14	0.43 ± 0.09
	C2	139 ± 11	56 ± 5	195 ± 12	110 ± 14	0.40 ± 0.05
	C3	427 ± 39	181 ± 16	608 ± 42	233 ± 32	0.42 ± 0.05

表6 柿と栗の¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ⁴⁰K の放射能濃度 (2014年)

果実 (2014)	場所	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs+ ¹³⁴ Cs	⁴⁰ K	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs
		(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	
柿	P1	3 ± 2	0 ± 0	3 ± 2	79 ± 11	0 ± 0
	P2	33 ± 3	9 ± 2	43 ± 4	32 ± 5	0.27 ± 0.06
	P3	16 ± 2	4 ± 1	20 ± 3	56 ± 8	0.22 ± 0.08
栗	C1	19 ± 3	5 ± 2	24 ± 4	242 ± 28	0.26 ± 0.12
	C2	22 ± 2	6 ± 1	28 ± 2	134 ± 13	0.27 ± 0.06
	C3	156 ± 11	52 ± 4	208 ± 12	140 ± 13	0.33 ± 0.03

サンプリングを行った小高地区では食品の基準値を超える栗が検出される。

⁴⁰K については2014年度の柿について32-79 Bq/kg、栗について134-242 Bq/kg であり放射能汚染とは無関係であるので地域的な違いはない。

柿と栗に含まれる放射性セシウムの濃度は2013年に比べて2014年にはほぼ、半減している。土の中の¹³⁷Cs 濃度はほとんど変わらないので、樹木の根の周りの¹³⁷Cs の化学形が吸収されにくい非溶存形に変化したためと考えられる。このような現象はこれまでにエイジング²¹⁾として報告されている。このような効果を調べるために引き

続き測定が必要である。

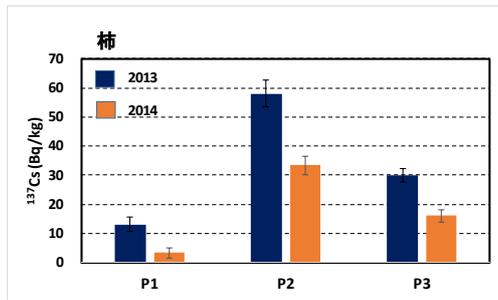


図 11 2013 年と 2014 年の柿に含まれる ¹³⁷Cs 放射能濃度

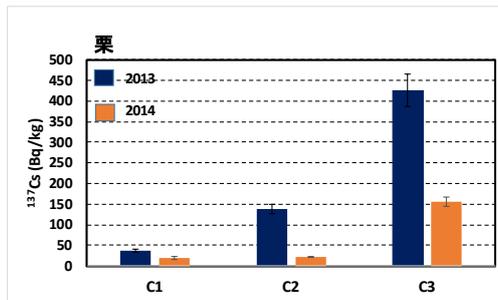


図 12 2013 年と 2014 年の栗に含まれる ¹³⁷Cs 放射能濃度

3.4 上水と地下水

上水と地下水の ¹³⁷Cs 濃度の測定結果を表 7 に示す。また、それぞれの分布を図 13、14 に示す。上水中の ¹³⁷Cs 濃度は 4.4-13.4 mBq/L、地下水中の濃度は 0-27 mBq/L であった。これらの ¹³⁷Cs 濃度は飲料水の基準値 10 Bq/L に比べて、1/400 以下であり低い値であった。南相馬市の上水は 3ヶ所の浄水施設から供給されているが図 13 からわかるように上水場による ¹³⁷Cs 濃度の違いはみられなかった。

地下水は G3 が 100 m、G9 が 75 m のボーリング井戸であるが、他はおよそ 5 m の深さの井戸である。G7、G8 では検出されず、G9 はわずかであった、G7-G9 は市内の南部に位置しておりこの地区では ¹³⁷Cs の地下水への浸透が遅いといえる。

太田ら²²⁾は福島原発事故後の関東地区において地下水の ¹³⁷Cs と ¹³¹I による汚染の予測を行った。予想される ¹³⁷Cs の拡散速度が 0.6 mm/y であったことから関東地区の地下水の汚染は起こりにくいと報告した。関東地区と南相馬地区では土壌の質が異なり、また、福島原子炉事故による地上の放射能汚染の程度も異なるが、後者ではわずかながら地下水の汚染は観測された。さらに ¹³⁷Cs の拡散の状況を調べ、飲料水の安全性を検証するためにもさらに飲料水の測定を継続する必要がある。

4. 結論

2014 年度に南相馬市において 6ヶ所の実験畑を設けて 15 種類の野菜を栽培した。これらの畑で生産された野菜の放射能濃度を測定することにより、食品中の放射能濃度基準に対して実際にどの程度の放射能が含まれるのか

表 7 上水と地下水中の ¹³⁷Cs 放射能濃度 (2014 年)

上水/地下水		¹³⁷ Cs(mBq/L)	
上水	T1	13.4	± 2.5
	T2	9.2	± 2.1
	T3	6.3	± 1.5
	T4	5.7	± 1.8
	T5	5.7	± 1.8
	T6	4.4	± 1.8
地下水	G1	26.7	± 3.5
	G2	4.9	± 1.7
	G3	5.4	± 1.6
	G4	6.5	± 1.8
	G5	16.8	± 2.4
	G6	24.0	± 3.0
	G7	ND	
	G8	ND	
	G9	0.2	± 0.1
	G10	2.5	± 0.7
	G11	6.8	± 1.3

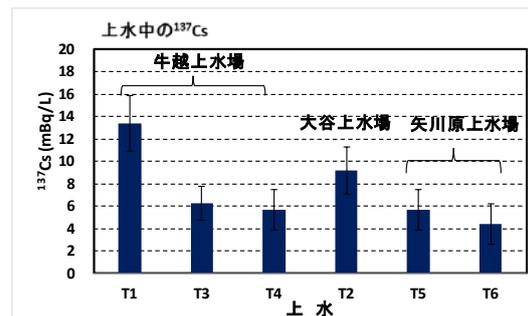


図 13 南相馬市の上水中の ¹³⁷Cs 放射能濃度

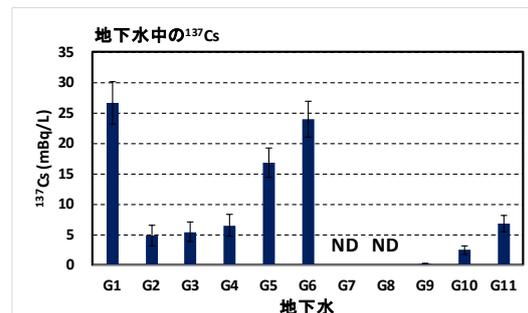


図 14 南相馬市の地下水中の ¹³⁷Cs 放射能濃度

について調査したところ、野菜の ¹³⁷Cs 放射能濃度 1.2-2.8 Bq/kg であり、食品基準値より大幅に低いことがわかった。また、畑の土と野菜に含まれる ¹³⁷Cs と ⁴⁰K の放射能濃度を測定することにより土から野菜への移行係数を求めたところ ³⁷Cs で 0.0009-0.0018, ⁴⁰K で 0.166-0.287 であった。米の ¹³⁷Cs 濃度は 11.6±1.6 Bq/kg であり、一般食品の基準値に比べて大幅に低く、移行係数は 0.011±0.001 であった。柿と栗について 2013 年と 2014 年にわたり同一の樹木で ¹³⁷Cs 濃度を調べたところ、2014 年度は 2013 年度の半分程度に減少するエイジング効果が見られた。また、栗については一部に食品基準値を超えるものがあった。飲料水として上水 6 サンプル、地下水 11 サンプルを測定したところ 0-27 mBq/L の範囲でわずかながら ¹³⁷Cs が検出された。これらの値は飲料水基準 10 Bq/L より十分小さいが今後も測定を継続することが必要である。

謝辞

本研究を行うにあたり次の皆様方にご協力いただきました。厚く感謝申しあげます。佐藤光義氏、志賀裕司氏、半沢恒清氏、鈴木正之氏、櫻井英喜氏、館山 清氏、杉 成文氏、門馬利典氏、山田 稔氏、志賀信夫氏、堀内豊明氏、(株) 松岡建設様、高橋明子氏、遠藤和夫氏、門馬和雄氏、杉 和昌氏。

参考文献

- 1) S. Endo, S. Kimura, T. Takatsuji, K. Nanasawa, T. Imanaka, K. Shizuma, Measurement of soil contamination by radionuclides due to Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident and associated cumulative external dose estimation. J. Environ. Radioact. 111, 18-27 (2012)
- 2) N. Kamada, O. Saito, S. Endo, A. Kimura, K. Shizuma, Radiation doses among residents living in 37 km northwest of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. J. Environ. Radioact. 110, 84-89 (2012)
- 3) T. Kajimoto, S. Endo, T. Naganuma, K. Shizuma, Distribution of radioactivities ^{137}Cs and ^{134}Cs in river water and bottom sand for major rivers at Minami-Souma City in Fukushima. Proceedings of International Symposium on Environmental monitoring and dose estimation of residents after accident of TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Stations. pp. 96-100 (2013) (KURRI).
- 4) 食品中の放射性物質の対策と現状について、厚生労働省医薬食品局食品安全部 http://www.mhlw.go.jp/shinsai_jouhou/dl/20131025-1.pdf
- 5) 平成 24 年産の稲の作付制限 - 原子力規制委員会 www.nsr.go.jp/archive/nsc/ad/pdf/20120405_1.pdf
- 6) 24 年産稲の作付制限等の対象区域 - 厚生労働省 www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/iken/dl/120801-1-saitama
- 7) 25 年産稲の作付制限及び 25 年産米の全量生産出荷管理の対象区域 (福島県ホームページ) <https://www.pref.fukushima.lg.jp/sec/36035b/daishinsai-25kome-sakutsukeseigen.html>
- 8) K. Shizuma, S. Hamanaka, X. Q. Wen, K. Iwatani and H. Hasai, A method for measuring accurate radon concentration in water by means of gamma-ray spectrometry. Nuclear Instrum. Methods in Physical Research A410, 309-313 (1998)
- 9) C. Myttenaere, Absorption of radiocaesium by flooded rice: relative importance of foods and shoot base in the transfer radioactivity. Plant. Soil. 36 (1), 215-218 (1972)
- 10) Tsukada, H. Hasegawa, H. Hisamatsu, S. Yamasaki, S. Transfer of ^{137}Cs and stable Cs from paddy soil to polished rice in Aomori, Japan. J. Environ. Radioact. 59, 351-363 (2002a)
- 11) IAEA, Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. Technical Report Series (TRS) No.472, Appendix I. International Atomic Energy Agency, Vienna (2010).
- 12) M. Brambilla, P. Fortunati, F. Carini, Foliar and root uptake of ^{134}Cs , ^{85}Sr , and ^{65}Zn in processing tomato plants (*Lycopersicon esculentum* Mill). J. Environ. Radioact. 60 351-363 (2002)
- 13) K. Tagami and S. Uchida, Effective half-lives of ^{137}Cs in giant butterbur and field horsetail, and the
- 14) 駒込美佐子、津村昭人、誘導結合プラズマ質量分析法による土壌から白米への放射性核種の移行係数算定 RADIOISOTOPES 43, 1-8 (1994).
- 15) S. Endo, T. Kajimoto, K. Shizuma: Transfer coefficient soil to rice plant of ^{134}Cs and ^{137}Cs deposition due to Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. J. Environ. Radioact. 116, 59-64 (2012).
- 16) S. Fujimura, Y. Muramatsu, T. Ohno, M. Saito, Y. Suzuki, T. Kobayashi, K. Yoshioka, Y. Ueda, Accumulation of ^{137}Cs by rice grown in four types of soil contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in 2011 and 2012. J. Environ. Radiat. 140, 59-64 (2015).
- 17) Ohmori, Y., Inui, Y., Kajikawa, et al. Difference in cesium accumulation among rice cultivars grown in the paddy field in Fukushima Prefecture in 2011 and 2012. J. Plant Res. 127, 57-66 (2014).
- 18) 吉岡邦雄, 福島県農業総合センターの活動, 水稻の放射性セシウム吸収抑制対策について www.jrsm.jp/shinsai/1-3_Yoshioka.pdf
- 19) 福島県農林水産部 農業技術情報 第 24 号「水稻の放射性セシウム対策としてのカリ施用」 www.town.bandai.fukushima.jp/data/download/pdf/2012/ganba24suitou-kariH24.
- 20) 後藤逸男, 蛭木朋子, 近藤綾子, 稲垣開聞生, 水稻への放射性セシウム吸収抑制対策、福島県の農業再生を支える放射性物質対策研究シンポジウム (2013 年 6 月) http://www.naro.affrc.go.jp/project/research_activities/files/fukushima_sympto_report_7.pdf
- 21) H. Noordijk, K. E. van Bergeijk, J. Lembrechts, M. J. a Frissel, Impact of aging and weather conditions on soil-to-plant transfer of radiocesium and radiostrontium. J. Environ. Radioact. 15, 277-286 (1992).
- 22) T. Ohta, Y. Mahara, T. Kubota, S. Fukutani, K. Fujiwara, K. Takamiya, H. Yoshinaga, H. Mizuochi, T. Igarashi, Prediction of groundwater contamination with ^{137}Cs and ^{131}I from the Fukushima nuclear accident in the Konto district. J. Environ. Radioact. 111, 38-41 (2012).

福島第一原発事故後の¹³⁷Csの沈着量と 野生山菜への¹³⁷Csの移行割合

清野嘉之*¹⁾ 赤間亮夫¹⁾

¹⁾ 国立研究開発法人 森林総合研究所 茨城県つくば市松の里1

*kiono@ffpri.affrc.go.jp

Kiyono & Akama (in press)は政府公表データを使い、福島第一原発事故2-3年後の放射性セシウムの地表面への沈着量と野生山菜12種の可食部の放射能汚染との関係を求めた。関係はべき乗式で近似でき、式は12種全体、また、種別でも、ミヤマイラクサを除く11種で統計的に有意であった。関係は種によって異なり、例えば、同じ沈着量のときの植物体中の濃度はコシアブラが高く、タラノキ、ワラビ、ウドなどは中庸、フキ(葉)やオオバギボウシは低めであった。¹³⁷Csの地表面への沈着量と植物体サンプル濃度の関係式を予測式として用い、¹³⁷Cs沈着量が10、60、300 kBq m⁻²のときの¹³⁷Csの植物体濃度、移行割合を山菜の種類別に推定した。沈着量の増加とともに、ミヤマイラクサ以外の11種では植物体濃度が増加し、11種中コシアブラ以外の種では、移行割合が小さくなった。コシアブラの移行割合は沈着量によらず、あまり変わらなかった。コシアブラは調べた範囲では沈着量の増加にほぼ比例して植物体の吸収量を増やしており、他の植物とは¹³⁷Cs吸収のしくみが異なると考えられる。

キーワード: 移行係数, コシアブラ, 福島第一原発事故

1 はじめに

福島第一原発事故は山菜食の文化圏で起きた初めての深刻な放射能汚染事故である。植物体の放射性物質濃度は空間線量率とおおむね正の相関関係にある¹⁾。野生山菜でも同様の傾向²⁾が認められている。しかし、野生山菜の種類による違いは、データ数が少ないことから、一部の種について明らかになっているだけである。県等自治体が実施している農産物に含まれる放射性セシウム濃度の検査では、多数の放射性物質濃度の計測値が公表されていることから、Kiyono & Akama³⁾は福島県のデータを利用し、福島第一原発事故により環境中に放出された放射能(放射性セシウムの地表面への沈着量)と野生山菜の放射能汚染との関係を分析した。ここではその概要を報告する。

本研究は林野庁事業及びJSPS KAKENHI Grant Number 15K07496の経費を使用して行った。

2 材料と方法

(1) 地表面への沈着量

県等自治体が実施・公表している、農産物に含まれる

放射性セシウム濃度の検査では検体の産地が市町村単位で示される場合が多い。このため、地表面への沈着量は、文科省発表(http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6749/24/191_258_03_01_18.pdf)の航空機モニタリングによる¹³⁷Cs土壌濃度マップ(地表面への沈着量2012.11.16現在値換算)(図1)⁴⁾で福島県の市町村ごとの沈着量範囲を読み取り、最大と最小の平均値を求めてその市町村の沈着量とした。

(2) 野生山菜の放射能汚染

福島県発表、林野庁取りまとめのきのこ・山菜等の放射性モニタリング検査結果(<http://www.rinya.maff.go.jp/j/tokuyou/kinoko/kensakekka/fukusimaken.html>)の山菜(野生)データでは2013、2014年の両年間で特段の傾向差は認められなかった。そこで、両年のデータを合わせ、12種(サンショウ、コシアブラ、タラノキ、ウド、フキ(葉、花蕾)、モミジガサ、ウワバミソウ、ミヤマイラクサ、オオバギボウシ、クサソテツ、ワラビ、ゼンマイ)、685サンプルの植物体生重当たり¹³⁷Cs計測値を用いた。不検出の場合は検出限界値(23~94 Bq kg⁻¹)で代用した。種ごとのサンプル数は16~121となった。なお、山菜中の放射能には福島第一

原発事故より前の大気核実験などに由来する放射能も含まれていると考えられるが量的割合は小さいと考えられることから、ここでは無視した。

(3) 回帰分析

エクセル統計2008（株式会社・社会情報サービス）を使用し、沈着量と山菜の放射能汚染との関係を近似した。

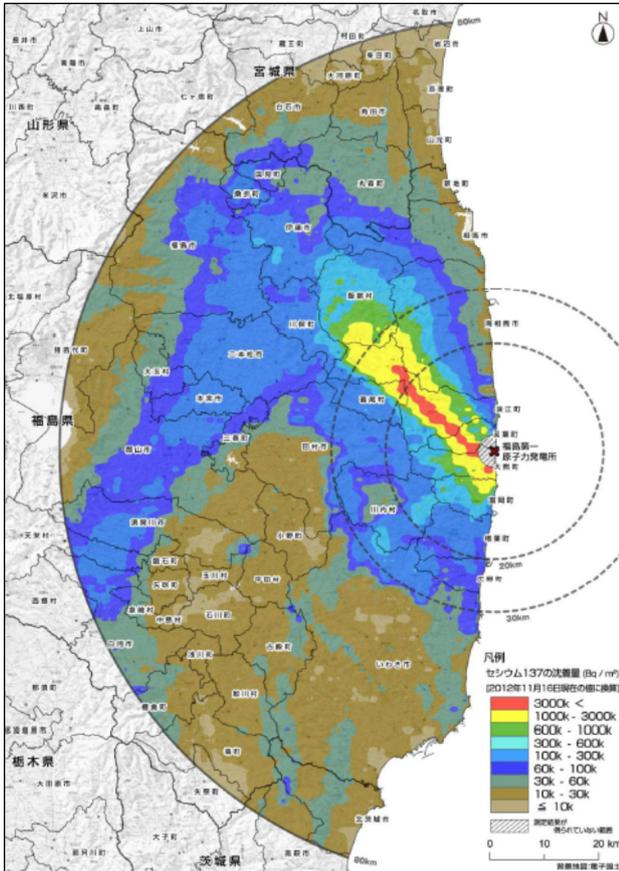


図1 福島第一原発事故による¹³⁷Csの地表面への沈着量⁴⁾
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6749/24/191_258_0301_18.pdf

3 結果と考察

(1) ¹³⁷Csの地表面への沈着量と植物体濃度の関係

¹³⁷Csの地表面への沈着量と植物体中の濃度との間には、べき乗式で近似できる関係があった。その関係は調べた山菜12種全体、また、種別でも沈着量データの範囲が狭いミヤマイラクサ ($P = 0.5054$) を除く11種 (図1) で、統計的に有意 ($P \leq 0.0344$) であった。同じ沈着量のときの植物体中の濃度はコシアブラが高め、タラノキ、ワラビ、ウドなどは中庸、フキ(葉)やオオバギボウシは低めと、種による違いがあった。フキ(葉)が他の種より低濃度である傾向は、別の調査²⁾も、フキ

(葉) < ツルアジサイ、イワガラミ、コシアブラと報告している。

なお、植物体の¹³⁷Cs計測値が不検出のとき検出限界値で代用したことから、図1中の式で計算した値は、沈着量が少ない場合、真値より大き目になる可能性がある。

(2) ¹³⁷Csの植物体への移行割合

畑地では植物の根が伸びる深さの土を耕耘して均質化しているが、森林では場所や地面からの深さによって土壌の性質や放射性セシウム濃度が大きく異なる。このため、土地面積当たりで算出した移行係数(植物生重当たりの濃度/土地面積当たりの濃度, $TF_{\text{植}}, \text{m}^2 \text{kg}^{-1}$)が提案されている⁵⁾。しかし、山菜の多くは林床植物で、放射性セシウムは土壌だけでなく上木からの落葉などを通して林床植物に移行する可能性がある。前項(1)で述べた地表面への沈着量を生態系への供給量とし、植物体¹³⁷Cs濃度との関係の近似式を求め、それを予測式として用いて、¹³⁷Cs沈着量が10、60、300 kBq m^{-2} のときの植物体の¹³⁷Cs濃度、環境からの移行割合を山菜の種類別に推定した(表1)。種ごとに見ると、ミヤマイラクサ以外の11種では沈着量の増加とともに植物体濃度が増加し、うちコシアブラ以外の種では、移行割合が明らかに低下した。コシアブラ以外の植物には、沈着量が増加しても、植物が吸収しやすい¹³⁷Cs量は沈着量ほどには増えていないようである(べき乗式の傾き: 0.100~0.697)。コシアブラは移行割合が沈着量によらず、あまり変わらなかった(同: 1.026)。コシアブラは沈着量の増加にほぼ比例して植物体の吸収量を増やしており、他の植物とは¹³⁷Cs吸収のしくみが異なると考えられる。

分類群(表1)について見ると、コシアブラの移行割合は高くても、タラノキやウドを加えたウコギ科3種が他の科の植物(9種)より割合が有意に高いことはなく($P = 0.40$, ¹³⁷Cs沈着量60 kBq m^{-2} 時の移行割合でt検定を実施。以下同じ)、被子植物(9種)とシダ植物(3種)(表1)との間にも割合の有意差はなかった($P = 0.38$)。チェルノブイリ事故の事例でオシダ属のシダ(*Dryopteris filix-mas*)が他の草(grass)より汚染濃度が高いという報告⁶⁾がある。福島事故のケースでもシダ植物のヤマドリゼンマイは最も高濃度汚染していた植物の一つ²⁾であった。しかし、表1に示した通り、クサソテツ、ゼンマイ、ワラビでは他の植物より割合が高い傾向は認められなかった。「シダ植物は高濃度」と一般化すると誤りになる。

生活形は生物の機能や形態にもとづく分類の一種で、さまざまなものがある。表1の落葉樹(3種)と多年草(9種)という生活形の間では移行割合に有意差はなかった($P = 0.39$)。しかし、生活形のなかには放射能汚

染の程度に深くかかわるものがある。例えば、Kiyono & Akama²⁾はイワガラミやツルアジサイが高濃度である理由を、付着根を持つ蔓植物で付着根を汚染された樹皮や腐植に張るためと推察している。

なお、今回見られた種間の違いの原因には、生育環境の違い³⁾もある。放射性物質が集まり易い集水地形や斜面下部に生育地を持つ種は濃度が高くなり易い。また、サンプルの採取時期（植物季節）の影響も及んでいる。新葉と比べてバイオマスが増えた成葉では濃度が低下する^{7,8)}ので、展開をほぼ終えた若い地上部が山菜として採取されるフキ（葉）とウワバミソウは、他の山菜植物よりも濃度が低めになっている可能性がある。

以上の通り、県等自治体公表の農産物に含まれる放射性セシウム濃度の検査結果を利用して、野生山菜の種類による放射能汚染の違いを推定できることが分かった。沈着量と植物の放射性物質濃度との関係は放射性物質の崩壊や生態系内の移動により、経時的に変化する可能性がある。県等自治体公表の農産物に含まれる放射性セシウム濃度の検査を、精度向上を図りつつ継続することにより、沈着量と植物の放射性物質濃度との関係のトレンドを検出できる可能性がある。しかし、地表面への沈着量は同じ市町村でも大きな違いがある（図1）。現在の予測値の精度は、各市町村でその最大値と最小値の平均を沈着量とする現在のモデルの不確実性に依存している。

図2で示した通り、フキ（葉）やオオバギボウシでは、沈着量が多いところでも¹³⁷Csは100 Bq kg⁻¹よりはるかに小さい値であることが多かった。図2のような関係をもとに¹³⁴Csも考慮しつつ、放射性セシウム濃度が100 Bq kg⁻¹を超えない沈着量の範囲をデータで示すことは、出荷制限解除の良い判断情報になると考えられる。

4 おわりに(今後の課題)

農産物に含まれる放射性セシウム濃度の検査を現在は市町村単位で公表している。検体の産地を大字や、できれば緯度・経度など空間解像度のより高い情報として記録し、利用することにより、図2で示したような放射能沈着量と野生山菜の放射性物質濃度との関係を放射能汚染の予測モデルとして活用するときの精度を向上させることができるであろう。野生山菜の放射性セシウム濃度の検査方法の改善、トレンド予測方法の開発、負担のより少ない出荷制限解除方法の開発が今後の課題である。

引用文献

1) 林野庁, “森林内の放射性物質の分布状況調査結果について (第二報)”, 平成 23 年 12 月 27 日付プレス

リリース, 林野庁, 2011
http://www.rinya.maff.go.jp/press/hozen/111227_2.html

- 2) Kiyono Y, Akama A, “Radioactive cesium contamination of edible wild plants after the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant”, *Japanese Journal of Forest Environment*, **55**(2), 113–118, 2013
- 3) Kiyono Y, Akama A, “The amount of ¹³⁷Cs deposition and aggregated transfer factors of ¹³⁷Cs to wild edible-wild-plants after the accident at TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station”, *Proceeding of International Symposium on Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future*, Fukushima City, 30-31 May, 2015 (in press)
- 4) 文部科学省, “①第 6 次航空機モニタリングの測定結果、及び②福島第一原子力発電所から 80km 圏外の航空機モニタリングの測定結果について”, 平成 25 年 3 月 1 日プレスリリース, 文部科学省, 2013
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/4000/3710/24/13058_20_20110506.pdf
- 5) 山口紀子・高田裕介・林健太郎・石川覚・倉俣正人・江口定夫・吉川省子・坂口敦・朝田景・和穎朗太・牧野知之・赤羽幾子・平舘俊太郎, “土壌－植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因”, *農環研報*, **31**, 75–129, 2012
- 6) Butkus D, Konstantinova M, “Studies of ¹³⁷Cs transfer in soil-fern system”, *Journal of Environmental Engineering and Landscape Management*, **XIII**(3), 97–102, 2005
- 7) Bunzl K, Kracke W, “Seasonal variation of soil-to-plant transfer of K and fallout ¹³⁴, ¹³⁷Cs in peatland vegetation”, *Health Physics*, **57**(4), 593–600, 1989
- 8) Rantavaara A, Vetikko V, Raitio H, Aro L, “Seasonal variation of the ¹³⁷Cs level and its relationship with potassium and carbon levels in conifer needles”. *Science of the Total Environment* **441**, 194–208, 2012

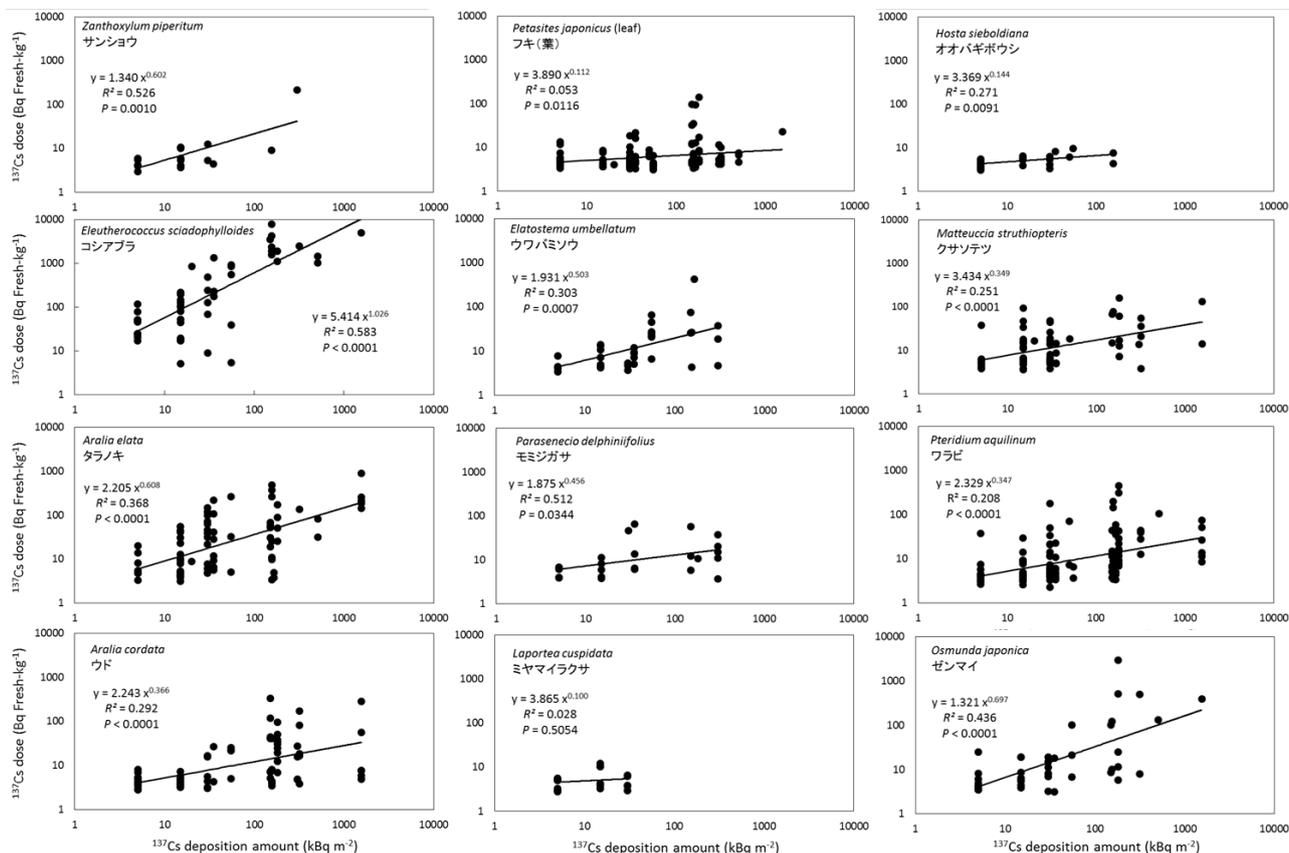


図2 福島第一原発事故による¹³⁷Csの地表面への沈着量と事故後2-3年の山菜12種の可食部濃度との関係

表1 植物の種類と福島第一原発事故による¹³⁷Cs沈着量別の山菜12種の可食部濃度、移行割合の推定値

Species 種	Family 科	Tracheophyta 維管束植物	Life form 生活形	Predicted ¹³⁷ Cs concentration, 濃度 (Bq fresh-kg ⁻²)			Predicted ¹³⁷ Cs transfer ratio, 移行割合 (m ² kg ⁻¹)		
				¹³⁷ Cs deposition amount			¹³⁷ Cs deposition amount		
				10 kBq m ⁻²	60 kBq m ⁻²	300 kBq m ⁻²	10 kBq m ⁻²	60 kBq m ⁻²	300 kBq m ⁻²
<i>Zanthoxylum piperitum</i> サンショウ	Rutaceae ミカン科		Deciduous tree 落葉樹	5	16	41	0.000536	0.000262	0.000138
<i>Eleutherococcus sciadophylloides</i> コンアブラ		58		362	1888	0.005753	0.006032	0.006294	
<i>Aralia elata</i> タラノキ	Araliaceae ウコギ科			9	27	71	0.000894	0.000443	0.000235
<i>Aralia cordata</i> ウド		5		10	18	0.000521	0.000167	0.000060	
<i>Petasites japonicus</i> (leaf) フキ(葉)		Angiospermae 被子植物門		5	6	7	0.000504	0.000103	0.000025
<i>P. japonicus</i> (flower stalk) フキ(花蕾)	Asteraceae キク科			6	16	39	0.000623	0.000272	0.000129
<i>Parasenecio delphinifolius</i> モミジガサ				7	11	17	0.000725	0.000188	0.000056
<i>Elatostema umbellatum</i> ウワハミソウ	Urticaceae イラクサ科		Deciduous perennial herb 落葉性多年草	6	15	34	0.000616	0.000253	0.000114
<i>Laportea cuspidata</i> ミヤマイラクサ		5		-	-	0.000500	-	-	
<i>Hosta sieboldiana</i> オオバギボウシ	Asparagaceae キジカクシ科			5	6	-	0.000469	0.000101	-
<i>Matteuccia struthiopteris</i> クサソテツ	Onocleaceae コウヤワラビ科			8	14	25	0.000767	0.000239	0.000084
<i>Pteridium aquilinum</i> ワラビ	Dennstaedtiaceae コバノイシカグマ科	Pteridophyta シダ植物門		5	10	17	0.000517	0.000160	0.000056
<i>Osmunda japonica</i> ゼンマイ	Osmundaceae ゼンマイ科		7	23	70	0.000657	0.000382	0.000234	

山菜と果実の調理・加工による放射性セシウムおよびカリウムの除去割合について

田上恵子^{1*} 内田滋夫¹

1) 放射線医学総合研究所 千葉県千葉市稲毛区穴川4-9-1

* k_tagami@nirs.go.jp

山菜や家庭で採れる果実類は自家消費されることが多く、食品中の放射性物質濃度モニタリングが行われることはほとんどない。その調理・加工過程において、放射性セシウムがどのくらい除去できるのかというデータは、安心して消費するための情報となる。そこで本研究では山菜と果実を対象に調理・加工による放射性セシウムの除去割合を測定した。本研究で用いた山菜は福島第一原子力発電所の事故から半年以上経過しており、放射性セシウムは植物内部にあるため、洗浄ではほとんど除去できないが、ゆでると除去効果が認められ、元の食材から6-84%がゆで汁に溶出したことがわかった。ただし、厚みがある食材(タケノコ、フキ葉柄)ではヨモギやツクシ等の厚みのない材料に比べて除去効果が低かった。また、カキ、ビワおよび甘夏ミカンの部位毎(果皮・果肉・種子)の放射性セシウムの分布を測定し、可食部である果肉中の濃度が他の部位よりも低い結果を得た。果皮を剥くことで放射性セシウムを除去することができるが、果実全体に対する果皮の割合が低いことから、その効果は限定的であるといえる。

キーワード 食用野草, 放射性セシウム, カリウム, 残存割合 (F_r)

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所(以下、福島第一原発と記載)の事故以降、食品中の放射性セシウム濃度($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$, Bq/kg)は、毎月 2-3 万件のデータが厚生労働省から報告されており、現在までに 100 万件を超える結果が報告されている¹⁾。このほかにも福島県内で収穫された米の全袋検査や、企業が独自に行うモニタリングを入れると、毎日膨大な数の測定が行われていることになる。福島第一原子力発電所事故直後から数ヶ月は暫定規制値を超える食品の報告が見受けられたが、その後はごく限られた食品での報告に限られた。厚生労働省から報告されている食品モニタリング結果を集計すると2014年4月から2015年3月までの1年間で100 Bq/kgを超えた試料は全体の0.18%であり、その97%が天然の動植物であった。

自家消費用に採取する山野草や自家栽培の野菜・果物等はモニタリング対象になっていないことから、内部被ばくを低減させたい消費者にとっては、その利用が不安になることもあるだろう。食材を調理・加工することによって放射性セシウムが減らせるという情報は、食品を家庭で安心して食べるための一助となる。近年では、「食品の調理・加工による放射性核種の除去率」が環境パラメータ・シリーズ4の増補版として報告されている²⁾。ここには日本国内で原子力発電所事故後に採取されたデータを中心とし、IAEA から出されている環境移行パラメータシリーズ最新版³⁾も取り入れて、広範に収集されている。ただし、できるだけ早く出版する意図があり、2011~2012年に取られたデータまでしか記載されていない。追加し

て取られた調理・加工に関わるデータは2014年以降にも報告されている⁴⁻⁶⁾。たとえばイナゴは脱糞、水洗い、3回の3分間ゆでこぼしを行うと濃度は1/4にまで低減させることができたり⁴⁾、梅漬けの際にゼオライトを梅の重量の10%加えることで通常の塩漬けに比べて半分程度の濃度に低減させることができる⁵⁾など、いろいろ工夫して低減することが試みられている。

福島第一原発事故後からこれまでに、筆者らも食用可能な野草(一般に山菜と呼称される)を中心にデータを収集し報告してきた⁷⁻⁹⁾。本報告ではこれまでに筆者らが収集した調理・加工に関するデータのとりまとめを行うとともに、庭木として多用されている果樹(カキ、ビワ、甘夏ミカン)についても、剥皮の効果を示すために放射性Csの分布を調査した結果を示す。

2. 材料および方法

(1) 材料および調理方法

材料は2012年から2014年に、主に放射線医学総合研究所敷地内(千葉県千葉市)で採取した。その他、千葉県および福島県内で採取した山菜についても、比較のために調理・加工を行った。試料は調理・加工前用の試料と調理用の2つに分割し、調理用のものについては流水で洗浄したのち純水でリンスした。

標準的な調理方法¹⁰⁾に準じて調理を行った。すなわち、ヨモギ、フキノトウ、フキの葉身およびツクシはホウレンソウの下ゆで(沸騰湯に食塩を0.5-1%加えてふたをしないで2分前後ゆで、流水にとって冷ます)に準じて2.5分間ゆでて純水にとって冷ました。フキの葉柄については、標準的な方法は塩をまぶして板ずりし、3-5分ゆでて冷

水にとり、皮を剥くが、本調査では、採取後すぐに調理できたことからアクが少なかったため、板ずりをせずに 2.5 分塩水でゆで、純水にとって冷ましたあと皮を剥いた。タケノコは皮を剥き、鍋に入る大きさに切り分け、糠を入れた湯で十分ゆであがるまで加熱し(10-12 分)、純水にとって冷ました。桜葉の塩漬けでは若葉をさっとゆでた後、純水にとって冷ましたのち、丁寧にペーパータオルで拭き取り、1 週間 30%の塩水で漬け込んだ(冷蔵庫保管)。

果実については、表面をよく流水で洗浄した後、純水でリンスし、ペーパータオルでよく水分を拭き取った。次に、それぞれ果実を、果皮、果肉、種子に分割し、複数個分を併せて1試料とした。

(2) 測定方法

無処理、調理・加工後の試料とも電気乾燥機を用いて 80°C、2 日以上かけて乾燥し、粉碎して、U8 容器に詰め、Ge 半導体検出装置 (Seiko EG&G) で ^{137}Cs および ^{40}K を定量した(計測時間は 8-20 万秒)。定量結果の確からしさについては、IAEA から頒布されている標準物質 (IAEA-156, 375)を用いて確認した。

(3) 計算方法

調理加工後の料理に含まれる放射性物質(F_r) は、以下の式で表すことができる。

$$F_r = \frac{\text{調理後に含まれる放射性物質質量 (A}_{\text{after}}, \text{Bq)}}{\text{食材中に含まれる放射性物質質量 (A}_{\text{before}}, \text{Bq)}}$$

調理に用いた食材の重量が既知であり、調理前の食材中の濃度(Bq/kg)を与えると、 A_{before} は次式で表すことができる。

$$A_{\text{before}} = \text{食材中の放射性物質濃度} \times \text{調理前重量}$$

A_{before} の算出に使った食材重量分を用いて調理し、調理後の重量と試料中の濃度(Bq/kg)により、 A_{after} は次式で表すことができる。

$$A_{\text{after}} = \text{調理後の放射性物質濃度} \times \text{調理後重量}$$

除去割合は、調理・加工によって取り除かれた割合(%)であり、次式により求めた。

$$\text{除去割合(\%)} = (1 - F_r) \times 100$$

3. 結果および考察

(1) 山菜中の放射性セシウム濃度の経年変化

放医研敷地内においてサンプリングを継続して行っている山菜のうち、ツクシとフキの可食部の経年変化について図1に示す。 ^{137}Cs 濃度は年々減少しており、指数関数でフィッティングしたところ、ツクシの孢子茎では相関係数-0.78 ($t < 0.01$)、フキでは-0.86 ($t < 0.01$) が得られ、あてはまりが良かった。したがって、これらの山菜中の放射性 Cs は指数関数的に減少していることがわかった。

これらの結果から得られた ^{137}Cs の山菜からの半減期はどちらも約 450 日であった。徐々に経根吸収可能な ^{137}Cs 量(可給態 ^{137}Cs)が減っていることが主要因と考えられる。ただし、どちらの山菜も多年生植物であるため、植物根等にプールされた ^{137}Cs が観察した部位に転流した可能性も考えられる。半減期について詳細な議論するためには、可給態 ^{137}Cs の評価を行う必要がある。ただし、この結果から、約 1.2 年で濃度が半減していることから、2011 年 3 月 11 日から、4 年余り経過すると濃度が 1/10 にまで低下したことがわかった。放射性 Cs の調理・加工による除去割合を測定することが、徐々に難しくなっているといえる。

(2) 調理・加工による除去割合

本研究で用いた山菜は、福島第一原発から放出された放射性物質の直接沈着を受けておらず、植物体内での転流もしくは経根吸収によって可食部に運ばれているため、内部汚染の状態にある。前報⁹⁾にも示した通り、内部汚染の場合には洗浄の効果はほとんど観察されなかった(データ表示なし)。放射性 Cs は植物体内において

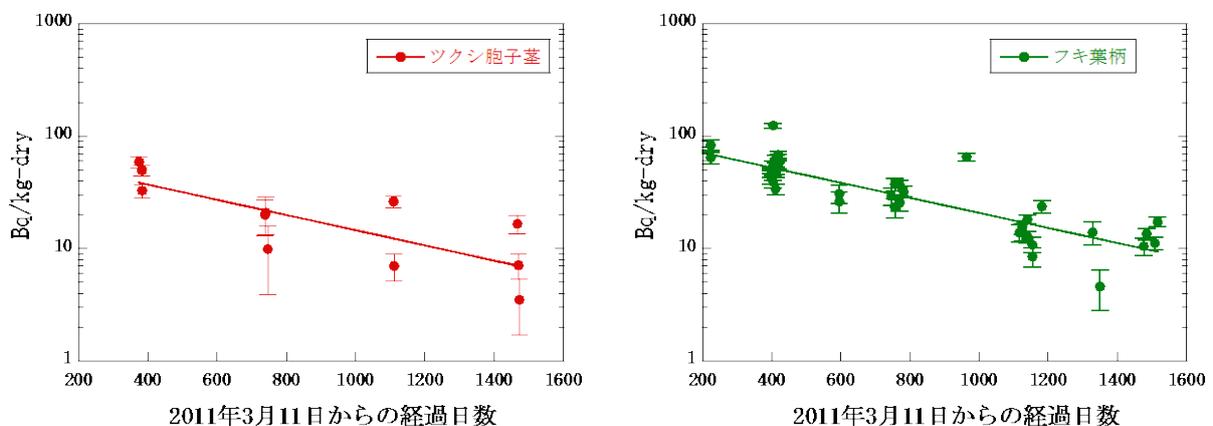


図1 放医研敷地内で採取されたツクシ(孢子茎)とフキ(葉柄)中の ^{137}Cs 濃度の経年変化

表1 調理・加工による山菜からの ^{137}Cs と ^{40}K の除去率

試料名	調理・加工方法	n	^{137}Cs		^{40}K	
			F_r	除去割合 (%)	F_r	除去割合 (%)
			算術平均	範囲	算術平均	範囲
フキノトウ	ゆで	4	0.42	41-81	0.64	27-44
フキの葉身	ゆで	9	0.39	53-67	0.46	40-72
フキの葉柄	ゆで-皮むき	8	0.79	8-41	0.80	6-34
ヨモギ	ゆで	9	0.38	48-78	0.45	36-71
ツクシ	ゆで	6	0.46	32-84	0.52	38-57
タケノコ	ゆで (+糠)	12	0.73	6-35	0.70*	20-45
サクラの葉	塩漬	2	0.18	78-87	-	-

*分析試料数は8

細胞や植物体液中にカリウムと同様にイオン形 (Cs^+)、もしくは、有機物結合体として存在すると考えられる。したがって、細胞を壊す調理・加工であれば、放射性 Cs が除去できると考えられる。

表1にはゆでた場合と塩漬けの結果を示した。山菜をゆでた場合、種類や部位にも依存するが、6-84%の放射性 Cs を除去できた。塩漬けの場合には、78-87%が除去できたが、これは Cs と Na とのイオン交換反応によるものと考えられる。Na が過剰に存在しているにもかかわらず、Cs が完全には除去できなかったことから、植物体内で一部は強い結合をしている可能性が示唆された。同様の結果が梅漬けでも得られている⁵⁾。なお、K については、Cs の除去割合と同様の結果が得られた。すでに報告したように、放射性 Cs の除去率が高い場合には K も除去率が高くなっており、調理・加工においては挙動が類似していることがわかった。調理・加工による放射性 Cs の除去割合については、K を調査すると間接的に知ることができることを示している。

山菜をゆでた場合について、ゆでる際に厚みのあるフキ葉柄、タケノコでは除去割合が低い一方で、葉はそれよりも高い除去率が得られた。植物の厚みが放射性 Cs の溶出を阻害しているものと考えられる。このような植物ではなく、すでに加工してあるうどんについて、八戸ら⁶⁾

は二種類の太さの異なるうどんを準備し、調理による除去割合を測定しているが、細いうどんの方が太いうどんよりも放射性 Cs の溶出が早かったことを示している。食材の厚みによって Cs の溶出割合が異なるといえる。

(3) 果実中の放射性Cs分布

果実全体に対する各部位(果皮、果肉および種子)の生重量、 ^{137}Cs および ^{40}K の分布割合(%)および果肉に対する各部位中の濃度(Bq/kg-wet)の比を表2に示す。カキの果実の分布割合については、Cs と K に差がないが、ビワでは Cs に比べ有意に K の方が種子中で高く、果肉中で低くなった(ANOVA テスト)。甘夏ミカンの測定個数が少ないため統計解析することができなかった。

部位毎の濃度について比較すると、果実中の濃度を1とすると、どの果実でも ^{137}Cs は果皮で高く、果肉に対して1.4-1.9倍であったが、種子については1.0-2.4と幅があった。K については、Cs と同様に果皮で高く、1.3-1.7倍であり、種子では全ての果実で果肉に対して濃度が高くなった。したがって、果皮を剥くことでやや濃度を減らすことができるものの、果皮の重量は果実全体に対して15-30%程度であるので、皮を剥くことによる低減効果は限定的であると言える。

表2 果実部位における生重量、 ^{137}Cs および ^{40}K の分布割合と果肉中濃度を1とした時の果皮および種子中の ^{137}Cs および ^{40}K 濃度比(生重量ベース)

種類	N	生重量			^{137}Cs			^{40}K		
		果皮	果肉	種子	果皮	果肉	種子	果皮	果肉	種子
カキ	4	14±3	81±5	5±2	18±2	73±6	9±2	21±2	72±3	7±1
濃度比					1.4	1.0	1.7	1.7	1.0	1.4
ビワ	5	15±3	62±7	23±5	22±5	58±13	20±9	17±4	42±7	40±8
濃度比					1.6	1.0	1.0	1.7	1.0	2.6
甘夏ミカン	2	28±2	70±2	2±0	41±0	55±2	4±2	31±0	63±8	6±3
濃度比					1.9	1.0	2.4	1.3	1.0	3.5

±は標準誤差(1σ)

4. まとめと今後の展望

本研究では、山菜と果実を対象に、調理・加工による放射性Csの除去割合について検討を行った。その結果、山菜はゆでることにより除去効果があったが、厚みがある食材では除去効果が低かったことがわかった。果実については、3種類の果実中の放射性セシウムの分布を果皮、果肉、種子について測定したところ、可食部である果肉中の濃度よりも果皮中の濃度が高かった。

今回対象とした山菜のうち、フキとツクシの¹³⁷Cs経年変化を調べたところ、指数関数的に減少していることがわかった。半減期として450日が得られたが、土壌中の放射性Csのエイジングが進んでいることを考慮すると、今後はより緩やかに濃度減少するものと考えられる。

農耕地では念のための対策として、放射性Cs吸収抑制のためのカリウム施肥や、汚染源を断つための表層汚染土壌の除去は、ある程度の効果をもたらすと考えられるが、山菜では対策を行うのが難しい。内部被ばくを避けるためには、土壌汚染の高いエリアでの採取を避けるなど、注意喚起が重要であろう。また、調理・加工により除去できることを覚えておくことも、山野草を利用する上での安心に繋がる可能性がある。

謝辞

本研究の一部は、資源エネルギー庁放射性廃棄物共通技術調査等事業費の予算で行われた。

5. 参考文献

- 1) 厚生労働省, “食品中の放射性物質の検査(月別検査結果)”, (2015).
<http://www.mhlw.go.jp/stf/kinkyu/0000045250.html>.
Accessed 22 July 2015.
- 2) 原子力環境整備促進・資金管理センター, “食品の調理・加工による放射性核種の除去率 -我が国の放射性セシウムの除去率データを中心に-”, 環境移行パラメータ・シリーズ4増補版, 2015, p. 200.
- 3) International Atomic Energy Agency, “Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments”, Technical Report Series No. 472, 2010, p. 194.
- 4) 三橋亮太, 水野壮, 佐伯真二郎, 内山昭一, 吉田誠, 高松裕希, 食用昆虫科学研究会, 普後一, “福島県産イナゴの放射性セシウム量および福島県のイナゴ食文化の存続可能性”, 食衛誌, 54, 410 (2013).
- 5) 関澤春仁, 丹治克男, 吉岡邦雄, “加工時のゼオライト処理による梅漬け中の放射性セシウム含量の低減”, 園学研, 14, 69 (2015).
- 6) 八戸真弓, 内藤成弘, 明石肇, 等々力節子, 松倉潮, 川本伸一, 濱松潮香, “うどん調理における放射性セシウムの動態解析”, 日本食品化学工学会誌, 61, 34-38 (2014).
- 7) 田上恵子, 内田滋夫, “福島第一原発事故後のツクシへの¹³⁴Cs, ¹³⁷Csの移行と分布及び調理・加工による除去”, Radioisotopes 61, 511 (2012).
- 8) 田上恵子, 内田滋夫, “農作物の調理・加工による放射性セシウムの除去割合”, Proceedings of the 13th Workshop on Environmental Radioactivity, Tsukuba, Japan, 27-29 February 2012. p. 154-159.
- 9) K. Tagami, S. Uchida, “Comparison of food processing retention factors of ¹³⁷Cs and ⁴⁰K in vegetables”, J. Radioanal. Nucl. Chem., 295, 1627 (2013).
- 10) 女子栄養大学(松本伸子監修), “五訂増補 調理のためのベーシックデータ”, 女子栄養大学出版部, 2011, p. 152.

事故後初期における飲食物のI-131濃度の検討

河合理城^{1*} 義澤宣明¹ 平川幸子¹ 村上佳菜¹ 滝澤真理¹ 佐藤理¹ 高木俊治¹
宮武裕和¹ 高橋知之² 鈴木元³

1) 株式会社三菱総合研究所 東京都千代田区永田町 2-10-3

2) 京都大学原子炉実験所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目

3) 国際医療福祉大学クリニック 栃木県大田原市北金丸 2600-6

*makawai@mri.co.jp

福島第一原子力発電所事故後、水や野菜に代表される飲食物のI-131濃度は、セシウムを中心として継続的に測定されてきた。一方、ヨウ素については、多くの食品は3月20日以降に測定されており、事故後初期は体系的な測定がされていなかった。そのため、経口摂取経路による内部被ばく線量を検討する上で重要な空間線量が高い期間における飲食物のI-131濃度の値が欠損している。また、福島県内避難地域における経口摂取経路による内部被ばく線量を推定する場合、避難における流通の停止等の影響により、飲食物の主な被ばく経路としては水、その他の経路として野菜や牛乳が想定される。そこで、本研究では水についてはI-131濃度実測値と大気拡散シミュレーションにより算出されるI-131の地表面沈着率を用いて、欠損した事故直後のI-131濃度を推定した。推定方法には、コンパートメントモデルを用いて、水源に沈着する放射性物質から飲料水への影響を考慮した。コンパートメントモデルの移行パラメータは、実測値のデータを用いて推定している。それらのパラメータを用いて、実測値が無い地点においても飲料水のI-131濃度を推計可能とした。また、野菜や牛乳についてはI-131濃度実測値と大気拡散シミュレーションによるI-131の地表面沈着量との相関式を導出した。今後、得られた推定方法を用いて、事故後初期の飲食物の摂取状況を考慮した経口摂取経路による内部被ばく線量の検討を実施する。

キーワード 食品の放射能濃度、ヨウ素131、コンパートメントモデル

1. 序論

平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災に伴う、東京電力福島第一原子力発電所の事故では放射性物質が大気中に放出された。放射性物質による住民の健康リスク評価を考える上で、被ばく線量の把握は重要である。今回の事故の体系的な線量把握としては、2つの国際機関の報告書が代表的である。世界保健機関（WHO）では、事故後の緊急的な対応として放射線被ばくの影響を低減する対策を検討することを目的に、その時点で得られる情報から暫定的な評価を実施し、2012年に報告書を発表している。報告書では、上記の目的を踏まえ、線量の過小評価を避けることが優先されており、過大評価の可能性が示唆されている。また、原子力放射線の影響に関する国連科学委員会（UNSCEAR）は、事故後2年程度の情報を考慮する形で、WHOの線量評価よりも実際の状況に近い推計を行い、2014年に報告書を発表している。²⁾しかしながら、UNSCEARによる評価についても、ソースタームの不確かさ、事故後初期のI-131の測定データの欠如等の情報の不足があり、過大評価あるいは過小評価である可能性を報告している。

そこで、飲食物からの内部被ばく線量把握のため、水道水・野菜・牛乳の摂取による内部被ばく線量の

推定方法に着目した。

特に本研究では、事故後初期の飲食物に含まれるI-131の濃度推計を実施した。水道水・野菜・牛乳による内部被ばく線量推計においては、測定されたI-131の濃度を用いることを基本に、実測値が存在しない事故後初期のI-131の濃度は推計を行い補完する。推計には、飲食物中の放射性物質の濃度実測値と、地表に沈着した放射性物質の量（大気拡散シミュレーションから推定）を利用した。特に線量の推定が重要と考えられる、事故後初期の避難区域を中心に推計を行うこととした。なお、大気拡散シミュレーションによる地表面沈着量については、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）により構築された大気拡散シミュレーション WSPEEDI³⁾による推定値を用いた。

2. 推計手法

(1) 水道水のI-131濃度の推計手法

水道水のI-131濃度を推計するために、コンパートメントモデルを用いた。水道水に含まれる放射性核種が、その濃度に対して一定の割合で減衰し、新たな流入により増加すると考えるモデルである。コンパートメントモデルを用いた水道水のI-131濃度推計では、水道水中のI-131の濃度変化が、新たな放射性核種の水への沈着率と水に含まれるI-131の実効

的な減衰によって表される。

$$\frac{dC}{dt} = p - \lambda C \quad (1)$$

C は水道水中の I-131 濃度 (Bq/kg)、 p は水への沈着率 (Bq/kg・s)、 λ は実効的な減衰係数 (1/s) である。

また、水への沈着率が拡散シミュレーションによる地表面への放射性物質の沈着率と換算係数で表されるとすれば(1)式は以下のように表すことができる。

$$\frac{dC}{dt} = ap' - \lambda C \quad (2)$$

$(p = ap')$

p' は I-131 の地表面沈着率 (Bq/m²・s)、 a は換算係数 (m²/kg) である。

換算係数および実効的な減衰係数は、最小 2 乗法を用いて水道水の放射能濃度実測値にフィッティングさせることにより求めた。

推計手法に基づき、水道水中の I-131 濃度を求めるために必要なデータは、水道水中の I-131 濃度実測値および大気拡散シミュレーションによる地表面沈着率である。I-131 濃度実測値については、浄水場や市町村役場等の飲用地点におけるデータを公開情報から収集した。また、一般的に水道水が飲用されるまでには、水源 (取水施設)、浄水場 (浄水施設)、配水場 (排水施設)、飲用地点がある。そのうち、水源、浄水場の一部は大気中の放射性物質が沈着する可能性があるが、浄水場から各家庭までの配水については地下や屋内であるため、放射性物質の沈着による影響を受けにくいと考える。そのため、大気拡散シミュレーションによる地表面沈着率を考慮する沈着場所は水源とし、水源の位置が明確でない場合は浄水場を用いることとした。放射性物質が沈着してから飲用するまでの時間は 12 時間と仮定して推計を行った。

(2) 野菜の I-131 濃度の推計手法

野菜中の I-131 濃度についても同様に、大気拡散シミュレーションによる放射性物質の地表面沈着量と I-131 濃度実測値を用いて、以下の推計方法を検討した。

$$A = FS \quad (3)$$

A は野菜中の I-131 濃度 (Bq/kg)、 F は換算係数 (m²/kg)、 S は収穫時の積算地表面沈着量 (Bq/m²) である。

野菜の放射能濃度推計に必要な換算係数は、野菜の分類ごと (葉茎菜類・キノコ類等) に対して、実測値に基づき設定する。葉茎菜類については測定データの豊富なハウレンソウを用いて換算係数を求めた。キノコ類については測定データの豊富なシイタケを用いて換算係数を求めた。なお、シイタケ等の施設栽培の野菜は、屋根等で雨による沈着の効果は

排除できると仮定し、沈着には乾性沈着のみを考慮した。

(3) 牛乳の I-131 濃度の推計手法

牛乳の I-131 濃度は屋外の飼料とその他飼料の摂取割合と、それぞれの飼料に沈着する核種移行率を考慮したモデルを検討した。各飼料の放射能移行率、飼料の割合については牛乳中の I-131 濃度実測値に基づき推計を行った。検討したモデルの考え方を以下に示す。

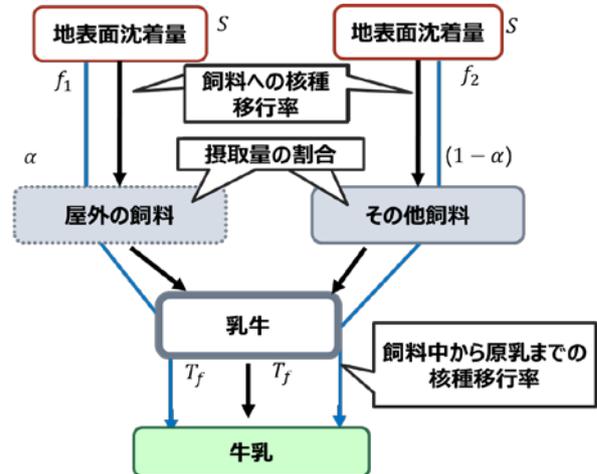


図 1 牛乳の推計の考え方

モデルに基づき、以下の式で放射能濃度を推計した。

$$A = \{\alpha F_1 + (1 - \alpha)F_2\}S \quad (4)$$

$$F_1 = T_f \times f_1, F_2 = T_f \times f_2 \quad (5)$$

A は牛乳中の I-131 濃度 (Bq/kg)、 S は積算地表面沈着量 (Bq/m²)、 α は屋外飼料の摂取量の割合、 f_1 は屋外の飼料への核種移行率 (m²/kg)、 f_2 はその他飼料への核種移行率 (m²/kg)、 F_1 は屋外の飼料から牛乳までの移行率 (m²/kg)、 F_2 はその他飼料から牛乳までの移行率 (m²/kg)、 T_f は飼料中から原乳までの核種移行率である。

3. 推計結果

(1) 水道水の I-131 濃度の推計結果

コンパートメントモデルを用いて水道水の I-131 濃度を推計した結果を以下に示す。図 2 は川俣町川俣中央公園における I-131 濃度実測値に基づく推計、図 3 にいわき市山玉浄水場における I-131 濃度実測値に基づく推計である。大気拡散シミュレーションによる地表面沈着率と水道水中の I-131 実測値に従い、推計結果が時間により変化している。

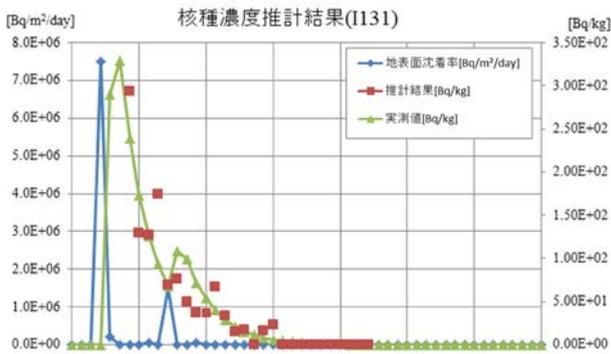


図 2 川俣町川俣中央公園における濃度推計

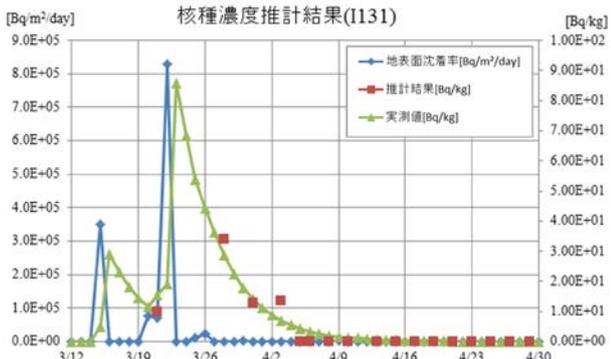


図 3 いわき市山玉浄水場における濃度推計

(2) 野菜の I-131 濃度の推計結果

野菜（ホウレンソウ・シイタケ）の I-131 濃度実測値と大気拡散シミュレーションによる地表面沈着量を両対数グラフで以下に示す。また、モデル式に従い、換算係数を推定した結果を表 1 に示す。ホウレンソウのグラフでは、3 点程度、他の結果とは異なる傾向を示すものがあった。

表 1 パラメータの推定結果

パラメータ	ホウレンソウ	シイタケ
換算係数 (F)	2×10^{-2}	2×10^{-4}

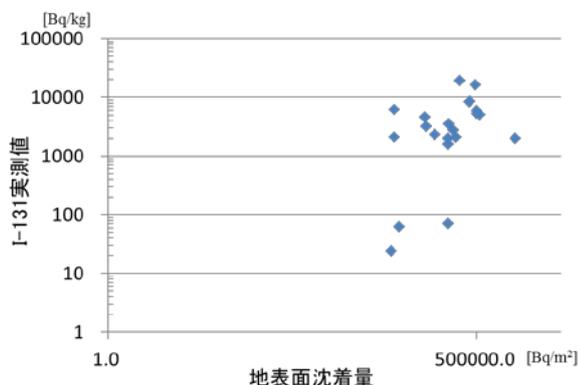


図 4 I-131 濃度実測値と地表面沈着量（ホウレンソウ）

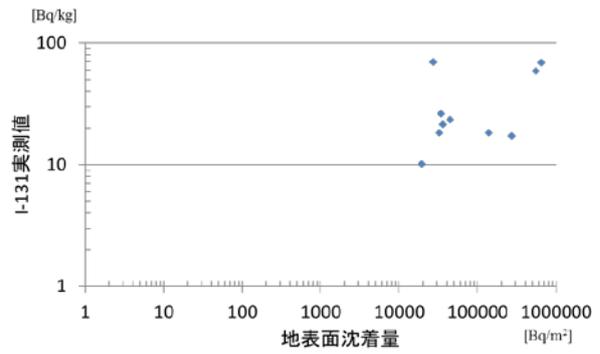


図 5 I-131 濃度実測値と地表面沈着量（シイタケ）

(3) 牛乳の I-131 濃度の推計結果

牛乳の I-131 濃度推計については、得られている牛乳の実測値を大きく 3 種類に分け、屋外の飼料とその他飼料の割合、屋外の飼料およびその他飼料の放射能移行率をパラメータとしてフィッティングを行った。検討したパラメータの結果を屋外飼料の割合、I-131 濃度実測値と大気拡散シミュレーションによる地表面沈着量を以下に示す。さらに、フィッティングを行った各飼料の放射能移行率を表 2 に示す。フィッティングにより、屋外の飼料から原乳までの核種移行率はその他飼料から原乳までの核種移行率の 40 倍の値であることを示した。

表 2 パラメータの推定結果

パラメータ	値
屋外の飼料から原乳までの核種移行率 (F_1)	4×10^{-3}
その他飼料から原乳までの核種移行率 (F_2)	1×10^{-4}

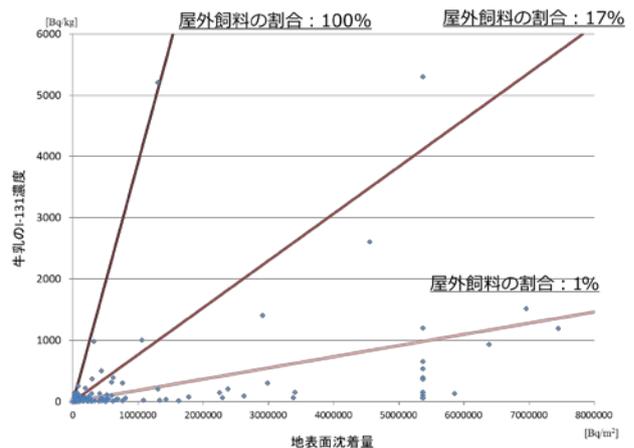


図 6 I-131 濃度と地表面沈着量（牛乳）

4. 考察

食品中の I-131 濃度を推計した結果、放射性物質の沈着量が多く、水道水中の I-131 濃度実測値が測定されている 2 地点で良い一致を得た。これらの結果が

ら、大気拡散シミュレーションによる I-131 の地表面沈着率を用いて、水道水中の I-131 濃度を推計できることを示した。しかし、事故後初期の放射性物質の沈着量は、数 km 離れることで値が大きく変化する場合もあるため、その変化に伴い推計した値も変化することに留意しなければならない。一方、水道水の I-131 濃度実測値が無い地域の場合、換算係数および実効減衰係数を実測値から推定することはできない。その場合、実測値がある地域で求めた換算係数および実効減衰係数の平均値等を用いて係数を仮定し、I-131 濃度を推計することとした。なお、浄水場の施設の効果により放射性物質の量を低減させることも可能であることが報告されているが、本モデルでは、実測値を用いており、換算係数等のパラメータにその効果が含まれている。

野菜・牛乳に関しては、I-131 濃度実測値から換算係数を求めた。この換算係数によって、大気拡散シミュレーションによる沈着量を用いれば、どの地点でも野菜・牛乳中の I-131 濃度が推定可能である。野菜については、3 地点が他の地点とは異なる傾向を示した。これらの地点は原子力発電所から距離が遠いという共通項があるため、距離によって複数の換算係数を設定することも考えられる。なお、今回の換算係数を用いて異なる傾向を示した地点を推計しても、過小評価にはならないことを確認している。原乳については、同地域で生産された牛乳で I-131 濃度が大きく異なるという課題があったが、屋外飼料とその他飼料を分けて推計することで説明可能である。一方、本研究では各飼料の割合についても仮定を行っており、推計モデルの不確かさは大きい。

5. 結論と今後の課題

事故後初期の放射性ヨウ素の実測値が無い期間や地点において、水道水・野菜・牛乳の I-131 濃度が推計可能であることを確認した。今後、事故後初期の食品の摂取状況を考慮し、経口摂取による内部被ばく線量の検討を実施する。線量の検討においては、実測値の存在する期間は実測値を用いるべきであるが、実測値の不足している期間は推計値を利用するものとし、可能な限り実測値データを優先して結果に反映させる。さらに、モデルによる推計の不確かさを定量的に検討し、事故後初期の食品による内部被ばく線量の不確かさの低減を検討する。特に、野菜・原乳については、モデルの不確かさを低減できるようにデータの収集を行い、より実態に即した推計モデルに改良する必要がある。

今回の推計では I-131 に限定して推計を実施したが、同様のモデルによって事故直後のセシウム等の他核種に対する推計についても確認する必要がある。なお、セシウムの場合はヨウ素と挙動が異なるため、モデルの適用に関して更なる検討が必要である。また、セシウムの場合は I-131 と異なり、半減期が長く実測値が利用できるため、より実測値に即した I-131 濃度推計または線量推計の方法を検討する必要がある。

る。

6. 参考文献

- 1) *Preliminary dose estimation from the nuclear accident after the 2011 Great East Japan Earthquake and Tsunami*, WHO, 2012.
- 2) *UNSCEAR 2013 Report to the General Assembly, with scientific annexes*, UNSCEAR, 2014.
- 3) 寺田宏明, 永井晴康, 古野朗子, 掛札豊和, 原山卓也, 茅野政道, ” 緊急時環境線量情報予測システム (世界版) WSPEEDI 第 2 版の開発”, 日本原子力学会和文論文誌, 7, p257-p267, 2008.

7. 謝辞

この研究は環境省委託事業「平成 26 年度原子力災害影響調査等事業 (放射線の健康影響に係る研究調査事業)」 (研究課題: 東京電力福島第一原子力発電事故における住民の線量評価に関する包括研究) において実施したものです。

浄水発生土の園芸用としての再利用の可能性

石井伸昌^{1*} 田上恵子¹ 内海弘美¹ 内田滋夫¹

1) 国立研究開発法人 放射線医学総合研究所 千葉県稲毛区穴川4丁目9-1
* nobu@nirs.go.jp

水道水をつくる過程で発生する土(浄水発生土)は、これまで園芸用土やグラウンド土として有効に再利用されてきた。ところが、2011年3月に発生した東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故で環境中に放出された放射性核種により浄水発生土が汚染されたため、事故以降、厚生労働省は再利用の自粛を要請してきた。そして2013年3月、厚生労働省は、浄水場からの搬出時点において放射性セシウムの濃度が400 Bq/kg以下であれば出荷可能との考えを示した。浄水発生土の有効利用を再開することは重要であるが、再利用によるヒトの被ばくにも注意する必要がある。特に汚染された浄水発生土は園芸用土資材として利用されることがあり、この土で野菜等が栽培された場合、放射性セシウムが野菜に移行することが考えられる。そこで、本研究では放射性セシウムで汚染された浄水発生土を含む土で葉菜類を栽培し、収穫時における放射性セシウムの濃度及び土壌-農作物移行係数を取得した。さらに、浄水発生土から葉菜類への放射性セシウムの移行を抑制する方法についても検討した。ここでは、得られたデータを基に放射性セシウムで汚染された浄水発生土が園芸用土として再利用可能か報告する。

キーワード 浄水発生土, 放射性セシウム, 農作物, 移行係数

1. はじめに

浄水場において原水から水道水を得る過程で生じる土は、浄水発生土と呼ばれている。浄水発生土は原水中の懸濁物質を凝集剤より沈澱分離し脱水した特殊な土であり、各浄水場において一日当たり数トンから数十トン発生する。

福島第一原子力発電所(FDNPP)事故以降、環境中に飛散した放射性物質により原水中の懸濁物質が汚染され、そのため浄水発生土も汚染された。特に放射性セシウム(¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs)による汚染は深刻で、各浄水場において現在も継続して濃度が測定されており、ホームページ等で値が公表されている。FDNPP 事故以前、浄水発生土は園芸用土やグラウンド土として有効利用されていたために保管に困ることはなかったが、汚染された浄水発生土は有効利用の目処が立たず、処分先も決まらず、浄水場での保管量が増大し続けた。例えば埼玉県における発生浄水土の保管量は、事故から半年経った平成23年9月の時点で 1.7×10^4 トンを超えた¹⁾。浄水場における保管許容量にも限りがあるため、汚染された浄水発生土の減量は、当時、喫緊の課題であった。

保管されている浄水発生土の汚染レベルも様々である。厚生労働省は汚染を4つのレベル(10万 Bq/kg 以上、8千-10万 Bq/kg、百-8千 Bq/kg、百 Bq/kg 以下)に分割し、それぞれのレベルの浄水発生土の取り扱いについて各都道府県に通知を行った。東北、関東地方の浄水場において最も多い汚染レベルは百-8千 Bq/kg の浄水発生土で、全体の66%を占めた。次に多いのは百 Bq/kg 以下の浄水発生土で、全体の32%を占めた。百 Bq/kg 以下の浄水発生土だけでも有効利用できれば、保管量が軽減できる。浄水発生土を利用した園芸用土は、鹿沼

土やパーライトなど浄水発生土以外の原料と体積率5-20%程度の配合率で浄水発生土が混合されるので、百 Bq/kg 以下の汚染であれば事故以前の環境中濃度(平均20 Bq/kg、最大140 Bq/kg)程度になると考えられる。農林水産省は放射性セシウムの濃度が200 Bq/kg 以下の汚泥であれば、これを肥料として利用することを許可している²⁾。一方、平成25年3月以前まで、厚生労働省は例え100 Bq/kg 以下の汚染でも園芸用土として出荷することを自粛するよう事業者に対して求めていた³⁾。

浄水発生土の有効利用を再開し、浄水場における保管量を減量することは重要であるが、そのためには有効利用による影響を考慮する必要がある。特に、人の被ばく評価は重要である。浄水発生土を園芸用土として有効利用した場合、その用土で野菜を栽培する可能性がある。そのため、浄水発生土を含む園芸用土から野菜への放射性セシウムの移行、そして収穫した野菜を食べることによる内部被ばくが懸念される。さらに、浄水発生土の有効利用を総合的に評価するためには、浄水発生土を再利用する利点、例えば野菜の栄養素的付加価値や、栽培した野菜の摂取による内部被ばくを抑制するために、放射性セシウムの野菜への移行を抑制する方法などについても検討する必要がある。以上のことを踏まえ、汚染発生浄水土が園芸用土として有効利用可能かどうか判断する基礎データを国民に提供することを目的に試験を行った。

2. 材料と方法

(1) 浄水発生土

浄水発生土は埼玉県内の浄水場から2011年と2013年に譲渡して頂いた。浄水発生土は河川水の成分や、使用した処理薬品により元素組成が異なる。そこで、そ

表 1 浄水発生土の主な元素濃度

元素	濃度 (mg/g)	
	2011 年	2013 年
Al	95.24 ± 5.43	124.16 ± 2.93
Ca	2.67 ± 0.36	3.92 ± 0.18
Fe	38.91 ± 0.54	42.60 ± 0.11
K	6.85 ± 0.32	8.21 ± 0.02
Mg	1.84 ± 0.42	2.83 ± 0.13
Mn	3.05 ± 0.17	3.52 ± 0.05
Na	6.12 ± 0.27	6.34 ± 0.01
Zn	0.30 ± 0.01	0.31 ± 0.00

それぞれの年の浄水発生土の元素組成を表 1 に示す。これら元素の測定は、ICP 発光分光分析装置 (Vista-Pro, Seiko Instruments 製) を用いて行った^{4,5)}。

(2) 葉菜類の栽培土壌と栽培条件

浄水発生土からコマツナへの放射性セシウムの移行を調べるために、浄水発生土の含量が異なる3種類の土壌を用いた。浄水発生土を含まないベースとなる土壌は、5:3:2 の容積比で赤玉土、腐葉土、黒土を混合し、この混合土壌 30 L に対し 200 g 化成肥料を加えて作成した。この土壌をベースに、浄水発生土を体積率で 10% および 30% 加えた土壌を準備した。ベースの土壌を含む3種類の土壌はそれぞれ 0% 土壌、10% 土壌、および 30% 土壌とする。

準備したそれぞれの土壌にコマツナを播種し、33 日間の栽培後、収穫した。収穫したコマツナについて、水分含量、乾燥重量、および放射性セシウム量を求めた。収穫後の土壌についても放射性セシウム量を求めた。

放射性セシウムの植物への移行を制御する園芸資材についても調査した。始めに、赤玉土、黒土、腐葉土、牛糞堆肥、および化成肥料を混合した土壌 (混合土壌) を作成し、この混合土壌をベースに4種類の土壌を準備した。各土壌の構成要素は次の通り: 1) 2 L 混合土壌に対し 0.5 L の未処理浄水発生土を添加 (土壌 S)、2) 土壌 S と構成要素は同じであるが粉碎した浄水発生土を添加 (土壌 PS)、3) 1.5 L 混合土壌に対し 0.5 L の未処理浄水発生土と 0.5 L のパーミキュライトを添加 (土壌 V)、そして 4) 土壌 V と構成要素は同じであるが粉碎したパーミキュライトを添加 (土壌 PV)。

準備したそれぞれの土壌にコマツナを播種し、28 日間、栽培し。収穫後、コマツナの水分含量、乾燥重量、および放射性セシウム量を求めた。

(3) 土壌-植物移行係数

土壌からコマツナへの ^{137}Cs 移行パラメータとして移行係数 (TF) を次式より求めた: 移行係数 (TF) = 葉菜類可食部中 ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg-dry) / 土壌中 ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg-dry)。

(4) 分析

放射性セシウム測定試料は、いずれも乾燥、粉碎した後、Ge 半導体検出器で分析した。Ge 半導体検出器の

効率校正は放射能標準ガンマ体積線源 (MX033U8PP; 日本アイソトープ協会) で行い、測定の精度は放射能分析用土壌認証標準物質 (JSAC0471; 日本分析化学会) で確認した。半減期補正は収穫時を基準に行った。

収穫したコマツナの無機成分は ICP-OES および ICP-MS で測定した。コマツナは収穫後、乾燥粉碎し酸で溶解した、これをドライアップし、希硝酸液に溶解し、測定試料とした。

(5) 預託実効線量

30% 土壌で栽培したコマツナをベースに預託実効線量を求めた。プランター当たり 500 g のコマツナが収穫できるとし、収穫は年3回行い、収穫したコマツナは一人で消費することとした。実効線量係数は ICRP Publ.72⁶⁾ の値を用いた。また、市場希釈および調理等による減衰は無いものとして計算した。

3. 結果と考察

(1) 浄水発生土の利点

放射性セシウムで汚染された可能性のある浄水発生土を再利用する場合、浄水発生土を利用する利点を明確にすることは重要である。そこで、葉菜類の生長 (草丈) および収量 (新鮮重)、そしてコマツナ可食部中の無機元素濃度から浄水発生土の再利用の利点について整理した。

収穫直前、浄水発生土を含まない土壌よりも含む土壌で栽培したコマツナの草丈が高くなることを目視で確認した (図1)。また、収量は 0% 土壌で 164 g、10% 土壌で 234 g、そして 30% 土壌で 207 g であった。これらの結果は、本試験の栽培条件において浄水発生土がコマツナの生長を促進したことを意味する。青山らは、マサ土に対して浄水発生土を容積比で 25% 以上の混合した土壌でコマツナを栽培したところ、マサ土のみで栽培したコマツナと比較して収量が約 8 割に減少したことを報告している⁷⁾。そして、その原因としてリン欠乏の可能性を示唆した。リン欠による生理障害が発生すれば、上位葉の暗色化、下位葉の黄化、葉柄部における紫色の沈着、生育不良などの症状が現れるが、本試験のコマツナでは、これらの症状は観察されなかった。本実験条件下において、浄水発生土によるコマツナの生理障害は起こらなかったと考えられる。



図 1 栽培 26 日目におけるコマツナの草丈。左から 10% 土壌、0% 土壌、そして 30% 土壌での栽培。栽培直前においても、浄水発生土を含む土壌で栽培したコマツナの草丈の方が高かった。

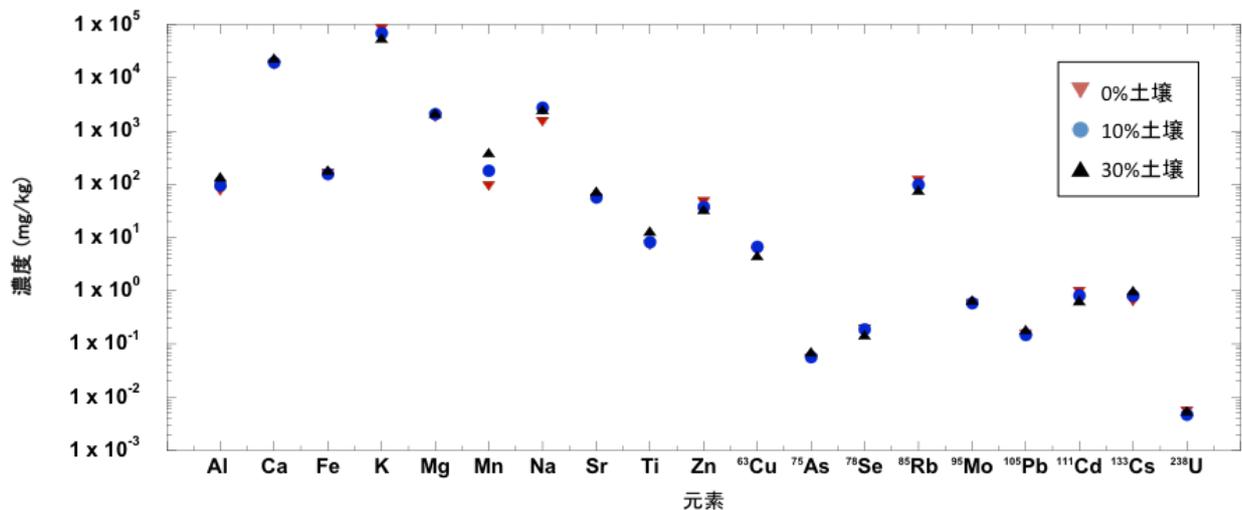


図2 収穫したコマツナ可食部中の元素濃度

次に各土壌で栽培したコマツナ可食部に含まれる元素濃度を比較した(図2)。浄水発生土の添加量に伴い Al、Mn、および ^{133}Cs の濃度が高くなった。浄水発生土と栽培に使用した土壌の主構成土である赤玉土中の Mn 濃度を比較したところ、浄水発生土で約2.8倍高いことが分かった。したがって、浄水発生土の添加量が、コマツナ中の Mn 濃度に影響したと考えられる。一方、浄水発生土の Al 濃度は $95.24 \pm 5.4 \text{ mg/g}$ で、赤玉土の濃度 $128.8 \pm 14.9 \text{ mg/g}$ よりも低かった。浄水発生土中の Al は主に凝集剤として添加されたポリ塩化アルミニウムに由来すると考えられる。この Al は赤玉土の Al と比較して植物が利用しやすい化学形態なのかもしれない。同様に安定同位体である ^{133}Cs の濃度も浄水発生土 ($2.60 \pm 0.049 \text{ mg/kg}$) より赤玉土 ($3.02 \pm 0.051 \text{ mg/kg}$) で高かった。したがって、浄水発生土の添加量の増加に伴い、栽培土壌中の ^{133}Cs 濃度は低下したはずである。このことから、浄水発生土に含まれる ^{133}Cs は赤玉土の ^{133}Cs よりもコマツナに移行しやすい可能性がある。

K や ^{85}Rb は、逆に浄水発生土の添加量に伴い濃度が減少した。両元素とも浄水発生土よりも赤玉土や腐葉土において濃度が高く、したがって、これらの結果は浄水発生土含量の増加に伴い栽培土壌中のこれらの元素濃度が低くなったことが原因と考えられる。興味深いことに、両元素は Cs の同族元素であるにも係わらず、コマツナによる吸収が異なることが分かった。

以上の結果をまとめると、園芸用土として浄水発生土を添加した場合、少なくとも体積率 30%までの添加であれば、特に生理障害を引き起こすこともなく、生長の促進および Al、Mn、そして安定同位体である ^{133}Cs をより多く含むコマツナが収穫できる可能性がある。

(2) 放射性セシウムの経根吸収

0%、10%、および 30%土壌で栽培したコマツナの乾燥重量当たりの ^{137}Cs 濃度と収穫した後の土壌中 ^{137}Cs 濃度を表2に示す。浄水発生土を含まない0%土壌においても ^{137}Cs や ^{134}Cs が検出されたが、これは構成土壌である赤玉土が放射性セシウムにより汚染されていたことが

原因であった。

栽培は温室内で行ったため、コマツナを汚染した放射性セシウムは大気からの降下物とは考えにくい。また、浄水発生土量の増加に伴い放射性セシウム濃度が高くなったことは、浄水発生土中の放射性セシウムが経根吸収により取り込まれたことを示唆している。

(3) 土壌-植物移行係数

土壌-植物移行係数(TF)は、放射性物質が人体へ移行する量を予測するために必要なパラメータの一つである。そこで、放射性セシウムで汚染された浄水発生土からコマツナへの TF を、10%土壌および 30%土壌で栽培したコマツナを用いて求めた。ただし、 ^{134}Cs は物理学的半減期が約2年と比較的短く、今後問題となるのは ^{134}Cs よりもむしろ ^{137}Cs と考えられるため、 ^{137}Cs について TF 値を求めた(表2)。いずれの栽培土壌においても TF は 0.1 であった。この TF は過去に日本の農耕地で取得された ^{137}Cs の葉菜への移行係数の範囲内であった⁸⁾。土壌中の Cs は時間の経過と共に水溶性から難溶性へと変化することが知られており、さらに難溶性の Cs は植物に移行しにくいことが知られている。つまり、 ^{137}Cs が収着平衡状態に達するまでには時間を要する。本試験は原子力発電所事故から1年後に開始されており、したがって、十分収着平衡に達したとは言いがたく、収着平衡における TF はより小さな値となると考えられる。

(4) 収穫したコマツナによる内部被ばく

10%土壌および 30%土壌で収穫したコマツナは、共に 100 Bq/kg を超えている。しかしながら、2014年4月1日より施行された食品中の放射性物質の新しい基準値は、生重量換算で 100 Bq/kg-wet であるため、収穫したコマツナの水分含量から生重量当たりの放射性セシウム濃度を求めた。その結果、30%土壌で収穫したコマツナにおいても放射セシウム濃度は 49.2 Bq/kg-wet と基準値を超えないことが分かった。つまり、本試験で栽培したコマツナは流通可能な程度の汚染であったことが分かった。

30%土壌で収穫したコマツナの値を基に、預託実効線量を求めた。実際の収穫量は 207 g であったが、 500 g を年3回収穫し、それを一人の大人が全て食べた場合と仮定し

表2 収穫したコマツナと収穫後の土壤中¹³⁷Cs濃度と各土壤で栽培したコマツナの土壤-植物移行係数

土壤	¹³⁷ Cs (Bq/kg-dry)		TF
	コマツナ	土壤	
0%土壤	19 ± 2	39 ± 3	
10%土壤	153 ± 3	1470 ± 11	0.1
30%土壤	400 ± 4	4060 ± 18	0.1

計算を行った。その結果、預託実効線量は約 1.1 μSv であった。実際には年3回収穫する期間中に物理学的半減期およびエイジング効果によりコマツナの放射性セシウム濃度が下がることが予想されるので、内部被ばく線量はより小さくなると推測される。

(5) 移行抑制資材

厚生労働省の考え方に従えば、浄水発生土を有効利用し栽培したコマツナの放射性セシウム濃度は基準値を超えることは無いと考えられる。しかしながら、放射線防護の基本的な考えである「合理的に達成できる限り低く (As Low As Reasonably Achievable; ALARA)」を尊重すれば、できる限り無駄な被ばくを防ぐことが重要である。そこで、葉菜類への放射性セシウムの移行を抑制する園芸資材について検討した。土壤と混合する資材としてバーミキュライトについて検討を行い、バーミキュライトと浄水発生土については物理的形態(粒子サイズ)の効果についても検討した。

各土壤で栽培したコマツナの放射性セシウム濃度を図3に示す。土壤 PV で栽培したコマツナを除き、放射性セシウムが検出された。この結果は土壤 PV に添加した園芸資材、つまり粉砕したバーミキュライトが植物体への放射性セシウムの移行抑制において最も効果的であることを意味している。同様に、未処理のバーミキュライトも土壤 S で栽培した葉菜類と比較すると、放射性セシウム濃度は低下したが、その低下率は粉砕バーミキュライトと比較すると小さかった。バーミキュライトによるセシウムの吸着はよく知られており⁹⁾、本試験における葉菜類中の放射性セシウム濃度の低下は、バーミキュライトのセシウム吸着効果によるものと考えられる。つまり、植物根が放射性セシウムを吸収する前にバーミキュライトがそれを吸着し、その結果、移行量が減少したと考えられる。

一方、浄水発生土を粉砕すると、逆に葉菜類中の放射性セシウム濃度が高くなった。バーミキュライトと浄水発生土の結果から、粒子サイズは移行抑制に影響する重要な要因であることが分かった。一般に粒子サイズが小さくなれば、その物質の表面積が増加する。浄水発生土の場合、粉砕することで表面積が増し、根と放射性セシウムのソースである浄水発生土が接触する機会が増えたために放射性セシウム濃度が高くなったと考えられる。逆に、バーミキュライトは粉砕による表面積の増加が放射性セシウムとの接触の機会を増やし、より多くの放射性セシウムがこの鉱物に取り込まれ、そのため根から吸収量が低下し葉菜類中の濃度が低くなったと考えられる。

4. 謝辞

本研究を行うにあたり、浄水発生土に関する情報をご

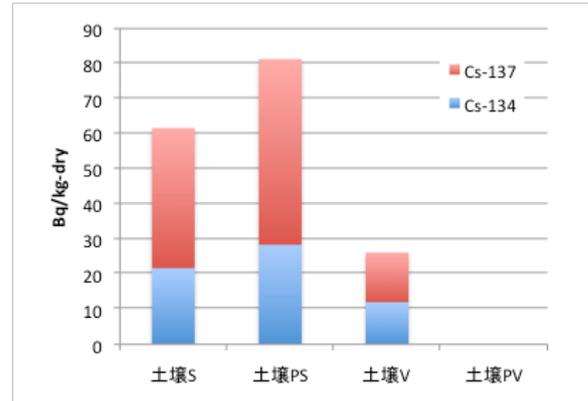


図3 各土壤で栽培したコマツナ中の放射性セシウム濃度

提供頂いた名倉良雄氏、泉知行氏に謝意を表します。また、浄水発生土をご提供頂いた埼玉県の浄水場に感謝いたします。本研究は JSPS 科研費 24590775 および放射性廃棄物共通技術調査等事業(放射性核種生物圏移行評価高度化開発)の助成を受けた。

参考文献

- 1) 厚生労働省. 浄水発生土の保管及び処理状況. <http://www.mhlw.go.jp/stf/shingi/2r9852000001q07a-att/2r9852000001q0di.pdf>. (2011).
- 2) 農林水産省 消費・安全局. 肥料に利用する放射性物質を含む汚泥の取扱いについて. http://www.maff.go.jp/j/syoutan/nouan/kome/k_hiryo/caesium/pdf/image.pdf. (2011).
- 3) 厚生労働省健康局長. 放射性物質が検出された浄水発生土の当面の取扱いに関する考え方について. <http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r9852000001fxly-att/2r9852000001g27y.pdf>. (2011).
- 4) 石井伸昌, 田上恵子, 川口勇生, 内田滋夫, “浄水発生土に含まれる¹³⁷Csのコマツナによる経根吸収”, *Radioisotopes*, 62, 447-453 (2013).
- 5) 石井伸昌, 田上恵子, 川口勇生, 内田滋夫, “ミニキャベツによる栽培土壤から放射性セシウムの経根吸収”, *保健物理*, 48, 150-155 (2013).
- 6) ICRP. Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5. *Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients*. ICRP Publication 72. (1995).
- 7) 青山喜典, 望月証, 小河甲, 津高寿和, 河野哲, “浄水発生土がコマツナの生育・収量に及ぼす影響”. *土壤肥料学会講演要旨集*, 53, 286 (2007).
- 8) S. Uchida, and K. Tagami, “Soil-to-plant transfer factors of fallout Cs-137 and native Cs-133 in various crops collected in Japan” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 273, 205-210. (2007)
- 9) R. Motokawa, H. Endo, S. Yokoyama, S. Nishitsuji, T. Kobayashi, S. Suzuki, and T. Yaita, “Collective structural changes in vermiculite clay suspensions induced by cesium ions”, *Sci. Rep.*, 4. 6585 (2014).

福島県新田川河口沖における海水と堆積物中の放射性セシウム濃度分布

福田 美保^{1)*}、山崎 慎之介²⁾、青野 辰雄¹⁾、吉田 聡¹⁾、石丸 隆²⁾、神田 穰太²⁾

1) 放射線医学総合研究所 千葉県千葉市稲毛区穴川 4-9-1

2) 東京海洋大学 東京都港区港南 4-5-7

* corresponding author : mhfukuda@nirs.go.jp

2013年10月に福島県新田川河口沖において採取した海水および堆積物中の放射性セシウム(Cs)、粒度および有機物含有量の測定を行った。その結果、海水中の溶存態¹³⁷Cs濃度は、新田川河口から5.0-10 km沖合の測点NR1、NR3およびNR5で他の測点よりも高く、その中でも南側の測点(NR3およびNR5)で北側よりも高い傾向にあった。大部分の測点で海水中の¹³⁷Cs濃度は海洋表層で高く、底層で減少した。新田川河口に近い測点は、他の測点よりも表層海水中の¹³⁷Cs濃度が高いことから、調査時に海水中の溶存態Csは陸に沿うように南北方向に輸送されていたと考えられる。堆積物中の粒子は、測点NR1とNR2で微粒砂から粗粒砂、NR4で礫と極粗粒砂の割合が高く、この3測点共に上方細粒化の傾向にあった。堆積物中の¹³⁷Cs濃度は、シルトから粘土の割合が最も高く、有機物含有量の多かった測点NR1がNR2とNR4よりも高かった。堆積物中の¹³⁷Cs濃度の水平および鉛直分布は、粒径の違いによるCsの吸着の度合いの違いに影響を受けていると考えられる。しかし、¹³⁷Cs濃度と粒子組成の分布は一致しない部分があるため、さらに多くのデータを得る必要がある。

キーワード 新田川河口沖, 海水, 海底堆積物, 放射性セシウム, 粒子組成

1. はじめに

2011年3月に発生した福島第一原子力発電所(福島第一原発:FDNPS)事故後、海や大気、陸域に多くの放射性物質が放出された。海洋への放射性物質の移行経路には(1)大気からの沈着、(2)FDNPSからの汚染水流入、(3)河川を通じた流入の3つが主に挙げられる。福島第一原発から半径20 km圏内における海水中の¹³⁷Cs濃度は、事故直後の2011年4月に10,000 Bq/L¹⁾であったが、約1年後の2012年3月に数Bq/L¹⁾に減少し、それ以降は事故前(2000年代;約1.0-2.0 mBq/L²⁾)の10倍以上の濃度で変動している。一方、海底堆積物中の¹³⁷Cs濃度は、事故直後の2011年4月に数1000 Bq/kg-dry¹⁾であったが、2015年1月には事故前(2000年代;約2.0 Bq/kg-dry³⁾)の10倍以上の濃度まで減少している。しかし、海水に比べて濃度の変動幅が大きい¹⁾。海水に比べて堆積物の¹³⁷Cs濃度の変動幅が大きい原因として①海水中の放射性Csは主に溶存態として存在しているのに対し、堆積物は礫から粘土まで様々な大きさの粒子で構成されている、②堆積物表層では再懸濁や再移動などの影響を受けやすいなどが考えられる。堆積物中の放射性Csは、バーミキュライトやスメクタイトなどの粘土鉱物(粒径4 μm以下)に強く吸着しており⁴⁾、河川堆積物中の粒子別の放射性Cs濃度は、粒径の小さい粒子の方が高い傾向にある⁵⁾。河口域は河川を通じて様々な粒径をもつ粒子が流入している

ため、Csの水平および鉛直分布の比較を行うためには、粒径の違いを考慮に入れる必要がある。河川から海洋への放射性核種の移行状況に関する報告例は十分とは言えない。そこで本研究では上流に放射性Csの沈積量の多かった飯館村を流域に持つ新田川河口沖に着目し、(i)海水中の溶存態放射性Cs濃度から海水でのCsの挙動の解明、(ii)堆積物中の粒子分布やバルク堆積物中の放射性Cs濃度分布から堆積物中の放射性Csの動態を明らかにすることを目的とした。

2. 試料採取および測定法

海水および堆積物試料は、2013年10月に東京海洋大学練習船「神鷹丸」(SY13-10)で行われた調査航海で新田川河口沖(水深25 mから40 m、新田川河口からの距離は5.0 kmから12 km)にて採取した(図1)。海水試料(20 L)は孔径0.2 μmのフィルターを用いて濾過を行い、溶存態Cs(孔径0.45 μm以下)をリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)吸着法⁶⁾を用いて測定用試料を作製した。この試料はゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性Cs濃度の測定を行った。マルチプルコアラーを用いて採取した堆積物試料は厚さ1 cmごとに分割した。研究室に持ち帰った堆積物試料は、乾燥したのちに篩を用いて礫(2 mm以上)、極粗粒砂(1 mmから2 mm)微粒砂から

粗粒砂 (0.063 mm から 1 mm)およびシルトから粘土 (0.063 mm 以下) の 4 つに分画してそれぞれの重量割合を算出した。バルク堆積物を用いてゲルマニウム半導体検出器により Cs などの放射性核種の測定を行い、得られた Cs 濃度は試料採取日 (2013 年 10 月 16 日) に補正した。また堆積物試料の強熱減量測定 (550°C、2 時間) を行い、有機物含有量を算出した。

3. 気象条件

本研究で用いた海水および堆積物試料を採取した日は、台風 26 号が日本を横断した直後であった。特に影響の強かった 10 月 16 日の原町における日降水量は、100 mm 以上を記録した⁷⁾。

4. 結果

海水および堆積物中の放射性 Cs 濃度をもとに 2011 年 3 月 11 日に濃度補正した $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 0.85-1.2 の範囲であった。このことは本測定で得られた Cs 濃度が FDNPS 事故由来の放射性 Cs であることを表している。ここでは ^{137}Cs の結果について報告する。

(1) 海水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度

海水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度 (以下海水中の放射性 Cs 濃度と記述) は 2.8-96 mBq/L の範囲であった (図 2)。新田川河口から 5.0-10 km 沖合に位置する測点 NR1、NR3 および NR5 における表層海水中の ^{137}Cs 濃度は、40 mBq/L 以上で、南側の測点で高い傾向にあった。河口から沖合方向への距離が 10 km よりも遠い測点 NR2、NR4 および NR6 の ^{137}Cs 濃度は、20 mBq/L 以下であった (図 3)。海水中の ^{137}Cs 濃度の鉛直分布は、測点 NR4 を除いて表層で高く、深度と共に減少した (図 2)。底層海水中の ^{137}Cs 濃度は、河口から測点までの距離に対する影響は認められなかった (図 3)。

(2) 堆積物中の粒子分布

堆積物中の各粒子の重量割合は礫で 0.0-35 %、極粗粒砂で 0.013-35 %、微粒砂から粗粒砂で 38-99 %、およびシルトから粘土で 0.0-29 %であった (図 4)。新田川河口から北側に位置する測点 NR1 と NR2 での粒子分布は、微粒砂から粗粒砂が最も多く、両測点共に全体の 70 %以上を占めていた。一方、新田川河口とほぼ同緯度に位置する測点 NR4 で礫や極粗粒砂の合計割合は、測点の全体の 20-62 %であった。堆積物の各粒子の鉛直分布は、3 測点共に上層へ向かうにつれて細粒化していた。中央粒径 (M_d) は測点 NR1 で 0.14-0.15 mm、測点 NR2 で 0.13-0.16 mm、および測点 NR4 で 0.16-2.5 mm であった。淘汰度 (S_o) は NR1 で 3.1-4.6、測点 NR2 で 1.9-6.2、および測点 NR4 は 2.4-5.0 であった。Compton⁸⁾ の区分に従うと淘汰はかなり悪かった。

(3) 堆積物中の ^{137}Cs 濃度

ゲルマニウム半導体検出器で堆積物試料から検出された人工放射性核種は Cs のみであった。バルク堆積物中の乾燥重量あたりの ^{137}Cs 濃度は、4.3-838 Bq/kg-dry で、シルトから粘土含有量が最も多かった測点 NR1 で最も高かった (図 5)。測点 NR1 の ^{137}Cs 濃度は深さ 5 cm 付近でブロードなピークが見られていた。一方、測点 NR2 および NR4 の ^{137}Cs 濃度は深さ方向での変動幅小さかった (図 5)。堆積物中の粒子分布と ^{137}Cs 濃度の鉛直分布に類似性は認められなかった。

(4) 堆積物中の有機物含有量

有機物含有量は 0.93 から 8.8 %で、測点 NR1 で最も高い値を示した。有機物含有量は測点 NR1 で深さ方向に増加したが、測点 NR2 と NR4 では深度による濃度の変動幅は小さかった (図 6)。

5. 考察

(1) 海水中の ^{137}Cs 濃度分布の要因について

2013 年 1 月から 12 月までの新田川河口沖における海水中の ^{137}Cs 濃度は 8.5-99 mBq/L の範囲にあり¹⁾、本研究での値はその範囲内にあった。より沖合の測点 NR2 と NR4、NR6 の混合層(表層)の塩分は 33 であったのに対し、測点 NR1 と NR3、NR5 では、32 から 33 とわずかに低かった。一方で、底層での塩分は 33 から 34 の範囲で、表層に比べて測点間の違いが小さかった。これらの結果から、新田川を通じた河川水流入の影響は、東西方向よりも南北方向に、底層よりも表層により強かったと考えられ、海水中の ^{137}Cs 濃度分布は、河川水流入の影響を反映していると考えられる。

(2) 堆積物中の粒子分布について

新田川河口沖の底質は、河口から北側で砂質、南側で礫質から粗粒砂質で特徴づけられる⁹⁾。本研究で得られた結果と比較すると、測点 NR1 と NR2 に比べて、NR4 は礫や極粗粒砂の割合が高かった点は類似していた。測点間の距離が 6.2-7.1 km しか離れていないが、粒子組成が大きく異なっていた。堆積物中の粒子分布が上層細粒化の傾向にあったことは、比重の大きい粒子が深部へと輸送されたと推測される。新田川の河川水中の浮遊砂の観測から 2013 年 10 月の台風 26 号に伴い、粒径 30-200 μm の比較的粗粒な粒子が平水時よりも増加していたことが報告されている¹⁰⁾。本研究の粒子組成の結果から、河川から海洋へと流出した粗粒粒子は、河口から東の方向に輸送されていたことが考えられる。しかし、台風等の出水時の影響を考慮するためには時系列データを蓄積する必要がある。

(3) 堆積物中の放射性 Cs 濃度分布の要因について

2011 年の河口沖における河川から海洋への放射性 Cs フラックスは、強い降雨イベントで年間放射性 Cs

フラックスの 30-50 %を占めていた¹¹⁾。東京電力や福島水試でのモニタリングデータによると、2013 年 10 月の新田川河口周辺での堆積物中の ¹³⁷Cs 濃度は、3.0-44 Bq/kg-dry の範囲で変動しており^{11), 12)}、測点 NR2 と NR4 の ¹³⁷Cs 濃度は、その範囲内にあったが、測点 NR1 の ¹³⁷Cs 濃度は、最大で 1 オーダ高かった。堆積物の深さ方向での ¹³⁷Cs 濃度の変動幅は、測点 NR2 と NR4 よりも測点 NR1 で大きく、深さ 5 cm 付近でブロードなピークが見られた (図 5)。FDNPS 周辺海域における堆積物の深さ方向での ¹³⁷Cs 濃度の変動幅は、礫や粗粒砂よりも粗粒砂から微粒砂やシルトから粘土の方が大きい傾向にあった¹³⁾。このことから、測点 NR1 において ¹³⁷Cs 濃度の変動幅が大きかった理由は、シルトから粘土の含有量が他の測点よりも多いためと考えられる。しかし、シルトから粘土の含有量の深さ方向での変化は小さい。従って、測点 NR1 で深さ 5cm に高い ¹³⁷Cs 濃度を示した原因が粒径分布のみの変化であるとは考えにくい。今後、周辺測点でのデータを蓄積することで、原因を明らかにすることが必要である。

6. まとめおよび今後の課題

2013 年 10 月の新田川河口沖の海水および堆積物中の放射性 Cs と粒径別分布、有機物含有量測定を行った結果、以下のことを明らかにした。

- (1) 海水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度は、新田川河口からの沖合 5-10 km の測点 NR1、NR3 および NR5 で他の測点よりも高く、北側より南側の測点で比較的高い傾向にあった。海水中の ¹³⁷Cs 濃度は底層よりも表層で高かった。
- (2) 堆積物中の粒子は、測点 NR1 と NR2 で微粒砂から粗粒砂、NR4 で礫と極粗粒砂の割合が高かった。堆積物の各粒子の鉛直分布は、3 測点共に深度と共に粗粒化した。
- (3)シルトから粘土の割合が高く、有機物含有量の多い測点 NR1 で NR2 と NR4 よりも堆積物中の ¹³⁷Cs 濃度は高かった。測点 NR1 での ¹³⁷Cs 濃度の鉛直方向の変動幅は、NR2 と NR4 よりも大きかった。
- (4) 本研究で用いた環境試料は、台風通過直後に採取したが、これらの結果が降雨イベントに特有の現象であるか確認するためには、時系列データをさらに取得する必要がある。

2012 年 4 月現在、福島県には新田川と同様の二級河川が 161、一級河川は 339 もある¹⁴⁾。河川から海洋への放射性核種の移行状況のさらなる解明のために、より多くの河口域でのデータを取得することが重要であると考えられる。

謝辞

東京海洋大学練習船「神鷹丸」の林 船長をはじめとする乗組員、ならびに調査航海でサンプリングや試料処理等にご協力いただいた学生や研究者の方々に感謝申し上げます。本研究の成果は福島県放射線医学研究開発事業補助金および文科省科研費新領域研究 24110005 の一部である。

参考文献

- 1) MEXT (Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology) Available at <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/428/list-1.html> (2015).
- 2) P. P. Povinec, K. Hirose, T. Honda, T. Ito, E. M. Scott, O. Togawa, "Spatial distribution of ³H, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs and ^{239,240}Pu in surface waters of the Pacific and Indian Oceans-GLOMARD database" *Journal of Environ. Radioactiv*, **76**, 113-137, doi:10.16/j.jenvrad.2004.03.022 (2004).
- 3) M. Kusakabe, S. Oikawa, H. Takata, J. Misono, "Spatiotemporal distributions of Fukushima-derived radionuclides in surface sediments in the waters off Miyagi, Fukushima, and Ibaraki Prefectures, Japan" *Biogeoscience*, **10**, 4819-4850 (2013).
- 4) R. M. Cornell, "Adsorption of cesium on minerals: A review" *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, **171**(2), 483-500, doi: 10.1007/BF02219872 (1993).
- 5) Q. He, D. E. Walling, "Interpreting particle size effect in the adsorption of ¹³⁷Cs and unsupported ²¹⁰Pb by mineral soils and sediments" *Journal of Environ. Radioact*, **20** (2), 117-137 (1996).
- 6) M. Aoyama, K. Hirose, "Radiometric Determination of anthropogenic radionuclides in seawater samples" *Radioact. in the Environ.* **11**, 137-162 (2008).
- 7) Japan Meteorological Agency (JMA) data, 2013. Available online <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/>.
- 8) R. R. Compton, "Manual of field geology" Wiley New York, (1962) p. 378.
- 9) A. Mogi, Y. Iwabuchi, "Submarine topography and sediments on the continental shelves along the coasts of Joban and Kashimanada" *Geographical Review of Japan series A*, **34** (3), 39-58 (1961) (Japanese with English abstract).
- 10) JAEA reports, 2014. Available online <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/504/list-1.html>.
- 11) Nagao S, Kanamori, M, Ochiai S, Inoue M, Yamamoto M. Migration behavior of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in the Niida river water in Fukushima Prefecture, Japan during 2011-2012. *Journal of radional Nucl. Chem* 2014; 10: doi:10.1007/s10967-014-3686-9.
- 12) Fukushima prefecture fisheries experimental station data, 2013. Available online <https://www.pref.fukushima.lg.jp/sec/37380a/suisanshikenjo20.html>.
- 13) M, Fukuda, S. Yamzaki, T. Aono, S. Yoshida, S. Naganuma, A. Kubo, K. Shimada, N. Takasawa, T. Hosaka, K. Sato, S. Yamaguchi, Y. Ito, T. Ishimaru, J. Kanda, "The distributions of radiocaesium according to grain sizes in sediments collected from the Fukushima coastal area in May 2014" Proceedings of the 16th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK proceedings (accepted).
- 14) Fukushima prefecture, 2012 Available online <http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/10205.pdf>

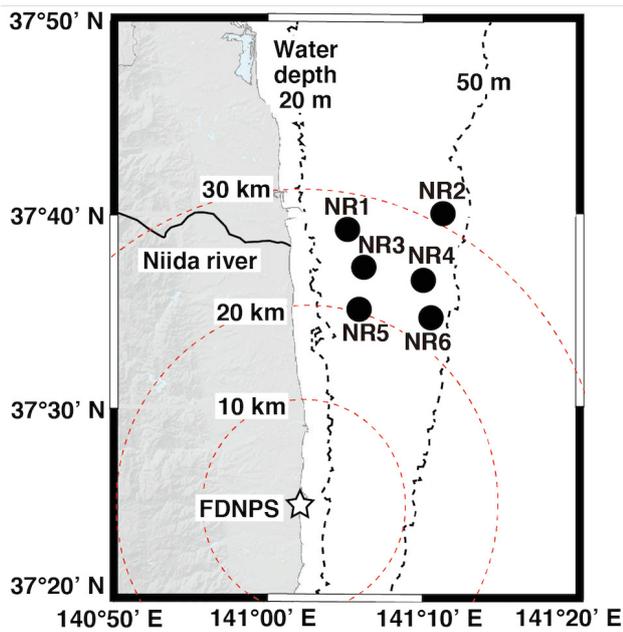


図1 試料採取測点

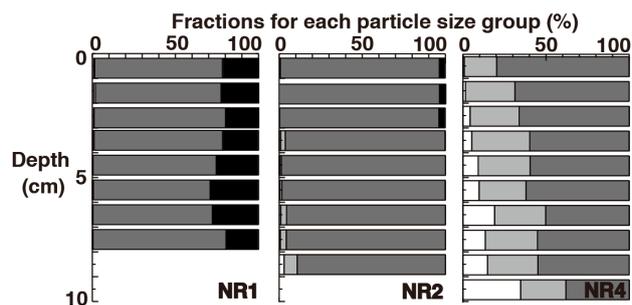


図4 堆積物中の粒子分布。白が礫、薄いグレーは極粗粒砂、濃いグレーは微粒砂から粗粒砂、黒はシルトから粘土を表す。

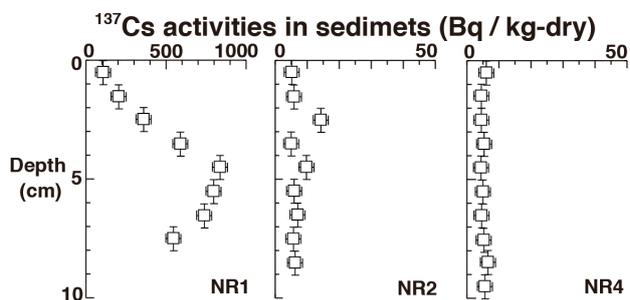


図5 堆積物中の¹³⁷Cs濃度分布

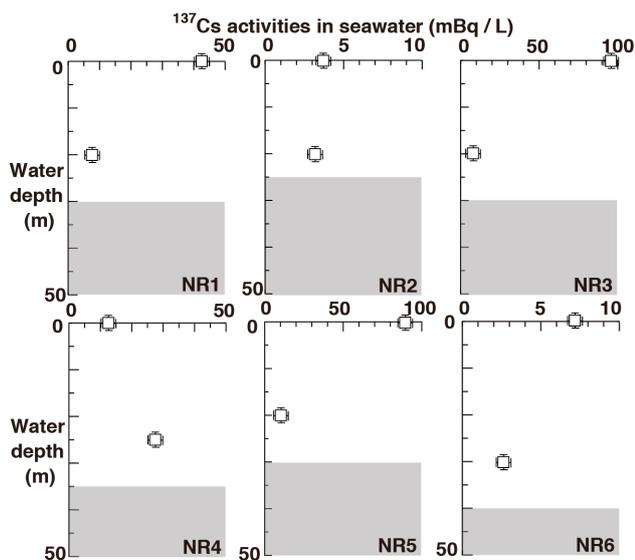


図2 海水中の¹³⁷Cs濃度分布

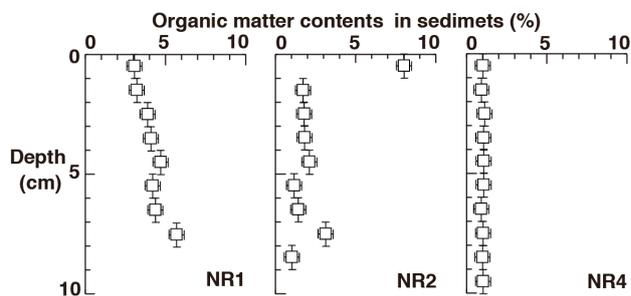


図6 堆積物中の有機物含有量分布

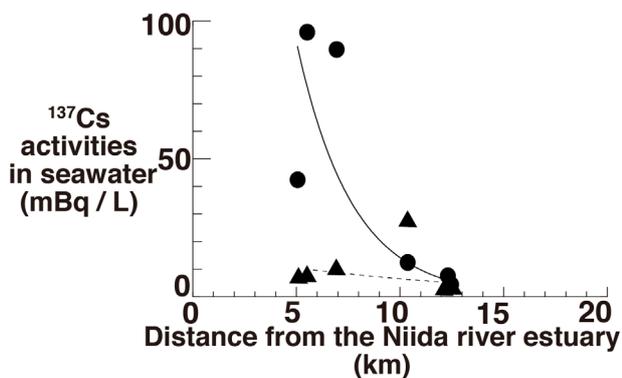


図3 海水中の¹³⁷Cs濃度と新田川河口から測点までの距離との関係。黒丸は表層海水、三角は底層海水の結果、実線は表層海水、点線は底層海水の回帰直線を示す。

食品および土壌粒子由来の放射性セシウムの 人・動物における胃腸管吸収率

岩田佳代子¹⁾*、八島浩²⁾、木梨友子²⁾、高橋知之²⁾、高橋千太郎^{1,2)}

1) 京都大学大学院 農学研究科 京都府京都市左京区追分町

2) 京都大学原子炉実験所 大阪府泉南郡熊取町朝代西2丁目

*iwata.kayoko.86x@st.kyoto-u.ac.jp

2011年に発生した福島第一原子力発電所事故後、環境中に放出され放射性核種により汚染した食品および土壌粒子の摂取にともなう公衆の内部被ばくが懸念された。内部被ばく線量は、胃腸管吸収率 (f_i) を含む体内での代謝などを考慮したICRPの線量評価モデルを用いて、放射性核種の摂取量から算出される預託実効線量で評価される。ICRPの勧告では、経口摂取されたセシウム (Cs) の f_i 値はその化学形態に関わらず保守的に1 (全量吸収) とされている。しかし、先行研究から粘土鉱物に強固に吸着された Cs の様マトリックスからの抽出が容易でない事例も既に知られており、その存在形態によっては消化管における Cs の吸収率が必ずしも1ではないと指摘されている。そのため、実際の被ばく線量を知るためには、 Cs の存在形態毎に、精度の高い f_i を用いることが必要であり、そのためには生理学的な胃腸管吸収に関する検討が重要である。そこで本研究では、人および動物における放射性 Cs の f_i 値に関する文献調査をおこない、食品グループ等での f_i 値を分類し比較検討した。調査の結果、胃腸管吸収率は摂取された Cs の存在形態によって大きく異なり、例えば人間を対象とした場合、 f_i は0.08—1.0と幅広い範囲の値をとることがわかった。しかし、実際の f_i 値を求めた先行研究は限られているため、今後より多くの試料を対象に Cs 溶出率や胃腸管吸収率のデータを実験的に収集することが、より精密な内部被ばく線量の推定をおこなう上で重要である。

キーワード: セシウム, 経口摂取, 胃腸管吸収率, 線量換算係数

1. 緒言

2011年に発生した福島第一原子力発電所事故により多量の放射性核種が環境中に放出された。放出された核種は放射性セシウム (^{134}Cs および ^{137}Cs) を含み、特に ^{137}Cs は比較的長い物理学的半減期 ($T_{1/2} = 30.17$ 年) をもつ。そのため、長きにわたり人間を含む生態系に対して影響を与える可能性がある。その中で、汚染した食品および土壌粒子の摂取にともなう公衆の内部被ばくが懸念された。

内部被ばく線量は、一般的に摂取量 (Bq) から求めるとき、国際放射線防護委員会 (ICRP) が勧告する線量換算係数を用いて算出される¹⁾。経口摂取された ^{134}Cs および ^{137}Cs の成人における線量換算係数はそれぞれ 1.9×10^{-8} および 1.3×10^{-8} (Sv/Bq) である¹⁾。なお、算出される内部被ばく線量は、成人の場合は摂取後の50年間、子供の場合は70年間の積算線量 (預託実効線量) である。

(1) ICRPモデル

核種毎に定められている線量換算係数は、胃腸管モデル、代謝・体内動態モデル、線量評価モデルを含む複数のモデルに基づいて決定されている²⁾。胃腸管モデルは経口摂取された核種が消化管を通過して血中に吸収される過程を表す。体内動態モデルは、核種の全身あるいは特定の器官での分布や滞留を表現する。それらの動態に基づいて最終的に線量評価モデルを用いて預託実効線量を求め、線量換算係数が導出されている。

これらのモデルでは、核種毎に人体の代謝にかかわる様々なパラメータが含まれている。今回着目した胃腸管吸収率 (f_i) は胃腸管モデルの中のパラメータのひとつで、摂取された放射性核種の腸管から血中への吸収率を示す。ICRPの勧告では、経口摂取された Cs の f_i はその化学形態に関わらず保守的に1 (全量吸収) が用いられている³⁾。ICRPが勧告した Cs の f_i 値は主に塩化セシウムを

用いた研究を参考にしており、他の存在形態での f_i は導入されていない³⁾。しかし、先行研究から、粘度鉱物に強固に吸着されたCsの様にマトリックスからの抽出が容易でない事例も既に知られている。すなわち、その存在形態によっては消化管におけるCsの f_i は1よりも低い値をとると考えられる⁴⁾。現実的な f_i を用いた場合、預託実効線量は、 $f_i=1$ 時の預託実効線量と f_i の積に近い値をとる。このように、 f_i は預託実効線量の計算結果に大きく影響する可能性がある。よって、実際の被ばく線量を知るためには、Csの存在形態の差異に起因する f_i の変動を把握することが重要である。

このような研究への第一段階として、本研究では、人および動物における放射性Csの f_i に関する文献調査をおこない、存在形態ごとの f_i 値を比較検討した。動物のデータは、動物自体の内部被ばく線量および体内濃度の評価に使用できるだけでなく、調査された存在形態数が少ないヒトにおける f_i 値幅の参考にし、今後ヒトにおける f_i 値の推定にも用いるためにも重要である。

2. 文献調査

(1) ヒト

収集したヒトの f_i に関するデータを表1に示す。それぞれの研究において、放射性Csにより汚染された食品を調理加工したものや塩化セシウムを含む飲料物をボランティアに提供し、摂取後の排泄物を収集しCsを測定した。

表1. ヒトの摂取形態ごとの放射性セシウムの胃腸管吸収率 (f_i)

Ingested forms	Preparation	No. of volunteers	f_i (Mean)	Reference
CsCl	Beverage	3	0.96-0.98 (0.97)	Raaf et al. 2004
CsCl	Beverage	4	0.87-0.90 (0.89)	LeRoy et al. 1966
Silicate	Gelatin capsule	5	0.73-0.84 (0.80)	LeRoy et al. 1966
Fallout	Gelatin capsule	3	0.29-0.36 (0.31)	LeRoy et al. 1966
Fish (Perch)	Fried	2	0.96, 0.97 (0.97)	Raaf et al. 2004
Mushroom	Fried	1	0.98	Raaf et al. 2004
Meat (Venison)	Meal*	10	0.65-0.90 (0.78)	Henrichs et al. 1989
Meat (Mutton)	Meat pie	8	0.80-0.94 (0.89)*	Talbot et al. 1993
Mushroom	Fried	1	0.98	Raaf et al. 2004
Shellfish (Cockles)	Boiled	6	0.08-0.43 (0.21)	Hunt 1998

*調理方法は不明

表2. パラメータフィッティングより得たヒトの摂取形態ごとの放射性セシウムの胃腸管吸収率 (f_i)

Ingested forms	Preparation	No. of volunteers	f_i (Mean)	Reference
Meat	Model calculation	-	0.2-0.8 (0.66)	Giussani and Risica 2014
Fish	Model calculation	-	0.2-0.9 (0.48)	Giussani and Risica 2014
Pasta	Model calculation	-	0.9-1.0	Giussani and Risica 2014

このうち、食品に関する研究では、フォールアウトにより汚染された試料を用いている。一部の研究では、全身カウンターを用いて摂取前と摂取後の一定期間ボランティアの体内放射線量もあわせて実施している。

Giussani and Risica (2014) によるモデル研究では、モデル計算がRisicaら (1992, 1997) により得られた既存の実験データにモデルを適用し、食品類毎に f_i をパラメータフィッティングにより求めている⁵⁾ (表2)。

(2) 動物

収集した動物のA (absorption rate) に関するデータを表3に示す。なお、動物の場合、胃腸管吸収率を示す記号には一般的にAが用いられており、ヒトの f_i と同じ意味である。実験では、放射性Csにより汚染された飼料や土等を試験動物に与え、摂取後の排泄物を採取し分析している。なお、Salbu and Østby (1992) とCookeら (1995) による実験では、反芻動物の第一胃液を用いて汚染物からのCsの抽出実験を行いAを推定している⁶⁾ (表4)。

3. 結果と考察

(1) ヒト

ヒトにおけるCsの f_i は0.08-1.0と幅広い値であった。モデル研究における肉や魚についての推定値は、その他の実測値よりも低い値を示した。貝類を用いたHunt

(1998)による実験結果から、貝からのCs吸収率は0.08—0.43と他の食品グループ等に比べて非常に低い値を示した¹⁰⁾。考えられる要因として、貝の可食部中のCsの消化吸収率が低い、あるいは消化器官に堆積物が残留しておりそのため吸収率が低下したなどの可能性はあるが、文献においても可能性以上のことは記載されていない。総じてデータ数が非常に少ないため、食品グループ毎のf_iの傾向を結論付けるためにはより多くのデータが必要である。今後、これら数値の変動要因を検討することが重要であると考えられる。

(2) 動物

動物におけるCsのAも広い範囲を示した。溶存Csを用いた場合、吸収率は0.77—0.98とICRPが勧告する値に近

い結果であったが、地衣類を摂取した場合には0.17—0.72と広い幅を示した。地衣類は、餌として与える以前に付着した土壌粒子などは除去されているため、それらによりAが低下した可能性は低い。イオン状のCsはより容易に消化管で吸収されるが、その他の場合では、Csが含まれている物質の形態や汚染過程に依存すると考えられる。

チェルノブイリ事故後、食用動物（特に反芻動物—牛や羊など）の汚染は欧米諸国において主要な懸念のひとつであった。そのため、反芻動物を対象とした研究は比較的多くみられる。しかし、これらの動物の消化器系は、ヒトのものとは大きく異なっており、直接適用できない。動物のデータから人のf_iを推定するため、ヒトと動物との差異も十分に考慮する必要がある。

表3. 動物のの摂取形態ごとの放射性セシウムの胃腸管吸収率(A)*

Ingested forms	Studied animals	No. of cases	A (Mean)	Reference
Solution	Rat	4	(0.98)	Moore and Comar 1962
Ionic	Sheep	3	(0.86)	Mayes et al. 1996
Ionic	Sheep	6	(0.79)	Mayes et al. 1996
Ionic	Sheep	4	(0.77)	Mayes et al. 1996
Ionic filters	Sheep (lactating)	3	(0.84)	Beresford et al. 1992
Grass	Sheep	4	(0.82)	Mayes et al. 1996
Grass hay	Sheep	4	(0.68)	Mayes et al. 1996
Grass+ herbage+ fungi	Rumen liquid from sheep**	10	0.75-0.85	Salbu and Østby 1992
Grassy vegetation	Sheep	4	(0.88)	Beresford et al. 1992
Heather	Sheep	2	(0.67)	Beresford et al. 1992
Heather	Sheep	2	(0.67)	Beresford et al. 1992
Clover hay	Sheep	3	(0.83)	Mayes et al. 1996
Lichens	Reindeer	4	0.52-0.72	Ahman et al. 1990
Lichen	Rumen liquid from sheep**	1	0.32	Salbu and Østby 1992
Lichen (fallout)	Reindeer	6	0.17	Skuterud et al. 2004
Lichen (CsCl-sprayed)	Reindeer	8	0.65-0.67	Skuterud et al. 2004
Litter	Rumen liquid from sheep**	8	(0.06)	Salbu and Østby 1992
Fuel particle	Rat	4	0.0075	Talbot et al. 1993
Bentonite	Sheep	3	(0.56)	Mayes et al. 1996
Silt	Sheep	6	(0.095)	Mayes et al. 1996
Ravenglass silt	Sheep	4	(0.88)	Beresford et al. 1992
Ravenglass silt	Sheep (lactating)	3	(0.13)	Beresford et al. 1992
Silica	Sheep	4	(0.54)	Mayes et al. 1996
Soil (Alluvial gley)	Sheep	4	(0.19)	Cooke et al. 1995
Soil (Lysimeter peat)	Sheep	3	(0.03)	Cooke et al. 1995
Soil (Alluvial gley)	Rumen liquid**	-	(0.074)	Cooke et al. 1996
Soil (Lysimeter peat)	Rumen liquid**	-	(0.011)	Cooke et al. 1996
Soil (Peaty ranker)	Rumen liquid**	-	(0.13)	Cooke et al. 1996

*動物での胃腸管吸収率を表す

**抽出実験により得られたデータ

4. 結論

本研究では、文献調査から f_1 およびAが存在形態や個体により広い範囲をとることが分かった。貝や地衣類など、いくつかの存在形態では f_1 が非常に小さい値をとる可能性が示された。このように f_1 が小さい値をとる物質を摂取する割合が多くなる場合の内部被ばく線量は、現在の f_1 を用いた計算では過大評価になる可能性がある。そのため、このような存在形態による差異を十分に考慮して食品グループごとの f_1 を求めることが重要である。

現在、 f_1 データは非常に限られている。また、人の実験データを収集することは困難であるため、今後モデル研究やヒトを考えた抽出実験や動物実験などを行うことにより、 f_1 のデータベースを構築することが必要である。

参考文献

- 1) ICRP. "Age-dependent doses to the members of the public from intake of radionuclides-Part 5 compilation of ingestion and inhalation coefficients," *ICRP Publication 72*. International commission on radiological protection (1995)
- 2) Kimura, M., Kinase, S. and Hato, S.. "Development of internal dosimetry evaluation code for chronic exposure," JAEA (2012).
- 3) ICRP. "Limits for intakes of radionuclides by workers," *ICRP Publication 30* International commission on radiological protection (1979)
- 4) Ellickson, K.M., Schopfer, C.J. and Lioy, P.J. "The bioaccessibility of low level radionuclides from two Savannah River site soils," *Health Phys.* **83**(4), pp 476-787 (2002).
- 5) Giussani, A. and Risica, S. "Considerations on the ICRP model predictions of the transfer of ^{137}Cs from food to the milk and urine of lactating mothers," *J. Radiol. Prot.* **34**, pp N19-N30 (2014).
- 6) Risica, S., Campos Venuti, G., Rogani, A., Baronciani, D. and Petrone M. "Caesium contamination in human milk and transfer factor from diet," *Analyst.* **117**, pp 511-514 (1992).
- 7) Risica, S., Rogani, A., Tancredi, F., Grisanti, A., Grisanti, G., Baronciani, D., Del Prete, A. and Zanini, R. "Caesium transfer to placenta, urine and human milk," *Proc. IAEA Int. Conf. One Decade After Chernobyl: Summing up the Consequences of the Accident. IAEA-TECDOC-964* (Vienna: IAEA), pp 215-220 (1997).
- 8) Salbu, B. and Østby, G. "Availability of caesium isotopes in vegetation estimated from incubation and extractin experiments," *Analyst. March.* **117**, pp 487-491 (1992).
- 9) Cooke, A.L., Green, N., Rimmer, D.L., Weekes, T.E.C. and Wilkins, B.T. "Development of an in-vitro method to assess the availability of soil-associated radionuclides for uptake by ruminants," *J. Environ. Radioactivity.* **28**(2), pp 191-207 (1995).
- 10) Hunt, G.J. "Transfer across the human gut of environmental plutonium, americium, cobalt, caesium and technetium: studies with cockles (*Cerastoderma edule*) from the Irish Sea," *J. Radiol. Prot.* **18**(2), pp 101-109 (1998).
- 11) Rääf, C.L., Falk, R., Thornberg, C., Zakaria, M. and Mattson, S. "Human metabolism of radiocaesium revisited," *Radiat. Prot. Dosim.* **112**(3), pp 395-404 (2004).
- 12) LeRoy, G.V., Rust, J.H. and Hasterlik, J. "The consequences of ingestion by man of real and simulated fallout," *Health Phys.* **12**, pp 449-473 (1966).
- 13) Henrichs, K., Paretzke, H.G., Voigt, G. and Berg, D. "Measurements of Cs absorption and retention in man," *Health Phys.* **57**(4), pp 571-578 (1989)
- 14) Talbot, R.J., Newton, D., Warner, A.J., Walters, B. and Sherlock, J.C. "Human uptake of ^{137}Cs in mutton," *Health Phys.* **64**(6), pp 600-604 (1993).
- 15) Moore, W. Jr. and Comar, C.L. "Absorption of caesium 137 from the gastro-intestinal tract of the rat," *Int. J. Rad. Biol.* **5**(3), pp 247-254 (1962).
- 16) Mayes, R.W., Beresford, N.A., Howard, B.J., Vandecasteele, C.M. and Stakelum, G. "Use of the true absorption coefficient as a measure of bioavailability of radiocaesium in ruminants," *Radiat. Environ. Biophys.* **35**, pp 101-109 (1996).
- 17) Beresford, N.A., Mayes, R.W., Howard, B.J., Eayres, H.F., Lamb, C.S., Barnett, C.L. and Segal, M.G. "The bioavailability of different forms of radiocaesium for transfer across the gut of ruminants," *Radiat. Prot. Dosim.* **41**(2/4), pp 87-91 (1992).
- 18) Åhman, B., Forberg, S. and Åhman, G. "Zeolite and bentonite as caesium binders in reindeer feed," *Rangifer.* **3**, pp 73-82 (1990).
- 19) Skuterud, L., Pedersen, Ø., Staaland, H., Røed, K.H., Salbu, B., Liken, A. and Hove, K. "Absorption, retention and tissue distribution of radiocaesium in reindeer: effects of diet and radiocaesium source," *Radiat. Environ. Biophys.* **43**, pp 293-301 (2004).
- 20) Talbot, R.J., Newton, D. and Segal, M.G. "Gastrointestinal absorption by rats of ^{137}Cs and ^{90}Sr from U_3O_8 fuel particles: implications for radiation doses to man after a nuclear accident," *Radiat. Prot. Dosim.* **50**(1), pp 39-43 (1993).
- 21) Cooke, A.L., Green, N., Rimmer, D.L., Weekes, T.E.C., Wilkins, B.T., Beresford, N.A. and Fenwick, J.D. "Absorption of radiocaesium by sheep after ingestion of contaminated soils," *Sci. Total. Environ.* **192**, pp 21-29 (1996).

福島第一原子力発電所事故による放射性セシウムの ミミズへの移行

田中草太^{1)*}、高橋知之²⁾、藤原慶子²⁾、高橋千太郎^{1,2)}

- 1) 京都大学大学院農学研究科 京都市左京区北白川追分町
2) 京都大学原子炉実験所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2丁目
*tanaka.sota.57s@st.kyoto-u.ac.jp

東京電力福島第一原子力発電所事故により大量の放射性物質が環境中に放出された。福島県は総面積の約70%が森林に覆われており、放射性物質の多くは森林に沈着した。これらの放射性物質は、森林生態系の物質循環によって移動し、森林内のリターや土壌表層に高い濃度で蓄積している。土壌生物であるミミズはリターなどの有機物を分解しており、生態系における物質循環に寄与しているため、放射性物質の環境動態や生物影響を解明する上で極めて重要な環境生物である。本研究では、福島原発から北西約40kmの山林に生息するミミズの放射性セシウム濃度を測定し、周辺環境との関係を調べた。その結果、ミミズのセシウム137濃度は、 6.5×10^3 Bq/kg-fresh であった。ミミズと生息環境のセシウム137濃度比 (CR) は、土壌に対して0.58, リターに対し0.10であった。またミミズ体内のセシウムの分布について、オートラジオグラフィを用いて明らかにした。

キーワード: ミミズ、福島第一原子力発電所事故、放射性セシウム、放射生態学

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所事故により大量の放射性物質が環境中に放出された。福島県は総面積の約70%が森林に覆われており、放射性物質の多くは森林に沈着した。森林に取り込まれた放射性物質は、生態系の物質循環によって移動し、森林内のリターや土壌表層に高い濃度で蓄積した¹⁾。放射能汚染が広がった福島県北東部は、森林に面する中山間地域が多く、森林の有機物に蓄積した放射性物質の流入が、除染などの復興活動を遅らせる一因になっている²⁾。このように生態系の複雑な相互作用によって常に移動、循環している放射性物質の動きを把握するためには、生態系を構成している生物を調査することが適切であると考えられる。特に、放射性物質が蓄積している森林のリターを分解して土壌を形成するミミズは、放射性物質の地中鉛直方向への移動の一因となっている。さらに、生態系における他の生物の餌資源として汚染の移行経路にもなっており、放射性物質の環境動態を把握するうえで極めて重要な生物である。

ミミズは土壌表層に定住しており、土壌表層に蓄積し

た放射性物質からの放射線を常に受けているため、他の陸域生物と比較して高い被ばくを受ける³⁾。このような要因により、チェルノブイリ原発事故では、炉心から近い森林において、約30Gyの被ばく線量を受けた土壌生物やミミズなどの生息数の減少が報告されている⁴⁾。生態系において生物量が多く、物質循環機能を担っているミミズ個体群に繁殖率低下などの放射線影響が出た場合、生態系に与える影響は極めて大きいものと考えられる。このため、ミミズは放射性物質の影響評価の指標として国際放射線防護委員会 (ICRP) により標準動物に指定されており⁵⁾、福島原発事故由来の放射性物質が生態系へ与える影響を明らかにするうえで、ミミズの放射性物質の移行状況調査する意義は極めて高い。そこで、本研究では、福島県内の山林においてミミズと生息環境試料を採集し、放射性セシウム (以下、Cs) 濃度を比較することで、生息環境のCsがどの程度ミミズへ移行しているのかを明らかにした。また、ミミズの内部被ばくを考慮するうえで重要となるCsの体内動態については、これまでの実験から、摂食によって取り込まれたCsは、速やかに排出され、体内に高濃度には濃縮されないこと

が観察されている⁶⁾。本研究においては、事故後3年が経過した福島の自然環境下のミミズにおけるCsの体内動態を把握する目的で、オートラジオグラフィを用いてミミズ体内のCs分布を明らかにした。

環境生物の中でも比較的大きな被ばく線量を受けると考えられるミミズを対象とした本研究データは、環境中に放出された放射性物質が生物に及ぼす影響に対する評価の高度化に寄与することができる。さらに、生物量が多く、生態系の物質循環において重要な役割を果たしているミミズを調査することで、生態系における放射性物質の動態の解明に有用なデータを提示することが可能である。

2. 方法

(1) 採集地と試料採集

2014年の9月上旬に福島第一原子力発電所から北西約40kmの図1⁷⁾に示す地点で採集した。採集地は、落葉広葉樹を主とする山林であり、土壌表層(Ao層：リターを含む有機物層)に生息するフトミミズ科のミミズを採集した。採集したミミズは生きた状態で、採集地点のAo層とともに研究室に持ち帰った。

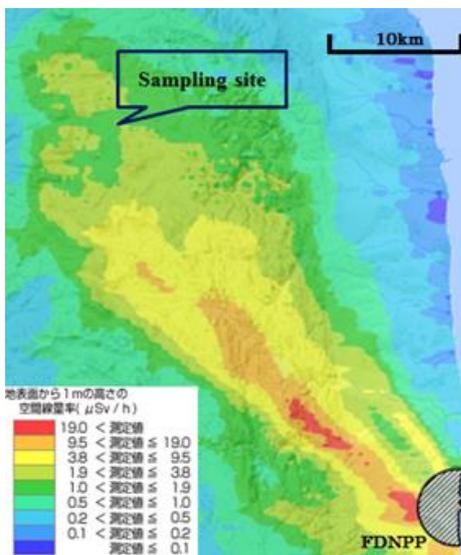


図1 放射能汚染地図と採集地点

(2) Cs-137濃度の測定方法

放射能濃度は、ゲルマニウム半導体検出器 (Model: GC4020-7500SL-2002CSL, MCA: DSA-10000, CANBERRA.) を用いて、ガンマ線スペクトロメトリー法で測定した (以下、Ge測定)。計数効率補正には、放射能標準ガンマ体積線源 (MX033U8PP, Japan Radioisotope Association) を用いて、充填高さごとに算出した計数効率を用いた。Cs-137は、661.7keVのピークから放射能濃度 (Bq/kg) を求めた。

a) ミミズ

ミミズ7匹を100ml (U-8) 容器に詰め、水平を保つため上から圧迫しながら -80°C で凍結して動きを止めたのち、 2.7×10^4 秒間測定した。

b) 土壌・リター

土壌とリターは 105°C の乾燥機で乾燥後、土壌は2mm四方のふるいにかかけ、リターについてはミキサーで粉碎した後に、100ml (U-8) 容器に詰めて 6.0×10^4 秒間Ge測定をおこなった。

(3) オートラジオグラフィ (ARG) による画像化

試料を -80°C の状態にイメージングプレート (IP, BAS-IP-MS2025E, GE Health Care, Co. Ltd.) に8日間密着露光させ、ミミズ体内のCs蓄積を画像化した (Typhoon FLA7000 reader, GE Health Care, Co. Ltd.)。

3. 結果と考察

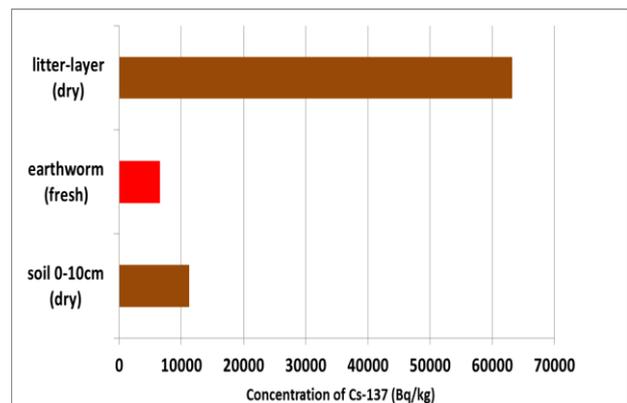


図2 ミミズと生息環境のCs-137濃度

(1) Cs濃度の測定

試料測定の結果Cs-137濃度は、リター： 6.3×10^4 Bq/kg-dry、ミミズ： 6.5×10^3 Bq/kg-fresh、土壌 (Ao層：0-10cm)： 1.1×10^4 Bq/kg-dryであった (図2)。

さらに、生息環境のCs-137が、どの程度ミミズ体内へ移行したかを明らかにするため、(1)式によりCs-137濃度比 (Concentration ratio) を求めた。ICRPによるCsのミミズCR値は、土壌に対して0.048である⁸⁾。

$$\text{CR} = \frac{\text{ミミズ中の } ^{137}\text{Cs 濃度 (Bq/kg-fresh)}}{\text{環境試料中の } ^{137}\text{Cs 濃度 (Bq/kg-dry)}} \dots (1)$$

ミミズと生息環境試料中のCs-137濃度比の値は、土壌に対し0.58、リターに対し0.10であった。ミミズについては、濃度比を求めるために湿重で測定しているが、こ

れを乾重に換算すると、7~8 倍程度の Cs 濃度の値を示すと考えられる。この値は表層性ミミズの主な餌と考えられるリターの Cs 濃度よりも低い値であり、ミミズにおいては Cs の高濃度な生物濃縮は認められなかった。

(2) オートラジオグラフィー (ARG)

ARGの結果、Csはミミズ体の中心線部分に沿って高い濃度で存在していた。これはミミズの摂食を通して、リターなどの有機物とともにCsが体内に取り込まれ消化管内に存在していることを示唆している。このことから、自然環境下のミミズにおいても筋肉部位など体内細胞への移行は、比較的少ない可能性が示唆された。摂食によって取り込まれたCsは、消化管を通して排出されており、体内の筋肉部位などに高濃度に濃縮はされていないと考えられる。これらの結果をより詳細に解明するため、今後は筋肉部位と消化管を分離し、Ge測定によってCs濃度を定量化する必要がある。

4. まとめ

生態系における放射線の生物影響は、外部被ばく源に対する生物種ごとの生息状況、生物体内における蓄積状況、放射線量、線量率、経時変化と空間的なばらつき、放射線感受性の違いなどの様々な要素によって決定される⁴⁾。放射性物質が高濃度に蓄積している土壌表層に定住し、Csが蓄積したリター層などの有機物を主な餌とするミミズは、事故後3年が経過しても摂食による内部被ばくと生息環境からの外部被ばくの両方を受けている。チェルノブイリ森林におけるCs-137の年流失量は、全蓄積量の1%未満と報告されており⁴⁾、福島県においても今後、Csが長期的に森林生態系に留まることが予想される。またCsはリター層など表層部で保持され、土壌深部まであまり移動しないことが知られている⁹⁾。このため、土壌表層に生息するミミズは、森林生態系において特にCsの影響を長期的に受ける生物である。これらのことから、生物影響の解明のため、ミミズなど土壌生物の長期的にモニタリング調査を続けることが有用である。

さらに、より詳細な生態系影響の評価をおこなうため、被ばく線量の評価や森林生態系の汚染レベル別にミミズ群衆密度の経時変化などを調査することが必要である。

本研究で得られた環境媒体とミミズの放射能濃度比やCsの体内分布状況の結果は、今後、生態系におけるミミズの内部被ばくや外部被ばくの正確な線量評価等に活用していくことができる。環境中の様々な生物と放射性物質蓄積の関係などのデータ集積していくことで、生態系における放射性物質の長期的な動態予測を高度化することが可能であり、これによって放射性物質の生態系影響

を正確に評価することが可能となると考える。さらに、ミミズなど指標生物のモニタリングをおこない、放射性物質の環境動態を予測することで、生態系の総合的な汚染状況の把握が可能になると考えられる。将来的に、これらの手法を確立することで、森林生態系の物質循環を考慮した除染をおこなうことを可能とし、復興に寄与することができると思う。

参考文献

- 1) 農林水産省林野庁「森林内の放射性物質の分布状況調査結果について」平成25年3月29日付 <http://www.rinya.maff.go.jp/j/press/kenho/130329.html>
- 2) Brumfiel G., Fuyuno I. ' Fukushima's legacy of fear', *Nature*, 483, 138-140
- 3) Satoru ENDO., Kenichi TANAKA., Tsuyoshi KAJIMOTO., Nguyen Tat THANH., Joji M.Otaki., Tetsuji IMANAKA., 'Estimation of β -ray dose in air and soil from Fukushima Daiichi Power Plant accident', *Journal of Radiation Research*, 55, 476-483, 2014.
- 4) IAEA, 'Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and their Remediation: Twenty Years of Experience', Report of the Chernobyl Forum Expert Group 'Environment', Radiological Assessment Reports Series, 2006.
- 5) ICRP, 'A Framework for Assessing the Impact of Ionising Radiation on Non-human Species', ICRP Publication 91, Ann. ICRP 33 (3), 2003.
- 6) K. Fujiwara., T. Takahashi., P. Nguyen., Y. Kubota., S. Gamou., S. Sakurai. 'Uptake and retention of radio-caesium in earthworms cultured in soil contaminated by the Fukushima nuclear power plant accident', *Journal of Environmental Radioactivity*, 139, 135-139, 2015.
- 7) 放射線量等分布マップ拡大サイト/電子国土「地表面1m高さの空間線量率」平成26年11月07日時点 <http://ramap.jmc.or.jp/map/map.html>
- 8) ICRP, 'Environmental Protection: Transfer Parameters for Reference Animals and Plants', Annals of the ICRP Publication 114, Ann. ICRP 39(6), 2009
- 9) Takeshi Ohno., Y. Muramatsu., Y. Miura., K. Oda., N. Inagawa., H. Ogawa., A. Yamazaki., C. Toyama., M. Sato. 'Depth profiles of radioactive cesium and iodine released from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in different agricultural fields and forests', *Geochemical Journal*, Vol.46 pp.287-295, 2012.

放射性セシウムの植物葉中における挙動

大澤良介¹ 杉原真司^{2*} 百島則幸²

- 1) 九州大学大学院理学府化学専攻 福岡市東区箱崎6丁目10-1
2) 九州大学アイソトープ統合安全管理センター 福岡市東区箱崎6丁目10-1
* sugihara.shinji.248@m.kyushu-u.ac.jp

東日本大震災に伴う東京電力(株)福島第一原子力発電所事故により、環境中に多くの放射性核種が放出された。その一部は、陸域の地表面に降下し沈着している。植物の汚染の経路は、植物表面(葉、幹等)への沈着と経根吸収である。本研究では葉内に取り込まれた放射性セシウムの葉内分布について、部位別の酸解離定数と吸着容量からの検討を行い、挙動を理解することを目的とした。

事故直後に福島県内で採取したクズの葉の表面には、スポット状の汚染が観察され、葉脈に多く存在していることがイメージングプレートにより観察された。九州大学内で、クズ(*Pueraria lobata*)とアサガオ(*Ipomoea nil*)を採取し、葉の茎の切断面を¹³⁷Cs溶液に浸し、¹³⁷Csを吸収させた後、イメージングプレートにより葉の放射能二次元分布の経時変化を測定した。また、乾燥させた植物葉の各部位の¹³⁷Cs吸着容量と酸解離定数を求めた。

葉中の放射性セシウムは、クズ、アサガオとも葉脈に多く分布し、時間の経過とともに茎から葉の先端部に広がっていった。クズと比較するとアサガオの放射性セシウムの広がりは少なく、葉脈の根元部分に多く存在し、これは吸着容量の違いから説明できた。陽イオン交換体の酸解離定数から、セシウムの葉内分布はカルボキシ基との関係が示唆された。

キーワード 放射性セシウム, 植物, イメージングプレート

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故により、放射性物質が大量に放出され福島県内外に沈着した。放出された核種のうち、長期的な環境汚染に寄与するのは¹³⁴Cs(半減期2.1年)及び¹³⁷Cs(半減期30年)である。植物の汚染は、植物表面への付着と根からの吸い上げで起こる¹⁻³⁾。経根吸収は蒸散による土壌水の取込みにより起こり、根の表面に固定されているイオン交換サイトが重要な働きをしている。固定されているイオン交換サイトが存在している部分と外側の溶液におけるイオン分配は、ドンナン平衡によって行われる⁴⁾。ドンナン平衡は植物体中で含有水と組織の間でも成立していることから、根から吸収された陽イオンの分布にも影響する。福島県一帯では放射性セシウムが土壌に残存しているため、経根吸収によって放射性セシウム植物体内へ取り込まれる。取り込まれた放射性セシウムは農作物の可食部へ移動し⁵⁾、人が農作物を食べることで内部被ばくが起こる。内部被ばくを可能な限り低く抑えるためには、土壌から取り込まれた植物中のセシウムの挙動の理解が必要である。本研究では、葉内でのセシウムの分配を明らかにし、放射性セシウムの植物中での挙動を理解することを目的とする。

2. 実験

(1) 福島県内で採取したクズの葉の画像解析

2011年6月と2012年7月に福島県双葉町、浪江町

でクズの葉を採取した。これらをイメージングプレート(IP)によるオートラジオグラフィによって植物体内中の放射性セシウムの二次元分布を測定した。

(2) ¹³⁷Csの取込実験

植物試料として、クズ(*Pueraria lobata*)とアサガオ(*Ipomoea nil*)の葉を九州大学箱崎キャンパスで採取した。採取した葉の茎を高純度水中で切断し、24時間高純度水に浸した。その後、切断面を¹³⁷Cs溶液(40 kBq dm⁻³, pH 7)に浸し、8-72時間吸収させた後、IP(BAS-2040, BAS-4043; Fujifilm Co.)により葉の放射能の二次元分布を測定した。IPへの曝露は48時間行い、画像解析には、FLA-5100 (Fujifilm Co.)を使用した。育成は、室温24°C、蛍光灯下で行った。

(3) 葉脈と葉肉の吸着容量測定

乾燥させた植物葉を葉肉と葉脈に分け、それぞれを粉砕機で粉砕した。粉砕した試料を遠沈管に入れ、pH調整したセシウム溶液を加え、24時間振とうさせ遠心分離により上澄みと残渣に分けた。セシウムの交換容量とそのpH依存性を測定し、吸着容量と酸解離定数を求めた。試料中の¹³⁷Cs濃度はゲルマニウム半導体検出器(GMX23190-P, GMX30200; SEIKO EG&G ORTEC)によるγ線スペクトル分析で定量した。

3. 結果と考察

(1) 画像解析結果

福島県内で採取した事故後3ヶ月のクズにはスポット状の放射性Csが確認できた(Fig.1)。葉の放射能(黒化度)を、葉肉と葉脈部分に分けると、葉脈に多

くの放射性 Cs が存在することが分かった(Table 1)。事故直後の試料には、スポットが多く見られることから、スポットは放射性降下物が葉面に付着していると考えられた。

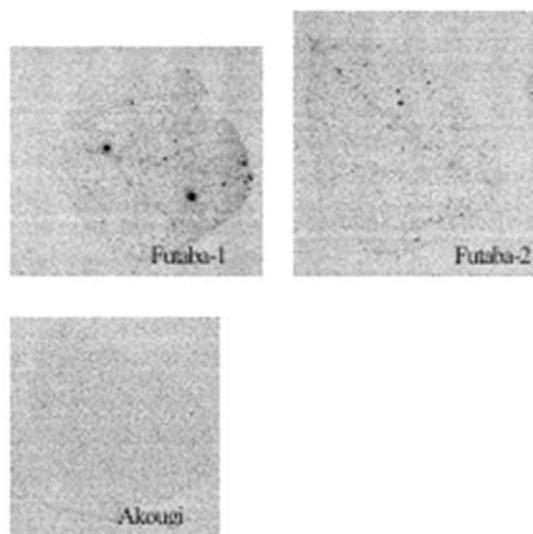


Fig.1 The IPs of the Futaba and Akougi samples

Table 1 Proportion of $^{134+137}\text{Cs}$ activity in Kudzu leaves

Sample	Leaf		spot
	37%		
Futaba-1	mesophyll	vein	63%
	86%	14%	
Futaba-2	87%		13%
	mesophyll	vein	
	88%	12%	
Akougi	99%		1%

九州大学内で採取したクズとアサガオへのセシウム取込実験の結果を Fig.2 に示す。Fig. 2 から、葉中の放射性セシウムは、クズ、アサガオとも葉脈に多く分布し、時間経過に伴って茎から葉の先端部へ広がっていくことが分かった。クズと比較するとアサガオの放射性セシウムの広がりや少なく、葉脈の根元部分に多く分布していた。根元での ^{137}Cs の固定量は時間が経つにつれて大きくなっていることから、根元の吸着サイト全てに固定してから葉先へ向かっているのではなく、根元部分では ^{137}Cs 濃度が大きいので多く固定され、低濃度になりながら葉先へ向かっていると考えられる。クズとアサガオを比較すると、クズは短時間の吸収で葉脈の先端まで放射性セシウムが移動しているものがある一方で、アサガオは、72時間吸収させても根元に集中していた。蒸散量が小さい葉は、道管中をゆっくり進むため、根元付近で多く固定され、蒸散量の大きいものは、より先端へと運ばれると考えられる。

(2) 葉脈と葉肉の吸着容量

葉脈および葉肉中の陽イオン交換体の酸解離定数は、クズ及びアサガオともに $\text{p}K_a = 3-5$ となった。この値から判断すると、葉に含まれるペクチン中のカルボキシ基がセシウムの固定に重要な役割を果たし

ていると示唆される。針葉樹であるトウヒの仮導管部分⁶⁾やトマト果実の表皮⁷⁾のような他の植物でも類似した結果が得られており、どちらの研究もペクチンのカルボキシ基に陽イオンが固定されると結論付けている。本実験では、溶液中にナトリウムイオンも含まれているが、セシウムの吸収にはほとんど影響を及ぼさないため無視できると考えられる⁸⁾。クズの葉脈及び葉肉のセシウムの吸着容量は 0.2 mmol g^{-1} であった。アサガオの葉肉は 0.2 mmol g^{-1} である一方、葉脈の吸着容量は 0.3 mmol g^{-1} と大きかった。pH 6 のクズとアサガオの吸着容量の大きさを比較すると、トウヒの仮導管部分は $0.06-0.11 \text{ mequiv. g}^{-1}$ ⁶⁾、トマトの表皮は $0.2 \text{ mequiv. g}^{-1}$ ⁷⁾ となっており、近い値を示していた。Fig.2 でアサガオの葉の先端にあまりセシウムが移動していなかった理由は、アサガオの葉脈の吸着容量が大きく、クズより根元に固定されていたからと考えられる。

2011年6月に双葉町で採取したクズの葉の部位ごとの放射能の割合は、葉肉に86-88%、葉脈に12-14%であった。クズの葉脈の質量は全体の $12 \pm 2\%$ ($n=5$) であり、葉脈と葉肉で吸着容量がほとんど同じであったことから、葉脈に多くの放射性セシウムが吸着しているのではなく、葉脈の面積あたりの質量が大きかったため、集中しているように見えていたことがわかった。

植物による放射性セシウムの取り込み、挙動を理解することにより、福島環境放射能の現状把握と今後の進展を予測することが可能となり、これらの研究結果が福島の早期復興につながる放射線対策につながることを考えられる。

4. 参考文献

- 1) Y. Thiry, C. Myttenaere, *Journal of Environmental Radioactivity*, **18**, 247-257 (1993)
- 2) Y. Thiry, F. Goor, T. Riesen, *Journal of Environmental Radioactivity*, **58**, 243-259 (2002)
- 3) E. Smolders, K. V. D. Brande, R. Merckx, *Environmental Science and Technology*, **31**, 3432-3438 (1997)
- 4) H. Sentenac, C. Grignon, *Plant Physiology*, **68**, 415-419 (1981)
- 5) H. Velasco, A. S. Cid, R. M. Anjos, C. B. Zamboni, M. Rizzotto, D. L. Valladares, J. J. Ayuba, *Journal of Environmental Radioactivity*, **104**, 64-70 (2012)
- 6) N. Momoshima, E. A. Bondietti, *Canadian Journal of Forest Research*, **20**, 1840-1849 (1990)
- 7) J. Schonherr, M. J. Bukovac, *Planta*, **109**, 73-93 (1973)
- 8) R. Handley, R. Overstreer, *Plant Physiology*, **36**, 66-69 (1961)

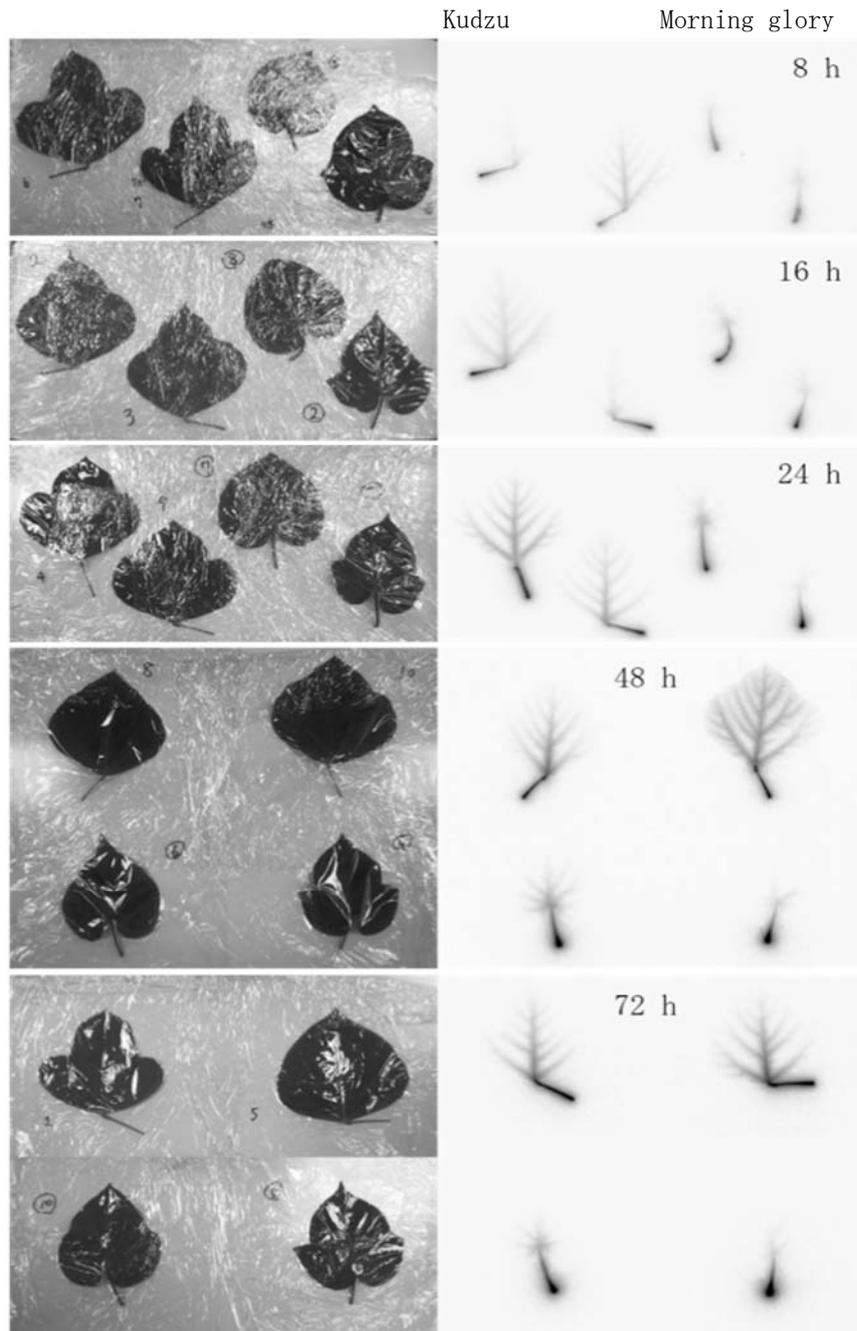


Fig.2 Photographs and IPs of Kudzu and Morning glories samples (11.26-28). The left two leaves are Kudzu, and the right leaves are Morning glories for the samples absorbed for 8h, 16h and 24h, respectively. The upper two leaves are Kudzu, and the lower leaves are Morning glories for the samples absorbed for 48h and 72h.

トピックス4

その他

福島への復興に向けた放射線教育の試み —小中学校の児童生徒を対象として

幸 浩子¹

1) 京都大学大学院エネルギー科学研究科 京都府京都市左京区吉田本町
* miyuki.hiroko.77c@st.kyoto-u.ac.jp

本論の目的は、2014年度に実施された小学生と中学生(N=989)に対する放射線リスク出前授業の有効性を検証することである。出前授業実施校は福島県を含む9道府県に位置する。授業は45分(1コマ)授業あるいは90分(2コマ連続)授業で、学習目標は放射線とそのリスクについて知ることである。授業設計においては能動型学習を重視した。幸式ワールドカフェ(複数の課題について、個々がブレインストーミングを連鎖させた結果を基に、グループ討議をし、結果をまとめて発表を行うディスカッション方法)を取り入れた学習活動を提案し、小学校高学年以上の授業において、9割以上の学級で幸式ワールドカフェを実践した。出前授業前後の児童・生徒の反応の変容として、授業前に比べ授業後は、放射線に関心を持つとともにある程度の基礎知識を習得することがわかった。放射線リスク教育の出前授業は、児童・生徒が放射線リスクについて学習するに留まらず、教師も放射線リスクについて学び、また、幸式ワールドカフェは子ども達の放射線リスクに対する考えを広げ深めることができたと示唆される。

キーワード: 放射線リスク教育, 出前授業, 小中学校, 能動型学習, 幸式ワールドカフェ

1. 始めに

日本は、一次エネルギーの自給率が低く、原子力を含む我が国の一次エネルギー自給率は、東日本大震災前の2010年は19.9%であったが、福島第一原子力発電所事故(原発事故)のあった2011年には原子力発電所(原発)が相次いで停止した結果、自給率は11.1%、2013年は6.0%となった¹⁾。2014年9月に関西電力大飯原子力発電所3、4号機が停止し、日本の全ての原発が停止したことから、2014年以降のエネルギー自給率は6%をさらに下回るとみられる²⁾。

2011年の原発事故に起因する問題はエネルギー自給率の低下だけではない。原子力発電の危険性と、放射線、放射性廃棄物処分問題が明るみに出た。放射性物質の環境中への放出や食物への影響など、国民の放射線に対する関心が深まった。ところが、原発事故から4年半が経つ今日にあっても、放射線リスク教育は学校教育において未だ十分に実施されていないのが現状である³⁾。その原因として、①1981年以降、放射性物質の管理が非常に厳しくなったことと理科の授業時数が削減されたことなどから、学習指導要領から放射線の扱いが消えた⁴⁾ために、小中学校教師にとって「放射線」は、学校教育で学んだ経験の無い、未知の領域となった⁵⁾。②放射線リスク教育は専門性が高く、新たに学ぶ時間が

ない³⁾。③簡単に使える適切な教育資料が無い⁶⁾、④「リスク」の概念が分かりづらい⁶⁾、などがあげられる。

放射線について、広く国民に周知するために、また、放射線教育を普及させるために、文部科学省や経済産業省資源エネルギー庁、行政、及び大学等教育研究機関などが、放射線に関する副読本や様々な関連資料を作成し、小中学校に届けた。しかし、それらの資料に対する教師トレーニングは殆どなされず、受け取った教師任せであるため、現場教師による放射線教育の実施は困難である。加えて、それら副読本の中には、原子力推進に賛成あるいは反対の見地から作成されたものもあり、放射線教育の普及を妨げる原因の一つとなった⁶⁾。一方で、リスクという言葉の意味は多義的である。一般において多種多様に用いられており、リスクに対する感覚は否定的でもあり肯定的でもある。リスクとは何か、リスクをどのように考えてどのように回避するか、あるいは利用するかなど、リスクの概念も同時に理解することが重要である。

これらの社会問題を踏まえ、放射線リスク教育の喫緊のニーズを満たすために、2011年から2015年にかけて、福島県を含む全国9道府県において放射線リスク教育出前授業を実施した。本論は2014年度の出前授業から、義務教育における実践を抽出し結果をまとめたものである。

2. 授業実践

出前授業実践は2011年9月より継続して実施され、2015年3月までに放射線出前授業に参加した合計人数は4613名であった(表1)。ここで、出前授業の実質実施期間は、以下のとおりである。

2011年度：2011年6月～2012年2月；9ヶ月間

2012年度：2012年10月～2013年3月；6ヶ月間

2013年度：2013年10月～2014年3月；6ヶ月間

2014年度：2014年4月～2015年3月；12ヶ月間

であり、これらの期間は募集期間を含む。

出講先学校の所在地は図1に示すとおり、北海道、青森県、山形県、福島県、千葉県、和歌山県、滋賀県、大阪府、京都府に位置する。

表1 年度別訪問学校数、学年と参加者人数
(2015年3月)

年度	2011	2012	2013	2014	合計
訪問学校数	25	13	8	21	67
学年	人数				
小1	0	10	5	22	37
小2	0	10	4	22	36
小3	5	11	5	26	47
小4	193	34	66	47	340
小5	317	229	117	45	708
小6	1323	455	320	587	2685
中学	128	130	96	240	594
高校				29	29
教職員				50	110
PTA		60			
大学				27	27
合計	1966	939	613	1095	4613

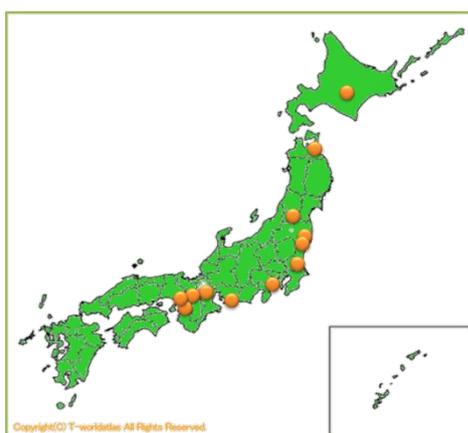


図1 出講先所在地 (2011年9月～2015年3月)

(1) 授業内容

授業で教えるべき放射線についての項目(学習の目当て)は、2011年度文部科学省委託事業遂行の際、公

益財団法人日本生産性本部が複数の有識者に依頼し、必ず教えるべきポイントとして吟味して決定したものであり、教える内容と方法および各発達段階での異なる深度の変更については講師に委譲されていることを記す。授業は45分(1コマ)授業あるいは90分(2コマ連続)授業で、学習目標は放射線とそのリスクについて知ることである(表2)。

表2 授業時間と対象学年、学習の目当て

授業時間	対象学年等	トピック(学習の目当て)	実験	授業方法、学習活動
45分	小学校1-2年生	五感に感じない 身の回りにある 危ないけど役立つ 放射線から身を守る	霧箱	紙芝居(お話し) モデル提示、体験 実演 クイズ
	小学校3-4年生	五感に感じない 身の回りにある 危ないけど役立つ 放射線から身を守る 測ることができる	霧箱	実演 モデル提示、体験 クイズ アンケート
	小学校5-6年生	五感に感じない 身の回りにある 放射線から身を守る 測ることができる 生物に影響する 役立つ リスクとは何だろう	霧箱 測定	実演 モデル提示、体験 クイズ アンケート
90分	小学校高学年	五感に感じない 身の回りにある 放射線から身を守る 測ることができる 生物に影響する 役立つ リスクとは何だろう 高レベル放射性廃棄物 処分方法	霧箱 測定 ベントナイト	実演 モデル提示、体験 クイズ アンケート 幸式ワールドカフェ
100分	中学生	放射能、放射線、放射性物質 放射線の種類(α、β、γ、X) 身近にある 放射線の特徴を知る 放射線量と安全性の関係 放射線利用 リスクとは何だろう 高レベル放射性廃棄物 処分方法	霧箱 測定 ベントナイト	実演 モデル提示、体験 クイズ アンケート 幸式ワールドカフェ

a) リスクの概念について

多くの科学技術者が考えるリスクとは、「確率×結果の大きさ」と定義するのが一般的であるが、ここでリスクとは、「危害(Hazard)と便益(Benefit)がトレードオフの関係にある不確かさの影響」^{7, 8, 9)}であると捉え、授業の中では、リスクとは「危険なものだけではない」「危ない思いをしても、チャンスを得たいかどうか」と説明した。

(2) 授業方法

a) クイズ形式の授業

授業はクイズ形式に組み立てた(図2)¹⁰⁾。学習の目当てとなる基本知識に関して説明した後、クイズと称した理解確認テストを行い、児童の反応を見ながら更に解説を加える。実験により体験できる知識は実験を取り入れ、授業の終わりには授業内容(教えた基本知識の全項目)の確認テストを行い、短期的な習熟度を確認した。

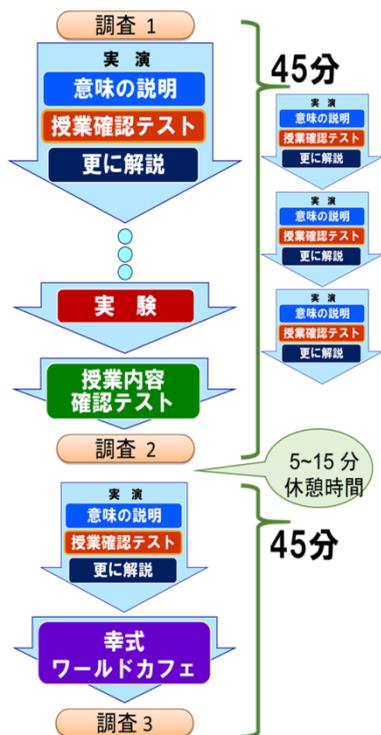


図 2 放射線授業の組立

b) 能動型学習法と幸式ワールドカフェ

「見る、聞く」などの知識の取り込みが中心となる受動型学習のみ実施するより、「体験、企画、分析、評価」するなど、知識の応用と実践が中心となる能動型学習を合わせて取り入れる方が、学習の定着率は高い^{11, 12)}ことは周知である。

能動型学習活動として、全ての生徒が授業中、継続して、①自由に、②複数の方法論について、③能動的に、④自分の能力にあった力で考え、⑤他人の意見を聞き、⑥他人の意見について考え、⑦問題を抽出し、⑧問題を解決しようとし、⑨考えをまとめ、⑩考えを伝える(発表する)幸式ワールドカフェ(Mカフェ)を考案し実施した(図3)。Mカフェにおける班構成は、各班1名から6名程

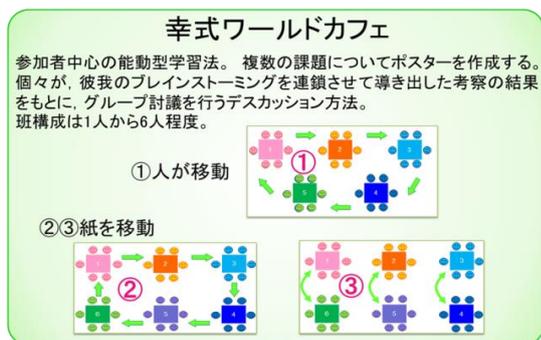


図 3 幸式ワールドカフェ

度で、学級の大きさにより調整が可能である。Mカフェの手順について説明する。学級を各班X名(例えば6名)ずつY個の班(例えば5つの班)に分ける。1班から5班のテーブルの上に討議する異なるテーマが書かれた模造紙を置く。生徒は各自ペンを持ち、例えば2分間、そのテーマについてブレインストーミングをし、模造紙に思いのまま書き記す。2分後、模造紙は班のテーブルに置いたまま、1班は2班のテーブルへ、2班は3班のテーブルへというように、生徒が同時に移動する。移動後すぐに、次の班の、自分の班とは異なる課題について再びブレインストーミングをし、模造紙に書き記す。模造紙には既に前の班のメンバーにより様々な考えが書いてある。生徒は他に意見がないか考えを広げたり、書かれた考えに対する意見を書くため、考えを深めたりする(写真1)。再び、2分後、同様に次の班のテーブルに移動しブレインストーミングをし、考えつくままに書き記す。一巡して自分の班に戻ると、今度は模造紙に書かれた様々な意見や考えを班で討議し、まとめ、発表する(写真2)という学習活動である。



写真1 幸式ワールドカフェでポスター作成の様子 (撮影 幸浩子 2013年2月)



写真2 幸式ワールドカフェで発表の様子 (撮影 幸浩子 2014年5月)

(3) 調査方法

放射線リスク授業の直前直後およびMカフェの発表の後、小学校3年生以上のクラスにおいて、45秒間の自由回答式(連想式)アンケート調査を行い、結果を分析・評価し

た。「放射線」を連想の元となる刺激語とし、反応語となるアンケート結果の単語(例:危険 など)または繋がった単語(例:危険だけど役立つ など)を数え、印象別に分類した。授業中のクイズの点数表は各問(学習の目当て)の理解度を測る目安とし、授業直後でMカフェの前に、短期的習熟度を図るための確認テストとして実施した。(図4)。



図4 アンケート用紙とクイズ解答用紙

3. 結果と考察

出前授業の結果は、反応語を集計し①反応語の言葉／繋がった言葉の数(文字数)、②第一印象語(一番最初に記した言葉)の頻度の多かった上位10語、③第一印象語を「プラスイメージ」「マイナスイメージ」「どちらでもない、知識・事実」に三分類して分析し、④授業中のクイズの点数と授業後の確認テストの点数を比較して分析した。Mカフェについては生徒の授業参加と発表の様子から定性的(質的)に評価した。

(1) 反応語の単語／繋がった単語の構成文字数

授業前、授業後、Mカフェ後に書かれた反応語には全参加者を通じて、共通の特徴が見られた。授業前は

放射線に対する印象を単語で表現することが多かった結果に対し、授業後には条件付き印象(危険だけど役立つ、たくさん浴びると危ない など)が増え、さらに、Mカフェ後には問題を指摘する内容(廃棄物を処分するには色々な処分があるけどどれも大変で難しい どのように処分すべきか など)が増えた。図5は授業前を100とした授業後、Mカフェ後の言葉数、文字数の変化を表す。

(2) 第一印象語

本論においては、2014年度の小学校3年生から中学3年生が「放射線」から連想する反応語としてあげた中より、第一印象語(一番最初に記した言葉)上位10語の授業前と授業後、Mカフェ後の変化を次頁の表3に示す。ただし、Mカフェは小学校1~4年生は実施していないため、小学校5年生から中学3年生の第一印象語群の上位10である。

(3) 印象の変容

反応語の中から第一印象語を、放射線授業前と授業後に限り、「プラスイメージ」「マイナスイメージ」「どちらでもない、知識・事実」に三分類して分析したところ、授業前に比べ授業後はある程度の基礎的知識を習得し、マイナスイメージが減少したように見える(次頁 図6)。

(4) 学習の目当ての理解度

クイズ形式の授業の、各クイズの間は学習の目当てである。また、授業後の確認テストも学習の目当てに対応しており、生徒の放射線に対する理解度の目安となりうる。図7(次頁)は、各学級のそれぞれの平均正答率をグラフに表したものである。小学校においては12学級のうち10学級が授業後の正答率が上がった。2学級の授業後の正答率は下がり、その比率は2%、3%である。一方で、中学校においては7学級のうち3学級は授業後の正答率は上がり、4学級は下がった。

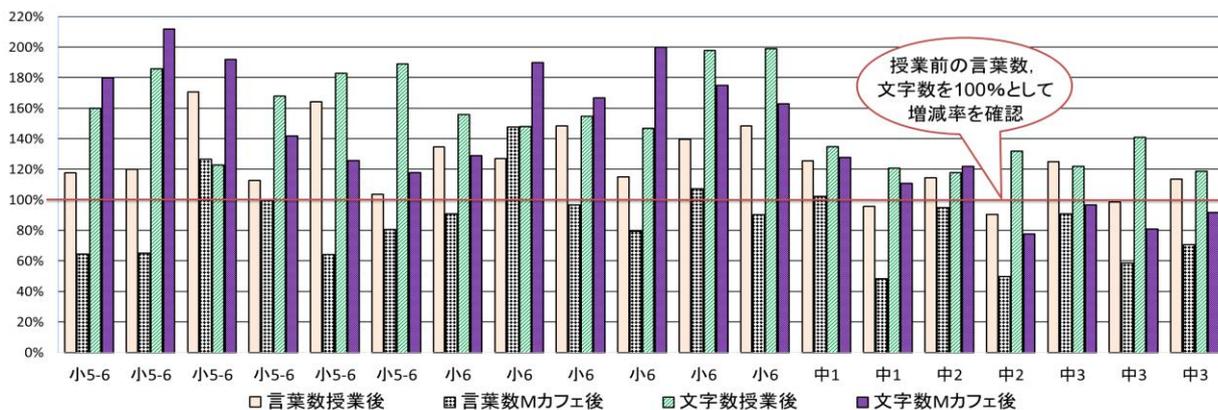


図5 授業前を100とした授業後、Mカフェ後の言葉数と文字数の変化(2014年度)

表3 第一印象語上位10語
(授業前後、Mカフェ後)

	授業前	授業後	Mカフェ後
1	危険, 危ない	危険だけど役立つこともある	廃棄物を処分するには色々な処分があるけどどれも大変で難しい
2	こわい	たくさん浴びると生き物に悪い影響がある	処分の方法は色々あるがどれも危険でお金がかかる
3	生き物に悪い影響がある	放射能は弱くなる	どのように処分すべきか
4	目に見えない	世界中にある	宇宙に捨てるのは危ない
5	原子力発電所	わかっていないと危険, わかっていたら大丈夫	お金のかからない安全な方法はないのか
6	物を通り抜ける	病気になる(ガンになる)かもしれない	放射線を漏らさないための工夫はないか
7	ガンになる	五感に感じない	やはり人が管理すべきではないか
8	東日本大震災	いつも食べている食物にも入っている	色々な方法を考えることができた
9	浴びすぎると死ぬことがある	防ぐことができる	危険なことはないと思っただが, やはり危険だ
10	人の生活に役立つ	α線, β線, γ線, X線	放射線はわかっていないと危険で, ちゃんと知っていれば危険でもどうにかなる

(5) 考察

a) 言葉数の増加による印象の変容

今までの印象に加えてプラスやマイナスの印象を表す言葉が増えたり, 知識や事実を表す言葉が増えたりしたことが推察される. 図6では全体の印象が好転したように見えるが, 放射線が, 悪い印象から良い印象に変容したのではない. 自由回答式(連想式)アンケート調査が授業直後であったために, 学習したばかりの知識や事実

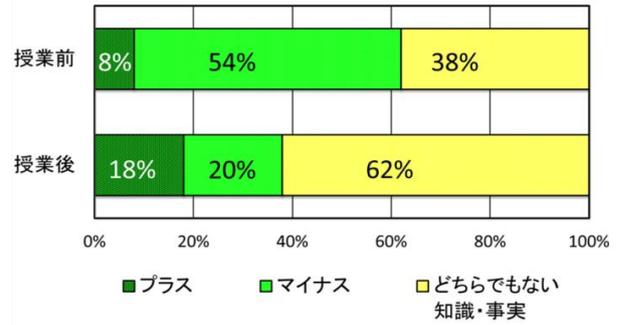


図6 授業前後の放射線にかかる印象の変容
2014年度 小学校3年生から中学校3年生

などの内容が印象濃く残り, 第一印象語として書かれたと考えられる. また, 授業前の放射線に対する参加者のイメージにより, 授業から受けた印象は個々異なることは周知である. なお, プラスやマイナスのイメージは反応語群の2語目以降にも書かれていることから, 第一印象語の結果だけでなく反応語全体の集計と分析を行い精査する必要がある.

表3より, 児童・生徒の年齢や被災経験の有無に係わらず, 授業後は授業前に比べて, 放射線に関心を持つとともに, ある程度の基礎的知識を習得することが分かった³⁾. また, 放射線リスクについて学ぶことで, 放射線に対する「感情的な恐れ」から, 「恐怖感」は持ちつつも「効力感(放射線は制御することで危険を回避できるという自信や, 正しい知識があれば便益が得られるという見通し)」を持つと推定された^{3, 13)}. 結果より, 小中学生はそれぞれの学校の限られた授業時間内に, 放射線リスクについて学習したといえる.

b) 学習内容の理解

図7より, 授業中に教授された内容がほぼ学習されたと考えられる. 授業中よりも実験などを体験した後の確認テストの方が押し並べて正答率が高いことから, 生徒は授業を通して放射線に関心を持ち, 放射線リスクについ

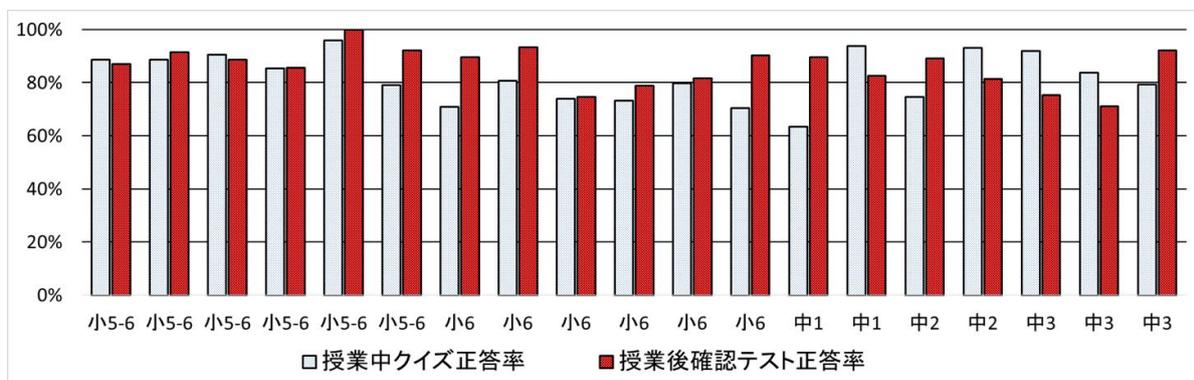


図7 授業中の授業確認テストと授業後の授業内容確認テストの正答率

て知識や経験を得たと示唆される。

参加した生徒の97%が「楽しかった」と答えたが、一方で、授業や実験について17%の生徒が「あまりわからなかった」と答えたことから、授業のペースダウンや実験の目的を明確にして教えるなど、さらに工夫が必要であることが判明した。

c) 幸式ワールドカフェ

参観した教師や保護者から、「幸式ワールドカフェで子ども達が積極的に考え、発表まですることに感動した」「子ども達が次から次へと考えを導き出し、解決策を模索していることに驚いた」「授業は大人向けセミナーよりわかりやすく放射線リスクについて理解できた」とコメントを戴いた。このことから、幸式ワールドカフェは子ども達の放射線リスクに対する考えを広げ深めることができたことと示唆される。また、放射線リスク教育の出前授業は、児童・生徒が放射線リスクについて学習するに留まらず、教師も放射線リスクについて学ぶことができたと考えられる。

4. まとめ

これからの日本のエネルギー問題を考えるにあたり、どのようなエネルギーを使うと、どのように環境に影響をおよぼすのか、どのように経済に影響をおよぼすのか、そして、私たちの日常生活に影響をおよぼすのか、エネルギー利用の便益だけでなく危険も併せて考える力を養わなくてはならない。エネルギーに関する重要な決断をするのは、「子ども達」の世代である。福島の復興に向けての放射線対策に関するこれからの課題として、我々は、「子どもたち」が、重要な決断『エネルギーの意思決定』をする事ができるよう、技術を進めるだけでなく、教育にも焦点を合わせる必要がある。

謝辞

本研究は、2011年度 文部科学省委託事業(公益財団法人日本生産性本部 エネルギー環境教育情報センター)、2012年度 京都大学グローバルCOE、2013-2014年度 住友財団環境研究助成133076に基づく。研究協力校の皆様から心から感謝する。

参考文献

- 1) エネルギー白書2015, 平成26年度年次報告, 経済産業省資源エネルギー庁, accessed 2015年7月 <http://www.enecho.meti.go.jp/about/whitepaper/2015pdf/>
- 2) 日本のエネルギー自給率6%に 原発停止で震災

前の3分の1 大飯停止でさらに下落も, 産経ニュース, 2014年

<2015<http://www.sankei.com/life/news/140519/lif1405190002-n1.html>> accessed 2015年6月

- 3) 幸浩子, 山末英嗣, 奥村英之, 石原慶一, “小学校6年生の放射線に対する考えの変化;授業前後・地域性の関連分析”, 第49回環境工学研究フォーラム講演集, 土木学会環境工学委員会, pp. 205-207 (2012)
- 4) 江田 稔, “放射線教育の復活を願って,” 放射線教育フォーラム ニュースレター, No.37, p.1, 2007
- 5) 小野英喜, “初等・中等教育における原発・「放射能」教育の問題点とその克服” JSAe マガジン No.16, 2013
- 6) 福島県教育委員会, 平成26年度「放射線教育推進支援事業」指導者養成研修会, 研究協議「放射線教育推進上の課題」分科会2班小学校3班中学校, 福島県郡山市, 2014.6.18
- 7) 山野直樹, “リスクコミュニケーション再考”, 日本原子力学会誌, Vol. 57, 109-113, 2015.
- 8) リスクマネジメント規格ISO31000:2009
- 9) International Risk Governance Council, White Paper on Risk Governance towards an Integrative Approach, p.19, 2005
- 10) 幸浩子, “放射線リスクと私たちの生活/ 高レベル放射性廃棄物って?” 指導案, 学習活動方法, 授業報告, 原子力発電環境整備機構 <http://numo-eess.jp/class/2013/yachi_seibu.php> 2014. 3
- 11) Ben Johnson, “How Do We Know When Students Are Engaged?”, Edutopia, Education Foundation, 2013, <<http://www.edutopia.org/blog/student-engagement-definition-ben-johnson>>, accessed Jul. 4, 2014
- 12) Hendrien Maat, “Working paper, The Active Teaching & Learning Method”, edukans, University of Amsterdam, Version 4,

福島原子力発電所事故により汚染された土壌中放射性セシウムの深度分布の変遷からの見掛けの拡散係数(D_a)及び収着分配係数(K_D)の導出

佐藤治夫^{1*}

1) 岡山大学大学院自然科学研究科 岡山県岡山市北区津島中3丁目1-1

* sato.haruo@cc.okayama-u.ac.jp

著者らは、これまでに、福島原子力発電所事故から約3ヶ月後(1次調査)と約1年後(2次調査)の2回に亘り、二本松市、川俣町、浪江町の11地点で放射性核種の深度分布に関する調査を実施し、土壌表層付近での深度分布から求めた放射性核種(Cs-134, Cs-137, Te-129m, Ag-110m)の見掛けの拡散係数(D_a)やバッチ実験から求めた土壌へのCs-137とI-131の収着分配係数(K_D)を報告した。1次調査の深度分布から得られた D_a の多くが $10^{-10}m^2/s$ オーダーで、主に砂質土壌よりも有機質土壌や元耕作地と推定される土壌で高い傾向であった。一方、2次調査の深度分布から得られた D_a は全て1次調査時よりも低下し、多くが $10^{-11}m^2/s$ オーダーであった。バッチ実験から得られた土壌へのCsの K_D は、両調査とも2,080~61,000ml/gの範囲であった。土壌へのCsの K_D を考えれば、両調査の深度分布から得られた D_a は更に2~3桁程度低い値となるはずであるが、両パラメータ間で大きな解離が見られた。この原因は、両調査で得られた深度分布が、放射性核種が地表面に沈着後、不飽和の土壌表層で移流による分散ないしは浸透した影響を含むためと考えられた。このことは含水比の深度分布からも裏付けられる。これらの事実から、その後の深部での深度分布は、主に拡散プロセスによって形成されたと考えられる。従って、沈着初期の分散ないしは浸透の影響を除去し、拡散プロセスによる D_a の導出理論を1次調査から2次調査への深部での深度分布の変遷に着目して検討した。また、 D_a と K_D との関係から K_D を算出し、実測値と比較した。 D_a の解析値は $10^{-14}m^2/s$ オーダー、 D_a から求められた K_D は $10^4\sim 10^5ml/g$ 程度で、バッチ実験からの実測値と概ね整合した。一方、土壌種の内、バッチ法による脱着実験において不可逆性が見られた砂質土壌の多くは深度分布に変遷が見られなかった。収着における不可逆反応を考慮したモデルの構築が必要である。

キーワード 福島原子力事故、放射性セシウム、拡散、分配係数、土壌

1. はじめに

2011年3月11日の東日本大震災に引き続いて、東京電力福島第一原子力発電所(以下、1F-NPP)での事故が発生した。これに伴い、原子炉内の放射性核種の一部が外部に放出され、福島県やその周辺環境(土壌、森林、溜池、住宅地等)を汚染した。2011年5月までに放出された放射性核種のインベントリーは、放射性ヨウ素(I-131)に換算して約900PBq(I-131:500PBq, Cs-137:10PBq)と見積られている¹⁾。これは、1986年に発生したチェルノブイリ原子力発電所事故によって放出された5,200PBq²⁾の約1/6の量に相当する。しかしながら、1F-NPP事故は、国際原子力事象評価尺度(INES)で、最悪のレベル7と評価されている。初期の早い段階で半減期の短いI-131(半減期 $T_{1/2}=8.021d$)は消滅し、今や線量率を支配しているのは放射性セシウム(以下、放射性Cs:Cs-134($T_{1/2}=2.065y$), Cs-137($T_{1/2}=30.07y$))³⁾であることから、放射性Csの挙動が重要である。

本研究は、2011年3月以来、文部科学省が進める1F-NPP事故に対する対応策の1つである、放射線量率の分布マップに関連した研究プロジェクトである(2012年4月からは規制庁担当)。著者らは、これまでに1F-NPP事

故から約3ヶ月後の2011年6月(1次調査)と約1年後の2012年2月~3月(2次調査)の2回に亘り、1F-NPPから20km~60kmの範囲に位置する二本松市、川俣町、浪江町の11地点で土壌中の放射性核種の深度分布に関する調査を実施し、その結果を報告してきた^{4,6)}。

土壌表層付近の核種の深度分布からFickの法則⁷⁾に基づいて見掛けの拡散係数(D_a)を算出すると共に、土壌へのCs-137やI-131の収着分配係数(K_D)をバッチ実験により取得した。1次調査の深度分布から得られた放射性Cs(Cs-134, Cs-137)の D_a の多くが $10^{-10}m^2/s$ オーダーであり、2次調査の深度分布から得られた D_a の多くは $10^{-11}m^2/s$ オーダーであった⁶⁾。また、土壌へのCs-137の K_D は、両調査とも2,080~61,000ml/gの範囲であった。土壌へのCsの K_D を考えれば、両調査から得られた D_a は更に2~3桁程度低い値となるはずであるが、両パラメータ間で大きな解離が見られた。この原因は、両調査で得られた深度分布が、放射性核種が地表面に沈着後、不飽和の土壌表層付近で移流(水の流れ)による分散ないしは浸透した影響を含むためと考えられた。このことは、土壌への K_D が陽イオン(Cs⁺)と陰イオン(I⁻)では大きく異なる⁴⁾にも関わらず、間隙水中で陰イオンである

Te-129m (H₂TeO₃ないし TeO₃²⁻)⁸⁾と陽イオンである Ag-110m (Ag⁺)⁸⁾や放射性 Cs (Cs⁺) の深度分布から求めた D_a が同程度であったことから明らかである。このことは、深度方向に不飽和から飽和条件に変化する各調査地点での深度方向への含水比分布の実測結果からも裏付けられる。これらの事実から、表層から深部になるに伴い移流は発生しなくなる。よって、その後の深部での深度分布は、主に拡散プロセスによって形成されたと考えられる。

従って、本研究では、沈着初期の不飽和な土壌表層での移流による分散ないしは浸透の影響を極力除去し、主として拡散プロセスによる D_a の導出理論を、1 次調査から 2 次調査への深部での深度分布の変遷に着目して検討した。また、D_a と K_D との関係から K_D を算出し、バッチ実験から得られた実測値と比較することで両パラメータの整合性について確認すると共に、理論の有効性について検証した。

2. フィールド調査の概要

表 1 に 2 回の調査 (1 次及び 2 次調査) の概要を、また、図 1 に調査位置を示す。両調査は、1F-NPP から 20km~60km の範囲に位置する二本松市 (1 地点)、川俣町 (2 地点)、浪江町 (8 地点) の 11 地点で実施した。

表 2 に両調査で得られた各土壌種 (砂質土壌、有機質土壌、元耕作地と推定される土壌) に対する表層付近での深度分布からの放射性 Cs (Cs-134, Cs-137) の D_a の解析結果 (Fick の法則に基づく従来の解析手法⁷⁾) を示す。各調査の詳細については、文献 4) 及び 6) に記述されていることから、ここでは概要のみを記す。表 2 に示す

ように、1 次調査における放射性 Cs (Cs-134, Cs-137) の D_a の多くが 10⁻¹⁰ m²/s オーダーであり、2 次調査における D_a は 10⁻¹¹ m²/s オーダーであることが分かる⁶⁾。バッチ実験から得られた土壌への Cs-137 の K_D は、両調査とも 2,080~61,000 ml/g の範囲であった。

D_a と K_D との比較から明らかのように、両パラメータは定量的には全く整合していない。即ち、両パラメータ間で定量的には大きな解離が見られる。具体的には、バッチ実験からは上述のように高い K_D が取得されたものの、表層付近での深度分布から得られた D_a は、K_D から予見されるよりも 2~3 桁程度高い値であった。D_a が K_D から予見されるよりもかなり高い値となった原因について、雨が降った際の移流による分散ないしは浸透の影響が考えられた。表層付近の土壌は集水域などのように、地下水面が地表面と同じでない限り、水分の蒸発により不飽和である。事実、各調査地点での土壌の深度方向の含水比分布から、多くの調査地点で表層での飽和度は 50%程度であるのに対して、少し深くなると増加した。また、前述の通り、1 次調査では同時に取得した他の核種 (Te-129m, Ag-110m) の深度分布 (2 次調査時には減衰により未検出) も陽イオンと陰イオンの違いがあるにも関わらず、同じ地点では放射性 Cs とほぼ同じであり、算出された D_a も同程度であった。これらのことを総合すれば、初期の地表付近での深度分布は、放射性核種が地表面に沈着後、雨水などの移流による分散ないしは浸透の影響を受けた結果と考えられる。従って、移流の影響を受けにくい深部での深度分布の変遷は拡散プロセス

表 1 2 回の調査 (1 次及び 2 次調査) の概要

調査項目	1 次調査	2 次調査
調査時期	Jun.7-19 (Jun.10-16), 2011 (事故後約3ヶ月)	Feb.23-Mar.10 (Feb.27-Mar.8), 2012 (事故後約1年)
調査地点	11地点 二本松市, 川俣町, 浪江町	11地点 二本松市, 川俣町, 浪江町
深度分布	259試料 (16スライサー: 11地点) 分析: Ge半導体検出器	180試料 (12コア: 11地点) 分析: Ge半導体検出器
試料採取方法	ジオスライサー (ワイド&ハンディ): 29スライス ワイドタイプ: 1スライス (1地点) 1.1m wide×1m deep×2cm thick ハンディタイプ: 28スライス (11地点) 10cm wide×1m deep×2cm thick	コアサンプラー (ポータブル): 19コア 15cm inner diameter×50cm deep
土壌観察・記載	29スライス (全スライス)	19コア (全コア)
土壌物理特性	24試料 (11地点) 2深度区間/スライス 密度 (湿潤, 乾燥, 固相), 間隙率, 含水比	24試料 (11地点) 2深度区間/コア 密度 (湿潤, 乾燥, 固相), 間隙率, 含水比
水簸分級		12試料 (3地点): 3コア 3種類の土壌 (砂質, 粘土質, 有機質) 粘土 (<2µm), シルト (2-20µm), 砂・礫 (>20µm)
鉱物分析 (XRD)		12試料 (3地点): 3コア 3種類の土壌 (砂質, 粘土質, 有機質) 定方位 (粘土成分), 不定方位 (全試料)
土壌化学特性 (CEC & AEC)		12試料 (3地点): 3コア 3種類の土壌 (砂質, 粘土質, 有機質) 水簸試料 (粘土, シルト, 砂・礫)
収着・脱着特性 (¹³⁷ Cs & ¹³¹ I)	24試料 (11地点) (収着試験のみ) 2深度区間/スライス 収着試験: イオン交換水系	12試料 (3地点): 3コア 3種類の土壌&水簸試料 収着試験: イオン交換水系, 脱着試験: 0.33M-KCl

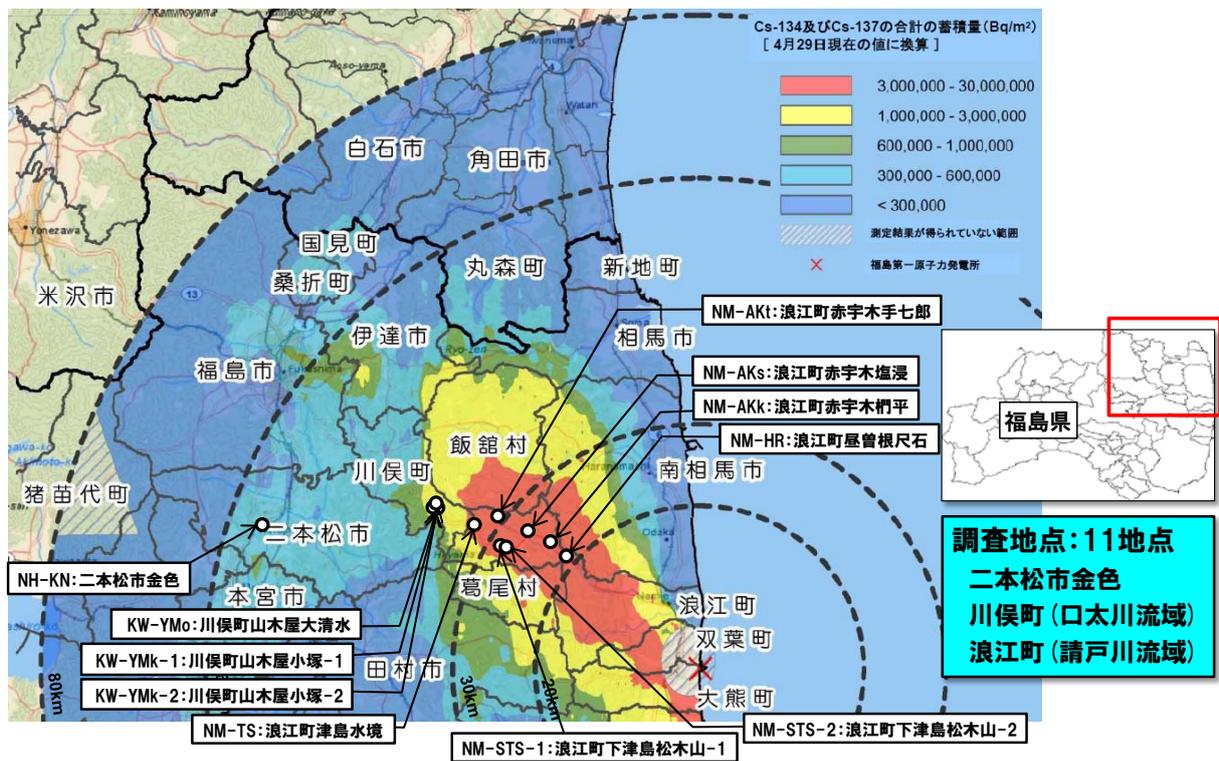


図1 調査位置

表2 両調査(1次及び2次調査)における各土壌種に対する表層付近での深度分布からの放射性Cs(Cs-134, Cs-137)の D_a (m^2/s)解析結果(Fickの法則に基づく従来の解析手法による)

調査地点	土壌区分	1次調査(事故から約3ヶ月後)		2次調査(事故から約1年後)	
		Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
川俣町山木屋小塚	砂質土壌	1.70E-11	1.71E-11	3.38E-12	3.19E-12
二本松市金色		4.43E-11	4.31E-11		
浪江町下津島松木山		6.63E-11	6.78E-11	3.41E-11	3.51E-11
浪江町赤宇木手七郎		1.28E-10	1.32E-10		
浪江町屋曾根尺石	有機質土壌	1.06E-10	1.12E-10		
		5.09E-10	5.09E-10	7.85E-11	8.17E-11
川俣町山木屋大清水	元耕作地と推定される土壌	1.12E-10	1.14E-10	9.18E-11	9.28E-11
川俣町山木屋小塚		6.17E-11	6.10E-10	4.75E-11	4.54E-11
浪江町津島水境		1.04E-10	1.08E-10		
		3.05E-10	3.31E-10		
浪江町下津島松木山		1.98E-10	2.01E-10	8.32E-11	1.01E-10
		1.23E-10	1.78E-10		
浪江町赤宇木塩浸		4.97E-11	5.33E-11	2.26E-11	2.05E-11
浪江町赤宇木柵平				3.25E-10	2.54E+10
	7.49E-11	7.71E-11	1.77E-11	1.86E-11	
	1.92E-10	1.91E-10	4.03E-11	4.23E-11	
	4.03E-10	4.03E-10	1.51E-10	1.16E-10	

による移動を反映していると考えられる。

3. 深度分布の変遷に基づく D_a と K_D の解析

地表面に沈着した放射性核種が徐々に深部へ移動(分散, 拡散)するものとするれば、その移動速度(変遷速度)は土壌への放射性核種の K_D の影響を強く受ける。

放射能減衰を考慮した1次元の非定常状態に対する拡散方程式は、Fickの第2法則⁷⁾に基づけば次のように与えられる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_a \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \lambda C \quad (1)$$

D_a が距離 x に対して独立なパラメータ、即ち、一定であるとすれば、(1)式は次のように整理される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda C \quad (2)$$

ここで、 C : 土壌の単位体積当たりの放射性 Cs の放射能濃度 (Bq/cm^3)、 t : 放射性 Cs の沈着時からの経過時間 (s)、 x : 沈着表面 (地表面) からの土壌の深度方向における距離 (m)、 D_a : 見掛けの拡散係数 (m^2/s) (移流項がある場合、見掛けの分散係数)、 λ : 壊変定数 ($1/s$)

初期に有限な量の放射性 Cs が地表面に沈着し、徐々に深部へ移動する場合、その移動源は平面的であることから、薄膜拡散源と見なすことが出来る。(2)式について、無限遠の円柱媒体における放射性 Cs などの有限な量よりなる薄膜拡散源に対する解析解は、初期条件及び境界条件に基づいて次のように記述される。

初期条件

$$C(t, x) = 0, t = 0, x \geq 0$$

境界条件

$$C(t, x) = 0, t > 0, x = +\infty$$

$$M = \int_0^{+\infty} C(t, x) dx$$

$$C(t, x) = \frac{M}{\sqrt{\pi D_a t}} e^{\left(-\frac{x^2}{4D_a t}\right)} e^{-\lambda t} \quad (3)$$

ここで、 M : 単位面積当たりの拡散物質の総量 (Bq/m^2) (初期に地表面に沈着した単位面積当たりの放射性 Cs の総量に相当)

(3)式について、両辺の対数を取れば、次式が得られる。

$$\text{Ln}C(t, x) = \text{Ln}\left(\frac{M}{\sqrt{\pi D_a t}}\right) - \frac{x^2}{4D_a t} - \lambda t \quad (4)$$

(4)式について、 x^2 に対する $\text{Ln}C(t, x)$ のプロットから得られる傾きと経過時間 t との関係から D_a を得ることが出来る。従来は、この方法により D_a を算出した。また、この関係が高い相関係数で成立することは、 D_a に大きな影響を及ぼす K_D が可逆的な反応であることを意味する。

次に、濃度分布の変遷に基づく D_a の解析理論について説明する。放射性 Cs の沈着後からの経過時間 t_1 について、 x^2 (横軸) に対する $\text{Ln}C(t, x)$ (縦軸) のプロットから得られる傾き a は、縦軸に対する角度を θ_1 として次式のように表現される。

$$a = -\frac{1}{4D_{a1}t_1} = \frac{1}{\tan\theta_1} \quad (5)$$

(5)式と同様に、放射性 Cs の沈着後からの経過時間 t_2 に対する傾き b は、縦軸に対する角度を θ_2 として次式の

ように表現される。

$$b = -\frac{1}{4D_{a2}t_2} = \frac{1}{\tan\theta_2} \quad (6)$$

ここで、 D_{a1} , D_{a2} : それぞれ初期からの経過時間 t_1 と t_2 までの傾きから算出された見掛けの拡散係数 (m^2/s) (ここでは、 D_{a1} が 1 次調査、 D_{a2} が 2 次調査で求められた見掛けの拡散係数に相当)

初期からの経過時間 t_1 から t_2 までの時間変化に対する傾きの変化量は、(5)及び(6)式から次のように表される。

$$\frac{1}{\tan(\theta_2 - \theta_1)} = -\frac{1}{4D_a(t_2 - t_1)} \quad (7)$$

ここで、 D_a : 初期からの経過時間 t_1 から t_2 までの間に變化した傾きより算出された見掛けの拡散係数 (m^2/s)

(7)式を整理して、 D_a は次の関係によって表される。

$$D_a = -\frac{\tan(\theta_2 - \theta_1)}{4(t_2 - t_1)} \quad (8)$$

(5)、(6)及び(8)式から、最終的に深度分布の変遷から D_a を求める理論は次のように導出される。

$$D_a = -\frac{\tan\left\{\arctan\left(\frac{1}{b}\right) - \arctan\left(\frac{1}{a}\right)\right\}}{4(t_2 - t_1)} = -\frac{\tan\{\arctan(-4D_{a2}t_2) - \arctan(-4D_{a1}t_{12})\}}{4(t_2 - t_1)} \quad (9)$$

従って、同じ地点で複数の異なる時期に取得した土壌中深度方向の濃度分布が存在する時、経過時間に対する濃度分布の変遷(時間に対する傾きの変化)から(9)式に基づいて D_a を計算することが出来る。

次に、 D_a から K_D を求めるための関係について説明する。土壌は典型的な多孔質媒体と見なすことが出来るとすれば、 D_a と K_D との関係は次のように表現される。

$$D_a = \frac{n_p D_p}{n_p + \rho_d K_D} = \frac{n_p D^0}{n_p + \rho_d K_D} \left(\frac{\delta}{\tau^2}\right) \quad (10)$$

ここで、 n_p : 間隙率(%), D_p : 間隙水中の拡散係数 (m^2/s), D^0 : 自由水中の拡散係数 (m^2/s), ρ_d : 乾燥密度 (g/cm^3), δ : 収斂度(狭窄性), τ^2 : 屈曲度

均一で典型的な多孔質媒体に対する屈曲度は、幾何学的には $\tau^2 = 3$ である。細孔径(間隙径)が拡散種(拡散イオン)と比較して十分に大きい場合、近似的には $\delta = 1$ である。通常の土壌について、細孔径はイオン径と比較して十分に大きいと考えることが出来る。

表 3 深度分布の変遷に基づいた土壌種に対する Cs⁺イオンの D_a 及び K_D の解析結果

調査地点	土壌区分	土壌物性			D _a (m ² /s)		K _D (ml/g)	
		間隙率 (%)	乾燥密度 (Mg/m ³)	真密度 (Mg/m ³)	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
二本松市金色	砂質土壌	50.9	1.159	2.719	2.76E-14	2.74E-14	9.66E+03	9.74E+03
浪江町屋曾根尺石	有機質土壌	59.0	0.969	2.566	1.99E-14	1.96E-14	1.98E+04	2.00E+04
					4.53E-14	4.64E-14	8.66E+03	8.46E+03
川俣町山木屋大清水	元耕作地と推定される土壌	44.9	1.378	2.729	1.56E-14	1.37E-14	1.34E+04	1.53E+04
浪江町津島水境		69.8	0.728	2.511	6.69E-15	8.37E-15	9.63E+04	7.70E+04
					1.76E-14	1.06E-14	3.66E+04	6.08E+04
浪江町下津島松木山		70.2	0.724	2.619	2.93E-14	2.06E-14	2.15E+04	3.05E+04
浪江町赤宇木塩浸		59.3	1.053	2.604	2.37E-14	2.35E-14	1.65E+04	1.67E+04
浪江町赤宇木柵平		48.4	1.062	2.631	1.23E-14	1.06E-14	2.04E+04	2.35E+04

よって、(10)式は次のように整理される。

$$D_a = \frac{n_p D^0}{3(n_p + \rho_d K_D)} \quad (11)$$

(11)式から、K_D は次の関係から求めることが出来る。

$$K_D = \frac{n_p(D^0 - 3D_a)}{3\rho_d D_a} \quad (12)$$

媒体(土壌)の乾燥密度の代わりに固相密度(土壌粒子密度)を用いることにより、(12)式は最終的には次のように表される。

$$K_D = \frac{n_p(D^0 - 3D_a)}{3\rho_{th}(1 - n_p)D_a} \quad (13)$$

ここで、 ρ_{th} : 固相(土壌粒子)密度 (g/cm³)

本研究では、D_a 及び K_D をそれぞれ(9)及び(13)式に基づいて算出した。解析では、土壌の間隙率及び固相(土壌粒子)密度は各調査地点で採取した試料の実測値、Cs⁺イオンの D⁰ は D⁰ = 2.1x10⁻⁹m²/s (25°C)^{9,10)}を用いた。

表 3 に各土壌種に対する Cs⁺イオンの D_a 及び K_D の解析結果を解析に使用した土壌の物性値と共に示す。殆ど全ての D_a は 10⁻¹⁴m²/s オーダー、D_a から計算した K_D は 10⁴~10⁵ml/g の範囲であり、これらの K_D はバッチ実験からの実測値と概ね整合した。

その一方で、砂質土壌(元耕作地と推定される土壌を除く)の多くは深度分布に変遷(進展)が見られなかったことから、D_a を解析出来なかった。これは、砂質土壌への放射性 Cs の K_D が不可逆であったためと考えられる。実際、砂質土壌、有機質土壌、粘土質土壌に対するバッチ法による収着後の脱着実験において、有機質土壌と粘土質土壌については可逆的であったものの、砂質土壌のみは不可逆的⁹⁾であった。これは、深度分布の進展挙動とも整合する。

収着における不可逆反応を考慮したモデルの構築が

必要である。

4. 結論

放射性 Cs について、従来、バッチ実験から得られた土壌への K_D と土壌表層付近での深度分布から得られた D_a には大きな解離が見られ、その主たる原因が地表面付近での移流による分散ないしは浸透の影響を含むためと考えられたことから、その影響の少ない深度分布の変遷に基づいて D_a を解析すると共に、D_a との関係から K_D を解析した。

深度分布の変遷に基づく D_a の解析結果は 10⁻¹⁴m²/s オーダー、D_a から計算した K_D は 10⁴~10⁵ml/g の範囲であり、これらの K_D はバッチ実験からの実測値と概ね整合した。このことは、土壌深部への放射性 Cs の移動が極めて遅く、今尚多くの放射性 Cs が表層付近に存在する事実とも整合する。

一方、砂質土壌の多くは深度分布に変遷(進展)が見られなかったことから、解析出来ていない。これは、収着反応における不可逆性と考えられ、バッチ法による収着後の脱着実験結果とも整合する。

不可逆な収着反応を考慮した移行については、K_D の不可逆な形態に対するモデルの構築が必要であり、今後の課題である。

参考文献

- 1) The National Diet of Japan Fukushima Nuclear Accident Investigation Commission (NAIIC) Reports (July 5, 2012), "http://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/385637/naaic.go.jp/en/report/", accessed July 21, 2014.
- 2) Kato, H., Onda, Y. and Teramage, M., "Depth Distribution of ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, and ¹³¹I in Soil Profile after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident," *J. Environ. Radioact.* (in press).
- 3) 日本アイソトープ協会, "アイソトープ手帳," 改訂第9版, 丸善, 東京(2000).
- 4) Sato, H., Niizato, T., Amano, K., Tanaka, S. and Aoki, K., "Investigation and Research on Depth Distribution in Soil of Radionuclides Released by the TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident,"

Mater. Res. Soc. Symp. Proc., Boston, U.S.A., Nov. 25-30, 2012, Vol.1518, pp.277-282 (2013).

- 5) Sato, H., Niizato, T., Tanaka, S., Abe, H. and Aoki, K., "Evolution of Depth Distribution of Radionuclides in Soil Contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident," Asia Oceania Geosciences Soc. (AOGS2014), Sapporo, Japan, July 28-August 1, 2014, Abstracts, IG23-A024 (2014).
- 6) 佐藤治夫, "福島環境中に放出された放射性物質の土壌中深度分布の変遷: 土壌中放射性セシウムの拡散収着特性," ミニシンポジウム「地震・断層・粘土そして水～地震と断層の理解のために～」, 岡山大学, 2015年3月17日, ハンドアウト資料(2015).
- 7) Crank, J., "The Mathematics of Diffusion," Oxford University Press, Oxford (1975).
- 8) D. G. Brookins, "Eh-pH Diagrams for Geochemistry," Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (1988).
- 9) Li, Yuan-H. and Gregory, S., "Diffusion of Ions in Sea Water and in Deep-sea Sediments," *Geochem. et Cosmochem. Acta*, Vol.38, pp.703-714 (1973).
- 10) Marcus, Y., "Ion Properties," Marcel Dekker. Inc., New York (1997).