世界の幸せをカタチにする。
Creating Peace & Happiness for the World
Musashino University
武蔵野大学 学術機関リポジトリ
Musashino University Academic Institutional Repository

Distribution of Radioactive Matters on the Kanto Plains, and Approach to the Remediation

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2016-10-27 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 塩澤, 豊志, 田辺, 直行 メールアドレス: 所属:
URL	https://mu.repo.nii.ac.jp/records/287

関東平野における放射能分布と除染の展望

Distribution of Radioactive Matters on the Kanto Plains, and Approach to the Remediation

塩　澤　豊　志*
Toyoshi Shiozawa

田　辺　直　行†
Nao-Yuki Tanabe

1　はじめに

東日本大震災による福島第一原子力発電所事故から４年が経とうとしている。環境中に放出された放射性セシウムのうち、セシウム134はその半減期である２年を過ぎたことから、健康への被害はほぼなくなったとみられるが、半減期約30年といわれるセシウム137による環境汚染は消え去らない。東日本各地の土壌・水系の放射能汚染は、現在わが国最大の環境問題であるといえる。汚染を引き起こしている放射性物質の動きや分布が事故直後とは変動しており、放射性物質の環境動態を冷静に分析することが求められている。汚染の実態を直視して効果的な除染対策を講ずることは喫緊の課題である。

放射性物質が放射線を出す能力を放射能と呼んでいる。放射能の単位としてベクレル（Bq）が定着しているが、これは、１秒間に崩壊する核種（放射性原子核）の数を表す。農産物の放射能汚染は時間とともに減少している。野菜や果実では、事故後３ヶ月時点では、検体の約８％が当時の基準値500 Bq/kgを超えていたが、2011年にはこの時点での基準値100 Bq/kgを超えるものは3％に減少し、2012年には基準値を超えるものはなくなった。風評被害は抑えねばならないが、低線量被曝と食物連鎖にもとづく内部被曝の健康影響については今後の研究に負うところが大きく、注意が必要である。

事故直後に福島第一原発から海水中に放出された放射性汚染水は数百から数千兆ベクレルに達したという推計もあり、また、原発敷地内に流れ込む地下水が海に流れ出ることを防ぐ目的で計画された「凍土壁」計画がとん挫したために、絶えず汚染水が太平洋に流れ込んでいることを考えると、大量の放射能が海洋汚染を引き起こしているという現実を看過すべきではないように思われる。

空間放射線量率はシーベルト（Sv）という単位で計測されている。セシウム137からはガンマ線（γ 線）という放射線（高エネルギー電磁波）が放出されている。放射線には α 線、β 線な

*環境学部客員教授　†環境学部非常勤講師

どもあり、核種・エネルギーによって人体への影響が異なるので、核種ごとに荷重係数が定まっている。さらに人体組織によって被曝の影響が異なるので、全身が均等に被曝したと仮定して定めた組織荷重係数をかけて算出したものがシーベルトであり、シーベルトは被曝による人体への影響を示す指標である。関東地方では、自然界由来の放射線量として0.04μSv/h（毎時マイクロシーベルト）程度の値がバックグラウンドとして計測される。実測線量はこれに原発事故による追加被曝放射線量が加算されたものである。言うまでもなくこれは、地面や建物、草木などに沈着している放射性物質が放出する放射能によるものである。つまり、われわれの生活環境に放射性物質が広く拡散し、「放射能汚染分布マップ」というものが存在しているのである。時間とともにこの分布が変動していることも明らかになっている。

地域環境基盤とは、すべての生き物の基盤とも言い換えられるが、それは土壌である。その土壌が放射能によって汚染されているという現実を再認識したい。農地としての土壌つまり食料生産ができる土壌は、地球表面のわずか15 ～ 20 cmにしか存在しない貴重な資源である。東北・関東地方の代表的な土壌は黒ボク土（くろぼく土）と呼ばれる火山灰由来のもので、農業に適したこの土壌は、ウクライナ穀倉地帯の土壌と並んで世界的にも貴重な天然資源なのである。

本稿では、まず、昨年に引き続いて実施した関東平野における放射線量測定の結果にもとづいて、放射能分布の変動を分析する。次に、土壌汚染の現状を概観し、化学的・生物学的除染の実験結果を述べる。さらに、トリチウムによる被曝問題に言及する。

2　これまでの研究経過

2・1　武蔵野大学校地および周辺地域の放射能

2011年夏季には、武蔵野大学本部校地（東京都西東京市）内に、西東京市の平均放射線量を上回るミニホットスポットが存在していた。校地内北側の放射線量が高かった。8号館北側の壁面に放射性エアロゾルを含んだ北東の風が当たった影響が続いていたものと考えられる。翌2012年には7号館および学友棟の北側とテニスコート内の放射線量を詳しく調査した。とくにテニスコート内はどこも値が高く、コート隅に吹き溜まった砂をかき集めて小山をつくって5 cm上の線量値を測定したところ、0.14 ～ 0.18μSv/hという値が得られた。ただちに健康に影響するレベルではないものの、日常的にプレーをしている学生たちが呼吸によって体内に取り込んだ場合の内部被曝が懸念されたため、大学として除染に取り組むことになった。表面砂の入れ替え作業の結果、砂山実験で線量が0.08 ～ 0.09μSv/hに減少した。大学当局の皆様方の親身で素早い対応には感服した。

2012年4月の有明キャンパス開校に先立ち、内装工事中の棟内の空間放射線量測定を実施した。棟内に比べて3号館周辺の線量値がやや高かったので、測定範囲を広げ、有明3丁目イーストプロムナードで測定を行った。ここでは、NaIシンチレーション放射線スペクトロメータによるγ線スペクトル測定を行った。スペクトル測定からはγ線発生源である放射性核種の特定が可能であり、非常に興味深い結果が得られた。同じ装置で棟内（1号館6階）で得られたスペクトルにはビスマス214のピークが見られ、これは東京都内のビル一般に共通してビル建材にごく微量含まれる天然ウラン鉱に由来するものである。セシウム由来の放射能を考える必要はなく、棟内

についての懸念はない。一方、イーストプロムナードで測定したスペクトル上にはセシウム134とセシウム137の存在を示す明瞭なピークが認められ、原発事故の影響が大きいと推測される。イーストプロムナードの白御影石の石畳舗道の空間線量が高い事実は、後述する粘土鉱物の高いセシウム吸着能と深く関係するものと考えられる。

2・2　関東主要河川流域の放射能

関東平野はATT流域の沖積平野である。ATTとは、荒川（A)、利根川（T)、多摩川（T）の3大河川をさす。東京下町低地（江東区・墨田区・足立区・葛飾区・江戸川区）は、本来、利根川・荒川の三角州である。関東平野の肥沃な土壌は、富士山の火山灰とATTの流れが運んだ栄養分がもとになっているといえる。東京湾に流れ込む主要河川流域で特に目立った線量値を記録した地点の線量値データを表1にまとめて示す。

表１　東京湾に流れ込む主要河川流域の放射線量

単位：μSv/h

河川	測定地点	1m	5cm	備考
荒川	平井大橋	0.136	0.142	土手
	葛西橋	0.144	0.253	東砂堤防下
中川	平井大橋	0.13	0.255	中洲
	奥戸橋	0.175	0.415	土手脇の公園
江戸川	水元公園	0.265	0.67	蓮池畔
	広尾防災公園	0.135	0.43	野球場外
	新行徳橋	0.129	0.189	土手
	釣り船桟橋	0.135	0.51	土手の外側
	松戸市樋野口公園	0.224	0.236	草地

2・3　除染化学（セシウムの吸着）の展開

土、砂、落ち葉、枯草などに放射性セシウムが固定されていると考えられるので、これらを構成している物質とセシウムの結合力を評価する実験を実施した。プルシアンブルーなど福島で除染に使用されている物質も含め、各種吸着剤によるセシウムイオン（Cs^+）の吸着率（セシウム除去率）の測定を行った。標準溶液中のCs^+濃度が吸着剤浸漬の前後でどう変化したかを、上澄み液のICP分光分析によって明らかにした。測定結果を表2に示す。

セシウムイオンCs^+が陽イオン交換樹脂に100％吸着されるのは当然であるが、他の吸着剤とCs^+との結合力の差異の原因については未解明であった。砂の主成分である石英SiO_2が全くセシウムを吸着せず、ゼオライト、モンモリロナイトなどの粘土鉱物がセシウムを強く吸着する事実から、テニスコートの砂に固定されたセシウムは、砂の本体にではなく、砂粒子に固着した粘土鉱物に吸着したものであることが判明した。同様に、有明3丁目イーストプロムナードにおけるやや高い放射線量も、多孔質の白御影石（花崗岩）が特に粘土鉱物と強く結合することが原因であると推測した。

表２　各種吸着剤によるセシウム除去率

吸着剤	化学式	セシウム除去率（%）
リンモリブデン酸アンモニウム	$(NH_4)_3[PO_4Mo_{12}O_{36}]\cdot nH_2O$	100
陽イオン交換樹脂	$>R-SO_3H$	98
合成ゼオライト	$(Na,Ca_{1/2})_m(Al_mSi_nO_{2(m+n)})\cdot nH_2O$	95
ヘキサクロロ白金酸	$H_2[PtCl_6]$	93
モンモリロナイト製剤	$Al_4(Si_4O_{10})_2(OH)_4\cdot nH_2O$	84
プルシアンブルー	$KFe[Fe(CN)_6]$	70
園芸土（鹿沼土）		9
シリカゲル	SiO_2	0
活性炭	C	0
海砂	SiO_2	0

３　調査の概要

３・１　航空モニタリングマップの分析

関東地方における空間放射能の原因は、福島第一原発で起きた水素爆発によって放出・拡散した放射性物質にあると考えられる、大気中の放射能は事故後数か月で激減しており、これは、いったん地上に降下した放射性物質が再度舞い上がって飛ぶということがほとんどないことを物語っている。そこで、今回の放射線量調査においても、2011年９月に文部科学省によって測定・公表された航空モニタリング結果をもとに測定地点を選定した。マップを図１に示す。

中央山岳地帯には放射性物質がスポット状に沈着した汚染地帯が明瞭に見て取れる。関東平野では、土浦の南側阿見町周辺、取手市、柏市、松戸市に高濃度地帯が見られる。やや高濃度の地域は広く分布しており、水戸市西部一帯、茨城県南部から千葉県北部にかけて、さらに、東京都下町低地、木更津市周辺が目立つ。今回は、これらの地域に絞って放射線量測定を実施した。

３・２　空間放射線量率の測定

調査実施期間：2014年５月～ 10月

調査地点（実地調査）：茨城県霞ケ浦・牛久沼周辺・筑波山・取手市・龍ケ崎市
千葉県我孫子市・柏市　埼玉県行田市・飯能市　群馬県谷川岳
栃木県足尾町

調査地点（自治体ホームページ）：栃木県那須塩原市・日光市・大田原市　千葉県木更津市

調査地点を図２のマップに示す。

放射線量測定機器：日立アロカメディカル社製　ポケットサーベイメータ（検出部　CsIシンチレータ）

放射線量値の評価：一般人被曝限度としてICRP（国際放射線防護委員会）が定めた勧告値である年間1.0 mSvから導かれた0.23 μSv/h（毎時マイクロシーベルト）という値が、自治体モニタリングポストでの測定値の評価基準に設定されている。

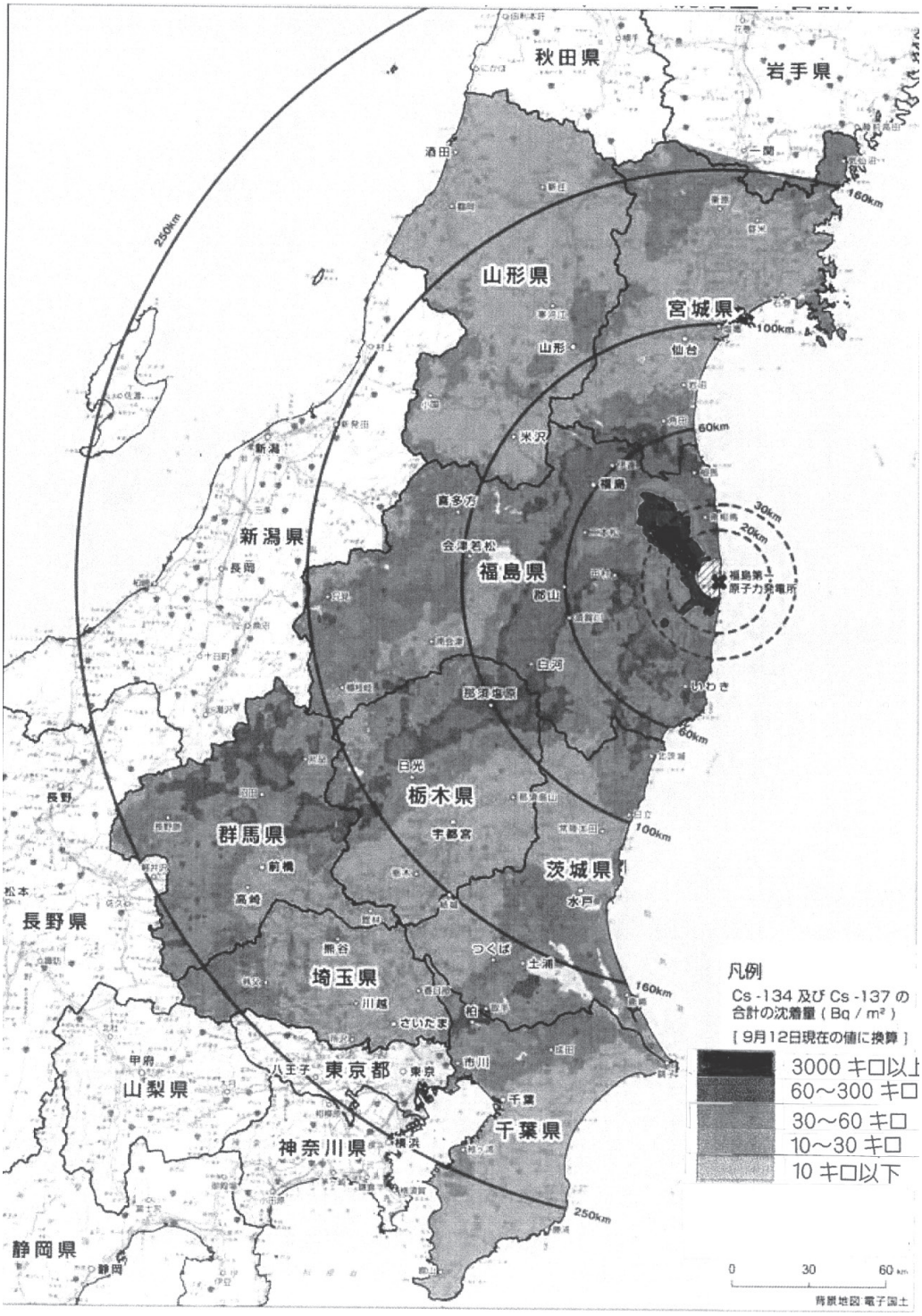


図 1　セシウム 134 および 137 の合計沈着量


A
B
C
D
E
F
G
H
I
J
K
L
M
N
O
ラムサール条約登録湿地
おもなナショナルトラスト
自然保護が必要な湿地
自然海岸
人工海岸
標高と水深
伊豆・小笠原諸島
1:15 000 000
200km
1:1 000 000
10km

図２　放射線量調査地域

3・3　化学的除染および生物学的除染に関する調査

各種吸着剤によるセシウム除去率の測定を今回も引き続いて行った。新たに用いた吸着剤試料は、山口県産堆肥（腐植）、埼玉大学のグラウンドの土、カオリナイト、桜島火山灰、三宅島火山灰である。セシウムイオン（Cs^+）の吸着はバッチ法により、定量はICP発光分析法によって行った。（ICP発光分析法：Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry）

バッチ法とは、一定重量の吸着剤試料をセシウムイオン標準水溶液中で十分に攪拌・浸漬する操作をいう。上澄み液中に残存するCs^+のppm濃度をICP発光分析によって定量することにより、吸着剤によるセシウム除去率を計算した。セシウム標準物質として、非放射性のセシウム133の塩化物（CsCl）あるいは硝酸塩（$CsNO_3$）を用いた。

農地土壌の放射能除染法として、植物の力を借りる生物学的方法が考えられる。福島県でも一時ヒマワリによる除染が話題になった。植物による土壌中重金属の除去は、ファイトレメディエーション（phytoremediation）と呼ばれ、以前から研究されてきた方法である。植物の根からはいろいろな有機酸が分泌され、土壌中の金属イオンは有機酸とのキレートの形で通導組織を上昇していくと考えられている。そこでまず、グラウンド土をセシウム溶液に浸したのち乾燥させてカラム管に詰め、有機酸水溶液によるセシウム溶出実験を行った。溶出液中のCs^+濃度はICP発光分析によって行った。次に、セシウムを飽和吸着させたグラウンド土を用いてヒマワリおよびホウレンソウを栽培した。数週間後、植物体を濃硝酸分解して溶出液中のセシウム濃度を定量し、セシウムの植物体への移行率を計算した。なお、栽培実験は埼玉大学理学部分子生物学科で行っていただいた。

4　空間放射線量測定結果

サーベイメータで検知される放射性核種は、バックグラウンドを除けばほとんどセシウム137であると考えられる。これは、2011年3月に、福島第一原発の水素爆発によって環境中に放出されたものが、主として粘土鉱物に吸着した形で土壌その他に固定され、放射線を出し続けているためと推定される。1時間当たりの放射線被曝線量（吸収線量）は、正確には「放射線量率」と呼ばれ、毎時マイクロシーベルト（μSv/h）という単位で表される。今回新たに調査した放射線量データを表3にまとめて示し、各地域ごとの詳細を以下に述べる。

表３　放射線量測定結果

単位：μSv/h

測定日	測定地点	測定場所	地上1m	地上5cm	備考
2014/8/15	M	南柏駅西口駅前	0.083	0.085	コンクリート
		流山市松ケ丘野馬土手	0.157	0.216	草・土
		松ケ丘保存緑地	0.168	0.199	雑木
		豊四季みどりの広場	0.339	0.515	枯草の集まり
		南柏1丁目側溝	0.16	0.204	コンクリート
		北柏駅北口駅前	0.135	0.143	コンクリート
		大堀川土手内川岸	0.228	0.442	草・土
		大堀橋北柏橋	0.168	0.227	草
	N	我孫子駅北口駅前	0.065	0.103	コンクリート
		ふれあい広場排水溝	0.15	0.193	排水溝蓋
		ふれあい広場内	0.207	0.315	枯草の上
		安孫子ショッピングプラザ周辺	0.178	0.321	植え込み・土
		つくし野歩道橋周辺	0.183	0.281	枯草の上
		北飯塚西公園	0.118	0.202	草
	K	取手駅前	0.084	0.086	コンクリート
		新町2丁目	0.177	0.259	砂利・草
		国道294号脇	0.152	0.331	枯草
2014/8/16	J	牛久駅前	0.097	0.133	コンクリート
		牛久沼畔	0.129	0.17	草・枯草
		龍ヶ崎市若柴町	0.177	0.226	草
		龍ヶ崎市金龍寺	0.147	0.227	草
		蛇沼公園駐車場	0.172	0.255	排水溝
		蛇沼畔	0.122	0.143	草
		牛久自然観察の森駐車場	0.16	0.213	植え込み
		牛久自然観察の森車道	0.178	0.255	土
		牛久自然観察の森内	0.161	0.254	草
		イーグルポイントGCゴルフ場	0.177	0.185	土・草
	I	阿見町実穀	0.194	0.224	土
		阿見町鈴木	0.12	0.233	枯草
		県立医大病院駐車場	0.191	0.337	草・植え込み
		茨城大農場脇	0.2	0.33	土・草
		茨城大農学部	0.189	0.248	草・植え込み
		大竹橋	0.189	0.256	河原の土手
		阿見飛行場入口	0.179	0.286	枯草
		美浦トレセン前	0.122	0.151	草・植え込み
		トレセン内診療所	0.158	0.193	草・植え込み
		稲敷市江戸崎	0.149	0.175	土
		稲敷市犬塚	0.24	0.257	草・植え込み
2014/8/20	L	JR東飯能駅	0.061	0.051	土・草
		西武飯能駅北口	0.05	0.05	アスファルト
		天覧山入口	0.051	0.061	土・草
		天覧山山頂	0.046	0.06	土
		能任寺山門	0.06	0.045	コンクリート
		飯能河原	0.045	0.057	砂利・小石
2014/9/3	G	行田市古代蓮の里	0.049	0.059	土
		さきたま古墳群			
		稲荷山古墳頂上	0.049	0.058	土・草
		稲荷山古墳植え込み	0.05	0.062	草
		丸墓山古墳北斜面	0.06	0.062	枯葉・木道

測定日	測定地点	測定場所	地上1m	地上5cm	備考
2014/6/28	F	つくば駅前	0.06	0.06	アスファルト
		筑波山神社	0.1	0.11	土・草
		ケーブル駅宮脇	0.07	0.07	土・石
		男体山頂	0.06	0.06	土・草
		山頂北側斜面	0.13	0.15	土・草
		山頂南側斜面	0.1	0.11	土・草
		男女川	0.07	0.07	岩・土
2014/5/31	H	土浦市穴塚大池			
		共同墓地	0.13	0.15	土・草
		上高津貝塚	0.15	0.17	草・枯草
		グミヌキ遺跡	0.16	0.22	草・枯草
		ウシヤマ遺跡	0.19	0.14	草・枯草
2014/8/5	B	群馬県みなかみ町			
		水上駅	0.066	0.058	駅ホーム
		土会駅前	0.125	0.138	土・草
		ロープウェイのりば	0.067	0.069	アスファルト
		谷川岳一ノ倉沢	0.169	0.137	石・土
		ゴンドラ内	0.108	0.114	板
		天神峠	0.045	0.058	草
		天神平	0.162	0.155	草
2014/9 初旬	D	栃木県日光市			日光市ホームページより
		今市小学校	0.06		
		轟小学校	0.09		
		日光小学校	0.11		
		野口小学校	0.12		
		足尾小学校	0.13		
		足尾中学校	0.12		
2014/9/22	A	那須塩原市			那須塩原市ホームページより
		市役所	0.127		
		西那須野支所	0.1		
		塩原支所	0.09		
		ハロープラザ	0.112		
		高林公民館	0.19		
2014/6	C	大田原市			大田原市ホームページより
		龍頭公園	0.15	0.17	芝　右欄は地上50cm
		龍城公園	0.14	0.14	砂利　右欄は地上50cm
		蛇尾川緑地	0.15	0.16	芝　右欄は地上50cm
		新富仲良し公園	0.14	0.17	砂
		愛宕神社	0.12	0.13	土
		ぽっぽ公園	0.13	0.13	ブロック
		本町第2公園	0.14	0.14	砂
2014/10/19	E	栃木県足尾町			
		足尾砂防ダム			
		親水公園駐車場	0.113	0.234	草・アスファルト
		展望台	0.176	0.241	枯草・土
		銀山平	0.179	0.282	草・アスファルト
		庚申渓谷	0.221	0.229	石・枯草
		庚申山登山口	0.16	0.245	枯草・土

4・1　千葉県内ホットスポットの現状

千葉県柏市と松戸市は、福島第一原発事故直後から、市内全域で空間線量の高いホットスポットが出現し、自治体・住民が一丸となって積極的な除染活動が行われた。これにより、市街部・住宅密集地の放射線量には有意な減少がみられている。昨年度の調査で、松戸市江戸川土手付近に0.23μSv/hを超えるホットスポットを見出しており、まだ線量測定が継続的になされる必要があると思われる。柏市周辺においても同様の現実があることが今回の調査で確かめられた。流山市松ケ丘豊四季みどりの広場内で、掃き集められた落ち葉・枯草の捨て場において0.5μSv/hを超える高い線量値が測定された。また、北柏駅近くを流れる大堀川の土手内川岸においても0.4μSv/hを超える数値が検出されている。大堀川の水源である手賀沼の底質泥放射能汚染が危惧されるところである。我孫子駅周辺の道路脇空地の草原でも依然として0.23μSv/hを超えるホットスポットが存在しており、粘土鉱物の移動に伴ってスポット状の汚染地帯が変動していることが推測される。

図1の航空モニタリングマップを見ると、木更津市周辺の放射能がやや高いことが見て取れる。マップ測定時の2011年9月から現在に至る放射線量の経時変化には関心がもたれる。市内畑沢測定局における測定結果が木更津市ホームページで公表されているので、図3に引用する。2012年冬季までは0.17μSv/h以上の高い線量が記録されていたが、同年春には0.13μSv/h以下に減少し、2014年9月には0.09μSv/hまで下がっている。春季の季節風などの影響で放射性物質の分布状態が変動したと考えられる。

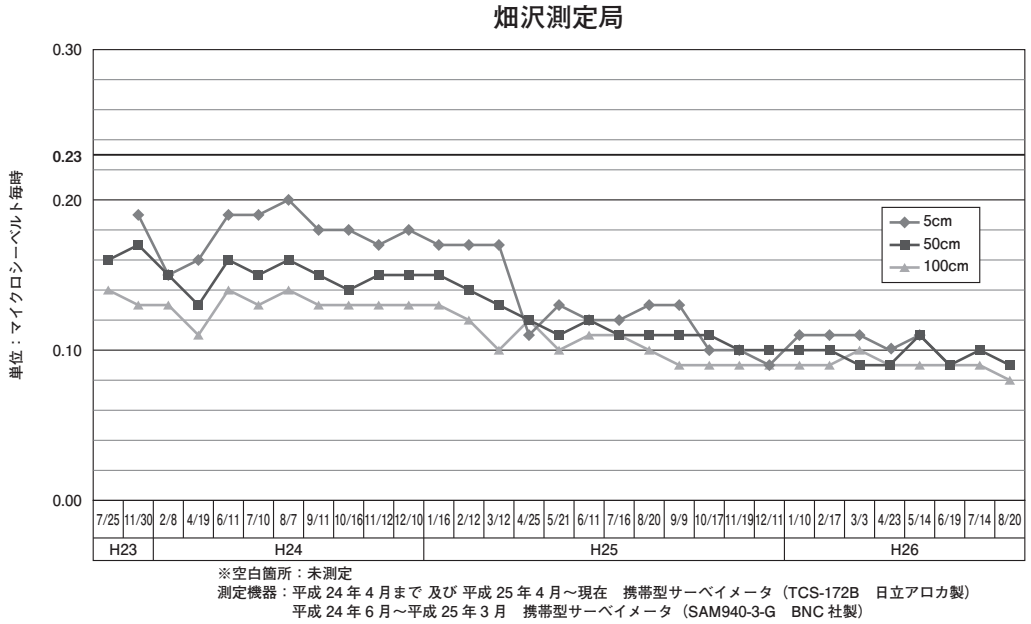


図3　木更津市畑沢地区の放射能経時変化

4・2　茨城県内での測定結果

福島第一原発を発生源とする放射性プルームが関東平野を南下した際、一部は筑波山周辺を通過したと推測される。測定日はあいにくの雨であったが、筑波山山頂と周辺地域で放射線量を測定した。福島原発の方角に面した北側斜面の線量が比較的高く、より多くの放射性物質が降下したものと思われる。土浦市穴塚大池は生態系が保存されている貴重な里山であるが、貝塚周辺の遺跡にはまだ放射能の高いスポットが存在している。取手駅や牛久駅周辺の道路わきの草地でも放射線量の高いスポットが見受けられた。雑木林や竹林の地面に枯草が吹き溜まった場所で放射能が高い点が共通している。図1のマップを見ると、霞ケ浦の南西阿見町から美浦村にかけて放射能の高い地域が広がっていることがわかる。この地域を詳しく調べたところ、牛久自然観察の森、茨城県立医大駐車場とこれに隣接する茨城大学農学部農場周辺では高い放射線量値が得られた。稲敷市犬塚にはピンポイント的に数値の高い地点を発見したが、いずれも農耕地から離れた雑木林など枯草の堆積した場所であった。

4・3　栃木・群馬・埼玉県内の放射能

栃木県那須塩原市・大田原市・日光市の3市は合同で、東京電力に対して原発事故による放射能被害に対する損害賠償を求めている。除染活動や放射性核種の減衰により、3年間で線量値は減少したとはいえ、拡散して土壌に固着している放射性物質は、現在でも放射線を出し続けている。これら3市のホームページで公表されている測定データも表3にまとめた。学校や役場のモニタリングポストの測定値は、山間部に比べて低い値となっている。群馬県でも同様の傾向がみられる。平野部では放射性物質の濃度は低く、山間部で高い点が共通している。2011年冬に高崎市と前橋市で放射線量を測定したところ、問題になる値ではなかった。2014年8月に山間部での測定を行った。上越線土合駅前、谷川岳一ノ倉沢、谷川岳天神平では高い放射線量が観測された。埼玉県行田市古代蓮の里、飯能市天覧山での測定値は、東京都内の平均値を上回る値ではなかった。2014年10月の測定では、平野部と山間部の明瞭な汚染状況の差異を確認することができた。平野部の群馬県桐生市とみどり市の放射線量は0.05 ～ 0.06 μSv/hであったが、栃木県足尾町の山間部に入ると、環境基準値の0.23 μSv/hを超えるホットスポットが随所に存在していた。日本国の財産であり誇りである森林が放射能で汚染されている現状を直視しなければならない。

5　放射能除染科学の展開

5・1　除染化学調査結果（セシウムの吸着について）

福島県内での除染活動では、セシウム吸着剤としてゼオライトが用いられ、その有効性が実証されている。ゼオライトは、規則的な管状細孔と空洞（キャビティ）をもつ剛直な陰イオン性骨格からなる粘土鉱物（含水アルミノケイ酸塩）である。国内各地で天然鉱物資源として産出するが、類似物質が人工的に合成され、合成ゼオライトとして工業的にも広く用いられている。

造岩鉱物のうち、ケイ酸塩鉱物が風化を受けると、その中のアルカリ金属とアルカリ土類金属はイオンとなって溶出するが、アルミニウムとケイ素はいったん溶出しても再結合して粘土鉱物（アルミノケイ酸塩）を形成する。最初に生成する多量の水を含んだ無定形粘土鉱物はアロフェ

ンと呼ばれる。アロフェンは、時間とともに結晶化してハロイサイト（水和カオリナイト）に変化する。カオリナイト、ハロイサイトとならんで風化環境によくみられる粘土鉱物がモンモリロナイトである。カオリナイトとモンモリロナイトの模式的構造を図4に示す。化学組成から、カオリナイトは、SiとAlのモル比が1：1のいわゆる1：1型粘土鉱物に属し、一方、モンモリロナイトとゼオライトはSi：Al＝2：1の2：1型粘土鉱物に分類される。粘土鉱物の構成単位は、図5(a)に示したケイ酸四面体とアルミナ八面体であり、2:1型粘土鉱物では、ケイ酸四面体層によってアルミナ八面体層がサンドウィッチ状に挟み込まれた構造をしている。2：1型粘土鉱物の末端（エッジ部分）には、層間にキャビティが存在し、ここにセシウムイオン（Cs^+）が吸着されると考えられている（図5(b)）。表2に示したように、合成ゼオライトのセシウム除去率は95%、モンモリロナイト製剤のそれは84%という好成績であった。本調査では、比較のために1:1型粘土鉱物であるカオリナイトについてセシウム除去率を測定した。

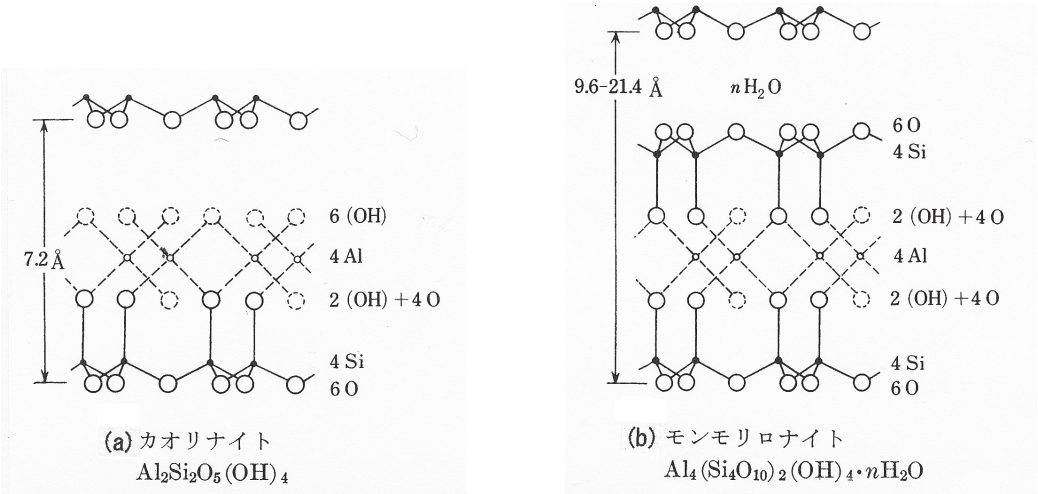
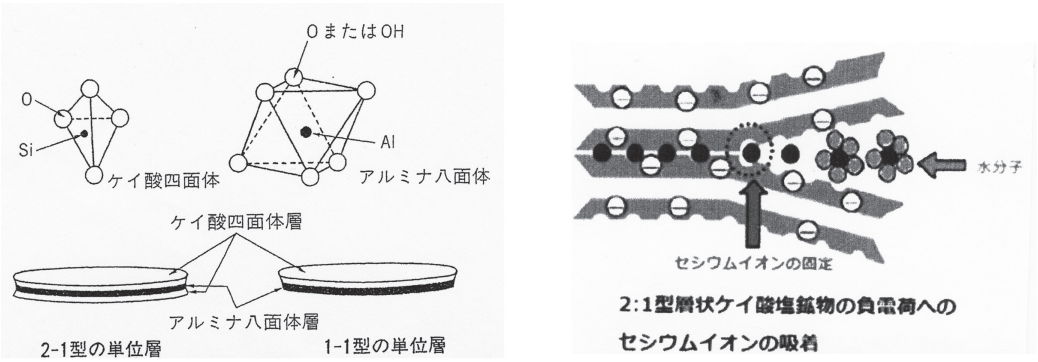


図4　カオリナイトとモンモリロナイトの模式的構造



(a)　粘土鉱物の層状構造　　(b) セシウムイオンの吸着

図5　粘土鉱物の層状構造とセシウムイオンの吸着

日本は火山が多いため、黒ボク土と呼ばれる火山灰由来の土壌に富んでいる。黒ボク土は腐植質に富む肥沃な土壌で、世界的にも貴重な農業に適した天然資源である。放射性セシウムの土壌への固着の仕組みが解明されれば、その知見は土壌構成成分を用いた化学的除染に道を開き，科学的根拠を与える。本調査では、これらの観点から、山口県産堆肥、埼玉大学のグラウンドの土、カオリナイト、桜島および三宅島の火山灰について、セシウム除去率の測定を行った。測定結果を表4に示す。

表４　各種吸着剤によるセシウム除去率測定結果

吸着剤	化学的内容	セシウム除去率（%）
山口県産堆肥	腐植物質（フミン質）	40.0
グラウンド土	粘土鉱物・腐植	32.0
カオリナイト	1:1 型粘土鉱物	36.1
桜島火山灰	安山岩質マグマ由来	41.5
三宅島火山灰	玄武岩質マグマ由来	41.0

1：1型粘土鉱物に属するカオリナイトのセシウム除去率は36.1％であった、層状構造のエッジ部分における吸着サイトが少ないためと考えられるが、この結果からも、化学的除染における2：1型粘土鉱物の優位性が確かめられた。

山口県産堆肥は、その産地からみて、落葉樹起源の腐植物質を主成分とするものと思われる。腐植物質の原料はリグニンとタンパク質と考えられているが、生物遺体の分解途中の高分子化合物であるため、一定の化学組成や構造を持たない。一般に、腐植物質中のＮ原子の割合は少なく、カルボキシル基（–COO^-）やフェノール性ヒドロキシ基（Ph–O^-）にもとづく負電荷を持つ。無定形で複雑な構造と静電的相互作用の相乗効果で40％という値が得られたと考えられる。グラウンドの土は粘土鉱物と腐植物質の両方を含んでいるため、32％のセシウム除去率を示したのであろう。

一方、砂漠の砂や火山灰による除染の試みが取りざたされていることもあり、桜島と三宅島の火山灰を用いたセシウム吸着実験を試みた。桜島火山灰は安山岩質マグマ由来、三宅島火山灰は玄武岩質マグマ由来であり、それぞれが乗っているプレートも異なる。前者はユーラシアプレート上、後者はフィリピン海プレート上である。このような違いにもかかわらず、セシウム除去率が41 ～ 42％でほぼ一致している事実は大変興味深い。今後の研究課題ではあるが、火山灰による除染に期待が持てる結果である。

セシウム除去率が好成績の物質は他にも存在する。リンモリブデン酸アンモニウム、セシボール（テトラキス（4－フルオロフェニル）ホウ酸ナトリウム）、ヘキサクロロ白金酸そしてプルシアンブルーが非常に高いセシウム除去率を示すことが確かめられている（表1）。これらの錯体は、遊離セシウムイオン（Cs^+）の形でなければセシウムを捕捉・結合しない。放射性セシウムの大半は、土壌に強く固着していると考えられる。除染化学の方向性として、セシウムイオンの溶出・遊離→再吸着に固執せず、土壌資源保護や地質・地勢の観点も取り入れて、総合的・現実的な提案がなされるべきであろう。

5・2　放射性セシウムの環境動態

2011年5月、福島第一原発事故地点から170㎞離れた茨城県つくば市において、フィルターを通して空気が集められ、フィルターに付着したほこりの中に含まれる放射性物質を調べる調査が産業技術総合研究所によって行われた。その結果、放射性セシウムが検出された直径0.5 ～ 0.7 μｍのエアロゾル小粒子には、土壌起源のケイ酸塩や海水起源のナトリウムは含まれていなかった。これらは直径2 ～ 30μｍの大きな粒子に含まれていた。放射性セシウムと同時に検出された化学種は、硫酸塩およびアンモニウム塩であった。

福島第一原発事故直後から、東京大学農学部では、総力を挙げた放射性土壌汚染調査が行われた。調査から判明した重要事実を以下に要約させていただく。

(1) 降下した放射性核種の多くは、土壌表面に付着した。その深さは数cmで、表面から5cm 以下になると放射能はほとんど検出されない。

(2) 放射性物質は土壌に一様に分布するのではなく、狭い範囲でもkm単位のマクロなレベルでも、不均一でスポット状の付着・分布をする。

(3) セシウムは粘土鉱物の層状結晶構造の間にはまり込む。1：1型のカオリナイトにはあまり固定されず、2：1型のバーミキュライトやイライトに固定されやすい。

(4) 粘土鉱物に固着したセシウムは、いったん固定されると、カリウムイオンやナトリウムイオンの水溶液で洗浄しても溶出しない。

(5) 時間の経過とともに、土壌に付着した放射性セシウムは、より強固に土壌に吸着し、雨水の量が多くなっても地下深くへは動かず、表面付近に留まるようになる。

(6) 2013年3月に発表された林野庁の調査結果では、森林からの放射性物質の移動はわずかである。

(7) ため池の底泥には、当初飛んできた放射性物質に加えて、その後周辺地域から水と共に流れてきた放射性物質も合わせて溜まっている。

(8) 福島の山から放射性セシウムはほとんど流出していない。落ち葉が分解しても、付着していた放射性セシウムは、土壌に移行するだけで流出していかない。

(9) 物理的に破砕した落ち葉片の懸濁液では、放射性セシウムは1μｍ以上の大粒子にのみ付着しており、それ以下の小粒子や上澄みに放射能はない。

上記の内容と今回のわれわれの調査結果を総合し、放射性セシウムの環境動態について物理化学的推論を行ってみたい。

2011年3月15日の朝、福島第一原発2号機格納容器の水素爆発にもとづく破損により放射性物質が環境中に放出され、拡散した。原子炉内では、ウラン系列の核反応により、さまざまな放射性核種が生成していた。セシウム134、セシウム137、ヨウ素131、クリプトン85、ストロンチウム90などが主な核種である。水素爆発は、核燃料である酸化ウランペレットを収納していたジルコニウムと冷却水が反応して生じた水素によるものといわれている。これらのことから、原子炉建屋から飛び出した時、放射性セシウムは、ヨウ化セシウムや水酸化セシウムの化学種であったと考えられるが、放射性物質の質量はごく微量なので、化学形の特定はあまり意味をなさない。

上空で放射性プルーム（雲）が形成されるのであるが、大気エアロゾル中の化学成分中、硫酸イオンSO_4^{2-}とアンモニウムイオンNH_4^+が放射性セシウムの移動に大きな寄与をしたものと思われる。大気エアロゾル粒子には土壌や海水由来の化学種も多いのであるが、上空で放射性セシウムと共存していたのは硫酸イオンとアンモニウムイオンだったのである。上空を浮遊している段階では、放射性セシウムは、硫酸セシウムアンモニウム NH_4CsSO_4という化学形をとり、水蒸気の微粒子に吸着して、直径0.5～0.7μm程度の大きさのエアロゾル分散質を形成していたと推定される。硫酸ミストが関与した可能性もあるが、上空では放射性セシウムはまだ浮遊体プルーム中にあり、固定態としては安定していなかったと考えられる。

風に乗って流された放射性プルームはいずれ降下する。地上付近で土ほこり成分の粘土鉱物と結合することも考えられるが、大半は土壌表面に沈着したであろう。草木は常に大気エアロゾルにさらされているので、表面には粘土鉱物の薄い層が存在する。とくに2：1型層状ケイ酸塩鉱物はその結晶構造の隙間（キャビティ）にセシウムイオン（Cs^+）を強く吸着する。この結合力は強固で、Cs^+は簡単には脱離しない。いったん固着した放射性セシウムは、雨水によっても流出せず、下方へも移動しない。セシウムの親石元素（親酸素元素）としての特徴から、地下深くに分布することはなく、表面から5cmまでの表層部分に留まっている。土壌を耕していないところでは数十年たっても表層数cmに留まっているのである。放射性セシウムが付着した落ち葉片を物理的に粉砕した懸濁液中でも、セシウムイオンは落ち葉片表面の粘土鉱物に固着したままであるから、遊離イオンとして溶出しない。遊離イオンとしか結合しないプルシアンブルーなどの錯体を用いた除染が一定の効果をもたらしてはきたが、まだ大半の放射性セシウムが粘土鉱物に吸着している事実を重視すべきである。土壌汚染への現実的対策として、土壌の上下をひっくり返す「反転耕」や、攪拌によって浮上した細かい粘土をオーバーフローさせる「までい工法」が実施されている地域もある。

5・3　生物学的除染の試み

植物は、根から有機酸を分泌して土壌中の金属元素を溶出し、通導組織（導管、仮導管、篩管）によって運び上げると考えられている。たとえば、イネ科植物の根は、鉄の運搬体として、ムギネ酸という有機酸を分泌することが知られている。ムギネ酸は、土壌中の難溶性Fe(Ⅲ)を溶解・キレート化して吸収させる働きをするもので、ファイトシデロフォア（phytosiderophores）とも呼ばれている。植物の根から分泌される機能性有機酸には、ほかに、クエン酸、ピシジン酸、リンゴ酸、シュウ酸、マロン酸などがある。

埼玉大学のグラウンドの土を用いて行った有機酸によるセシウム溶出実験の結果を述べる。グラウンドの土を乾燥後、セシウムイオン標準溶液に1週間浸した。こうして得られたセシウム吸着土壌試料をカラム管に詰め、有機酸水溶液による抽出を行った。溶出液中のセシウムイオン濃度は、ICP発光分析によって測定した。0.01Nの有機酸水溶液によるCs^+溶出量の測定結果を表5に示す。グラウンド土 1g はセシウムを7.8 mg吸着するので、これから移行率を計算した。0.1N溶液を用いた実験も行ったが、すべての有機酸試料について、0.01N溶液の方が大きな値を示した。最適pHが存在するためであろう。

表５　有機酸によるセシウムの溶出
（乾燥土壌 1g あたり）

有機酸	化学式	セシウム溶出量(mg)	移行率（%）
クエン酸	$C_5H_4(OH)(COOH)_3$	3.7	47
シュウ酸	$(COOH)_2$	4.5	58
リンゴ酸	$C_2H_3(OH)(COOH)_2$	4.8	62
マロン酸	$CH_2(COOH)_2$	4.9	63
酒石酸	$C_2H_2(OH)_2(COOH)_2$	4.9	63

化学的除染の調査からは、粘土鉱物に吸着されたセシウムは有機酸では抽出されにくいと考えられる。土壌有機成分である腐植物質もセシウム吸着能を持っているので、表５中に示されたセシウム移行率の値は、主として土壌中に30％程度含まれる有機成分の寄与によるものと推定される。粘土鉱物に吸着したセシウムがシュウ酸によって溶出したとする報告もあり、今後の検討が待たれる。一方、セシウムを吸着させた土壌を用いた植物栽培実験も試みたが、検体数がわずかであったため、有意な結果は得られなかった。しかし、数回の実験において、ヒマワリの除染効果はほとんど認められなかった。

図１の放射能汚染マップおよび山間部における放射線量測定の結果からも、森林地帯の土壌には放射性セシウムが固着していて、放射線を出し続けていることが明らかである。植物による放射性セシウムの吸収除染の取り組みは非常に重要であるが、有効な策に達していないのが現状である。

放射能（ベクレル/kg）の値の高い植物体は、その生育場所の放射能の指標になる。また、放射性セシウムの吸着量が大きいことは、除染機能が期待できるということでもある。森林に生えるキノコが森林の放射能汚染の指標として注目されている。放射性セシウムを蓄積したキノコが埼玉県秩父市などで発見されている。腐生菌（腐朽菌）と呼ばれ、落ち葉や枯草を分解して成長するキノコがセシウムを吸収する性質を持つ。生きた木の根に寄生するマツタケやシメジのような菌根菌キノコはセシウムを吸収しない。キノコが放射性セシウムを効率よく集めるのであれば、汚染土壌除染の主役になる可能性もある。自然の力を借りた除染方法にも検討の余地が大いにある。

６　トリチウムによる被曝問題について

トリチウム（三重水素）^3Hは水素Hの同位体で質量数が3の水素原子であり、化学的には軽水素^1Hと全く同じであるので、水H_2O中に微量に含まれた場合に、他の放射性物質のように化学的な方法で大量に取り除くことは現時点では難しい。福島原発事故による汚染水処理ではALPSという処理装置が使われ、放射能の多くが取り除かれている。ALPSはトリチウム以外の放射性物質を除去できるといわれている。ALPSで処理された汚染水は、現在、福島第一原発敷地内のタンクに保管されているが、今後タンクを設置する土地が確保できなくなると予想されている。

トリチウムは、以下のようにベータ崩壊をして β 線を放出し、半減期12年で^3Heに変化する。

$$^{3}H \rightarrow {}^{3}He + e^{-} + \bar{\nu}_{e}$$

この β 線（高速の電子 e^{-}）はエネルギーが低く、皮膚は貫通しないため外部被曝は無視することができるが、体内に取り込んだ場合の内部被曝に対しては考慮する必要がある。水の成分として経口摂取した場合には、生物的半減期は10日ほどであるが、有機物の成分として結合したトリチウムは排泄が遅く、30～45日と比較的長く体内に滞留することになる。つまり、低線量であっても、長期間にわたって被曝することになる。今後、問題になるのは、この有機物として取り込まれたトリチウムによる内部被曝であろう。

2014年10月9日に、福島原発敷地内の地下水をモニタリングする井戸から、1L当たり14万ベクレルに及ぶ、原発事故以来最大の値のトリチウムが検出された。また、次週の2014年10月13日には、放射性セシウムも過去最高値の1L当たり25万ベクレルを観測した。「台風による大雨によって地下水位が上昇（トレンチから周辺に漏れた）し、過去の汚染水などに触れて、高い濃度が検出された」という理由もあるかもしれないが、溶融した原子炉から漏れ出ていることも否定できないだろう。廃炉になった原子炉を冷却するのに使われている冷却水の中にもトリチウムは大量に含まれていて、廃炉になった現在でも残存したままであるといえる。現時点でも、トリチウムを大量に除染処理する方法は確立していないので、今後、汚染されていない水で薄め、モニタリングしながら海に放流される可能性が高い。そうなった後では、環境中へ拡散したトリチウムが、水としてだけでなく、有機物に結合した形で拡散する影響が、より問題になってくると考えられる。食品の放射線基準となっているセシウム（ほかにストロンチウム、プルトニウム、ルテニウム）だけでなく、トリチウムも食物の放射線基準に入れる必要がでてくる可能性があると考えられる。

トリチウムなど、セシウム以外の放射能に対するモニタリングを強化することを通して、トリチウムによる内部被曝が問題となる量ではないと分かるかもしれない。また、汚染水処理で取り除くことができないことを逆に利用すれば、汚染水漏洩の経路を特定することに役立てることができよう。モニタリング対象をセシウムだけでなく、ストロンチウムやトリチウムにまで広げ、セシウム対ストロンチウム比、セシウム対トリチウム比を測定することで、汚染水漏洩の経路を特定することや漏洩総量の把握をすることに役立てる可能性が指摘されている。

以上のように考えると、空間放射線量や海洋、河川の放射能を、セシウム以外にも広げてモニタリングすることは、空間放射線被曝そのものに注意する情報としてミニホットスポットの存在を認識するなど直接の放射線被曝を低減するだけでなく、放射性物質の漏洩経路の特定にもつながる。このことは、無駄な除染作業を減らして、より根本的な除染方法を確立することや、放射性物質漏えいを防ぐための対処方法を確立することにつながる。また、さらなる漏洩を防ぐことになり、敷いては、われわれの放射線被曝を最小限に抑えることにつながるであろう。

謝辞

ICP発光分光分析の実施にあたり、埼玉大学分析支援センターの藤原隆司准教授には多大な協力をいただいた。また、生物学的除染実験では、埼玉大学理学部分子生物学科学生中村麻由子氏にお世話をおかけした。ここに感謝申し上げる。

参考・引用文献

青山道夫（2014）「東京電力福島第一原子力発電所事故に由来する汚染水問題を考える」科学 84(8), 856-865, 岩波書店.

足立泰久，岩田進午（2003）.「土のコロイド現象」学会出版センター

上澤千尋（2013）,「福島第一原発のトリチウム汚染水」科学 83(5), 504-507, 岩波書店.

Kaneyasu, N., Ohashi, H., Suzuki, F., Okuda, t., & Ikemori, F. (2012). : Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident. Environ.Sci. Technol., 46, 5720-5726

高度情報科学技術研究機構,（2000）,「トリチウムの生物影響」原子力百科事典（ATOMICA）（http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_No=09-02-02-20 2014-10-20 閲覧）.

小島懋，藤本弘，虎谷博一，太田襄二（1980）．2：1 型粘土鉱物に固定されたセシウムの植物による吸収. 日本土壌肥料学雑誌　第 51 巻　第 1 号

中西友子（2013）.「土壌汚染」ＮＨＫブックス［1208］.

農林水産省（2013）.「農地除染対策実証事業の結果」

東京電力（2014）,「福島第一原子力発電所における港湾内海水のトリチウム測定結果について（続報 114）」（http://www.tepco.co.jp/cc/press/2014/1242802_5851.html 2014-10-24 閲覧）.

山口紀子ら（2012）．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．農業環境技術研究所報告　第 31 号

山田國廣（2012）.「放射能除染の原理とマニュアル」藤原書店