

常緑針葉樹の葉に含まれる放射性セシウムと その溶出特性に関する検討

Research on the Content of Radioactive Cesium in the Evergreen Leaves Contaminated
with the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident and Its Release Property

原田 正光

福島工業高等専門学校建設環境工学科

Masamitsu Harada

Fukushima National College of Technology, Department of Civil Engineering

(2013年9月17日受理)

As for decontamination of the forest in Fukushima prefecture, with the radioactive material emitted due to the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident, the prospect does not yet stand. In order to clarify the feature of the radioactive contamination in the forest and to use for the measures against decontamination of the forest and the downstream of its basin, the radioactive cesium concentration contained in the leaves for a deciduous tree and evergreens was measured. Moreover, the release amount of radioactive cesium from the tree leaves and the amount of radioactive cesium contained in lignin and cellulose of the tree leaves were investigated.

Key words: radioactive cesium contamination, evergreen leaves, ^{137}Cs content, release property

1. はじめに

2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故は、多量の放射性物質を広域に放出し、福島県を中心としたエリアの放射能汚染は深刻なものとなっている。現在、汚染地域では居住区域とそれに隣接する森林の除染は進められているが、県土面積の7割以上を占める森林の除染は難しく、ほとんど手付かずの状態のままである。2012年9月に環境省の環境回復検討会が取りまとめた森林除染に対する考え方¹⁾では、森林の除染方法は林床の落葉落枝等、表面リター層の除去が効果的であるとして、林縁から20m程度を目安に住居等近隣の森林を優先的に実施することとしている。しかしながら、この方法では森林樹木の栄養源である土壌の養分が減少するほか、放射性物質によって汚染された大量の廃棄物が発生する課題が残り、森林域そのものの空間線量率の低下につながる効果的な対策が望まれている。

原発事故当時、季節的に落葉樹は葉を展開していなかったため葉への放射性物質の付着はほとんど

無かったが、樹木の幹や枝などには直接および降雨などによって放射性物質の付着が生じたと考えられる²⁾。一方、常緑樹は、事故当時葉を付けていたこともあり、汚染された降雨などとともに放射性物質が直接葉の表面に付着したものと考えられる。また、Calmonらは、森林生態系にインプットされた放射性物質による樹木の汚染は葉への沈着および葉面吸収によって起こりその後樹木内で各部位に移行することを報告している³⁾。さらに、樹木に吸収された放射性セシウムの一部は、落葉落枝により森林土壌へと移行し、再び樹木の根から吸収されて、植物体内に分配される。一方、雨水などによる森林リターそのものの流出やリターからの放射性物質の溶出も起こると考えられ、下流域における二次汚染の可能性が懸念されている。

また、樹木の幹や枝などの木質部は、セルロースやリグニンといった有機物で構成されている。セルロースは主に細胞壁の主要成分として存在し樹木を支える役割を果たしており、リグニンは特に細胞間に高濃度で存在し、細胞壁同士を結合させる役割

を果たしている⁴⁾。このリグニンが細胞壁中に蓄積していく現象が木質化と呼ばれ、木質化によって植物の強度は増加すると考えられているが、これらの物質は微生物分解が難しいことから、木質成分であるリグニンやセルロースに放射性物質が含まれる場合、容易に溶液側には出てこない可能性がある。現在、環境中で問題となっている放射性セシウムが樹木葉のリグニンやセルロースにどの程度含まれており、その溶出の挙動はどのようになっているか検討した例はない。

そこで、本研究では森林域における放射能汚染の特徴を明らかにして除染対策や下流域の二次汚染対策に役立てるため、落葉樹および常緑樹を対象として葉に含まれる放射性セシウム濃度を調査した。また、樹木葉からの放射性セシウムの溶出特性の把握や樹木葉中のリグニンやセルロースに含まれる放射性セシウムの定量を行った。なお、本論文では半減期が30年と長い放射性セシウム137(以下Cs137と記す)を用いて検討を行うことにした。

2. 調査方法

2.1 樹木葉のCs137濃度の測定

(1) フラワーセンターにおける樹木葉の採取

樹木葉の試料は、いわき市フラワーセンターにおいて2012年8月10日に採取した。この調査フィールドは、東京電力福島第一原子力発電所から南南西に約38km離れた場所にあり、常緑樹や広葉樹など多様な植物が自生している。採取はフラワーセンター管理棟東側に隣接した南北約100m、東西約50mの小規模なエリア内で実施した。

調査対象とした樹木は、落葉広葉樹のイロハカエデ、ソメイヨシノ、クヌギ、コナラ、ホウノキの5種、常緑広葉樹のヤブツバキ、スダジイ、ウラジロガシ、モチノキの4種、針葉樹としてカヤ、マツ、ヒノキ、スギの4種とした。なお、これら常緑樹のうちマツ、ヒノキ、スギ、スダジイについては、葉が展開した時期ごとに2010年、2011年、2012年の3種類に分類しCs137濃度を測定した。

(2) 分析試料の作成

落葉広葉樹は葉のみを現地にて採取し、実験室内で1週間自然乾燥を行った。常緑広葉樹と針葉樹は現地にて枝ごと採取し、実験室内で自然乾燥させた

後、枝から葉を落とした。葉は、葉身方向に約1cm幅で切断する細片化処理を行い、分析試料とした。

(3) Cs137濃度の測定

試料は、700mLマリネリ容器に充填し、Techno AP社製Bequerel monitor TN100B-15を用いて測定時間120分(検出限界35Bq/kg)で放射性セシウム濃度を測定した。試料には若干の水分を含むので、得られた湿潤重量あたりのCs137濃度を試料の含水率を測定して乾燥重量換算⁵⁾を行った。

2.2 樹木葉からのCs137溶出試験

(1) 実験試料の採取と調整

溶出試験では、樹木葉中に存在量が多かった常緑針葉樹のマツ、スギ、ヒノキを用いた。いわき市フラワーセンターにおいて2012年11月27日に採取したマツ、ヒノキ、スギの枝から2010年に展開した葉を切り落とした。一方、スギの落葉は落枝から葉を切り落とした。これらの葉を自然乾燥させた後、同様の細片化処理を行った。

これとは別に、福島県北塩原村毘沙門沼北岸の松林でも、2012年11月30日にマツの落葉を採取することができたので、溶出試験用の試料として用いることにした。

(2) 溶出試験

Cs137濃度を測定した樹木葉の試料約100gを不織ネットに入れ、2Lビーカー内で1L水道水に20日間浸漬させた。実験開始後、5日おきに浸漬水を採取して放射性セシウム濃度を測定した。なお、測定後の浸漬水は2Lビーカーに戻し実験を継続した。20日間の浸漬後は、試料を乾燥させてCs137濃度を測定した。また、毘沙門沼北岸のマツ落葉を用いた溶出試験では期間を130日程度まで延長して実施した。

2.3 木質成分中のCs137存在割合

前節2-2のマツ、ヒノキ、スギの葉およびスギの落葉を用いた溶出試験が終了した後、常圧酢酸バルブ化法⁶⁾を参考にして試料中のリグニンの抽出を行った。

分析では、2Lビーカーに放射性セシウム濃度を測定した試料を入れて氷酢酸約500mL、1M硫酸約30mL加えて1週間放置し試料に酢酸を十分に染み込ませた。その後沸騰水浴中で約6時間加温した後、2M水酸化ナトリウム溶液を約40mL加え混合した。この後ビーカー内の固体を十分に洗浄した後乾燥

させてCs137濃度を測定し、これをセルロース中のCs137濃度とした。

一方、リグニン中のCs137濃度は、抽出液の全量回収が難しいために、抽出前の試料中のCs137存在量とセルロース中のCs137存在量を用いて算出することにした。

3. 結果および考察

3.1 樹木葉のCs137濃度

(1)樹種ごとのCs137濃度

いわき市フラワーセンターにおいて、2012年8月10日に採取した樹木葉のCs137濃度をFig.1に示す。

フラワーセンター内でも場所によって地形や土壌環境の影響の違いで汚染濃度は異なると考えられる。しかし、今回の調査では場所による差を小さくするために、比較的狭く、地形や土壌環境の違いが少ないと考えられるエリアに生えている針葉樹や広葉樹を選定した。落葉広葉樹のイロハカエデ、ソメイヨシノ、クヌギ、コナラ、ホウノキはいずれも検出限界(35Bq/kg)未満であった。一方、常緑広葉樹のスダジイ、モチノキ、針葉樹のカヤ、マツ、ヒノキ、スギについては2010年または2011年に展開した葉に含まれるCs137濃度を示しているが、いずれの試料からもCs137の検出が見られた。

また、同じ常緑樹でも針葉樹と広葉樹では汚染状

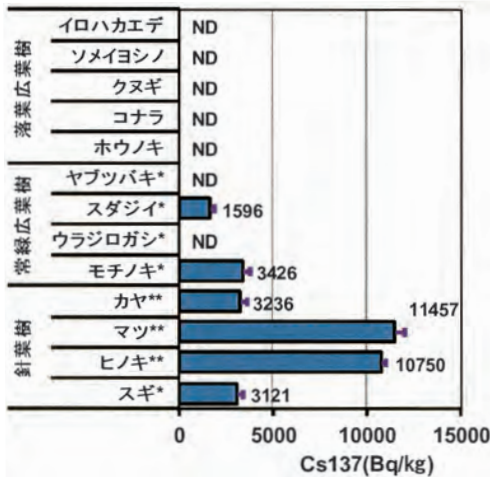


Fig.1 ¹³⁷Cs concentration in the tree leaves sampled in 2012 in Iwaki Flower center.

*and ** represent the developing year of 2011 and 2010, respectively. ¹³⁷Cs concentration is measured by Becquerel monitor, TN100B-15 (measuring time of 120 minutes, detection limit of 35Bq/kg)

況に差が見られ、広葉樹のスダジイやモチノキに比べて、針葉樹のマツやヒノキのCs137濃度が高い傾向を示していた。これは、樹木による降雨遮断効果を研究した報告⁷⁾でも、広葉樹よりも針葉樹の降雨遮断効果が高いことが指摘されており、針葉樹の方が原発事故後に飛散したCs137を多く受容してしまっただけではないかと考えられる。また、針葉樹の中でもマツやヒノキはスギに比べてCs137濃度が高い傾向を示した。マツは気孔の外側に外呼吸孔を有し、ヒノキは葉の裏面に白くY字型の気孔帯を有しているなど、いずれも大気中のCs137を含む浮遊物質を捕捉しやすい葉の形状をしており、これによりCs137の付着や吸収が起こりやすかったことが影響していたのではないかと考えられる。

(2)葉の展開年ごとのCs137濃度

フラワーセンターにおいて2012年8月10日に採取した常緑樹スダジイ、マツ、ヒノキ、スギの2010年から2012年の展開葉中のCs137濃度をFig.2に示す。

原発事故1年後の2012年に展開したマツとヒノキの葉は検出限界以下であったのに対して、事故前年の2010年に展開した葉からは多量のCs137が検出された。経年的には葉に含まれるCs137濃度は減少する傾向が見られていることや原発事故前に展開していた葉に放射性物質が多く付着した状況がうかがえる。また、事故直後の2011年に展開した葉で

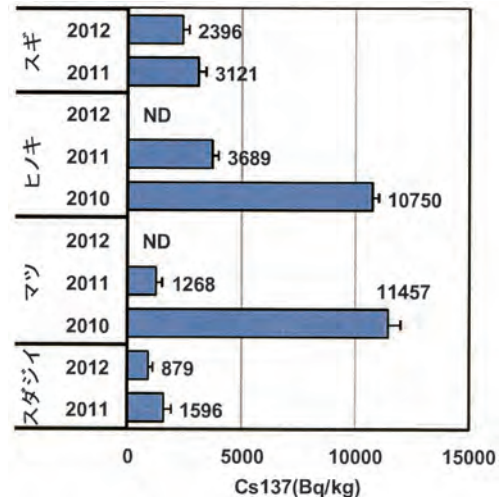


Fig.2 ¹³⁷Cs concentration in the leaves developed in 2010 to 2012.

¹³⁷Cs concentration is measured by Becquerel monitor, TN100B-15 (measuring time of 120 minutes, detection limit of 35Bq/kg)

あってもCs137が検出されており、付着だけでなく吸収による影響もうかがえる。しかし、これらの葉に存在するCs137が経根吸収によるものであるか、葉面吸収および枝幹吸収したCs137の転流などによるものであるか等については不明な点も多い。

常緑樹の葉は、樹木が置かれている環境により年数に違いは見られるが、数年で落葉すると言われている。事故当時に展開して放射能汚染を受けた葉の落葉が今後Cs137のリター層および下層土壌への移行という問題を残しており、森林域におけるCs137の今後の動態を把握するうえで、落葉堆積物中の濃度に加えて新たに展開する葉のCs137濃度の継続的な調査が必要であると考えられる。

3.2 針葉樹の葉からのCs137の溶出

植物体を水中に浸漬するとすぐに溶解性有機物やアンモニウム態窒素やリン酸態リンなどの栄養塩成分の溶液側への移動現象⁸⁾が見られるが、本研究においてもこの溶液側への移動を溶出とした。植物体からの栄養塩類の溶出では、可溶化、好気性分解や腐敗を通して、植物体中の栄養塩類濃度が次第に減少する。本研究で対象としている放射性セシウムはカリウムと類似の性質をもつことから、栄養塩類と同様の挙動を示すのではないかと考えた。

Fig.3に針葉樹の葉を用いた溶出試験における水中のCs137濃度の経時変化を示す。樹木葉を水道水に浸漬すると、その直後から水中へのCs137の溶出が起こることが示された。これは枝付き葉だけでなくスギ落葉でも同様であった。また、浸漬経過日数が増加につれて次第に溶出する割合が減少する傾向が見られた。

Fig.4にフラワーセンターで採取した試料を用いた溶出試験におけるCs137量の変化を示す。試験前の試料中のCs137存在量に対する水中への溶出量の割合を溶出率とすると、マツで32%、スギで24%、ヒノキで22%であり、マツがスギやヒノキに比べてやや高めの値を示した。溶出試験に用いた試料に関してマツは葉のみにすることができたが、スギやヒノキは枝部分が試料中に含まれてしまった。したがって、マツの場合は純粋に葉からの溶出であるのに対して、スギやヒノキは枝からの溶出も含まれており、枝からの溶出が葉よりも起こりにくいことが反映されたためではないかと考えられる。

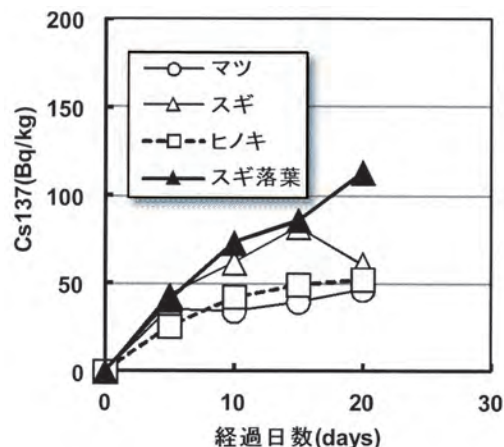


Fig.3 ¹³⁷Cs concentration in the release test using the leaf of the needle-leaf tree.

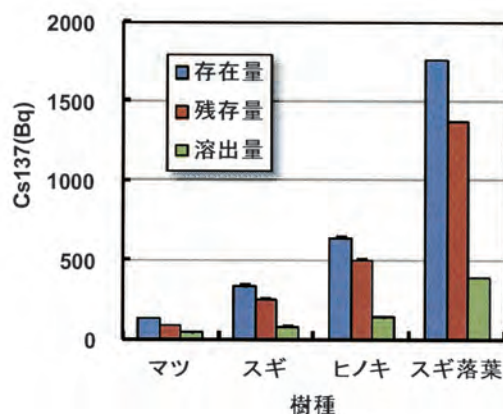


Fig.4 The amount of ¹³⁷Cs contained and the release amount from needle leaves before and after the release test.

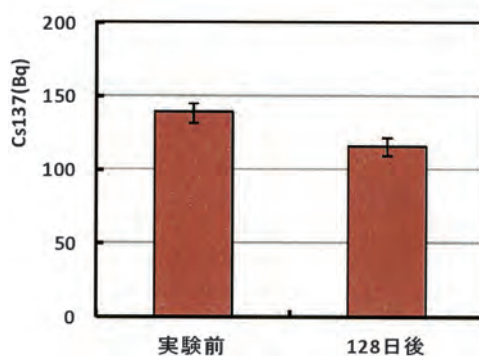


Fig.5 The amount of ¹³⁷Cs contained before and after the release test using the pine fallen leaves sampled from the northern coast of Bishyamom-numa pond.

また、マツの葉を浸漬すると、溶液側に黒い懸濁物質が顕著に発生していた。これはマツの外呼吸孔

に捕捉された懸濁粒子そのものが水中に出てきたことを示すものであり、この懸濁粒子に成分に含まれていたCs137の脱着が生じたことも溶液側の濃度増加につながったのではないかと考えられる。

フラワーセンターのスギについて枝付き葉と落葉では試験前のCs137濃度に大きな違いがあったが、溶出率にあまり差はみられなかった。また、Fig.5に毘沙門沼北岸から採取したマツ落葉を用いた溶出試験におけるCs137量の変化を示す。ここで用いたマツ落葉中のCs137濃度は2240Bq/kgであり、フラワーセンターの枝付きマツ葉のCs137濃度130Bq/kgであった。しかし、Fig.4から得られたフラワーセンターの枝付きのマツ葉からの溶出率が32%であったのに対して、毘沙門沼北岸のマツ落葉からの溶出率は約17%であった。後者の試験では浸漬期間が128日と前者の30日に比べて長いにもかかわらず低い溶出率を示した。枝付き葉と落葉で溶出率に差が生じる要因として、落葉堆積後の経過日数があるのではないかと考えられる。フラワーセンターにおけるスギ落葉と異なり、毘沙門沼北岸のマツ落葉は、落下後堆積して風雨等にさらされた状態で存在していたものであり、Cs137の溶出がある程度進んだものであり、その後の溶出が起こりにくかったことが影響したためではないかと考えられる。

3.3 木質成分中のCs137存在割合

Fig.6に常緑樹の葉に含まれる溶解成分、リグニンおよびセルロースの重量割合とCs137存在割合を示す。図中には試験に用いた試料そのものの重量およびCs137量を示したが、試料によって最初に含まれていたCs137量が異なっていた。ここでは、一定期間の水中浸漬および木質成分の抽出によって、最初の重量からの減量割合や、その際に試料中に含まれていたCs137の減量割合、さらには最終的に残存する固体の重量やその中に含まれるCs137量の割合を示すものである。

ヒノキとスギの葉ではセルロース中にCs137の半分以上が存在していた。一方、マツの葉ではリグニン中に占めるCs137の割合がスギやヒノキに比べて高いなど、樹種による違いが見られた。スギやヒノキの葉の試料はマツ葉と異なり枝の部分も含まれており、セルロースの重量割合が高いことが示されたので、これら木質成分の存在割合の違いが反映さ

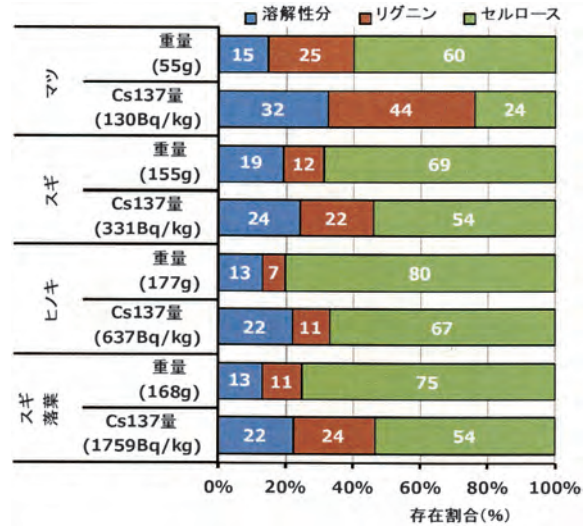


Fig.6 The rate of weight and ¹³⁷Cs contained in dissolved component, lignin and cellulose in the leaves of the needle-leaf trees.

れたのではないかと考えられる。

また、スギの枝付き葉と落葉については、Cs137存在量がかかなり異なるにもかかわらず、セルロース中に占めるCs137の割合はほぼ同程度であった。リグニンやセルロース等の木質成分は容易には分解しないので、これらに含まれるCs137の溶出も起こりにくいと考えられる。落葉後に降雨にさらされる履歴の違いで溶解成分として減少する割合に差が生じると、相対的に木質成分中のCs137存在割合に差が生じてくる。したがって、今回採取したスギ落葉は落下後にあまり風化を受けていなかったのではないかと考えられる。

樹木葉の落下堆積後に降雨などによりどの程度溶出が起こるのか、あるいは別な機構によるCs137の減少が起こるのか、などは重要な課題である。リグニンやセルロースなどの木質成分の分解が可能な菌類から濃度の高いCs137が検出されることも多数報告されており⁹⁾¹⁰⁾、これらが森林域におけるCs137の動態におよぼす影響なども注目を集めている。落葉堆積物中のCs137の存在量やその溶出機構などは、今後さらに検討を行っていく必要があると考えられる。

4. まとめ

本研究ではまず森林地域の放射能汚染の実態を明らかにするため、主な落葉樹および常緑樹の葉に

含まれる放射性セシウム濃度の実態調査を行った。また、森林域に存在する放射性セシウムの溶出による移動に関して、基礎的知見を得るため樹木葉からの放射性セシウムの溶出試験を行った。

本研究から得られた知見をまとめると以下のようになる。

- (1) 広葉樹に比べて、常緑広葉樹や針葉樹の方が葉に含まれるCs137濃度が高く、さらに葉の形状が複雑な針葉樹の葉が高い濃度を示す傾向が見られた。
- (2) 事故前に展開した常緑樹の葉はCs137濃度が高いが、経年的に葉に含まれる濃度が低下する傾向が見られた。
- (3) 常緑樹の葉に含まれるCs137の一部は水中へ溶出するが、葉中の木質成分に含まれるCs137は容易には溶出せずに、長期間葉に残存する傾向にあることが示された。
- (4) 針葉樹の葉に含まれるCs137は、葉中のリグニンやセルロースに多く含まれることが示された。これら木質成分の分解を受けない環境下では、樹木葉からCs137の溶出が少ない可能性が示唆された。

謝 辞

いわき市フラワーセンターにおける試料の採取には、センター顧問の古内栄一先生ならびにセンター関係諸氏のご指導やご協力をいただいた。また、データの解析では本校建設環境工学科卒業生（現、いわき市水道局勤務）の遠藤拓哉氏のご協力をいただいた。御世話になった関係各位に記して謝意を表する。

文 献

- 1) 環境省報道発表(2012年9月25日)今後の森林除染の在り方に関する当面の整理について。
- 2) 文部科学省報道発表(2011年9月14日)文部科学省による放射性物質の分布状況等に関する調査研究（森林内における放射性物質の移行調査）の結果について。
- 3) Calmon, P., Y. Thiry, G. Zibold, A. Rantavaara and S. Fesenko (2009) a review, *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 757-766.
- 4) 菊沢喜八郎(1999)森林の生態, 共立出版, 39-41.
- 5) いわき地域環境科学会編(2011)永崎海岸浄化プロジェクト2010報告書
- 6) 佐野嘉拓, 山村孝次, 浦木康光, 笹谷宜志, 千葉茂(1992)硫酸を含む酢酸水溶液による常圧バルブ化, *北海道大学農学部演習林研究報告*, **49**(2), 277-287.
- 7) 堀内顕哉, 山田 正(2003)樹木の降雨遮断効果が洪水流出現象に及ぼす影響, 第33回関東支部技術研究発表会講演概要集, **30**(2), 43-44.
- 8) 原田正光(2006)ヨシの枯死体および生体からの栄養塩類の溶出, *福島工業高等専門学校研究紀要*, **46**, 57-60.
- 9) Tsukuda, H., H. Shibata, and H. Sugiyama (1998) Transfer of radiocesium and stable cesium from substrate to mushrooms in a pine forest in Rokkasho-mura, Aomori, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, **39**, 149-160.
- 10) Steiner, M., I. Linkov and S. Yoshida (2002) The role of fungi in the transfer and cycling of radionuclides in forest ecosystems. *Journal of Environmental radioactivity*, **58**, 217-241.