

松葉を指標とした20年間における 石川県の放射性核種濃度の変遷と 移行経路に関する研究

小森 正樹¹⁾, 中村 嘉利²⁾, 内田 賢吾³⁾, 泉 善博¹⁾

¹⁾ 石川県保健環境センター (〒920-1154 石川県金沢市太陽が丘1-11)

²⁾ 金沢大学工学部 (〒920-8667 石川県金沢市小立野2-40)

³⁾ 石川県環境政策課 (〒920-8580 石川県金沢市広坂2丁目1-1)

[平成14年5月7日受理]

Study on Changes of Radionuclides Concentration in Pine Needles on Pref. Ishikawa and Its Transfer Process during Two Decades

Masaki KOMORI¹⁾, Yoshitoshi NAKAMURA²⁾,
Kengo UCHIDA³⁾ and Yoshihiro IZUMI¹⁾

¹⁾ Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science
(1-11 Taiyougaoka, Kanazawa, Ishikawa 920-1154)

²⁾ Faculty of Engineering, Kanazawa University
(2-40 Kodatsuno, Kanazawa, Ishikawa 920-8667)

³⁾ Environmental Policy Division, Ishikawa Prefectural Government
(2-1-1 Hirosaka, Kanazawa, Ishikawa 920-8580)

[Received May 7, 2002]

Summary

Changes of Radionuclides concentrations, i.e., ¹³⁷Cs, ⁷Be and ⁴⁰K, in pine needles were investigated in some sampling stations in Pref. Ishikawa during two decades. From 1979 to 1989, artificial nuclide ¹³⁷Cs had been detected in pine needles, soil and air-suspended particles because of Chinese nuclear weapon test (1979) and Chernobyl's nuclear power plant accident (1986). But since 1990, ¹³⁷Cs was hardly detected in pine needles except a particular area where ¹³⁷Cs accumulated in soil, while natural nuclides, ⁷Be and ⁴⁰K, were detected in pine needles and soil.

It was found that radionuclides transferred into pine needles by deposition on leaf and adsorption from root. It seems that in early decade both deposition and adsorption dominated as a transfer process in pine needles, but in a later decade, only adsorption dominated.

Key words: pine needle, radionuclide, deposition, adsorption, transfer factor

1. はじめに

松葉を用いる放射性核種の濃度レベル把握は、松が常緑樹でありおよそ2年間葉が木に常在していること、葉上に空気中の汚染質が沈着しやすく、しかも雨風によって簡単に汚染質が流出しにくい性質を利用したものであり、これまで原子力施設周辺のモニタリング用³⁾として広く用いられてきた実績がある。松葉への移行経路については、原子力施設の放出塔から放出された放射性核種が沈着し、土壌へ降下したものが吸収されることが考えられる。大気中での沈着については、大気汚染質の植物被害の原因解明や拡散現象の検証について定量的に把握する必要から、葉上への沈着量の測定や沈着作用について検討された¹⁻³⁾。しかし、その多くは短時間での沈着現象についての検討である。環境中での物質移行を検討する場合、対象とする物質の移行量が微量であることや移行経路が複数存在してそれぞれの移行量を明確に分離することが出来ない他、検出する量の確保が容易でなく長期間にわたっての観測がしばしば必要とされる。石川県では20年にわたり放射性核種の濃度レベル把握の目的で松葉を利用してきた。しかしながら、現在、石川県においては原子力施設からの放出はほとんど無い。しかも1980年代以前に経験した核実験やチェルノブイル事故による大気中への人工放射性核種の注入は、今日では認められないため、松葉で検出される放射性核種の値について、今後このままで推移するのかまた、その値は何に由来するのかモニタリング評価する必要が生じている。一方、放射性核種の陸域における経路や時間的な変遷、さらに移行係数や沈着係数等の移行過程の検討は重要な課題である。たとえ食に供さない植物を用いる場合でも指標的に取り扱うことにより、食物連鎖における放射性核種の摂取や内部被ばくを評価する上で基礎的知見を提供することができよう。本報は、20年にわたる石川県における松葉中の放射性核種濃度の時間的変化を示しながら、10年ごとの変化からその時々の放射性核種の由来や移行過程について検討した。

2. 方法

調査試料の松葉は、1979年から1999年にかけて、Fig. 1に示す石川県志賀町赤住 (Akasumi) と若葉台 (Wakabadai) の松林で5月に採取して測定した。また、石川県がこの期間公表した松葉、土壌や浮遊じんの測定結果²⁾も参考として用いて検討した。松葉については採取客体としては樹高3から5mの松で半径30mの範囲で数本選定し、生重量として500g~700g採取した。試料は100℃ 1昼夜乾燥し、炭化、灰化(450℃ 24時間)した後、成型した。松葉中の放射性核種のレベルについてはGe半導体検出器で8万秒 γ 線測定し、同型の形状効率、

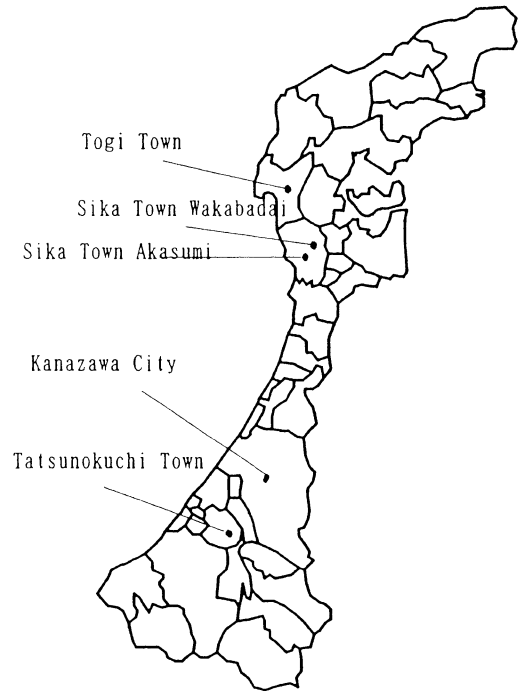


Fig. 1 Sampling point

ガンマ線エネルギー効率の既知のものを標準線源として¹³⁷Cs、⁷Be、⁴⁰Kを定量した³⁾。なお、土壌における検討は0から5cmの表層土壌の測定結果を用い、浮遊じんはハイボリュームエアサンプラーにより大気を2週間連続採取した試料を測定した結果を用いた。

3. 結果と考察

Table 1は20年にわたる松葉中の放射性核種濃度を示す。ここで、本報告での表中の空欄は測定していないことを表す。測定地点は2箇所である。このうち、1箇所は20年通じて測定したが、他の1箇所は新たな調査地点として10年前に設定された場所である。Table 1を見ると1989年までは2地点で人工放射性核種の¹³⁷Csと天然放射性核種の⁷Beと⁴⁰Kが検出されている。それ以降、Wakabadaiは天然放射性核種だけなのに対し、Akasumiは依然人工放射性核種の¹³⁷Csを検出している。また、Fig. 2に同じ20年に及ぶ大気中の放射性核種濃度を測定した結果を示す。Fig. 2では⁴⁰Kは検出されなかったため、表示しなかった。また、¹³⁷Cs濃度が同時に検出された⁷Beに比べて低いため100倍して表示した。1979年からおよそ10年間近くは、連続的ではないものの数年間にわたり¹³⁷Csの検出が散見される。1987年以降は全く検出されない。特に1980年や1986年での大きなピークは核実験とチェルノブイル事故からの影響である⁴⁾。また、

Table 1 Radionuclides concentration of pine needle in Ishikawa Prefecture (unit: Bq/kg-fresh)

Sampling point	Akasumi	Wakabadai	Akasumi	Wakabadai	Akasumi	Wakabadai
Sampling date	¹³⁷ Cs		⁷ Be		⁴⁰ K	
1979.5	1.7±0.1		52±1		61±1	
1983.5	0.51±0.01		37.4±0.4		72±1	
1984.5	0.77±0.01		42.6±0.7		31.1±0.4	
1985.5	0.39±0.02		61.4±0.7		68±1	
1986.5	19.9±0.4		37±1		58±2	
1987.5	1.11±0.03		53.7±0.4		69±1	
1988.5		0.12±0.02		65.1±1.1		67±1
1989.5		0.24±0.02		46.5±0.6		74±1
1990.2	0.34±0.01	0.2>	41.7±0.3	27.3±0.4	66.4±0.5	65.0±0.8
1991.5	0.48±0.01	0.2>	28.8±0.2	16.8±0.3	77.5±0.5	60.1±0.7
1992.3	0.27±0.01	0.2>	48.5±0.3	38.5±0.4	67.7±0.4	76.9±0.7
1993.5	0.53±0.02	0.2>	64.3±0.4	38.7±0.4	90.4±0.7	54.1±0.7
1994.5	0.61±0.01	0.2>	57.7±0.3	46.5±0.4	76.9±0.5	73.7±0.8
1995.5	0.24±0.01	0.2>	69.7±0.4	44.9±0.4	73.3±0.5	65.4±0.7
1996.5	0.21±0.01	0.2>	42.3±0.3	40.5±0.5	74.5±0.5	67.3±0.9
1997.5	0.31±0.01	0.2>	32.7±0.2	30.9±0.4	76.3±0.5	67.8±0.8
1998.5	0.29±0.01	0.2>	37.1±0.3	38.7±0.3	69.4±0.6	59.3±0.8
1999.5	0.43±0.01	0.2>	42.1±0.3	35.6±0.2	70.0±0.5	61.2±0.8

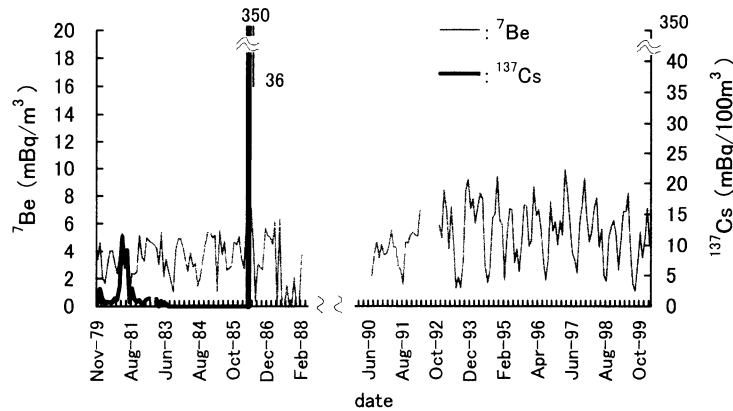


Fig. 2 Change of ⁷Be, ¹³⁷Cs concentration in atmosphere on Ishikawa Prefecture

Table 2にこれまで測定した土壌中の濃度を示した。Table 2を見ると、Akasumiでは1980年の測定開始以降1999年まで¹³⁷Csをはじめいずれの核種も検出されているのに対し、Wakabadaiでは、1990年以降¹³⁷Csは全く検出されない。以上の測定結果から、1) 大気中からは1990年代以降人工放射性核種¹³⁷Csが検出されていないこと。2) 1990年代以降の松葉中に¹³⁷Csが検出されている地点では土壌中にも¹³⁷Csが検出されていること。3) 大気中では核実験やチェルノブイル事故で高い濃度を検出し、松葉でも高い濃度を検出しているが、天然放射性核種の検出状況は人工放射性核種の¹³⁷Csとは大きく異なっていることが分かった。以上のことから、発生要因や起源が

核種ごとに異なることを利用し、20年という長期間での観察から、由来や移行経路の時間的変遷を追跡することが可能であると考えられた。核種はそれぞれの生成由来や化学性によって移行過程や存在状態が異なる。¹³⁷Csは核実験や原子力利用などの人為的事象が無限り、発生が起こらない。一方、⁴⁰Kや⁷Beは天然放射性核種であり、地球上に常在する。⁴⁰Kは岩石や土壌に、⁷Beは成層圏で大気と宇宙線との核反応(物理的半減期53日)にて生成することから大気圏に存在する⁹⁾。局所的には土壌が舞い上がれば土埃の中に⁴⁰Kが存在する。しかし、Fig. 2から浮遊じんではほとんど⁴⁰Kが検出されなかったため、舞い上がりは少なく、その影響は無視しうる。し

たがって、松葉で検出される⁴⁰Kはその供給が大気からではなく、土壌から吸収され葉へ移行したものと考えられる。それぞれ同族である¹³⁷Csと⁴⁰Kの各年ごとの松葉1年葉の移行係数(生一年松葉濃度(Bq/kg)/生育乾燥土壌濃度(Bq/kg))を求めるとTable 3の結果となった。1980, 1986年の¹³⁷Csは、それぞれ、中国核実験, チェルノブイル事故のときの影響が際だったときであるので、土壌へ堆積するより葉上で沈着する割合が高く、濃度比

が高くなっていると考えられた。それら2年の値を除いて平均を求めると、1980年代の移行係数は0.006±0.003であった。人工放射性核種の大気中への供給がほとんど途絶えた1990年代では移行係数は0.03±0.02であり、1980年代の移行係数とは統計上5%有意で差があった。⁴⁰Kの移行係数は土壌中の⁴⁰K濃度が低いWakabadai地域では大きく、反対に濃度が高いAkasumiでは小さい結果となった。同一地域での10数年の結果では、Akasumiで

Table 2 Radionuclides concentration*¹ of soil in Ishikawa Prefecture (unit: Bq/kg-dry)

Sampling point	Akasumi	Wakabadai	Akasumi	Wakabadai	Akasumi	Wakabadai
Sampling year	¹³⁷ Cs		⁷ Be		⁴⁰ K	
1980	33		52		346	
1983	163		2>		122	
1984	121		2>		381	
1985	118		2>		370	
1986	113		2>		377	
1987	117		2>		403	
1990	49	2>	6		406	48
1991	34	2>	5	11	372	53
1992	4		34		267	
1993	22	2>	20	19	352	46
1994	12	2>	16	nd	352	52
1995	14	2>	23	11	365	64
1996	12	2>	24	28	361	61
1997	15	2>	11	nd	354	43
1998	22	2>	7	nd	394	54
1999	19	2>	9	9	365	52

*):The counting error of values in Table2 is less than 9%

Table 3 Transfer factor of ⁴⁰K, ¹³⁷Cs in pine needle (-)

Sampling year	⁴⁰ K		¹³⁷ Cs	
	Akasumi	Wakabadai	Akasumi	Akasumi
1980* ¹	0.18			0.05* ¹
1983	0.21		0.003	
1984	0.12		0.006	
1985	0.18		0.003	
1986* ²	0.15			0.18* ²
1987	0.17		0.009	
ave.(1980~1987)	0.17		0.006	0.11
1990	0.16	1.35	0.007	
1991	0.21	1.13	0.014	
1992	0.25		0.068	
1993	0.26	1.18	0.024	
1994	0.22	1.42	0.051	
1995	0.20	1.02	0.017	
1996	0.21	1.10	0.018	
1997	0.22	1.58	0.021	
1998	0.18	1.10	0.013	
1999	0.19	1.18	0.023	
ave.(1990~1999)	0.21	1.23	0.025	

*1:China's nuclear weapon test

*2:Chernobyl's nuclear power plant accident

いえば0.2, Wakabadaiでは1.2であり、地域における濃度差での違いがあった。このため、移行係数と土壤中の⁴⁰K濃度の関係についてさらに石川県内の他の地域(金沢市, 辰口町, 富来町)で松葉の⁴⁰Kの移行係数を求め、これらの結果を追加して土壤の⁴⁰K濃度と移行係数の関係を求めた(Fig. 3)。Fig. 3は土壤濃度と移行係数とが反比例の関係にあることを示した。一方、1989年以前では、松葉中での¹³⁷Csは大気中から沈着したものと土壤から吸収したとが考えられるため、⁴⁰Kのように簡単に土壤中の濃度と移行係数の関係を検討することができない。そこで、1990年代では浮遊じん中からまったく¹³⁷Csが検出されなくなり大気中からの供給が途絶えたと見られることから、1990年以降の移行は土壤経由と考え、1990年以降で松葉中に検出された¹³⁷Csについて移行係数と土壤中の¹³⁷Csの関係を求めた(Fig. 4)。この結果、⁴⁰Kの場合と同じような傾向が示され、土壤中の¹³⁷Cs濃度と松葉中の¹³⁷Cs濃度は反比例関係にあることがわかった。このような負の相関傾向については、Konshin⁹⁾

が牧草と土壤の¹³⁷Cs濃度との関係でも見出している。⁴⁰Kと¹³⁷Csは同じアルカリ金属であるが、Table 3でのAkasumiにおける例で移行係数のそれぞれの平均値を比較すると⁴⁰Kは約7倍¹³⁷Csより大きい。これは必須元素のカリウムに対しセシウムはそうではないことから、経根吸収に分別が起こることが考えられた。つぎに松葉中の¹³⁷Csの移行係数と土壤の¹³⁷Csの関係から吸収量を算出し、残りを核実験やチェルノブイルの事故時における空気からの移行量として沈着量を推算した。結果をTable 4に示す。1980年代での沈着量/吸収量の大きな値は、中国の核実験の影響とチェルノブイル事故によるものであり、松葉中の¹³⁷Csの大半が沈着によるものであることが分かる。Table 5に松葉の葉表面積の結果を示した。1 kgあたりの葉面積は葉を半円筒と仮定して長さとおさを分別して表面積を求めたものである。この表面積を使い接触期間を春先に急に濃度増加が見られることを考慮して1カ月間と仮定し、同時期での大気浮遊じんの平均値から(1)式に示す移行速度を求めた。

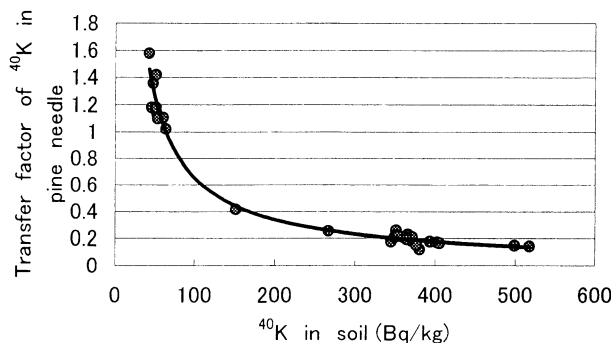


Fig. 3 Relationship between transfer factor of ⁴⁰K in pine needle and soil

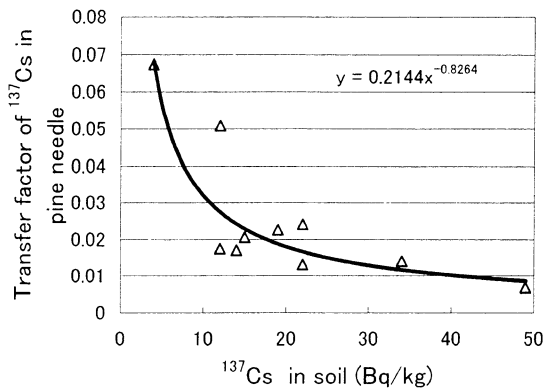


Fig. 4 Relationship between transfer factor of ¹³⁷Cs in pine needle and soil

Table 4 Result of deposition. and adsorption of ¹³⁷Cs in pine needle sampled at Akasumi

Sampling year	¹³⁷ Cs in pine needle(Bq/kg)	¹³⁷ Cs in soil(Bq/kg)	Measured transfer factor	Calculated transfer factor	amount of adsorption ¹³⁷ Cs in pine needle(Bq/kg)	amount of deposition ¹³⁷ Cs in pine needle(Bq/kg)	deposition/adsorption
1980	1.7±0.1	33±2	0.052±0.004	0.0119	0.39	1.31	3.36
1983	0.51±0.01	163±8	0.0031±0.0002	0.0032	0.51	0.00	0.01
1984	0.77±0.01	121±8	0.0064±0.0004	0.0041	0.49	0.29	0.60
1985	0.39±0.02	118±9	0.0033±0.0003	0.0042	0.49	-0.09	-0.19
1986	19.9±0.4	113±9	0.18±0.01	0.0043	0.49	19.42	40.71
1987	1.11±0.03	117±9	0.0095±0.0008	0.0042	0.49	0.63	1.31

Table 5 Surface area of pine needle at Akasumi

run	pieces of pine needle per 1kg	average length of needle(cm)	average wide of pine needle(mm)	area of pine needle(cm ² /kg)
1	13500	6	0.48	43500
2	16700	7	0.53	65000
3	19200	6	0.48	56000
4	21000	5	0.46	50000
5	15000	6	0.50	53100
6	14000	6	0.51	49800
7	20700	6	0.47	56400
8	13800	6	0.49	46000
9	22700	5	0.48	60000
10	20300	6	0.47	55200
average	17700	6	0.49	53500

Table 6 Deposition velocity of ¹³⁷Cs, ⁷Be on pine needle (unit: cm/sec)

year	¹³⁷ Cs	⁷ Be
1980	0.082	0.080
1983	0.003	0.050
1984	0.078	0.094
1985		0.084
1986	0.047	0.037
1987	0.012	0.081
1990		0.055
1991		0.048
1992		0.050
1993		0.064
1994		0.053
1995		0.072
1996		0.054
1997		0.038
1998		0.062
1999		0.044
Ave.	0.045	0.061
S.Dev.	0.030	0.020

移行速度 (cm/sec) = 測定期間当たり単位葉表面積当たりの核種濃度 (Bq/cm²/sec) / 測定期間の平均大気中濃度 (Bq/cm³) (1)

結果を Table 6 に示す。これらの結果について、大気からフィルター効果として通過したときに沈着したとして考えて各媒体で求める Chamberlain の方法による沈着速度⁷⁾と比較してみた。松葉に対する¹³⁷Csの移行速度は平均値0.05 (0.01~0.08) cm/secであり、⁷Beは平均値0.06 (0.04~0.09) cm/secであった。Chamberlainの方法での値^{8,9)}は粘着紙では¹³⁷Csが0.096±0.055cm/sec、砂で0.04±0.019cm/sec、水で0.88±0.063cm/secであり、また全粉塵量に対する降水に対する沈着速度は一般に0.1cm/secと認められている^{10,11)}。本結果は砂と粘着紙との中間の値を示した。⁷Beについては一般に認められた値と比較するとやや小さい。実測が無いため比較できないが、本結果のような長期にわたる実際の野外観測結果から導かれた値は、大きな化学性の違いや物性の相違が無い限りオーダー的に¹³⁷Csと同程度のものではないかと考えられた。なお、⁷Beの吸収については無視した。⁷Beは物理的半減期が短いため土壌蓄積が起りにく

く、たとえ蓄積しても酸化物である¹³⁷Csのため経根吸収系に到らないと考えられるので、検討は行わなかった。このように、松葉から検出される核種について、核種の違いによって移動の仕方が異なること、1990年以前の移行経路が地中からの吸収と外部からの沈着が主だったのが、1990年以降では大気からの供給が途絶える変化によって当然のことながら吸収が主となっていく変化となることが分かった。

4. まとめ

20年間にわたる石川県内での松葉中の核種測定を通じて¹³⁷Cs, ⁷Be, ⁴⁰Kの核種の移行過程について時間を因子として考慮した比較から、これまで検出出来なかった松の葉中の根からの吸収量の推定を可能とした。すなわち、核種の注入量に関する時代ごとの変遷を考慮して、大気系、土壌系における放射性核種濃度について、移行経路や経路の変化を検討した。発生要因が人為的な¹³⁷Csは、1990年以前では核実験やチェルノブイル発電所事故により大気中に注入されたものが土壌に堆積して、それが経根吸収により移行したり、直接松葉に沈着したりした。しかし、1990年以降では大気中からほとんど検出されず土壌で依然として検出されることから、松葉に検出されるものは経根吸収によって移行したものと推定した。また、¹³⁷Csと同じアルカリ金属の⁴⁰Kの吸収は土壌濃度と反比例の関係にあることが分かったが、このことは牧草中の¹³⁷Csと土壌濃度とで示したKonshinの結果と同様であった。この結果を基に濃度ごとの吸収量を類推して算出し、1990年以前の沈着量と吸収量の割合を推定した。また、天然放射性核種の⁷Beについては半減期の関係から大気からの沈着による移行経路だけの検討となり、¹³⁷Csで推定した方法と同様に移行速度を求め、ほぼ、¹³⁷Csと同オーダーであることを示した。

謝 辞

本研究を取りまとめるにあたって、多くの助言を下された金沢大学工学部教授の沢田達郎先生に深謝いたします。

要 約

20年間にわたる石川県における松葉中の放射性核種濃度の時間変化を示しながら、その時々存在した量の由来について検討し、10年ごとの変化から放射性核種の移行過程と外因的要因との関係を検討した。その結果、松葉における天然核種の⁴⁰Kの濃縮係数は土壌濃度と反比

例の関係を示し、¹³⁷Csも同様な傾向を示した。この関係から¹³⁷Cs全量のうち経根吸収分を除いた分を大気からの沈着分として、また⁷Beは短半減期のため検出されるほとんどが大気からの沈着分と考え、それぞれの移行速度を推定して沈着速度と比較した。その結果、一般に認められた降水に対する粉塵の沈着速度よりはやや小さいもののオーダー的に同程度の値を示した。従来、測定や観測が不可能に近い¹³⁷Csの松葉の吸収が時間の大幅な経過やそれに伴う環境状況の変化から観測可能になり、¹³⁷Csに関する移行係数や移行速度や⁷Beの移行速度が推定可能となった。

文 献

- 1) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書；平成5年度年報（1995）、福井県：原子力発電所周辺の環境放射能調査等
- 2) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書；1990から1999年度版
- 3) 科学技術庁編：ゲルマニウム半導体検出器を用いた機器分析法（1979）
- 4) 石川県環境部：昭和61年度環境放射能調査報告書（1987）
- 5) 日本化学会編：放射性物質，pp6-7，丸善出版（1976）
- 6) Konshin, O.V.: Transfer of ¹³⁷Cs from soil to glass: Analysis of possible sources of uncertainty. *Health Phys.*, **63**, 307-315 (1992)
- 7) 門司正三，内嶋善兵衛編：大気環境の変化と植物，pp37-52，東京大学出版会（1979）
- 8) Chamberlain, A.C.: Aspects of the deposition of radioactive and other gases and Particles. *Int. J. Air Pollut.* **3**, 63 (1960)
- 9) Chamberlain, A.C. and Dunster, H.J.: Deposition of radioactivity in northwest England from the accident at Windscale. *Nature (London)*, **182**, 629-630 (1958)
- 10) Chamberlain, A.C.: Aspects of travel and deposition of aerosol and vapourcloud, Atomic Energy Res. Estab. Harwell, AERE HR/R 1261 (1953)
- 11) Peirson, D.H. and Keane, J.R.: Characteristics of early fall-out from the Russian nuclear explosions of 1961. *Nature*, **196**, 801 (1962)
- 12) 榎崎幸範：平成7年度放射能分析確認調査技術検討会資料，pp13-22（1996）