

多摩川水域における放射性同位体分布状況調査  
およびその地形との関連探究

2015年

井上 浩義  
慶應義塾大学医学部化学教室 教授

共同研究者：久保田真理 慶應義塾大学医学部 専任講師  
東元祐一郎 久留米大学医学部 准教授



とうきゅう環境財団調査・研究助成  
多摩川水域における放射性同位体分布状況調査  
およびその地形との関連探究

慶應義塾大学 医学部 化学教室

平成 25 - 26 年度  
報告書

平成 27 年 3 月

[http://user.keio.ac.jp/~medchem/world\\_md/index.html](http://user.keio.ac.jp/~medchem/world_md/index.html)

Copyright© 2015, Department of Chemistry, Keio University School of Medicine.

慶應ロゴ承諾済

# 目次

I. 調査・試験研究の概要	1
II. 調査・試験研究の計画および方法	2
(1) 土壌採取の場所および採取方法	2
(2) 土壌サンプルの放射能測定	3
III. 放射能測定結果	
(1) 東急線多摩川駅付近	6
(2) 六郷土手付近	7
(3) 登戸付近	8
(4) 二子玉川付近	10
(5) 小河内付近	12
(6) 奥多摩駅付近	13
IV. 多摩川土壌成分資料との対比	14
V. 市民公開講座・高校生研究発表	17
VI. まとめ・謝辞・参考文献	21
VII. 公表実績	23
■ 福島県における樹木放射性セシウム汚染とその減衰	
■ 各プルシアンブルーの放射性セシウム吸着特性および品質	
■ 多摩川における放射性同位元素の堆積	

## I. 調査・試験研究の概要

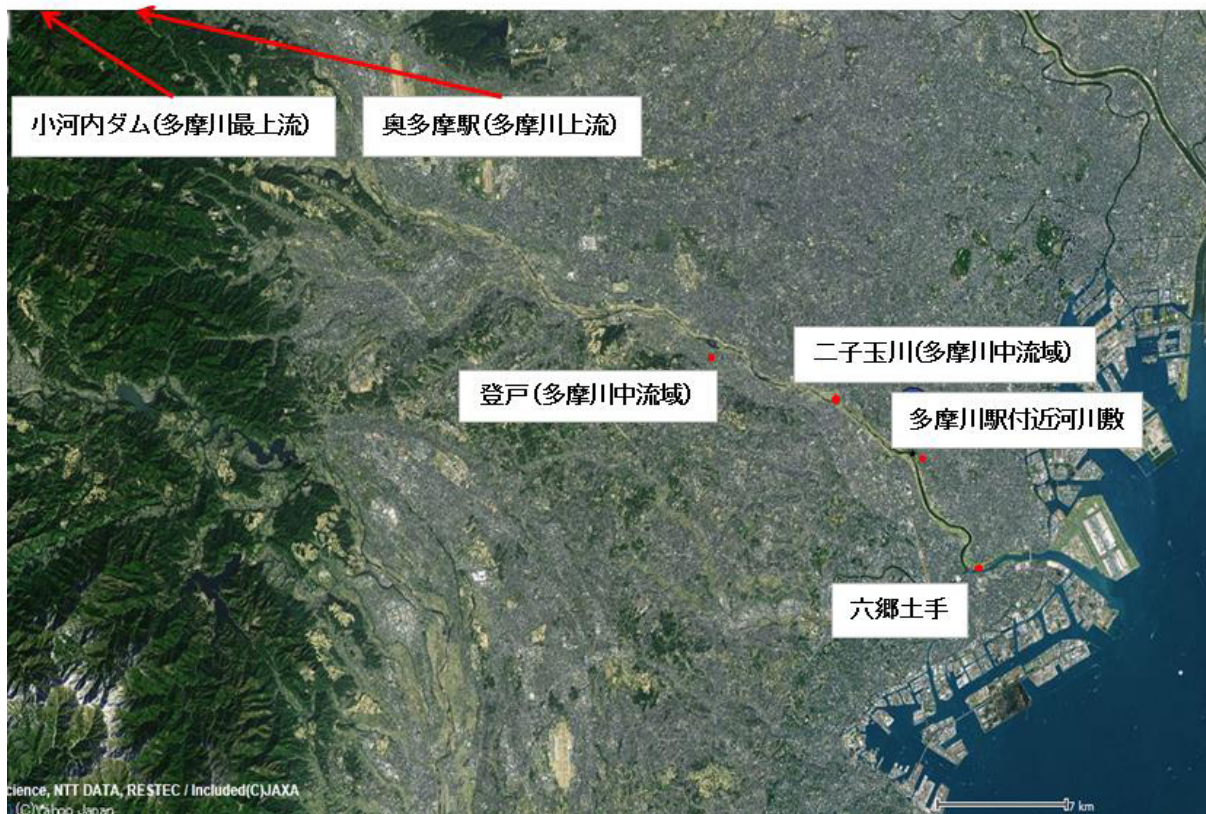
本研究課題では、多摩川流域における平成 25 年度および平成 26 年度における天然放射性同位元素および人工放射性同位元素の蓄積を明確にし、その多摩川の地形・地勢との関係を明らかにすることによって、多摩川流域における放射性同位元素堆積基礎データとすることを目的とした。更に、これらの結果およびその過程を我々が考える市民の市民による環境保全行動の醸成における科学的側面の確立の一助とすることを目的とする。

平成 25 年度は多摩川流域 2 箇所における土壌採取、および測定方法の確立を行った。また、平成 26 年度は多摩川流域 4 箇所における土壌採取と全サンプルの  $\gamma$  線測定と  $\beta$  線測定を実施した。加えて、国土地理院に出向き、多摩川周辺の土壌分析に関する資料を収集し、解析を行った。更には平成 25 年 8 月に小中学生対象とした科学技術体験活動「放射線を知っていますか？」を開催し、400 名以上の応募があった。平成 26 年 3 月 21 日にも慶應義塾大学三田キャンパス(東京都港区)でも開催した。また、平成 26 年度には、本調査・試験研究に神奈川県・東京都・山梨県という多摩川と関連の深い自治体に居住する高校生に参加してもらった。そして、その成果の一部を高校生の研究大会にて発表し、優秀賞を得た(当該大会では優秀賞が最高の賞である)。

## II. 調査・試験研究の計画および方法

### (1) 土壌採取の場所および採取方法

多摩川流域の 6 箇所にて土壌サンプリングを行った。更に、各箇所について 2~7 地点の土壌を採取した。それぞれの最終地点に関しては GPS で位置を確認した。それぞれの場所の概要を以下に示す。



採取地点では、地上 1m における放射能および空間線量率を測定した。放射能は、GM サーベイメータ（日立アロカ製）、および空間線量率は、空間線量率計（日立アロカ製）を用いた。測定は、3 回行い、その測定を平均した値を測定値とした。なお、これらの測定器は 1 年を期限にトレーサビリティを得たものを使用した。

土壌の採取に関しては、基本的に日本工業規格 JIS A1201 に従った。簡易ハンドオーガー、スコップ、試料採取管、ポータブルドリルなどを用いて、表層 0~5cm の土壌試料を採取し、これを廃棄した。この除去によって現れた面を地表面とした。この地表面から更に 10 cm の土壌を採取した。採取した試料はジッパー付ビニール袋に保存した。

採取したサンプルは、乾燥装置（30℃）で 24 時間乾燥させた後に、2 mm の金属ふるいに掛け、透過物のみを本試験のサンプルとした。この土壌サンプルを秤量し、更には、金属製のバットに移し、140℃で恒量になるまで乾燥させた。当該土壌サンプルを約 100g 秤量し、サンプル瓶に入れ、 $\gamma$ 線測定用の最終サンプルとした。更には、別途 100g を秤量し、 $\beta$ 線測定用サンプルとした。

## (2) 土壌サンプルの放射能測定

### < $\gamma$ 線測定 >

$\gamma$  線測定は、 $\gamma$  線測定装置である NaI シンチレーション  $\gamma$  カウンター (Ospray ; キャンベラ社) を用いて、7 時間ガンマ線を累積測定し、マルチチャンネルアナライザー (Model 802 ; キャンベラ社) でチャート化して (下図参照)、その面積で放射能を計数した。



### < $\beta$ 線測定 >

土壌中のベータ線放出核種の測定には、平成 15 年 7 月に改訂された文部科学省科学技術・学術政策局・原子力安全課防災環境対策室の「放射性ストロンチウム分析法」に従って行った。簡単には以下の方法を用いた。

- (1) 乾燥土壌 100g を蒸発皿に入れ、500°C で 5 時間加熱した。
- (2) 放冷後、2 L ビーカーに移し入れ、ストロンチウム担体溶液 (10mgSr/mL) を正確に 5mL 加え、よくかき混ぜた。
- (3) 塩酸 1 L を少しずつ加え、蓋をしてホットプレート上で沸騰する直前の状態で 3 時間加熱した。
- (4) ブフナー漏斗と濾紙 (No.5C) の上にガラス繊維濾紙 (GA200) を重ねて吸引濾過し、残留物は温水で洗浄した。濾液と洗液を併せて、更に水を加えて液量を 2.5L とした。
- (5) カルシウム担体溶液 (50 mg Ca/mL) を 5mL 加えた。
- (6) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを少しずつ加えて pH10 以上とした。
- (7) 炭酸ナトリウム 50g を加え、攪拌して溶解した後、加熱沸騰させて沈殿を熟成した。放冷後、沈殿が沈降するまで静置した。
- (8) 上澄み液は、デカンテーションで除去し、残りは遠心分離してできるだけ液体を除去した。

- (9) 沈殿を塩酸に溶解し、2L ビーカーに移して水を加えて約 1.5L とした。沸騰するまで加熱した後で、シュウ酸 50g を加え、アンモニア水で pH4.0~4.2 に調整した（プロモクレゾールグリーン溶液で確認）。
- (10) 再度加熱して沈殿を熟成した。そして、放冷し沈殿が沈降するまで静置した。
- (11) デカンテーションで上澄み液をできるだけ 3L ビーカーに移した。沈殿は塩酸を用いて他のビーカーに移した。
- (12) 上澄み液にカルシウム担体溶液（50 mg Ca/mL）を 5mL 加えた。
- (13) 加熱し、かき混ぜながら塩酸を少しずつ加え、生成したシュウ酸カルシウムの白い沈殿を一度溶解した。そのまま沸騰するまで加熱した後にシュウ酸 10g を加え、アンモニア水で pH4.0~4.2 に調整した（プロモクレゾールグリーン溶液で確認）。再度加熱して沈殿を熟成した。放冷し沈殿が沈降するまで静置した。
- (14) デカンテーションで上澄み液をできるだけ捨てて、沈殿を含む残りは塩酸を用いて、上記 11 の他のビーカーに移した。
- (15) 加熱しながら塩酸を少しずつ加え、沈殿を完全に溶解し、水を加えて約 600mL とした。
- (16) 沸騰するまで加熱した後に、シュウ酸 5g を加え、アンモニア水で pH4.0~4.2 に調整した（プロモクレゾールグリーン溶液で確認）。再度加熱して沈殿を熟成した。放冷し沈殿が沈降するまで静置した。
- (17) 上澄み液の大部分をデカンテーションで除き、ブフナー漏斗と濾紙（No.5C）を用いて沈殿を吸引濾過し、シュウ酸アンモニウム溶液（0.2 重量%）50mL を 3 回に分けて洗浄した。濾液ごと沈殿を蒸発皿に移し、乾燥した後に 600°C で 3 時間加熱した。
- (18) サンプルを塩酸で溶解し、1 L ビーカーに移した。ホットプレート上で蒸発乾固した後に塩酸 200mL を加えて溶解した。濾紙（No.5C）を用いて濾過し塩酸で洗浄した。濾液と洗液を合わせ、更に塩酸を加えて約 500mL とした。
- (19) サンプル溶液をイオン交換樹脂カラムに流速 5mL/分を通し、次に水 30mL を通した。
- (20) 溶離液 A（15.4 重量%酢酸アンモニウム溶液：メタノール=1：1）1100mL を流速 5mL/分を通し、流出液は廃棄した。
- (21) 溶離液 B（15.4 重量%酢酸アンモニウム溶液）600mL を流速 5mL/分を通し、ストロンチウムを溶出した。
- (22) 溶出液を加熱し、蒸発乾固した。水 10mL および硝酸 10mL を加えて乾固物を溶解し他後に、再度蒸発乾固した。
- (23) 水 20mL を用いて、乾固物を溶解して 100mL ビーカーに移した。
- (24) 塩化鉄（III）溶液（5 mg Fe/mL）1mL、塩化アンモニウム 1g 及びフェノールフタレイン溶液 0.5mL を加えて加熱して二酸化炭素を追い出した。液が赤色を呈するまでアンモニア水を少しずつ加え、水酸化鉄（III）を沈殿させた。更にアンモニア水 1 mL を加えて沈殿を加熱熟成した。
- (25) 濾紙（No.5A）を用いて速やかに濾過し（この時間をスカベジング日時とした）、沈殿を温めたアンモニア水で洗浄した。濾液と洗液を 100mL ビーカーに入れ、沈殿は廃棄した。

- (26) 飽和炭酸アンモニウム溶液 5mL を加え、ホットプレート上で炭酸塩沈殿を加熱熟成した。
- (27) 予め質量を測ったガラスフィルター（1G4）を用いて沈殿を吸引濾過し、アンモニア水およびエタノールで洗浄した。110°Cで 1 時間乾燥し、デシケーター中で法令した後、沈殿の質量を測定した。
- (28) 沈殿を 2 週間以上放置した。
- (29) 低バックグラウンドの液体シンチレーションカウンターで測定した。

<減衰補正>

土壌サンプルの劣化（減衰）については、半減期の短い人工放射性核種はありませんでしたので、実際には問題はありませんでした。なお、すべての放射性核種の放射能測定は、以下の半減期の計算法に従いまして、平成 26 年 3 月 31 日時点での放射能として記録しております。

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

ここで、N は時間 t における原子数、 $\lambda$  は壊変定数である。

また、なお、炭素-14 およびトリチウム-3 もスペクトル測定を行ったが、B.G.を超える結果は測定されなかった。



### Ⅲ. 放射能測定結果

#### (1) 東急線多摩川駅付近土壌サンプリング

日時：2013/10/8

場所：多摩川駅付近河川敷

天候：快晴

気温：最高 29.6/最低 22.7



#### ① 位置および地上 1m における放射能と空間線量率

地点	位置		放射能 (cpm)	空間線量率 ( $\mu$ Sv/h)
	緯度(北緯)	経度(東経)		
A	35 度 35 分 10 秒	139 度 40 分 9 秒	60	0.04
B	35 度 35 分 4 秒	139 度 40 分 13 秒	55	0.05
C	35 度 35 分 0 秒	139 度 40 分 14 秒	55	0.04
D	35 度 35 分 15 秒	139 度 39 分 59 秒	90	0.05
E	35 度 35 分 16 秒	139 度 39 分 58 秒	60	0.05
F	35 度 35 分 18 秒	139 度 39 分 56 秒	45	0.05

#### ② 土壌中のガンマ線放出核種

地点	K-40	I-131	Cs-134	Cs-137
A	142.5	0.00	0.00	4.7
B	162.9	0.00	0.04	10.8
C	168.8	0.00	0.07	14.6
D	137.4	0.00	0.00	2.8
E	173.6	0.00	0.00	4.1
F	181.0	0.00	0.07	13.4

#### ③ 土壌中のベータ線放出核種

地点	Sr-90
A	0.000
B	0.000
C	0.000
D	0.000
E	0.000
F	0.000

(2) 六郷土手付近土壌サンプリング

日時：2013/11/19

場所：六郷土手

天候：晴れ

気温：最高 17.4/最低 8.2



① 位置および地上 1m における放射能と空間線量率

地点	位置		放射能 (cpm)	空間線量率 (μSv/h)
	緯度(北緯)	経度(東経)		
A	35 度 32 分 28.2 秒	139 度 42 分 62 秒	50	0.05
B	35 度 32 分 18 秒	139 度 42 分 42.8 秒	50	0.06
C	35 度 32 分 24.8 秒	139 度 42 分 52.2 秒	60	0.05
D	35 度 32 分 16.2 秒	139 度 42 分 32.2 秒	60	0.06
E	35 度 32 分 23.2 秒	139 度 42 分 29.9 秒	55	0.06
F	35 度 32 分 23.9 秒	139 度 42 分 36 秒	65	0.07

② 土壌中のガンマ線放出核種

地点	K-40	I-131	Cs-134	Cs-137
A	100.3	0.00	0.00	2.7
B	89.6	0.00	0.00	1.8
C	129.6	0.00	0.00	0.0
D	104.2	0.00	0.00	0.0
E	98.6	0.00	0.00	4.2
F	124.4	0.00	0.00	0.0

③ 土壌中のベータ線放出核種

地点	Sr-90
A	0.000
B	0.000
C	0.000
D	0.000
E	0.000
F	0.000

(3) 登戸付近土壌サンプリング

日時：2014/5/17

場所：登戸

天候：晴れ



① 位置および地上 1m における放射能と空間線量率

地点	位置		放射能 (cpm)	線量率 (μSv/h)
	緯度	経度		
A	35.622	139.571	50	0.04
B	35.624	139.569	400	0.06
C	35.625	139.568	50	0.03
D	35.627	139.569	55	0.03
E	35.625	139.569	60	0.03
F	35.625	139.569	60	0.04
G	35.627	139.569	50	0.05

② 土壌中のガンマ線放出核種

地点	量(g)	I-131 (Bq/kg)		Cs-137 (Bq/kg)	
		放射能	検出限界	放射能	検出限界
A	170	13.26	2.48	5.00	3.27
B	117	12.63	5.75	60.87	4.72
C	127	14.51	3.02	5.01	4.05
D	74	19.06	4.47	8.06	6.51
E	127	15.70	3.13	14.26	4.22
F	109	14.76	3.41	12.36	4.63
G	131	12.11	2.90	0.00	6.70

Cs-134 (Bq/kg)		K-40 (Bq/kg)	
放射能	検出限界	放射能	検出限界
0.00	6.16	454.16	51.17
15.62	4.91	624.98	97.05
0.00	7.69	587.54	87.24
0.00	11.79	664.60	103.66
0.00	7.92	615.68	65.79
5.55	4.44	579.28	102.37
0.00	7.22	483.79	84.73

③ 土壌中のベータ線放出核種

地点	Sr-90
A	0.000
B	0.000
C	0.000
D	0.000
E	0.000
F	0.000
G	0.000



(4) 二子玉川付近土壌サンプリング

日時：2014/5/17

場所：二子玉川

天候：晴れ



① 位置および地上 1m における放射能と空間線量率

地点	位置		放射能 (cpm)	線量率 (μSv/h)
	緯度	経度		
A	35.611	139.625	40	0.04
B	35.611	139.623	60	0.06
C	35.612	139.621	80	0.05
D	35.610	139.625	40	0.05
E	35.609	139.626	40	0.04
F	35.609	139.627	50	0.05

② 土壌中のガンマ線放出核種

地点	量(g)	I-131 (Bq/kg)		Cs-137 (Bq/kg)	
		放射能	検出限界	放射能	検出限界
A	155	10.25	2.92	2.82	26.88
B	145	11.42	3.22	3.01	34.55
C	100	9.72	3.08	6.16	59.49
D	153	9.72	2.79	4.53	15.17
E	155	10.17	2.87	4.55	17.71
F	140	14.75	3.93	2.84	6.98

Cs-134 (Bq/kg)		K-40 (Bq/kg)	
放射能	検出限界	放射能	検出限界
5.32	3.68	7.18	4.47
6.65	3.85	10.00	4.79
11.23	4.96	11.87	6.73
2.95	3.71	4.51	3.84
3.80	3.48	ND	0.00
2.43	3.93	ND	0.00

③ 土壌中のベータ線放出核種

地点	Sr-90
A	0.000
B	0.000
C	0.000
D	0.000
E	0.000
F	0.000



(5) 小河内付近土壌サンプリング

日時：2014/10/19

場所：小河内ダム周辺

天候：晴れ



① 位置および地上 1m における放射能と空間線量率

地点	位置		放射能 (cpm)	線量率 ( $\mu$ Sv/h)
	緯度	経度		
A	35.788	139.051	50	0.05
B	35.787	139.052	75	0.07
C	35.724	139.044	80	0.08
D	35.733	139.041	50	0.08

② 土壌中のガンマ線放出核種

地点	量(g)	I-131 (Bq/kg)		Cs-137 (Bq/kg)	
		放射能	検出限界	放射能	検出限界
A	79	20.60	4.17	25.36	6.05
B	79	18.59	4.13	25.08	6.00
C	33	16.58	15.36	297.61	13.36
D	55	14.79	6.05	177.12	8.51

Cs-134 (Bq/kg)		K-40 (Bq/kg)	
放射能	検出限界	放射能	検出限界
8.16	6.24	420.98	138.57
0.00	11.23	601.50	138.49
86.20	27.70	632.25	313.23
43.25	17.93	609.36	193.04

③ 土壌中のベータ線放出核種

地点	Sr-90
A	0.000
B	0.000
C	0.000
D	0.000

(6) 奥多摩駅付近土壌サンプリング

日時：2014/10/19

場所：奥多摩駅周辺

天候：晴れ



① 位置および地上 1m における放射能と空間線量率

地点	位置		放射能 (cpm)	線量率 ( $\mu$ Sv/h)
	緯度	経度		
A	35.806	139.099	60	0.06~0.07
B	35.806	139.099	65	0.06

② 土壌中のガンマ線放出核種

地点	量(g)	I-131 (Bq/kg)		Cs-137 (Bq/kg)	
		放射能	検出限界	放射能	検出限界
A	146	19.24	2.85	0.00	6.68
B	113	19.30	3.50	8.54	4.36

Cs-134 (Bq/kg)		K-40 (Bq/kg)	
放射能	検出限界	放射能	検出限界
0.00	7.14	659.34	81.22
0.00	7.44	719.63	99.26

③ 土壌中のベータ線放出核種

地点	Sr-90
A	0.000
B	0.000



#### IV. 多摩川土壌成分資料との対比

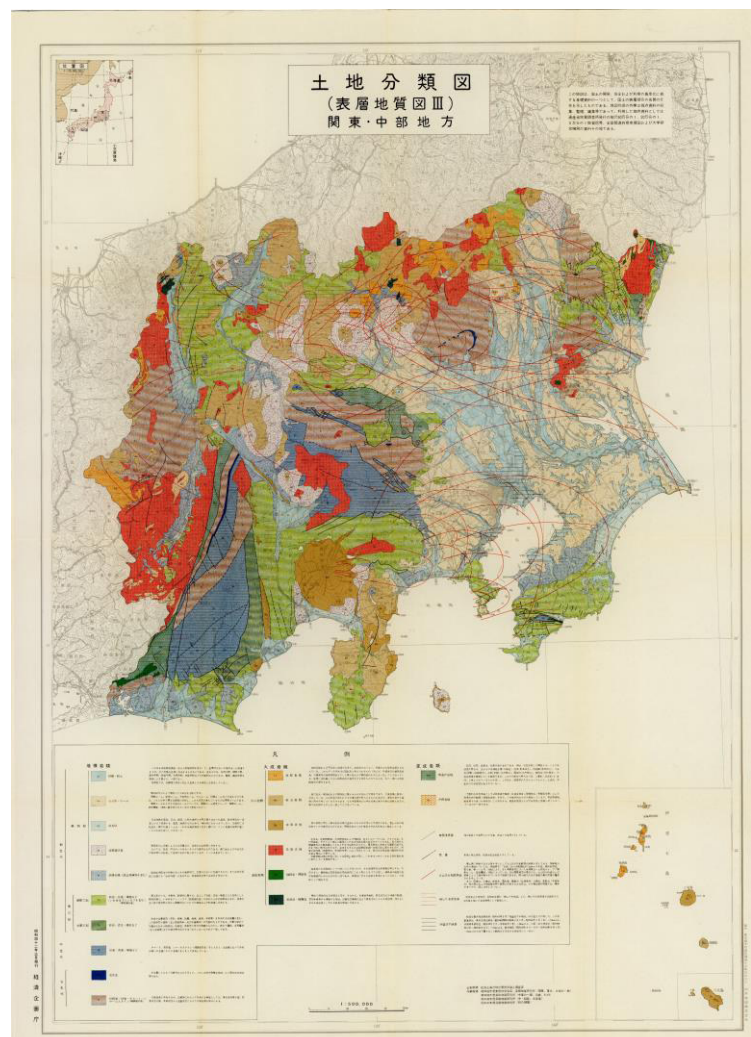
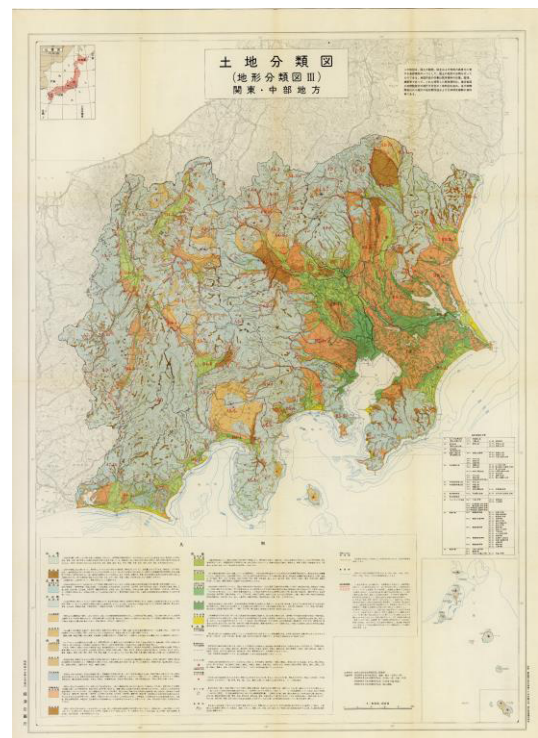
多摩川周辺の土壌に関する資料集積のため、国土地理院を訪れ、資料を収集した。右図は、関東・中部地方の土壌図であり、多摩川周辺の土壌を知ることができる。下図はその中でも特に表層地質を表したもので、今回の測定との対比に用いた。

今回の測定結果では、表面地層（表面から 5～10 cm）を採取した。これは、工事等による土壌表面の客土等を考慮したものである。一方で、地下深部に関しては、放射線の土壌および水分による遮蔽が生じることから人間生活への影響が少ないこと、また、福島第一原発事故によって生じた人工放射性核種については、表面の粘土層や赤土によって捕捉され、地下深くに進行するには多くの時間を要すると指摘されていることからここでは表面から 10 cm を超える深さの土壌に関しては考慮しないこととした。

#### <結果・考察>

まず、表面土壌の分類に関しては右の土地分類図・表層地質図面（関東・中部地方）を用いて、各採取地点の表面土壌を分類した。結果を次のページに示す。続いて、次のページの土壌分類図・土壌図面（関東・中部地方）を用いて各採取地点の岩盤を含めた基盤土壌の分類を行った。

これらの結果から表面層土壌と放射性核種、特に天然放射性同位元素（K-40）との関係は得られないことが明らかになった。これは①カリウムの含有と関係が深い花崗岩が今回の場合には表面露出しておらず、これが存在したとしても既に粒子状になっていたこと、②今回の採取地点が、「河川」という表面土壌が動きやすい場所であったことが関係していると思われる。





各採取地点の表面土壌分類に関する表

番号	地点名	土壌由来	主な土壌	補足
1	多摩川駅付近	新生代 第四紀	砂礫、粘土	氾濫原堆積物を含む沖積地堆積層層厚、抗生物質は場所により異なり一様ではない。今回のサンプルに粘土は含まれていなかった。
2	六郷土手付近			
4	二子玉川付近			
3	登戸付近		火山灰・ローム	
5	小河内付近	中生代	砂岩、頁岩、礫岩など	チャート、石灰岩、チャールスタイン（輝緑凝灰岩）を伴う。
6	奥多摩駅付近			

各採取地点の基盤土壌分類に関する表

番号	地点名	土壌	主な土壌
1	多摩川駅付近	グレイ土	粗粒グレイ土ではない。少なくとも表面から 50 cm 以内にグライ層を持つ土壌で、主として沖積地に分布する。
2	六郷土手付近		
4	二子玉川付近	褐色低地土	比較的発達していない（A）層下に粗しような黄褐色を呈する粗粒ないし中粒の（B）層を持つ土壌。河川による沖積地の自然堤防上に分布する。畑地として利用されていることが多い。
3	登戸付近		
5	小河内付近	乾燥褐色森林土（I）	湿潤温・暖帯の森林下に発達し、A（B）C 層位を持ち、黒褐色の A 層から褐色ないし暗褐色の（B）層に漸次移り、酸化物および粘土の移動が行われていない弱酸性の土壌である。このうち、I は排水や風通しが良い尾根などに現れるもので、一般に A 層の発達が悪く、土壌中の含量が乏しく、明るい（B）層を持ち、乾燥破碎によって形成された構造が発達するなどの形態的特徴を持つ、比較的強酸性で塩基に乏しい土壌である。
6	奥多摩駅付近		

## V. 市民公開講座・高校生研究発表

本研究課題では、研究結果ならびに研究過程について広く市民の皆様に広報することも大きな目的のひとつである。現在までに既に以下を実施した。このプログラムには400名以上の応募があったことから、その関心の高さが伺える。

開催日：平成25年8月4日（日）

実施場所：慶應義塾大学医学部化学教室

（慶應義塾大学日吉キャンパス；横浜市港北区）

受講生：小学生1名、中学生21名、保護者1名

プログラム：

- |             |  |
|-------------|--|
| 9:30        | 開場（受付開始）                                     |
| 10:00       | 開会   |
| 10:00-10:20 | 開会挨拶・オリエンテーション（活動の目的・注意事項・とうきゅう環境財団助成金の説明など） |
| 10:20-11:20 | [講演]放射線の種類と性質・人体への影響（慶應義塾大学医学部井上浩義教授）        |
| 11:20-11:30 | 休憩   |
| 11:30-12:00 | [実習]心音を聞いてみよう！（聴診器）・放射線を測ってみよう！              |
| 12:00-13:00 | [昼食]研究者や大学院生と共に昼食（科学の話をしよう）                  |
| 13:00-13:50 | [実習]霧箱を作ってみよう！（放射線の観察）                       |
| 13:50-14:00 | 休憩   |
| 14:00-14:45 | [実習]細胞は紫外線によって傷つく！                           |
| 14:45-15:15 | [意見交換]放射線を他人に伝えるには・・・<br>まとめ                 |
| 15:30       | 終了・解散  |

右写真は、平成25年8月4日に実施した小中学生を対象とした教育・講演会での集合写真である。受講生だけでなく、指導者として、慶應義塾大学医学部学生、東京慈恵会医科大学医学部学生、杏林大学医学部学生などが参加して下さり、指導者養成の観点からも意義のあるものとなった。

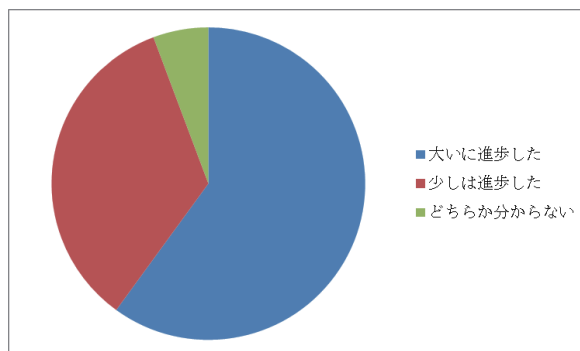
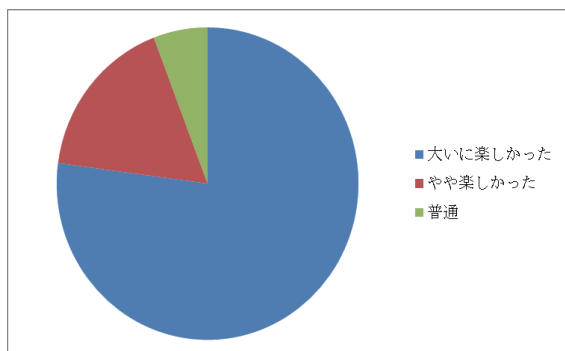


平成 26 年 3 月 21 日（祝）慶應義塾大学三田キャンパスにて、講演会および事業報告会を開催した。

当日は、遠くは静岡県浜松市や山梨県都留市からの参加もあり、盛況の中、本事業の成果報告と環境と科学について考える場を設けることができた。

写真右は、当日のポスターである。

当日の感想では、報告会を楽しむことができたかについて尋ねると 77%の人が大いに楽しかったと回答した（下図左）。次に、本活動に参加することによって、知識や思考能力について、自分が進歩したと思えますか？と問うたところ、大いに進歩したが 60%で、少しは進歩したが 34.3%と大部分の人に満足が得られる結果となった（下図右）。



小中学生向けの教育・講演会が好評であったことから、今後は成人向けの講演会を企画していき、本研究助成の意義とその成果を公開していきたい。

本年度の研究成果については、科学技術振興機構(JST)主催平成26年度全国受講生研究発表会に出場し、高校生によるポスター発表を行った。発表を行った高校生は、本研究室の実施するグローバルサイエンスキャンパス事業の受講生である。また、詳細については以下の通りである。

開催日：平成26年11月9日(日)

主催：JST 理数学習推進部

開催場所：東京国際交流会館国際会議場

開催時間：10:00-17:00

発表に使用したポスター(本頁下)と発表要旨(次頁上)を記載する。

この発表において、本研究は優秀賞を受賞した。なお、この発表会では優秀賞が最高の賞である。



Keio University  
1858  
GALAMUS  
GLAUDI  
FORTIOR

## 多摩川および東京湾の放射性同位元素堆積調査

小林沙衣(湘南白百合学園高校3年) 舛村康成(横浜市立横浜サイエンスフロンティア高校1年)  
山本暹斗(山梨県立吉田高校1年) 沼崎里咲(湘南白百合学園高校1年)  
指導：井上浩義(慶應義塾大学医学部化学教室)

**1. 研究の目的・意義**  
本研究では、我々にとって身近な環境である多摩川とそれが流れ込む東京湾の堆積土壌に含まれる放射性同位元素の測定を行うことで、日本の環境放射能について調査することが目的である。本研究の意義は福島第一原発の事故で世界的に注目を集め、且つ私たちの住む国である日本の環境放射能の種類や量を計測し現状を知ることができることである。なお、土壌サンプリングについては多摩川で6箇所、東京湾で2箇所を終えたが、放射線測定に大変時間がかかることから、本発表では多摩川下流の1箇所について測定結果を示し、その考察をする。

**2. 研究の方法・プロセス**  
① 表面5cmの土壌のサンプリングを行う。  
② 土壌を140℃で24時間乾燥させ、恒質量にする。  
③ 3mmの篩にかけ、石などを取り除く。…A  
④ A100gをNaI(Tl)シンチレーションカウンタ(Ospray:キャンベラ社)により7時間γ線を累積測定する。  
⑤ マルチチャンネルアナライザー(Model802:キャンベラ社)でチャート化して、その面積で放射能を測定する。  
⑥ これらを3回測定し、その結果はすべて半減期の式を用いて補正し、その補正値を平均する。

<サンプリング場所>  
日時: 2013年10月8日  
場所: 東急東横線多摩川駅付近河川敷  
天候: 快晴  
気温: 最高29.6℃/最低22.7℃

地点	位置		放射能 (cpm)	空間線量率 (μSv/h)
	緯度(北緯)	経度(東経)		
A	35度35分10秒	139度40分9秒	60	0.04
B	35度35分4秒	139度40分13秒	55	0.05
C	35度35分0秒	139度40分14秒	55	0.04
D	35度35分15秒	139度39分59秒	90	0.05
E	35度35分16秒	139度39分58秒	60	0.05
F	35度35分18秒	139度39分56秒	45	0.05



↑ サンプリングの様子



↑ NaI(Tl)シンチレーションカウンタ  
サンプルから出るγ線をNaI(Tl)結晶に当て、発生する光子を光電子増倍管により増幅させる。それによって、γ線を間接的に計測する。

放射能はGMサーベイメータ、空間線量率は空間線量率計(ともに日アラカ製)を用いて、土壌サンプリング地点真上1mのところまで測定した。

**3. 結果と考察**

核種名	エネルギー (keV)	放射能濃度(Bq/g)					
		A地点	B地点	C地点	D地点	E地点	F地点
I-131	364.48	0.016683	0.032967	0.012333	0.01092	---	0.013304
CS-137	661.65	0.040364	0.077165	0.098961	0.118161	0.092884	0.020173
CS-134	795.85	0.01391	0.026256	0.035895	0.041469	0.029048	0.007658
K-40	1460.81	0.656292	1.022977	1.032569	0.570535	0.827037	0.597362

- ◆ 自然放射性核種であるK-40の濃度が場所により異なることが明らかになった。これは、カリウム自体の堆積の違いによることが考えられる。
- ◆ 人工放射性核種であるCs-134とCs-137が多摩川の土壌から見出された。これは福島第一原発の影響である。この両者は、事故直後には同量が存在していたので、現在のこの数値はCs-134とCs-137の半減期の差によるものだと思われる。
- ◆ 福島第一原発事故直後には観測されていた人工放射性核種のI-131が存在していた。半減期が8日であることから考えて、原発事故から3年経った今、I-131は存在していないものであると推測していた。しかし、今回その存在が多摩川付近で認められたことは非常に興味深い。



↑ NaI(Tl)シンチレーションカウンタのチャート

**4. 今後の展望**  
今後この研究においてまず行うべきことは、すべての土壌サンプリングの測定である。そして値が下流・上流・湾で異なるのか、また異なるとすればどのような傾向がみられるのかを明らかにしたい。  
また特に今回多摩川下流で自然放射線ではないI-131が検出された結果から、このI-131を放出している人間の活動を明らかにすることを今後の課題としたい。I-131は医療目的で使われたものか福島第一原発から放出されたものであると考えられるため、医療目的の使用のI-131の影響がない多摩川上流の値を測定することで明らかにできると考える。

<講座担当教員のコメント>  
長く、高校生と私たちが続けてきた研究テーマです。本研究には、福島県出身の大学生(講座OB)が献身的に貢献してくれています。このため、高校生たちは研究の意義やその先にある放射線の人体への影響まで関心を示してくれています。本研究は来年、世界的な環境の雑誌に投稿する予定です。

# 多摩川および東京湾の放射性同位元素堆積調査

小林沙衣 (湘南白百合学園高校3年) 舛村康成 (横浜市立横浜サイエンスフロンティア高校1年)

山本遥斗 (山梨県立吉田高校1年) 沼崎里咲 (湘南白百合学園高校1年)

指導: 井上浩義 (慶應義塾大学医学部化学教室)

## 1. 研究の目的・意義

本研究の目的は我々にとって身近な環境である多摩川と東京湾の堆積土壌に含まれる放射性同位元素の測定を行うことで日本の環境放射能について調査することである。また本研究の意義は福島第一原発の事故で世界的に注目を集める日本の環境放射能を計測し現状を知ることができることである。なお、多摩川・東京湾でもサンプリングは終えたが測定に時間を要するため、本発表では多摩川下流の1箇所について述べる。

## 2. 研究の方法・プロセス

- ①表面5cmの土壌のサンプリングを行う。その土壌を140°Cで24時間乾燥させ、恒質量にする。
- ②土壌3mmの篩にかけ、石などを取り除いたもの100gをNaI (TI) シンチレーションカウンター (Ospray: キャンベラ社) により7時間γ線を累積測定する。
- ③マルチチャンネルアナライザー (Model802: キャンベラ社) でチャート化して放射能を測定する。
- ④これらを3回測定し、その結果はすべて半減期の式を用いて補正し、その補正値を平均する。

<サンプリング場所>

地点	位置		放射能 (cpm)	空間線量率 ( $\mu$ Sv/h)
	緯度(北緯)	経度(東経)		
A	35度35分10秒	139度40分9秒	60	0.04
B	35度35分4秒	139度40分13秒	55	0.05
C	35度35分0秒	139度40分14秒	55	0.04
D	35度35分15秒	139度39分59秒	90	0.05
E	35度35分16秒	139度39分58秒	60	0.05
F	35度35分10秒	139度39分56秒	45	0.05

放射能はGMサーベイメータ、空間線量率は空間線量率計 (ともに日立アロカ製) を用いて、土壌サンプル地点真上1mのところ測定した。

日時: 2013年10月8日 場所: 東急東横線多摩川駅付近河川敷 天候: 快晴 気温: 最高29.6°C/最低22.7°C

## 3. 結果と考察

核種名	エネルギー	放射能濃度(Bq)					
		A地点	B地点	C地点	D地点	E地点	F地点
I-131	364.48	0.01668	0.03296	0.01233	0.01092		0.0133
Cs-137	661.65	0.04036	0.07716	0.09896	0.1181	0.09288	0.02017
Cs-134	795.85	0.01391	0.02625	0.03589	0.04146	0.02904	0.007658
K-40	1460.81	0.6562	1.022	1.032	0.5705	0.0827	0.5974

◆自然放射性核種であるK-40の濃度が場所により異なることが分かった。これはカリウム自体の堆積量の違いによるものだと考えられる。

◆人工放射性核種であるCs-134とCs-137が多摩川の土壌から見出された。これは福島第一原発の影響だ。この両者は、事故直後には同量が存在していたので、現在のこの数値はCs-134とCs-137の半減期の差によるものと思われる。

◆福島第一原発事故直後には観測されていた人工放射性核種のI-131が存在していた。半減期が8日であることから考えて、原発事故から3年経った今、I-131は存在していないのもであると推測していた。しかし、今回その存在が多摩川付近で認められたことは非常に興味深い。

## 4. 今後の展望

今後この研究においてまず行うべきことは、すべての土壌サンプリングの測定である。そして値が下流・上流・湾で異なるのか、また異なるとすればどのような傾向がみられるのかを明らかにしたい。また特に今回多摩川下流で自然放射線ではないI-131が検出された結果から、このI-131を放出している人間の活動を明らかにすることを今後の課題としたい。I-131は医療目的で使われたものか福島第一原発から放出されたものかと考えられるため、医療目的使用のI-131の影響がない多摩川上流の値を測定することで明らかにできると考える。

## VI. まとめ・謝辞・参考文献

### <まとめ>

今回の研究・調査では、自然放射性同位元素であるカリウム-40 については、土壌ごとにその大きさが異なった。また、福島第一原発事故を起源とするであろう人工放射性同位元素セシウム-134 とセシウム-137 については、上流域では高く、下流域に従って低くなる結果を得た。これは事故後 3 年程度を経て、未だに高い濃度が残る森林を起源として、上流では高く、下流ではそれが薄まって低くなっているものと思われた。一方で、人工放射性同位元素・ヨウ素-131 では半減期が約 8 日であることから、既に観察されないだろうと考えていた。しかし、実際には比較的高いヨウ素-131 の値が見られた。これは当初、参考文献にある医療用途を起源とするヨウ素-131 であると考えた。しかし、多摩川最上流で、ヒトの居住や下水処理施設が上流にない小河内ダム近辺でも観測され、この推定が成り立たなくなった。今後は、他の山地のサンプル測定などを通じて、このヨウ素-131 の起源を求めて行きたい。

なお、今回はストロンチウム-90 がどの土壌からも採取されなかった。

最後に、国土交通省港湾局と共同で東京湾の土壌サンプルについて採取した。今後は、これらサンプルとの比較等も行っていきたい。

### <謝辞>

最後になりますが、本研究・調査を実施させて頂きましたとうきゅう環境財団に深く感謝申し上げます。特に、有意義なご意見やご助言を下さいました審査委員の先生方、事務手続きを支援頂きました鈴木貫也様、および関係の諸兄の皆様に心よりお礼申し上げます。

### <参考文献>

- 1) Neroda AS, Mishukov VF, Goryachev VA, Simonenkov DV, Goncharova AA.: Radioactive isotopes in atmospheric aerosols over Russia and the Sea of Japan following nuclear accident at Fukushima Nr.1 Daiichi Nuclear Power Station in March 2001. Environ Sci Pollut Res Int.2014 Apr;21(8):5669-77.
- 2) Masson O, Ringer W, Mala H, Rulik P, Dlugosz-Lisiecka M, Eleftheriadis K, Meisenberg O, DeVismes-Ott A, Gensdarmes F: Size distributions of airborne radionuclides from the Fukushima nuclear accident at several places in Europe. Environ Sci Technol.2013 Oct 1;47(19):10995-1003.
- 3) Steinhauser G, Merz S, Hainz D, Sterba JH.: Artificial radioactivity in environmental media (air, rainwater, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. Environ Sci Pollut Res Int.2013 Apr;20(4):2527-34.
- 4) Dlugosz-Lisiecka M, Bem H.: Aerosol residence times and changes in radioiodine-131I and radiocaesium-137 Cs activity over Central Poland after the Fukushima-Daiichi Nuclear reactor accident. J Environ Monit.2012 May;14(5):1483-9.
- 5) Nagataki S, Takamura N, Kamiya K, Akashi M.: Measurements of individual radiation doses in residents living around the Fukushima Nuclear Power Plant. Radiat Res.2013 Nov;180(5):439-47.



- 6) Doi T, Masumoto K, Toyoda A, Tanaka A, Shibata Y, Hirose K.: Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: characteristics of the radionuclides derived from Fukushima. *J Environ Radioact.* 2013 Aug;122:55-62.
- 7) Wada T, Nemoto Y, Shimamura S, Fujita T, Mizuno T, Sohtome T, Kamiyama K.: Morita T, Igarashi S. Effects of the nuclear disaster on marine products in Fukushima. *J Environ Radioact.* 2013 Oct;124:246-54.
- 8) Howe JR, Lloyd MK.: Radio-iodine in thyroid glands of swans, farm animals and humans, also in algae and river water from the Thames Valley, England. *Sci Total Environ.* 1986 Jan;48(1-2):13-31.
- 9) Ravichandran R, Binukumar JP, Sreeram R, Arunkumar LS.: An overview of radioactive waste disposal procedures of a nuclear medicine department. *J Med Phys.* 2011 Apr;36(2):95-9.

## VII. 公表実績

## 福島県における樹木放射性セシウム汚染とその減衰

母里彩子\*・島村安俊\*\*・井上浩義\*\*,#

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

Ayako MORI, Yasutoshi SHIMAMURA and Hiroyoshi INOUE

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

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

### 1. 諸言

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

---

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

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

# 慶應義塾大学医学部（信濃町キャンパス）放射線取扱主任者

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

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

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

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

## 2. 実験方法

### 2-1. 落葉サンプル

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

### 2-2. 表面洗浄

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

### 2-3. 落葉腐敗

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

### 2-4. 放射能測定

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

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

### 2-5. プルシアンブルー製品吸着試験

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

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

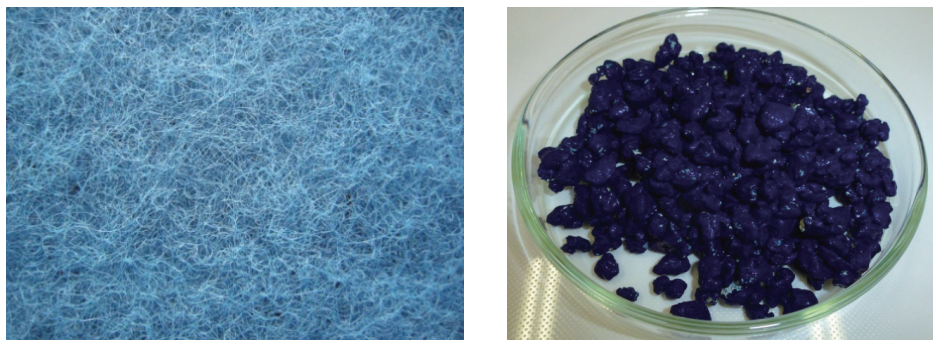


図1. プルシアンブルー不織布（左）およびプルシアンブルー被覆粒子（右）

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

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

(4) 同様の測定を2回行い、その平均をとった。

### 3. 結果および考察

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

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

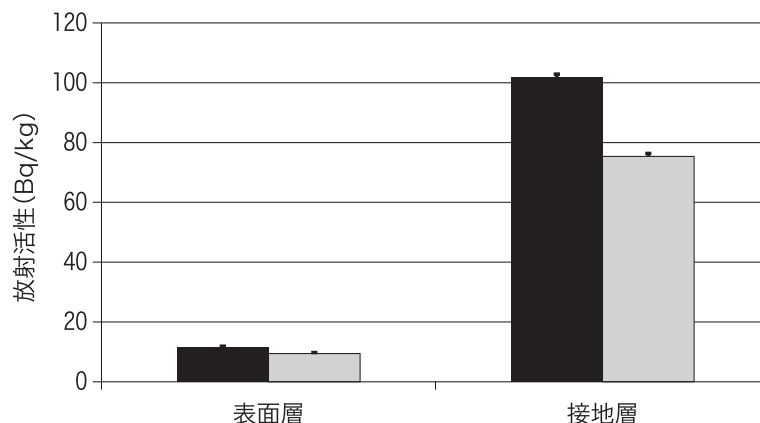


図2. 表面層（表面から15 cm）と接地層（地表から15 cm）の落葉の放射能  
左の黒いカラムはセシウム137を、右のグレーのカラムはセシウム134を示している。

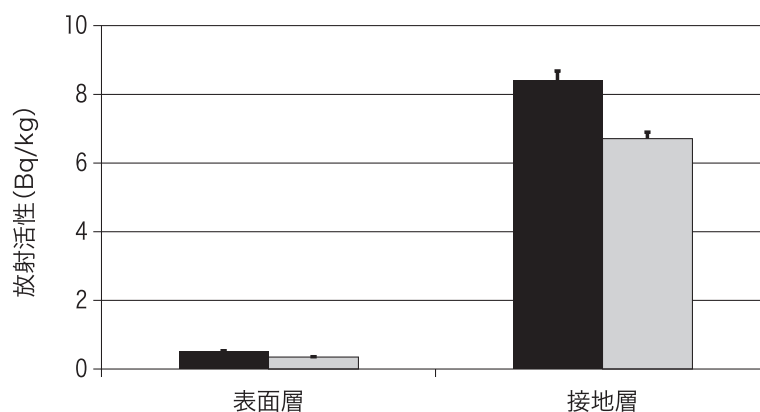


図3. 表面層と接地層の落葉を純水で洗浄したときの洗浄水の放射能  
左の黒いカラムはセシウム137を、右のグレーのカラムはセシウム134を示している。

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

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

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

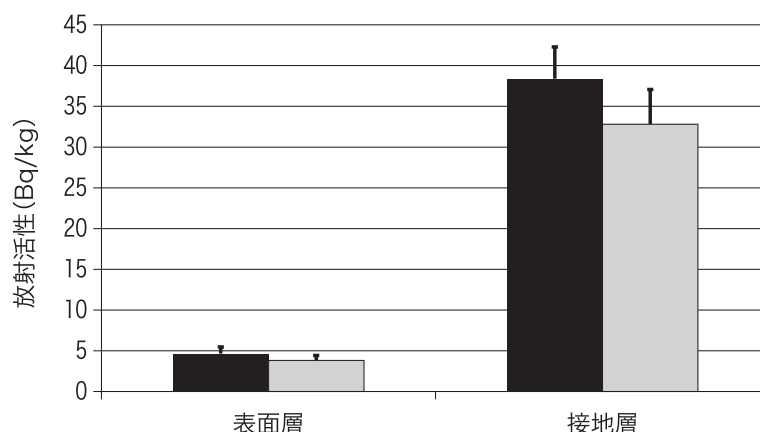


図4. 表面層と接地層の落葉を40°Cで120日間腐敗させたときの漏出水の放射能  
左の黒いカラムはセシウム137を、右のグレーのカラムはセシウム134を示している。

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

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

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

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



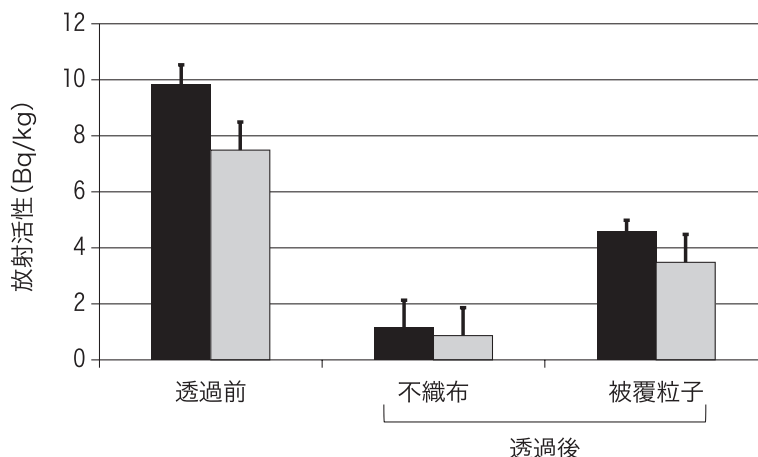


図5. 接地層落葉の洗浄水を用いたプルシアンブルー製品の放射性セシウム吸着特性  
不織布はプルシアンブルーを練り込んだ不織布を示し、被覆粒子はゼオライトにプルシアンブルーを被覆した粒子を示す。左の黒いカラムはセシウム 137 を、右のグレーのカラムはセシウム 134 を示している。

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

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

#### 4. まとめ

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

## 5. 謝辞

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

## 6. 参考文献

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

## 各種プルシアンブルーの放射性セシウム吸着特性および品質

畠山拓人\*・母里彩子\*\*・井上浩義\*,#

Radioactive Cesium Binding Properties and Qualities of Various Prussian Blue Products.

Takuto HATAKEYAMA, Ayako MORI and Hiroyoshi INOUE

Summary—Prussian Blue has been used to inhibit the migration of the radioactive cesium from the soil to the crops in the area contaminated by the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident, because it can bind the cesium ion selectively. In the present study, various Prussian Blue products that were imported to Japan were used to investigate the radioactive cesium binding ability, water solubility, and contaminated heavy metals. All Prussian Blue products could bind the radioactive cesium, but some Prussian Blue could not be soluble homogeneously in water and contained the toxic heavy metals that can not spread on the farmland. As a result, when the imported Prussian Blue products were used, the quality management was required.

Key Words: prussian blue, Fukushima dai-ichi nuclear power plant accident, radioactive cesium

### 1. 諸言

2011年3月に発生した福島第一原発事故では、多くの放射性同位元素が大気中あるいは水中に放出され、その影響はわが国にとどまらず、世界中に及んでいる。当該事故より1200日余経過した今日では、除染活動の中心はセシウム137 ( $^{137}\text{Cs}$ )、およびセシウム134 ( $^{134}\text{Cs}$ )である<sup>1)</sup>。放射性セシウムの吸着剤としてはゼオライトがアルカリ金属元素への吸着能が高く、

---

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

\*\* 慶應義塾大学医学部薬理学教室 (〒160-8582 東京都新宿区信濃町35番地) : Department of Pharmacology, Keio University School of Medicine, 35, Shinanomachi, Shijuku, Tokyo 160-8582, Japan. E-mail: ayamori@a5.keio.jp [Received March 26, 2014]

# 慶應義塾大学医学部 (信濃町キャンパス) 放射線取扱主任者

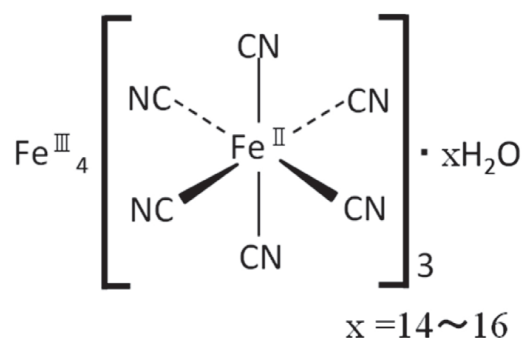


図1. プルシアンブルーの化学構造

安価なために汎用されているが、セシウム特異性は高いものの<sup>2)</sup>、環境中では大量に存在するカリウム (K) により置換されうる<sup>3)</sup>。このため、土壌への利用では必須栄養素であるカリウム欠乏のために農作物の生育抑制が問題となっている。それに対して、セシウムの特異的吸着剤として知られるプルシアンブルーはカリウムに対する結合性が小さく、セシウムを選択的に吸着するため、農作物への影響がなく、また使用量もゼオライトに比較すると少量で済むという特性を有する<sup>4)</sup>。また、その利用を広範なものとするためにさまざまな製品形態も研究されている<sup>5,6)</sup>。本研究では、放射性セシウムを土壌に固定化し、農作物への放射性セシウムの移行を減らすことを最終目標とし、今後利用しうるプルシアンブルーの特性を調べるために、輸入品6品目を比較して実験を行った。

プルシアンブルー (Prussian Blue ; PB) は、図1の構造を有するヘキサシアノ鉄 (II) 酸化カリウム鉄 (II) である。化学式は  $\text{KFe}[\text{Fe}(\text{CN})_6]_3$  であり、分子量は 306.9 である。

プルシアンブルーはフェロシアン化第2鉄に属し、一般的には青色顔料としてペンキ、インク、クレヨンなど身近なところで使用されている。消化管に吸収されないコロイド状物質で、毒性が低く、経口的に使用でき、セシウム、タリウムなどの一価陽イオンに対し結合する。しかし、かなり特殊な条件下では分解してシアン化合物の放出可能性があることも示唆されている<sup>7)</sup>。医薬品としては、タリウムやセシウムが腸肝サイクルにより腸管内に分泌されたとき、これを捕捉して再吸収を阻害し、便中への排泄を促進することをその作用機序とする。

現在、わが国では国産のプルシアンブルーは存在せず、多種の輸入品が流通している。本研究では、これら輸入品に関してその性能・特徴を明確にすることを目的とした。特に、実用の際に重要となる水溶解性<sup>8)</sup> についても検討した。

## 2. 実験方法

本研究で使用したプルシアンブルーはすべて輸入品で、生産国および生産会社は秘匿とする。ここではすべてのプルシアンブルーを A, B, C, D, E の記号にて表す。土壌は、平成 23 年 5 月に福島県南相馬市内の農業地で採取したものをを使用した。

## 2-1. 汚染土壌溶出放射性セシウム吸着実験

- (1) 福島県南相馬市の土壌 1 kg を十分に乾燥させた。
- (2) その後、5 mesh の篩に掛けたのち、十分に混和し、20 g を量り取った。
- (3) 2 の土壌に 80 g の脱イオン水を入れて、振盪によって十分に混和した。
- (4) その後、被験物質であるプルシアンブルー A～E の 1 g を量り取り、3 の容器に入れた。
- (5) 転倒混和装置 (30 回/分) にて 12 時間転倒混和した。その後、30 分間放置した。
- (6) 5 の水の部分を取り出し、3000 rpm で 20 分間遠心分離した。
- (7) 上清だけを取り出し、そのうち 50 mL を測り取りサンプルとした。本サンプルをゲルマニウム半導体検出器 (MCA-7700 ; SEIKO EG&G) で 12 時間の累積放射カウントを測定した。測定は 2 つのサンプルについてそれぞれ 2 回測定を行い、その平均を測定値とした。なお、すべての測定値は、サンプル測定初日 (2012 年 4 月 14 日) に減衰補正して比較検討した。

## 2-2. 各種プルシアンブルーの水溶解性実験

- (1) 25°C の湯浴を作成した。
- (2) 100 mL のビーカーに 50 mL の純水を量り取った。このときに、pH メータ (PH 8153-J ; 横河電機) で pH を測定した。
- (3) 各種プルシアンブルー A～E を 0.02 g ずつ加えた。ガラス棒で掻き混ぜて、目視で完全に溶解していることを確認してから継ぎ足すようにして全体的な溶解性を確認した。
- (4) 3 とは別に、プルシアンブルーの 10 mg/mL 溶液を作成し、2 mL の純水に添加することによって、0.31 % 水溶液を作成し、その吸光度を 700 nm で測定した (濁度測定)。
- (5) 0.125 % 水溶液を作成し、その pH を測定した。
- (6) 超音波の効果を見るために、0.2 % 水溶液を作成し、24 時間超音波処理した。
- (7) 6 の溶液を 1 時間静置し、上清を 10 倍希釈して吸光度 (700 nm) を測定した。

## 2-3. 各種プルシアンブルー含有重金属測定実験

- (1) 各種プルシアンブルー A～E を 0.1 M 塩酸に溶解して、被験溶液とした。
- (2) 前処理はマイクロウェーブ分解し、以下の方法で測定を行った。

分析項目	定量下限 (ppm)	測定方法
カドミウム	10	原子吸光法 <sup>a)</sup>
鉛	20	原子吸光法 <sup>a)</sup>
水銀	10	還元気化原子吸光法 <sup>b)</sup>
全クロム	20	原子吸光法 <sup>a)</sup>
ヒ素	10	水素化物発生原子吸光法 <sup>c)</sup>

a) Z-8200 偏光ゼーマン原子吸光光度計 (日立ハイテクノロジーズ)。

b) RA-3420 水銀分析装置 (日本インスツルメント)。

c) SOLLAR S4 原子吸光分析装置 (サーモフィッシャーサイエンティフィック)。

すべての実験は、25°Cの恒温還流装置内で実施した。純水は18 M $\Omega$ 以上の抵抗値のものを使用した。

### 3. 実験結果・考察

#### 3-1. 汚染土壌溶出放射性セシウム吸着実験

表1に、上清中の放射能を記載する。ただし、数値が小さくなりすぎるために、水1Lあたりの10時間の累積カウント (Bq) で示す。

この結果より、プルシアンブルー A, C, D, E には放射性セシウム 96%以上吸着する作用があることが判明した。ただし、プルシアンブルー B に関しては、30%程度とかなり小さかった。多くのプルシアンブルーは本実験条件では放射性セシウムに対する吸着効果が大いだが、その効果を十分に発揮していないものも存在した。

#### 3-2. 各種プルシアンブルーの水溶解性実験

水中の放射性セシウムを捕捉するにあたって、プルシアンブルーの水との混和性 (水溶解性) を調べた (表2)。この結果、0.31%のプルシアンブルー水溶液の濁度 (700 nm の吸光度) は

表1. プルシアンブルー適用後の土壌溶出水の放射性セシウム放射能

被験物質	対照	プルシアンブルー				
		A	B	C	D	E
セシウム 137	1788	23.3	1223	27.3	52.9	69.7
セシウム 134	1183	-41.2	984	17.1	39.6	58.8

通常、ニュースなどで示される値の36000倍の数値である。

表2. 各条件における各種プルシアンブルーの水溶解性と pH

被験物質	A	B	C	D	E
所感	混ざりやすい	不純物が多い	混ざりやすい	混ざりにくい	混ざりにくい
0.31% 水溶液の吸光度 (700 nm)	3.35	1.05	2.50	1.34	1.76
0.125% 水溶液の pH	5.55	5.06	5.74	3.91	3.76
0.2% 水溶液を超音波 (24 h) 後、上清を10倍希釈し吸光度 (700 nm) を測定	3.18	1.99	3.13	0.02	0.01

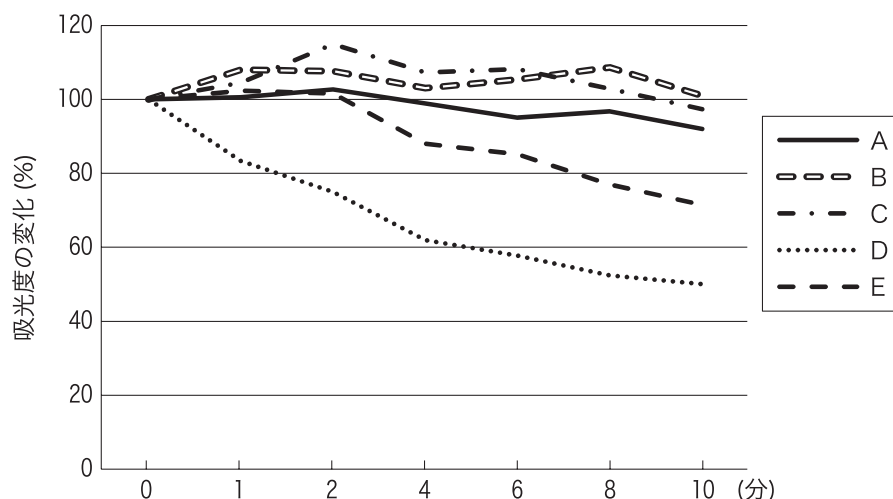


図2. プルシアンブルー A～E (0.1%溶液) の超音波処理後の濁度変化

A > C > E > D > B の順に高く、プルシアンブルーをより混濁させていることが明らかとなった。なお、プルシアンブルー B は、目視による観察でも何らかの不純物が含まれている可能性が示唆されるほど異物が存在した。

なお、0.125%のプルシアンブルー水溶液の pH は、プルシアンブルー A が 5.55, C が 5.74 と、空気と平衡になった通常の水と同程度の pH であり、プルシアンブルー C は 5.06 とわずかに酸性、プルシアンブルー D は 3.91, E は 3.76 と明らかな酸性を示した。

次に、水溶解性を上げるために、超音波処理を行った。0.2%プルシアンブルー水溶液を 24 時間超音波処理後、上清を 10 倍希釈して 700 nm で吸光度を測定したところ、表 2 のように、プルシアンブルー A および C は高い濁度を示し、溶解が進んでいることがわかった。一方で、プルシアンブルー D および E は濁度が小さく、水溶解性が乏しいことが判明した。この理由を探るために、0.1%プルシアンブルー水溶液を超音波処理したのち、濁度を時間経過で追ったところ、図 2 のように、プルシアンブルー D および E は、他のプルシアンブルーに比して、いったん懸濁したあとの沈降が早いことが明らかになった。

### 3-3. 各種プルシアンブルー含有重金属測定実験

本研究における目的はプルシアンブルーによる農作地の放射性セシウム固定化である。農作地に適用可能なものであるか否かを調べるために、重金属含有量を測定した。項目は、農薬で適用されるカドミウム、鉛、水銀、全クロム、およびヒ素とした。各種プルシアンブルーに含まれる重金属測定の結果を表 3 に示す。

これらの結果から、全クロムが検出されたプルシアンブルー B, C, および E は不適合であることが明らかとなった。

表 3. プルシアンブルー A～E に含有される重金属 (数値の単位は ppm)

被験物質			A	B	C	D	E	
分析項目	元素	記号						検出限界
	カドミウム	Cd	10	不検出	不検出	不検出	不検出	
	鉛	Pb	20	不検出	不検出	不検出	不検出	
	水銀	Hg	10	不検出	不検出	不検出	不検出	
	全クロム	T-Cr	20	不検出	400	26	不検出	64
	ニッケル	Ni	10	34	23	25	不検出	19
	ヒ素	As	10	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出
	チタン	Ti	20	72	不検出	1100	60	51

#### 4. 結論・展望

本研究では、放射性セシウムの吸着剤として注目を集めているプルシアンブルーを農作地に適用することによって、放射性セシウムを土壤に固定化し、農作物への放射性セシウムの移行を減らすことを最終目標にした。そのために、輸入されているプルシアンブルーの放射性セシウム吸着性能、水溶解性、および農作地散布の基盤となる重金属含有量について測定を行った。その結果、すべてのプルシアンブルーが同等の性能および品質を持つのではなく、製品によって大きく異なることが明らかとなった。今後、プルシアンブルーを使った製品なども開発する予定であるが、それらに使用されるプルシアンブルーの性能・品質は厳しく評価・検討される必要があることがわかった。

#### 5. 謝辞

本研究の一部は、平成 25～26 年度とうきゅう環境財団助成金 (No. 2013-07 号) および平成 25～27 年度 JSPS 科研費基礎研究 (C) (No. 25350264) の助成を受けました。また、本研究を遂行するにあたって、慶應義塾大学医学部放射線安全管理室の皆様へたいへんお世話になりました。ここに深謝申し上げます。

#### 6. 参考文献

- 1) 井上浩義：放射線障害の機構. 日本抗加齢医学会雑誌, 7(5), 671-675, 2011.
- 2) Sawhney BL: Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: A review. Clays and Clay Minerals. 1972; 20: 93-100.



- 3) Delvaux B, Kruyts N, Maes E, Swolders E: Fate of radiocesium in soil and rhizosphere. In Trace Elements in the Rhizosphere. Eds. Gobran, G.R., Wenzel, W.W., and Lombi, E., 2000, 61–91. CRC Press, London.
- 4) Parab H, Sudersanan M.: Engineering a lignocellulosic biosorbent—coir pith for removal of cesium from aqueous solutions: equilibrium and kinetic studies. *Water Res.*, 2010 Feb;**44**(3):854–60.
- 5) Matsuda T, Kim J, Moritomo Y.: Control of the alkali cation alignment in Prussian blue framework. *Dalton Trans.*, 2012 Jul 7;**41**(25):7620–3.
- 6) Hu B, Fugetsu B, Yu H, Abe Y.: Prussian blue caged in spongiform adsorbents using diatomite and carbon nanotubes for elimination of cesium. *J Hazard Mater.*, 2012 May 30;**217–218**:85–91.
- 7) Yang Y, Brownell CR, Sadrieh N, May JC, Del Grosso AV, Lyon RC, Faustino PJ.: Validation of an in vitro method for the determination of cyanide release from ferric-hexacyanoferrate: Prussian blue. *J Pharm Biomed Anal.*, 2007 Mar 12;**43**(4):1358–63.
- 8) Thompson DF, Callen ED.: Soluble or insoluble prussian blue for radiocesium and thallium poisoning? *Ann Pharmacother.*, 2004 Sep;**38**(9):1509–14.

## 多摩川における放射性同位元素の堆積

島村安俊<sup>\*1</sup>・母里彩子<sup>\*2</sup>・坂井慈実<sup>\*3</sup>・井上浩義<sup>\*1,#</sup>

Radioactive Analysis of soil in the Tama River.

Yasutoshi SHIMAMURA, Ayako MORI, Itsukushimi SAKAI and Hiroyoshi INOUE

Summary—The accident at the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011 has resulted in the release of many radioactive isotopes. This has added significantly to the level of radiation in the environment and studies show this to inversely correlate with the distance from the site. The concern over artificial radiation caused by isotopes including Caesium-137 that have a long half-life is heightened by its ability to easily move and spread in nature. This raises the question of to what extent are people living further away from the site at risk to radiation exposure. Therefore to address this we sought to monitor radiation levels in soil samples at sites not in the immediate vicinity of the accident. These include those close to major population areas along the Tama River flowing through Kanagawa prefecture near to the Tokyo Metropolis and into the Tokyo Bay. Here we report our methodology and results thus far obtained.

Key Word: natural radiation, Fukushima daiichi nuclear power plant, Tama river, cesium-137

---

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

\*2 慶應義塾大学医学部薬理学教室 (〒160-8582 東京都新宿区信濃町35番地) : Department of Pharmacology, Keio University School of Medicine, 35, Shinanomachi, Shijuku, Tokyo 160-8582, Japan. E-mail: ayamori@a5.keio.jp

\*3 久留米大学医学部内科学講座 (消化器内科部門) (〒830-0011 福岡県久留米市旭町67番地) : Department of Internal Medicine, Kurume University School of Medicine, 67, Asahi-machi, Kurume 830-0011, Japan. [Received Nov. 7, 2014]

# 慶應義塾大学医学部 (信濃町キャンパス) 放射線取扱主任者

## 1. 諸言

約 46 億年前の地球誕生以来、地球にはつねに放射線が飛び交っていた。これは、宇宙線、土地殻からの放射線、気体状の放射性同位元素からの放射線、いわゆる自然放射線である。一方で、われわれ人類は、1895 年のレントゲン博士による放射線発見まで、身近な放射線を認識することはなかった。1942 年にフェルミ博士によって初めて原子炉がつくられ、その後開発された数々の核反応によって、現在では新たな放射性同位元素が地球上に存在するようになった。環境中の放射能を測定することは、地誌学的な意義はもちろん、人類の原子力利用をモニタリングする意味でも重要である。本研究では、公益財団法人とうきゅう環境財団の支援を得て、多摩川およびそれが流れ込む東京湾の河岸、川底、および海底の表面土壌を採取し、環境放射能測定を行なった。本論文では、まず多摩川下流の 1 地点の土壌について測定を行なったので、測定方法および結果の概要、そしてこの結果に基づく今後の方針に関して記述する。

## 2. 実験方法

### 2-1. サンプルング

本報告では、多摩川の 6 カ所のサンプルング場所 (図 1) のうち、六郷土手付近の河川敷のサンプルング土壌の測定結果を示す。この多摩川駅付近河川敷では、A ~ F の 6 カ所で土壌サンプルングを行なった (図 2)。サンプル地点の位置情報は、携帯式 GPS 装置 eTrex 20 (Garmin 社) を用いて採取した。

- ・日時：2013 年 11 月 19 日
- ・天候：晴れ
- ・気温：最高 17.4 / 最低 8.2°C

サンプル地点の放射能および空間線量率は、サンプル位置の上 1 m における放射能および空間線量率を測定した。放射能は GM サーベイメータ (日立アロカ製)、また、空間線量率は空間線量率計 (日立アロカ製) を用いた。測定は 3 回行ない、その測定を平均した値を測定値とした。

### 2-2. 土壌乾燥

採取した土壌は、120°C で 24 時間以上乾燥させ、恒質量となったところで、網目 3 mm の篩にかけた。その後、約 100 g (詳細な質量は別途測定した) を  $\gamma$  線測定装置である NaI シンチレーション  $\gamma$  カウンター (Ospray, キャンベラ社) の校正に用いたものと同じ容器に入れ、密閉した。



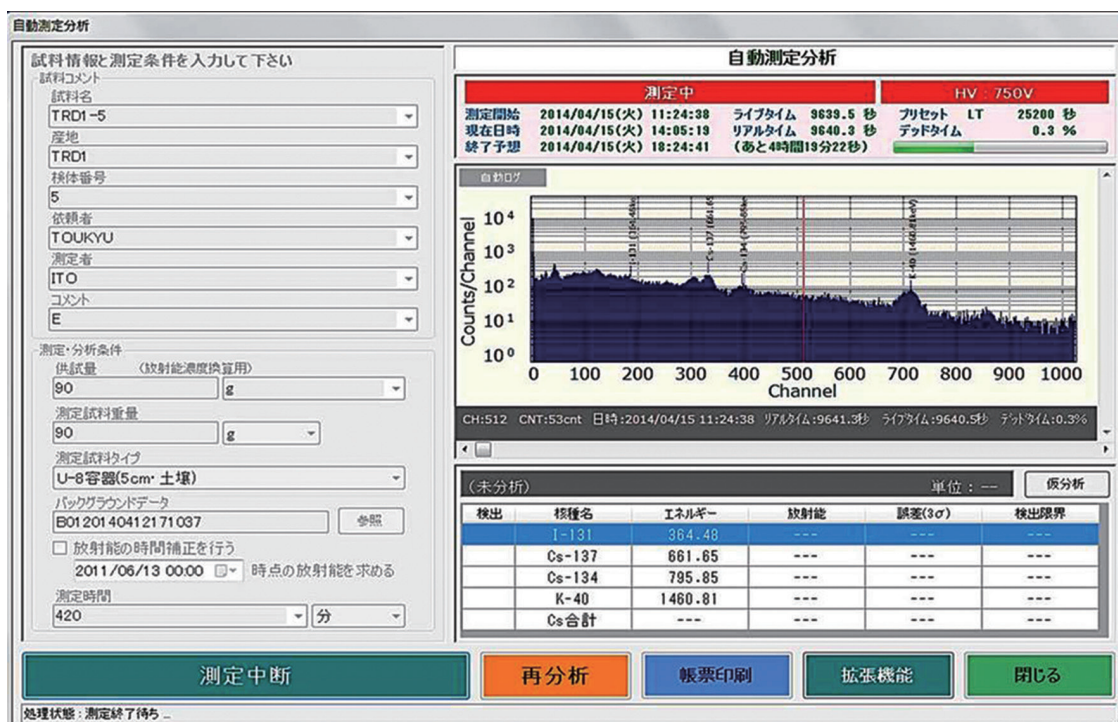


図3. 土壌サンプルのNaI (Tl) シンチレーションカウンタ測定結果 (計測中の画面)  
画面左側に測定条件を入れる。画面右には測定 $\gamma$ 線のエネルギーごとのカウントがチャートとして記録される。本解析ソフトでは、このチャートから、目的とする放射性同位元素の放射能を、減衰補正を行なったうえで数値化できる (右下表)。

### 2-3. $\gamma$ 線測定

上記NaIシンチレーション $\gamma$ カウンターを用いて、7時間、 $\gamma$ 線を累積測定し、マルチチャンネルアナライザー (Model 802, キャンベラ社) でチャート化して (図3), その面積で放射能を計数した。

### 2-4. $\beta$ 線測定

土壌中の $\beta$ 線放出核種、とくに福島第一原発事故によって放出され、かつ向骨元素であるために体内からの排泄が悪いことから注目されているストロンチウム90 (Sr-90) について、平成15年7月に改訂された文部科学省科学技術・学術政策局・原子力安全課防災環境対策室の「放射性ストロンチウム分析法」に従って行なった。以下に簡単にまとめる。

- (1) 乾燥土壌 100 g を蒸発皿に入れ、500°Cで5時間、加熱した。
- (2) 放冷後、2 L ビーカーに移し入れ、ストロンチウム担体溶液 (10 mgSr/mL) を正確に5 mL 加え、よくかき混ぜた。
- (3) 塩酸 1 L を少しずつ加え、蓋をしてホットプレート上で、沸騰する直前の状態で3時間、加熱した。
- (4) ブフナー漏斗と濾紙 (No.5 C) の上に、ガラス繊維濾紙 (GA 200) を重ねて吸引濾

- 過し、残留物は温水で洗浄した。濾液と洗液を合わせて、さらに水を加えて液量を 2.5 L とした。
- (5) カルシウム担体溶液 (50 mg Ca/mL) を 5 mL 加えた。
  - (6) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを少しずつ加えて、pH 10 以上とした。
  - (7) 炭酸ナトリウム 50 g を加え、攪拌して溶解したのち加熱沸騰させて、沈殿を熟成した。放冷後、沈殿が沈降するまで静置した。
  - (8) 上澄み液はデカンテーションで除去し、残りは遠心分離してできるだけ液体を除去した。
  - (9) 沈殿を塩酸に溶解し、2 L ビーカーに移して水を加えて、約 1.5 L とした。沸騰するまで加熱したあとで、シュウ酸 50 g を加え、アンモニア水で pH 4.0 ~ 4.2 に調整した (ブロモクレゾールグリーン溶液で確認)。
  - (10) 再度、加熱して沈殿を熟成した。そして、放冷し、沈殿が沈降するまで静置した。
  - (11) デカンテーションで上澄み液をできるだけ 3 L ビーカーに移した。沈殿は、塩酸を用いて他のビーカーに移した。
  - (12) 上澄み液に、カルシウム担体溶液 (50 mg Ca/mL) を 5 mL 加えた。
  - (13) 加熱し、かき混ぜながら塩酸を少しずつ加え、生成したシュウ酸カルシウムの白い沈殿を一度溶解した。そのまま沸騰するまで加熱したのちにシュウ酸 10 g を加え、アンモニア水で pH 4.0 ~ 4.2 に調整した (ブロモクレゾールグリーン溶液で確認)。再度、加熱して沈殿を熟成した。放冷し、沈殿が沈降するまで静置した。
  - (14) デカンテーションで上澄み液をできるだけ捨てて、沈殿を含む残りは、塩酸を用いて、上記 11 の他のビーカーに移した。
  - (15) 加熱しながら塩酸を少しずつ加え、沈殿を完全に溶解し、水を加えて約 600 mL とした。
  - (16) 沸騰するまで加熱したのち、シュウ酸 5 g を加え、アンモニア水で pH 4.0 ~ 4.2 に調整した (ブロモクレゾールグリーン溶液で確認)。再度、加熱して、沈殿を熟成した。放冷し、沈殿が沈降するまで静置した。
  - (17) 上澄み液の大部分をデカンテーションで除き、ブフナー漏斗と濾紙 (No.5 C) を用いて沈殿を吸引濾過し、シュウ酸アンモニウム溶液 (0.2 重量%) 50 mL を 3 回に分けて洗浄した。濾液ごと沈殿を蒸発皿に移し、乾燥したのち 600°C で 3 時間、加熱した。
  - (18) サンプルを塩酸で溶解し、1 L ビーカーに移した。ホットプレート上で蒸発乾固したのち、塩酸 200 mL を加えて溶解した。濾紙 (No.5 C) を用いて濾過し、塩酸で洗浄した。濾液と洗液を合わせ、さらに塩酸を加えて約 500 mL とした。
  - (19) サンプル溶液をイオン交換樹脂カラムに流速 5 mL/分を通し、次に水 30 mL を通した。
  - (20) 溶離液 A (15.4 重量% 酢酸アンモニウム溶液 : メタノール = 1 : 1) 1100 mL を流速 5 mL/分を通し、流出液は廃棄した。
  - (21) 溶離液 B (15.4 重量% 酢酸アンモニウム溶液) 600 mL を流速 5 mL/分を通し、ストロンチウムを溶出した。

- (22) 溶出液を加熱し、蒸発乾固した。水 10 mL および硝酸 10 mL を加えて乾固物を溶解したのち、再度、蒸発乾固した。
- (23) 水 20 mL を用いて、乾固物を溶解して、100 mL ビーカーに移した。
- (24) 塩化鉄 (III) 溶液 (5 mg Fe/mL) 1 mL, 塩化アンモニウム 1 g, およびフェノールフタレイン溶液 0.5 mL を加えてから加熱し、二酸化炭素を追い出した。液が赤色を呈するまでアンモニア水を少しずつ加え、水酸化鉄 (III) を沈殿させた。さらにアンモニア水 1 mL を加えて、沈殿を加熱熟成した。
- (25) 濾紙 (No.5 A) を用いて速やかに濾過し (この時間をスカベジング日時とした), 沈殿を温めたアンモニア水で洗浄した。濾液と洗液を 100 mL ビーカーに入れ、沈殿は廃棄した。
- (26) 飽和炭酸アンモニウム溶液 5 mL を加え、ホットプレート上で炭酸塩沈殿を加熱熟成した。
- (27) あらかじめ質量を測ったガラスフィルター (1 G 4) を用いて沈殿を吸引濾過し、アンモニア水およびエタノールで洗浄した。110°C で 1 時間乾燥し、デシケーター中で法令したのち、沈殿の質量を測定した。
- (28) 沈殿を 2 週間以上、放置した。
- (29) 低バックグラウンドの液体シンチレーションカウンタで測定した。

NaI (TI) シンチレーションカウンタによる測定を 2 回行ない、その平均を、土壤の単位重量 (1 g) あたりの放射能で表わした。なお、放射能はすべて平成 26 年 4 月 1 日に測定したように、下記の半減期の式を用いて補正した。

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

ここで、 $N$  は時間  $t$  における原子数、 $\lambda$  は壊変定数である。

### 3. 結果・考察

それぞれ A ~ F の土壤サンプル採取地点の放射能および空間線量率は、表 1 のようになった。放射能のバックグラウンドは 40 ~ 50 cpm であるため、すべての地点は平均的な値を示した。一方で、空間線量率は、横浜市、川崎市などで測定されている平常値と同じであった。土壤の単位重量あたりの  $\gamma$  線放射能を表 2 に示す。 $\beta$  線については、すべての測定土壤において検出限界以下であった。なお、全  $\beta$  線測定を行なうと、有為な値を得た。 $\gamma$  線放射核種については、今回の六郷土手周辺の多摩川土壤では、天然放射性核種である K-40 は必然的に見つかったものの、その他にも、人工放射性核種の Cs-134, Cs-137, そして I-133 が見いだされた。2011 年 3 月の福島第一原発事故以降、これら人工放射性核種は、ロシア・日本海<sup>1)</sup>, ヨーロッパ全土<sup>2)</sup>, オーストリア<sup>3)</sup>, ポーランド<sup>4)</sup>, そして、当然のことながらわが国の生活圏<sup>5)</sup> や環境放射能の定点観測を長年続けている筑波<sup>6)</sup> でも見いだされている。さらには生物への移行も確認さ

表 1. 六郷土手周辺サンプリング地点と放射能・空間線量率

地点	位置		放射能 (cpm)	空間線量率 ( $\mu$ Sv/h)
	緯度(北緯)	経度(東経)		
A	35度32分28.2秒	139度42分62秒	50	0.05
B	35度32分18秒	139度42分42.8秒	50	0.06
C	35度32分24.8秒	139度42分52.2秒	60	0.05
D	35度32分16.2秒	139度42分32.2秒	60	0.06
E	35度32分23.2秒	139度42分29.9秒	55	0.06
F	35度32分23.9秒	139度42分36秒	65	0.07

A～Fは図2の地図中の点と対応する。

表 2. 六郷土手周辺サンプリング地点に存在する放射性核種と放射能

核種名	$\gamma$ 線エネルギー (keV)	放射能濃度 (Bq/g)					
		A地点	B地点	C地点	D地点	E地点	F地点
I-131	364.48	0.016683	0.032967	0.012333	0.01092	—	0.013304
Cs-137	661.65	0.040364	0.077165	0.098961	0.118161	0.092884	0.020173
Cs-134	795.85	0.01391	0.026256	0.035895	0.041469	0.029048	0.007658
K-40	1460.81	0.656292	1.022977	1.032569	0.570535	0.827037	0.597362

A～Fは図2の地図中の点と対応する。

れており、植物だけでなく水産物にも蓄積が見られている<sup>7)</sup>。

これらの結果から、以下のことが示唆された。

- (1) 自然放射性核種である K-40 の濃度が、サンプリング場所により異なることが明らかとなった。これは、カリウム自体の堆積のちがいによることが考えられる。今後、国土地理院が発行する地質図を参考に、土質（とくにカリウムを多く含む花崗岩）と K-40 濃度との関係を明確にしていきたい。
- (2) 福島第一原発事故により放出された Cs-134 と Cs-137 が、多摩川の土壌から見いだされた。この両者は事故直後には同量が存在していたので、現在のこの数値は Cs-134 と Cs-137 の半減期の差によるものと思われる。今後、定点測定を実施し、物理的半減期による減衰以外の因子がどのように作用するかを検討を行なっていく。
- (3) 福島第一原発事故直後には観測されていた I-131 が、いまだに観測された。半減期が 8 日間と非常に短いために、事故後 3 年半以上経過している現在、新たなベントがない状態ではこの I-131 が見いだされることはない。これまでいくつかの湖沼や河川で医療用 I-131 が見いだされている<sup>8,9)</sup>。本研究では、われわれの生活圏の外側にある、多



摩川最上流の小河内ダムでのサンプリングを行なっている。この測定結果によって、新たな考察が可能となりうる。

#### 4. 今後の展開

今後、すべての土壌サンプルの測定を終え、東京湾の海底土壌の結果とも合わせて考察を行なっていきたい。

#### 5. 謝辞

本研究の一部は、公益財団法人とうきゅう環境財団の平成 25 および 26 年度研究助成を得て行なっています。ここに深謝申し上げます。

#### 6. 参考文献

- 1) Neroda AS, Mishukov VF, Goryachev VA, Simonenkov DV, Goncharova AA.: Radioactive isotopes in atmospheric aerosols over Russia and the Sea of Japan following nuclear accident at Fukushima Nr.1 Daiichi Nuclear Power Station in March 2001. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 2014 Apr; **21** (8): 5669–77.
- 2) Masson O, Ringer W, Mala H, Rulik P, Dlugosz-Lisiecka M, Eleftheriadis K, Meisenberg O, DeVismes-Ott A, Gensdarmes F: Size distributions of airborne radionuclides from the Fukushima nuclear accident at several places in Europe. *Environ. Sci. Technol.* 2013 Oct 1; **47** (19): 10995–1003.
- 3) Steinhäuser G, Merz S, Hainz D, Sterba JH.: Artificial radioactivity in environmental media (air, rain water, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 2013 Apr; **20** (4): 2527–34.
- 4) Dlugosz-Lisiecka M, Bem H.: Aerosol residence times and changes in radioiodine-131 I and radiocaesium-137 Cs activity over Central Poland after the Fukushima-Daiichi Nuclear reactor accident. *J. Environ. Monit.* 2012 May; **14** (5): 1483–9.
- 5) Nagataki S, Takamura N, Kamiya K, Akashi M.: Measurements of individual radiation doses in residents living around the Fukushima Nuclear Power Plant. *Radiat. Res.* 2013 Nov; **180** (5): 439–47.
- 6) Doi T, Masumoto K, Toyoda A, Tanaka A, Shibata Y, Hirose K.: Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: characteristics of the radionuclides derived from Fukushima. *J. Environ. Radioact.* 2013 Aug; **122** : 55–62.

- 
- 7) Wada T, Nemoto Y, Shimamura S, Fujita T, Mizuno T, Sohtome T, Kamiyama K, Morita T, Igarashi S.: Effects of the nuclear disaster on marine products in Fukushima. *J. Environ. Radioact.* 2013 Oct; **124** : 246–54.
  - 8) Howe JR, Lloyd MK.: Radio-iodine in thyroid glands of swans, farm animals and humans, also in algae and river water from the Thames Valley, *England. Sci. Total Environ.* 1986 Jan; **48** (1–2): 13–31.
  - 9) Ravichandran R, Binukumar JP, Sreeram R, Arunkumar LS.: An overview of radioactive waste disposal procedures of a nuclear medicine department. *J. Med. Phys.* 2011 Apr; **36** (2): 95–9.

Keio University



多摩川水域における放射性同位体分布状況調査およびその地形との関連探究

(研究助成・学術研究VOL. 44—NO. 316)

著 者 井上 浩義

発行日 2015年11月1日

発行者 公益財団法人とうきゅう環境財団

〒150-0002

東京都渋谷区渋谷1-16-14 (渋谷地下鉄ビル内)

TEL (03) 3400-9142

FAX (03) 3400-9141

<http://www.tokyuenv.or.jp/>