

## 松葉のモニタリング結果の整理と見直しについて（概要版）

### モニタリングの目的

松葉には、松脂により大気浮遊じんや降下物が付着しやすい。常在する二年葉を対象に全国で放射性物質が調査されており、本県では、1977年から調査を開始した。

**原子力発電所由来の大気浮遊じん中の放射性物質および核実験由来のフオールアウトの挙動の把握を目的としていた。**

### 事故後の現状

2011年3月の事故当時に存在していなかった松葉からも放射性セシウムが検出される

→ 松脂に対する付着（舞い上がり等含む）なのか、経根吸収等の内部取り込みなのか？

調査したところ、**内部取り込みがほとんどで、**

**松脂への付着はごくわずか**であった（松脂の分析及び松葉のイメージングプレートによる調査）

松葉の放射能レベルに関して、1980年代の核実験やチェルノブイリ原子力発電所事故時の本県での測定変動は、ベースラインが不検出 $\sim$ 0.1Bq/kgであったのに対して、 $4\sim 12$ Bq/kgであった。これに対して、1F発電所周辺では、2016年度以降、5km以内の地点で $99\sim 2,300$ Bq/kg、最も遠い地点で $1.7\sim 22$ Bq/kgである。この状況では、大気浮遊じんやフオールアウトの検出という目的を果たすことは難しい状態になっている

### 今後の松葉モニタリング

大気浮遊じんやフオールアウトの検出は事故後拡充した連続ダストモニタ等を主力とし、松葉については、**長期的なレベルの推移や地点間の関係などに着目していくものとする。**このため、これまで年4回としていた調査について、近年採取可能な松葉が減っていることも踏まえ、対象となる二年葉が安定して採取できる秋期の**年1回**の調査とする。



## 松葉のモニタリング結果の整理と見直しについて

令和 2 年 1 2 月 3 日

福島県環境放射線センター

### 1 概要

震災からもうすぐ10年が経過するところ、今後の計画的かつ効率的な測定計画に資するため、これまでに行ってきたモニタリング結果についての整理・再検討が必要であると考えられる。そこで、今回、松葉測定について、これまでの結果を整理し、状況の把握と検討を行ったので報告する。また、今後のモニタリング計画の見直しについて検討する。

### 2 松葉測定の経緯、意義

本県では、「福島県の発電所周辺環境モニタリング計画 [1]」（以下、「監視計画」という。）に基づき、降下物、大気浮遊じん、松葉などの環境試料を定期的にサンプリングし放射能測定を行っている。

松葉は、原子力発電所由来の環境（放射能）汚染の指標生物として1970年代後半頃から各地で測定が行われはじめた [2]。

その理由として、松は地域にかたよらず多く分布すること、2年葉が常在し年間を通じて採取できること、(松脂により)放射性降下物が付着しやすく、風雨によって流出しにくいこと、大気との接触面が大きく、付着・吸入の効果が期待できること、植物体であるため微量元素の濃縮効果が期待できること、ウラン・トリウム系列核種が含まれていないこと、等が挙げられている [2] [3] [4] [5]。

本県でも、松葉は原子力発電所から放出された大気浮遊じん中の放射性物質の環境中における挙動を把握する上での指標植物としており、また、核実験によるフォールアウト核種の挙動の把握にも有効であることから、1977年度から調査を実施している [6]。

このように、松葉は、その表面への粘着性により、核実験や原子力発電所等に由来する何らかのフォールアウトを捉え、それを測定することで、松葉の存在した期間におけるフォールアウトの状況を間接的に観測することを主な目的として測定が行われてきた。

### 3 事故前後の松葉濃度

松葉に含まれる放射性物質については、東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、「事故」という。）以前にも検出されている。図1に事故前の発電所周辺の松葉のセシウム-137濃度について示す。

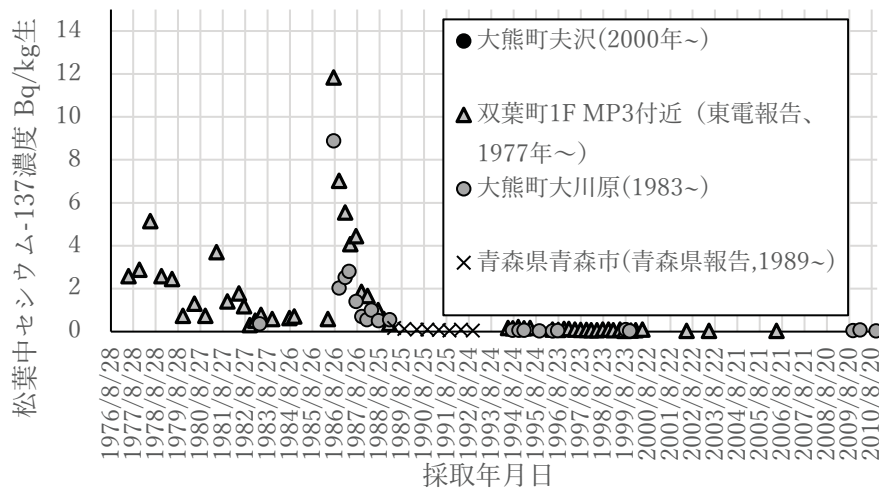


図1 事故前の発電所周辺の松葉測定結果

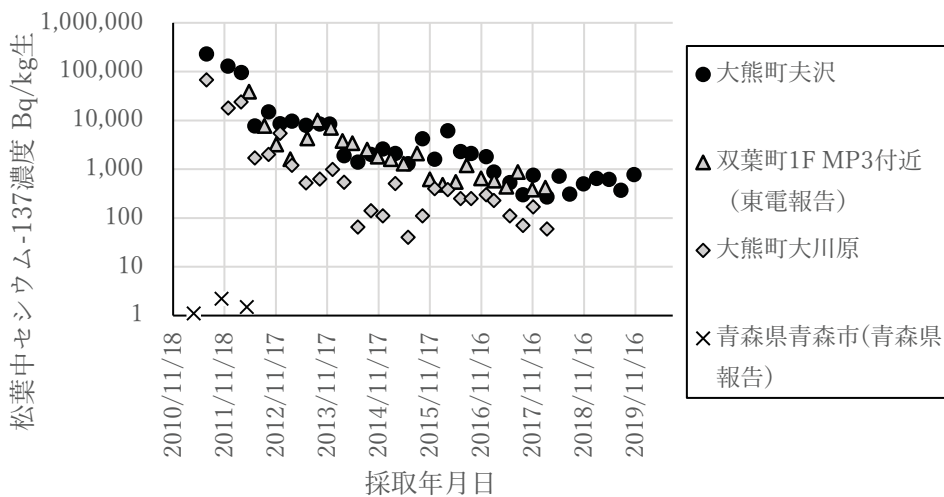


図2 事故後の発電所周辺の松葉測定結果

値は監視計画に基づき、県もしくは東京電力が報告した値であり、全国の結果が取りまとめられている「環境放射線データベース [7]」内に掲載されているものである。また、比較のため、同データベースに掲載されている、青森県が青森市で行った調査結果も示した。プロットは検出されたもののみとし、不検出のものはプロットしていない。これを見ると、事故前も松葉からセシウム-137は検出されており、特に中国で大気圏内核実験が行われた1977年、1980年、チェルノブイリ原子力発電所事故が発生した1986年にピークを持っており、それらの降下物の沈着の影響によるとみられる。その後は概ね不検出～0.1 Bq/kg 程度の濃度で推移しており、これは降下物が土壌へ沈着したものが経根吸収により移行したものであると考えられている [3]。

次に、事故後の松葉のセシウム-137濃度について、図2に示す。非常に幅広いレンジに渡るため、対数グラフで表示している。事故後、2011年度に比べ、2012年度では約一

桁濃度が下がっている。

これについて、監視計画では松葉のうち2年葉を採取することとしているが、2012年度には2年葉と3年葉の両方が調査された。図3のように、3年葉は2011年事故当時に樹上に存在していた葉であり、2年葉は事故当時存在しなかった葉である。

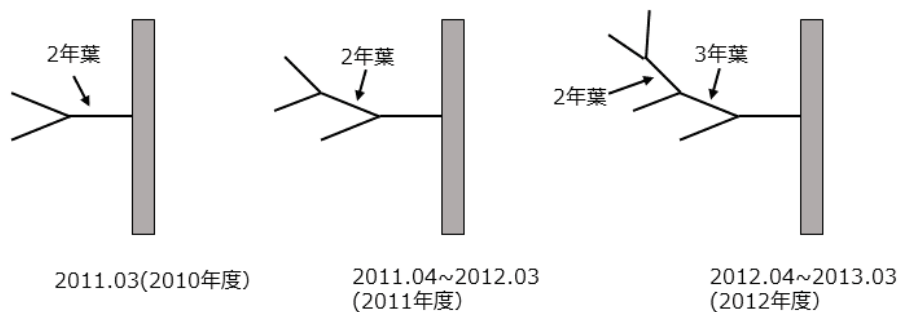


図3 時期に対する2年葉の位置

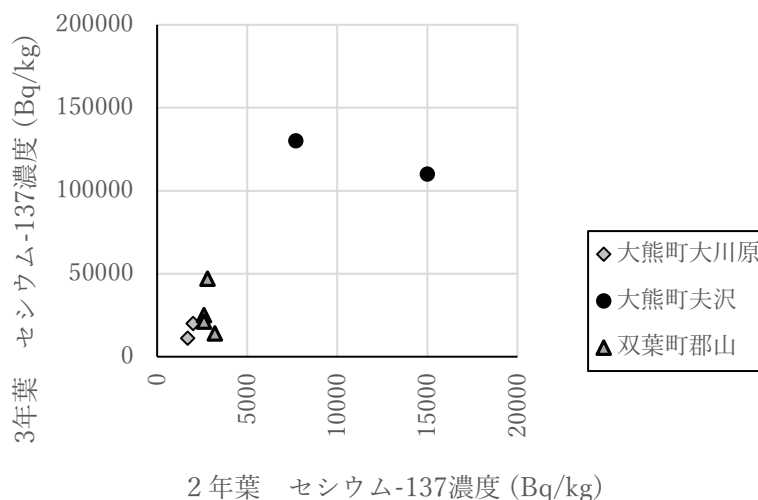


図4 2012年度の2年葉、3年葉松葉の比較

その結果、図4のように、2年葉は3年葉に比べおよそ1/10の濃度であることが示されている。以降、セシウム-137濃度は漸減傾向にあり、前処理方法を生から乾燥に変更した平成28年度以降の値では、1Fから5km以内の大熊町夫沢地点で240-2,300 Bq/kg生、同じく5km以内の双葉町郡山地点で99-320Bq/kg生、発電所周辺で1Fから最も遠いいわき市久之浜地点で1.7~22Bq/kg生、最も濃度の低い傾向にある川内村上川内でND~3.2Bq/kg生となっている。

このように、現在の濃度水準は、概ね不検出~0.1 Bq/kg生程度の濃度で推移していた事故以前の濃度と比較して高濃度であり、前述の中国の大気圏内核実験やチェルノブイリ原子力発電所事故当時に観測された4~12Bq/kg生と比較しても高濃度もしくは同程度である。そのため、現状では、中国の大気圏内核実験やチェルノブイリ原子力発電所事故当時と同程度のフォールアウトがあったとしても、変動の範囲内に埋もれ観測できない可能性が高い。

#### 4 松葉中の放射性セシウム分布

前項で述べたように、2011年3月の事故当時に存在していなかった松葉からも放射性セシウムは検出されている。この放射性セシウムが松葉中に存在している場所としては、表面（松脂）と内部（組織中）の2通りが考えられる。

表面付着の過程は、従来からのモニタリング対象として想定されていた新たな放出・沈着に加えて土壌からの舞い上がり等が考えられ、内部取り込みの過程は経根吸収や経皮吸収が考えられる。

事故前の時点では、大気浮遊じんからは大気圏内核実験時やチェルノブイリ原子力発電所事故時を除き、ほとんど人工核種が検出されない [8]にもかかわらず松葉から検出されることから、1990年以降は土壌経由の経根吸収由来と推定されていた [3]。しかし、事故後は、土壌へ沈着した放射性物質の量が多く、大気浮遊じんの調査でも放射性物質が検出されているため、付着分と経根吸収分の寄与の程度は明らかではない。

そこで、松葉の放射性セシウムについて、洗浄実験とイメージングプレート測定により、松葉表面に付着したものか内部取り込みによるものか、その由来を実験的に調査した。

##### (1) 洗浄実験

###### ア 方法

2019年12月10日に採取した大熊町夫沢地点（ $3.8\mu\text{Sv/h}$ ）の松葉を試料とした。松葉は鞘を取り、半分の長さに切り、10g程度を試料とし、放射性セシウム濃度（本調査ではセシウム-137で評価）を、「①生状態」、「②水洗浄後」、「③水洗浄後に有機溶媒で洗浄後」、の3段階で測定し比較した。また、②および③で発生する洗浄液は濃縮乾固し、残渣を測定した。有機溶媒は松脂を溶解することを目的とし、クロロホルム、テトラヒドロフラン（THF）：トルエン=1:1溶液の2種類を試した。測定はゲルマニウム半導体検出器を用いた。

###### イ 結果

測定結果を図5に示す。値は用いた松葉の単位生重量あたりの濃度に換算している。各洗浄によって変化した量は測定誤差の範囲内であり、ほとんど減少は見られなかった。また、洗浄残渣は各洗浄前の松葉中の放射性セシウム量に対し②で0-3%程度、③で1-3%程度であり、生状態と比較し合計2-6%が洗浄により落ちたことがわかった。

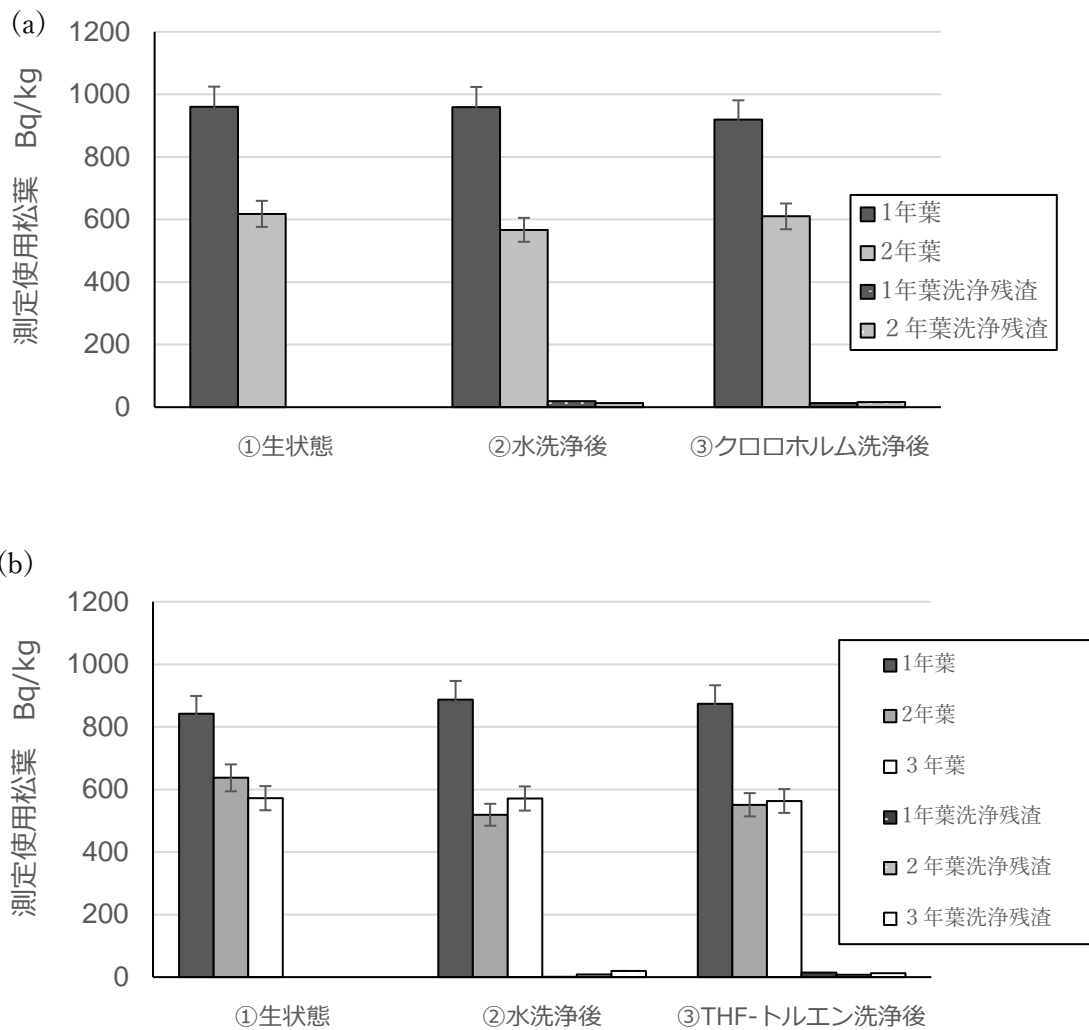


図5 松葉の洗浄結果

(a)クロロホルム洗浄、(b)THF-トルエン洗浄

## ウ 考察

### (ア) 洗浄効果について

水洗浄、クロロホルム洗浄、THF:トルエン=1:1 洗浄ともにほとんど洗浄効果は認められなかった。1997年の報告で、檜崎らはスギの葉の Be-7 濃度分布を調べる際、針葉の外側に付着したエアロゾルや天然ワックスは THF-トルエン=1:1 で1分間洗浄すると完全に除去されるという報告をもとに、洗浄により除去されなかった成分については葉の内部に残留していると判断している [9]。

このため、当該試料の放射性セシウムは、内部に取り込まれた成分がほとんどであり、表面付着はわずかであると考えられた。

なお、葉の内部の放射性セシウムについては、土壌から吸い上げる経根吸収だけでなく、葉表面からの吸収の経路も考えられる。奥村らは、1977年の大気圏内

核実験に起因する降下物と 1978 年に採取した松葉の関係について調べており、ここでは水洗による減少量 20%を葉表面への付着と考え、残りは葉表面から取り込まれたものと考察している [2]。本調査で表面に付着したものが土壌の舞い上がりであれば、セシウムは土壌に結びついているため、核実験による降下物よりも葉表面から取り込まれにくいと考えられる。

#### (イ) 年次比較

通常、監視計画で報告の対象としているのは 2 年葉であるが、今回は 1 年葉と 3 年葉も採取した。その結果は前述の図 5 (b) のとおりであり、3 年葉  $\leq$  2 年葉 < 1 年葉となる傾向が見られた。

一方、1979 年の奥村らの報告では、放射性セシウムを含む人工核種は、1 年葉は 2 年葉のおよそ 20%の量で 1 年葉 < 2 年葉であるのに対し、カリウム-40 は、1 年葉は 2 年葉の 1.5 倍程度の量で 2 年葉 < 1 年葉となっている。カリウム-40 が 1 年葉の方が濃度が高い理由については、経根吸収により取り込まれるカリウムは植物体内の新陳代謝が活発な部分で多く必要とされる事実と符合すると述べられている。また、人工核種は 2 年葉の方が濃度が高い理由としては、カリウムが根からの吸収であるのに対し、他の核種が葉への付着からの吸収のように異なるメカニズムと考えられることを挙げている [2]。

本調査においては、セシウムは奥村らの報告におけるカリウムと同じく 1 年葉の方が濃度が高い。放射性セシウムは、震災から時が経った今、放出直後の状態とは異なり、土壌中ではほぼ平衡状態となって存在していると考えられる。そのため、今回の結果が、1979 年当時の、まさにフォールアウトしている時の 1 年葉と 2 年葉のセシウム濃度の大小関係とは異なり、当時のカリウムに類似した大小関係であることは、表面付着よりも経根吸収等による内部取り込みによる寄与が大きいという推測を支持する結果であると考えられる。

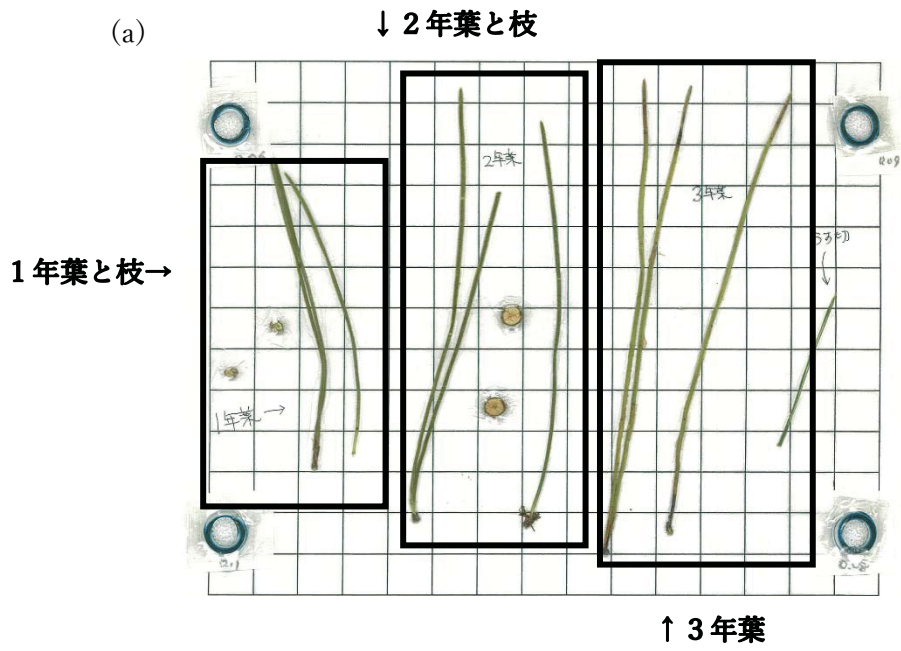
#### (2) イメージングプレートによる分布調査

##### ア 方法

2019 年 11 月 5 日に大熊町夫沢地点で採取した松葉を鞘ごと枝から引き抜き、台紙の上に互いに重なり合わないよう注意して広げ、プラスチックシートで封じ、測定試料とした。試料はイメージングプレートと共に専用の板で挟み、鉛遮蔽した暗所で 11 月 11 日から 12 月 13 日まで静置した。

##### イ 結果と考察

台紙に試料を設置した画像と、イメージングプレートにより得られた画像を図 7 に示す。なお、四隅の丸い部分はマーカーとして置いた塩化カリウムであり、周囲の黒い点はその粒である。



(b)

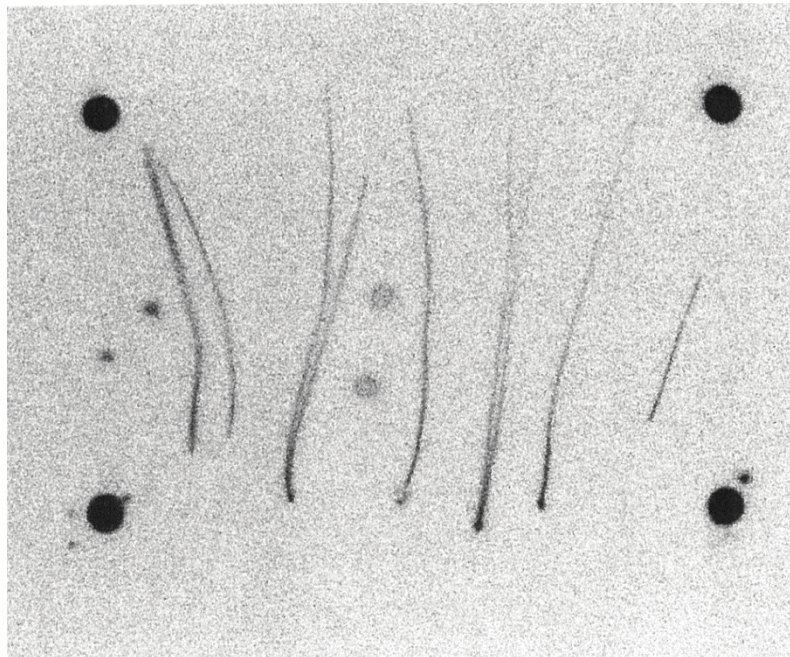


図7 イメージングプレート

(a)露光前サンプル写真、(b)イメージングプレートスキャン画像

イメージングプレートは核種の弁別を行えないため、放射性セシウム(セシウム-



134、セシウム-137)だけでなく、カリウム-40等の天然核種も混ざりうる。しかし、ゲルマニウム半導体検出器による測定結果からネットカウントを比較すると、例えば2年葉でセシウム-137は1,200カウントに対し、カリウム-40は94カウントと、10倍以上小さく、その他の核種もほとんどバックグラウンドレベルであったことから、天然核種の影響はほとんど無視できると考えられる。

イメージングプレートの画像を見ると、松葉表面の放射性セシウムの濃度の分布はなめらかであり、高濃度粒子の付着によるような、特異的に濃度の高いスポットは観察されなかった。

また、(1)で述べたとおり、1年葉の濃度が2年葉と3年葉よりも高いこと、さらに、分布をよく観察すると、2年葉と3年葉は根本付近で濃度が高く、先端に行くに従い濃度は減少すること、一方、1年葉は根本と先端の両方で濃度が高くなっていることがわかった。これらの結果は、松葉中の放射性セシウム分布が外部からの付着ではなく生物学的な生育・代謝によるものであることを示唆している。

### (3) 放射性セシウムの存在する場所について

これらの結果から、現状でモニタリングしている松葉中の放射性セシウムは、当初想定していた表面への付着ではなく、経根吸収等により内部に取り込まれたものであると考えられる。

## 5 現状の松葉モニタリング状況についてのまとめ

現状、モニタリング結果として報告している松葉の放射性物質の濃度の大部分は、表面付着ではなく、内部に取り込みであることがわかった。また、その内部取り込みによって濃度が上がった現在の水準では、仮に新たな放出や何らかのフォールアウトがあったとしても、それが1980年前後の中国の大気圏内核実験やチェルノブイリ原子力事故によってみられたものと同レベルであれば、変動に埋もれてしまい観測できない可能性が高いことを示した。

つまり、現状の松葉のモニタリングは、かつてのフォールアウトを捉えるという意味はほとんど失い、いわば松の生物としての濃度推移を観測しているということがわかった。

なお、フォールアウトを捉える上で、松葉により間接的に観測するよりも、大気浮遊じんや大気降下物等により直接観測する方が、通常は感度も高く、他の変動要因が入りにくいため合理的であると考えられ、事故以降は県内に連続ダストモニタ等を拡充している。

## 6 今後の松葉モニタリングの見直しについて

### (1) 今後の松葉採取頻度

現状、松葉は発電所周辺地点15箇所、比較対象地点5箇所、年4回採取を行っている。これについて、今後は年1回としたい。

## (2) 理由

先に述べたとおり、現状の松葉のモニタリングは、かつてのフォールアウトを捉えるという意味はほとんど失い、いわば松の生物としての濃度推移を観測している。年4回調査を行えば、季節変動も捉えられる可能性があるが、長期的なレベルの推移を把握するという観点からは、年1回の調査で可能である。

一方、緊急時の比較用として、年0回にしてしまうと平常の水準がわからなくなる恐れがあるため、年1回は継続して採取を行っていききたい。

地点数については、事故前は7地点であることを考えると増えているのが現状であるが、今後、農林水産物のモニタリングが再開された段階で再度地点数の妥当性について検討していきたい。

なお、松葉の採取地点によっては、松枯れや剪定、葉の取り過ぎ、切り倒し、松の生長に伴い松葉に届かなくなる等により、採取の難易度が年々上がり、現状高枝切り鋏によって枝を切り落として採取したり（次の年に採取する1年葉も一緒に切り落とすことになる）、計画上200g採取となっている松葉が50g程度しか採れないような状況にある。一方、葛尾村柏原で2018年度に通常の採取地点で採れなかったため付近の別の松の木から採取していたところ、2019年度にはまた通常の採取地点から採れるようになった事例もある。そのため、継続的な松葉採取を行っていくという観点からも、松の生育上無理のないよう採取頻度を見直すことが望ましいと考えられる。

## (3) 採取時期

採取時期について、現状は5月、8月、11月、2月の4回行っている。採取頻度を見直す場合、どの時期が適切であるか、また、季節による差の有無を調べるため、1990年から2010年までの県内データ（県、東電あわせ約330件）を同一地点毎にまとめ、ほぼNDのみの地点を除いた16地点について、地点毎に各四半期の松葉濃度を平均値との比で表し、箱ひげ図で図8にプロットした。なお、NDのデータはおよその下限値である0.02Bq/kgを用いた。

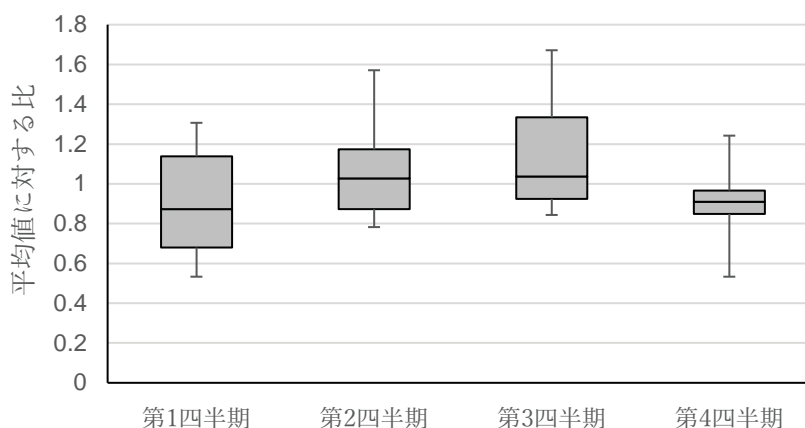


図8 松葉の季節変動

これを見ると、松葉には緩やかに季節変動があるように見え、夏と秋で濃度が比較的高いことがわかる。植物は落葉時にある程度、葉の栄養を樹木に戻すことが知られており、冬の濃度が比較的低いのはこのことを反映していると考えられる。夏と秋を比較する。図8で最も濃度の高い傾向が見られた秋の松葉は、成長が終わり、冬に栄養が回収されて枯れ落ちる直前と考えられ、また、冬を除き樹上に最も長く存在した葉である。

また、実際に採取する観点からは、春は2年葉と3年葉の見分けが付きにくく、冬はほとんど枯れ落ちて樹上に存在しないことから、夏か秋が適している。

なお、他都道府県の実施状況を調べると、実施している自治体では秋はほぼ必ず採取しており、他の季節は自治体によって実施の有無が異なっていた。

これらのことを考慮すると、実施時期は、秋が適切と考えられる。

## 7 まとめ

今回、もうすぐ事故後10年経過することから、モニタリング結果についての整理・再検討の一環として、松葉の測定結果の現状把握、今後の整理の方向性の検討を行った。

その結果、従来の大気浮遊じん中の放射性物質やフォールアウトの挙動把握に利用してきた松葉測定に関しては、長期的なレベルの推移や地点間の関係などに着目していくものとし、これまで年4回実施していた調査を、秋期だけ調査する年1回へ変更する。

モニタリング評価部会で頂く御意見を踏まえたうえで、来年度のモニタリング計画に反映したい。

## 8 参考文献

- [1] 福島県原子力安全対策課放射線監視室.  
<http://www.pref.fukushima.lg.jp/site/portal/genan225.html>
- [2] 奥村克夫ら. 環境放射能試料としての松葉. 芝浦工業大学研究報告理工系編 vol. 23, 11, (1979).
- [3] 小森正樹ら. 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. 環境化学, vol. 12, 4, 809, (2002).
- [4] 阪上正信ら. 松葉、海藻などの微量放射能測定とその評価. 京都大学原子炉実験所, vol. 188, 13, (1979).
- [5] 古川路明. 松葉による環境放射能モニタリング. Radioisotopes, vol. 28, (1974).
- [6] 福島県原子力発電所安全確保技術連絡会. 環境放射能監視の概要. (1998).
- [7] 環境放射線データベース. <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/>, 令和2年1月24日閲覧
- [8] 福島県原子力発電所安全確保技術連絡会. 環境放射能監視の概要. (2009).
- [9] 檜崎幸範, 加留部善晴. ベリリウム-7の樹種別補正特性. 保健物理, vol. 31, 1, 25 (1997).