

# 森林生態系から大気への放射性物質の供給に関する新発見

木名瀬 健  
Kinase Takeshi

## 1. 人工放射性核種の大気への放出の歴史と、その再飛散に関する過去の研究

自然界には様々な放射性物質が存在する。最近話題に上がる<sup>3</sup>H等は発電所だけでなく宇宙線によって年間72 PBqが大気中で自然生成する<sup>1)</sup>(福島第一原発の処理水中<sup>3</sup>Hの予定放出量(2021年6月時点)は、年間0.022 PBq以下)。一方、<sup>137</sup>Cs等は人為生成が支配的で<sup>2)</sup>、その放出は人類と核利用の歴史を象徴している(図1)。その主たる放出源が核実験と原子力発電所事故である。1945~1980年に行われた大気圏内核実験では、948 PBqの<sup>137</sup>Csが大気中に放出された<sup>2)</sup>。放出された人工放射性核種は実験場周辺を強く汚染し、更に成層圏を経由して地球上に降り注ぎ(グローバル・フォールアウト)<sup>2)</sup>、果ては南極表面にも到達し、今日ではアイスコア年代指標の1つにもなっている<sup>3)</sup>。地表面に沈着した

放射性核種は土壌鉱物等に結び付き<sup>4)</sup>、風により舞い上がることで再度大気中に供給される(再飛散)。1990年以降はグローバル・フォールアウトの影響は小さくなり、再飛散プロセス、すなわち周辺での土埃(主に土壌鉱物、鉱物ダストと呼ばれる)の舞い上がりに加え、大陸から運ばれてくる鉱物ダスト(黄砂等)が重要な大気中への放射性物質の供給プロセスとなった<sup>5)</sup>。

2011年3月に福島第一原発事故が発生、6~20 PBqの<sup>137</sup>Csが大気中へ放出され<sup>6)</sup>、東日本の地表を広範囲に汚染した。筆者らのはつくば周辺の月間降水・降下塵(降下物)中<sup>137</sup>Cs放射能を1957年より観測しており、事故直後には事故前の約320万倍に達する放射能を観測した(図1)<sup>7)</sup>。最近の観測値(2018年)でも事故以前の約400倍の<sup>137</sup>Cs放射能がつかばの降下物中で観測されており、国内地表面に沈着した<sup>137</sup>Csが再飛散により今なお大気中に供給され続けて

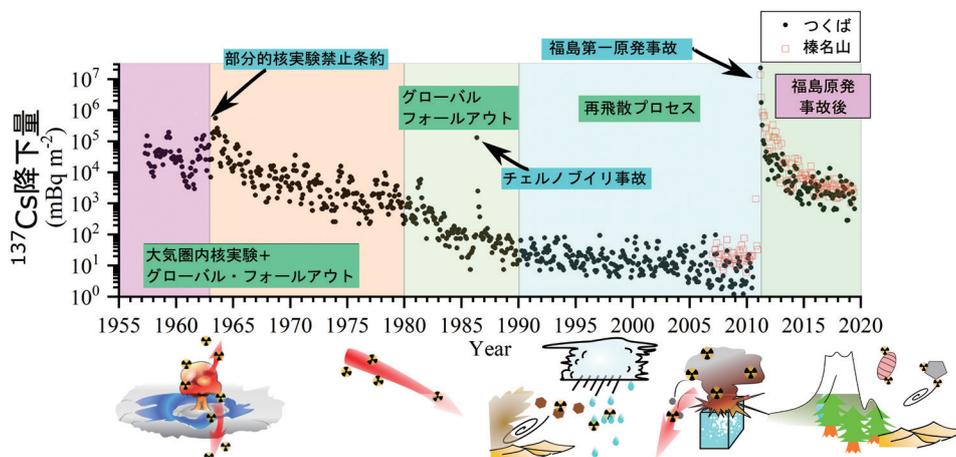


図1 1957年から継続して観測された、つくば周辺における降水・降下塵試料中の<sup>137</sup>Cs放射能月間降下量

いることを示している<sup>7)</sup>。多くの研究では事故以前同様に土埃の飛散が、主な大気中への<sup>137</sup>Csの供給プロセスと考えられてきた<sup>8)</sup>。筆者らは2011年7月より7年以上にわたって、福島県の複数地域でフィルタを用いた大気中の微粒子（エアロゾル）サンプリングや各種エアロゾルのリアルタイム観測（粒子濃度やサイズ分布、ダスト濃度等）を行い、エアロゾルと大気中放射能濃度を観測してきた。その結果、従来の研究で示されてきた銩物ダストの再飛散だけでは大気中放射能が説明できない現象を発見し、その謎の解明に挑戦してきた。本稿では、その研究成果について紹介する。

## 2. 観測された大気中放射能の季節変動の謎

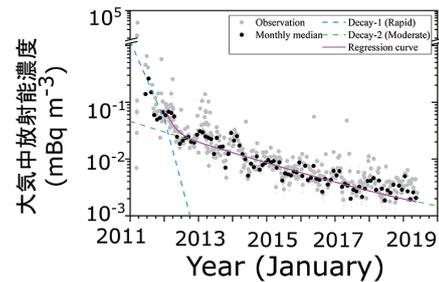
福島原発より放出された<sup>137</sup>Csの形態は硫酸エアロゾル（水溶性）<sup>9)</sup>やガラス質で高濃度の放射能を含んだ不溶性粒子<sup>10)</sup>と報告されており、それらの粒子が地表面へと沈着し環境中へと移行した。<sup>137</sup>Csの大部分は粘土銩物に固定化されるか不溶性粒子態のまま地表に残り、銩物ダストの飛散と共に再飛散していると考えられてきたのは前述のとおりである。そのため多くの市街地では、土埃が舞いやすい春に大気中放射能が高濃度化する（図2(a)）<sup>7,8,11)</sup>。しかし、一部の地域では夏～秋にもう1つのピークを持つことが分かった（図2(b)）<sup>11-14)</sup>。このピークについては銩物ダストによる再飛散では説明ができない。

銩物ダストの飛散以外には、森林火災による再飛散も知られている<sup>15)</sup>。筆者らは植生燃焼のトレーサであるレボグルコサンや、山火事の記録、空気塊の移動経路を調査したが、大気中放射能との関係性は見られなかった<sup>12)</sup>。そのため、夏～秋に見られる大気中放射能の高濃度化には、従来の研究で示されなかった未知のプロセスが存在すると考えた。

## 3. 未知の再飛散プロセスの解明 —バイオエアロゾルによる再飛散—

まず筆者らは、ほぼ同じ場所に位置しながら、除染の有無に違いがある2地点での観測値の比較を行った。その結果、春には2地点の大気中放射能の差が大きいのにに対し、夏・秋には差が小さくなるこ

(a) つくば（気象研究所）で観測されたエアロゾル中の放射能



(b) 福島県浪江地区で観測されたエアロゾル中の放射能

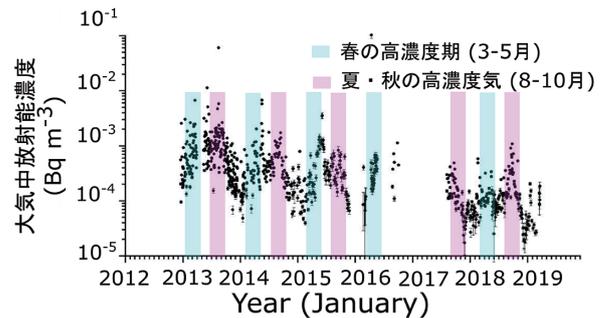


図2 (a) つくば (Kinase, *et al.*,<sup>7)</sup> の図を改訂) と (b) 浪江地区 (Kita, *et al.*,<sup>14)</sup> の図を改訂) で観測された大気中放射能の時系列グラフ

とを発見した<sup>12)</sup>。春に2地点での差が大きいことは、ごく近傍の土埃の舞い上がり依存していることを示しており、過去に示されてきたとおり<sup>8)</sup>、銩物ダストが重要であると言える。一方、夏・秋に2地点の差が小さくなるということは、両地点を取り囲む広いエリアで放出があり、空間分布が比較的均一化していることを示している。更に筆者らは、両期間の試料を電子顕微鏡により観察したところ、春の試料には土埃由来の銩物ダストが多いのに対し、夏・秋の試料には菌類や孢子等が多いことが分かった（図3）。こういった生体から直接放出される粒子はバイオエアロゾル（PBAP）と呼ばれる。

大気中の炭素の存在量と<sup>137</sup>Csの相関も、夏・秋の高濃度時には相関が良いことも分かり<sup>13)</sup>（炭素には有機物や無機物が想定され、後者のすす等の粒子も重要である。しかし、観測地点は都市から離れた帰還困難区域にあり、質量で比較するとバイオエアロゾルのほうが支配的と言える）、大気中放射能濃度のモデル計算でも森林活性を考慮すると夏・秋の濃度上昇をうまく説明ができることが示された<sup>16)</sup>。いよいよバイオエアロゾルによる<sup>137</sup>Csの再飛散プロセスが検討されることとなった。

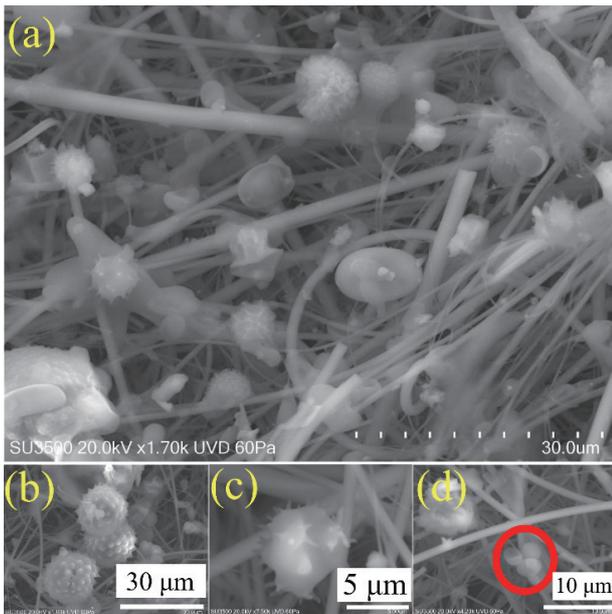


図3 2014年9月の試料にみられたPBAPの走査型電子顕微鏡像の例

(a) に示すように、多くのPBAPが観察でき、それらの粒子は (b) 花粉、(c) 胞子、(d) 真菌類 (赤丸内) だった (Kinase, *et al.*<sup>12)</sup> の図を引用)。

#### 4. バイオエアロゾルの正体は？

Igarashi, *et al.*<sup>13)</sup> では2015年夏季の試料に特殊な染色を施し、主要なバイオエアロゾルが何か、光学顕微鏡での解析 (図4) と遺伝子解析を試みた。その結果、その2/3が真菌類胞子であり、更にそのおよそ90%が担子菌類で、個数濃度としては地球上でもトップレベルであることが分かった<sup>17)</sup>。胞子を直径5 $\mu\text{m}$ の球状粒子と仮定し、過去研究で示されている<sup>137</sup>Cs/<sup>40</sup>K比や、観測地点周辺の表面汚染率を用いることで胞子1個当たりの<sup>137</sup>Cs含有量を推定すると、本観測で得た場合とオーダーで一致し、夏・秋にみられる高濃度現象をおおよそ説明できることが判明した。森林内の真菌類は落葉や表面土壌からKと一緒に放射性Csを吸収・蓄積することは過去の研究でも示されていたが<sup>18)</sup>、大気中への供給源として主体になりうることは示されてこなかった。この研究により、日本のように温暖湿潤で森林面積が広い地域では、真菌類による<sup>137</sup>Csの再飛散が無視できないことが示された。

#### 5. 降水による粗大なPBAPの放出

Kita, *et al.*<sup>14)</sup> では更にサンプリング手法に工夫を

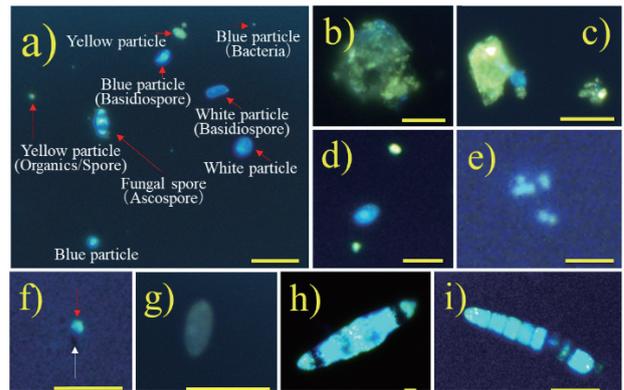


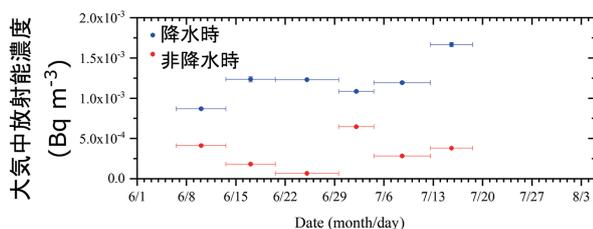
図4 染色した試料の蛍光観察の一例 (赤矢印)

バイオエアロゾルには、紫外光により蛍光を発する特徴があり、担子菌胞子はBasidiosporeと示されている青や白の蛍光を発している粒子。スケールバーは10 $\mu\text{m}$  (Igarashi, *et al.*<sup>13)</sup> の図を引用)。

加え、降水の有無で稼働を切り分けたサンプリングを実施した。エアロゾル学の常識として、降水時には大気中から粒子が除去され (ウォッシュアウト)、濃度が減少することが知られている。降水条件によりサンプリングを切り分けることで、<sup>137</sup>Csをトレーサとして利用し、エアロゾルの除去効率等が求められるはずであった。しかし、実際に観測してみると、降水時の大気中放射能濃度は晴天時に比べ減少するどころか、高くなることが明らかとなった (図5)。この傾向は広葉樹林内のほうが顕著で、非降水時の約2.4倍となった (針葉樹林内では約1.4倍)。広葉樹のほうが降水時の大気中放射能濃度増大率が大きい理由はまだ明確になっていないが、バイオエアロゾルの放出源となる微生物群の存在量や内訳が異なるためであると推察される<sup>14)</sup>。

降水時と非降水時の試料を光学顕微鏡で観察したところ、降水時には比較的大きいバイオエアロゾル (投影面積で15 $\mu\text{m}^2$ 以上) が相対的に増えていることが分かった。特に約60 $\mu\text{m}^2$ を超える粒子は降水時と非降水時で個数濃度に差がなく、粗大な粒子ほど顕著に影響するウォッシュアウトと拮抗する量の粒子放出が起きていることを示唆する。この大きなバイオエアロゾルは子囊菌類の分生子と考えられ、降水時における大気中放射能の高濃度化の原因と推察される。降水によるPBAPの放出は例えば氷晶核 (氷雲粒の核を生成するエアロゾル) 研究の分野でも報告されているが<sup>19)</sup>、<sup>137</sup>Csをトレーサとしたバイオエアロゾルの降水時における放出を発見した研究例は初となる。

(a) 広葉樹林内 (2014)



(b) 針葉樹林内 (2014)

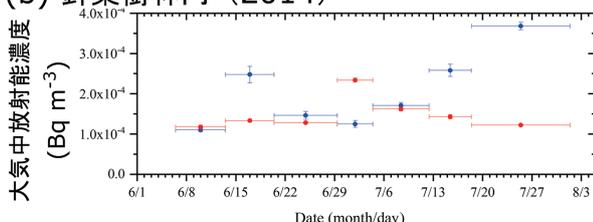


図5 (a) 広葉樹林内と (b) 針葉樹林内で行った降水切り分け観測結果のグラフ (Kita, et al.,<sup>14)</sup> の図を改訂)

従来の研究では、大気中への<sup>137</sup>Cs供給源としてPBAPの存在は考慮されてこなかった。筆者らの研究は、<sup>137</sup>Csの再飛散プロセスに関する新しい知見を生み出しただけでなく、まだ謎が多いPBAPの環境中での挙動や放出プロセスに新しい示唆を与えた。これらPBAPは雲生成や気候に対しても影響することが分かっている<sup>17,19)</sup>が、放出量や生成プロセスについては未解明な点が多い。PBAPはサイズや色、形態等の特徴が様々であり、観測が非常に難しいとされる。本研究で用いた<sup>137</sup>Cs等のトレーサも複合的に観測し、森林生態系からの<sup>137</sup>Cs再飛散の理解を深めると共に、PBAPの挙動を解き明かしていくことが重要と考える。

## 参考文献

- 1) United Nations, Sources and Effects of Ionizing Radiation, *UNSCEAR 2000 Report* (2000)
- 2) United Nations, Sources and Effects of Ionizing Radiation, *UNSCEAR 2008 report* (2010)
- 3) Karlöf, L., et al., *J. Geophys. Res.*, **105**(D10), 12471-12483 (2000)
- 4) Konoplev, A., et al., *Studies in Environmental Science*, **68**, 173-182 (1997)
- 5) Igarashi, Y., et al., *Atmos. Environ.*, **43**(18), 2971-2980 (2009)
- 6) United Nations, Levels and Effects of Radiation Exposure Due to the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, *UNSCEAR 2013 Report* (2020)
- 7) Kinase, T., et al., *Sci. Rep.*, **10**(1), 21627 (2020)
- 8) Ishizuka, M., et al., *J. Environ. Radioact.*, **166**(Pt 3), 436-448 (2017)
- 9) Kaneyasu, N., et al., *Environ. Sci. Technol.*, **46**(11), 5720-5726 (2012)
- 10) Adachi, K., et al., *Sci. Rep.*, **3**, 2554 (2013)
- 11) Kitayama, K., et al., *J. Environ. Radioact.* **164**, 151-157 (2016)
- 12) Kinase, T., et al., *Science.*, <https://doi.org/10.1186/s40645-018-0171-z>. (2018)
- 13) Igarashi, Y., et al., *Sci. Rep.*, **9**(1), 1954 (2019)
- 14) Kita, K., et al., *Sci. Rep.*, **10**(1), 15330 (2020)
- 15) Evangelidou, N., et al., *Sci. Rep.*, **6**, 26062 (2016)
- 16) Kajino, M., et al., *Atmospheric* (2016)
- 17) Fröhlich-Nowoisky, J., et al., *Atmos. Res.*, **182**, 346-376 (2016)
- 18) Yoshida, S., and Muramatsu, Y., *Sci. Total Environ.*, **157**, 197-205 (1994)
- 19) Huffman, J. A., et al., *Atmos. Chem. Phys.*, **13**(13), 6151-6164 (2013)

((国研)海洋研究開発機構 (JAMSTEC) 北極環境部門 (RIGC) 北極環境変動総合センター (IACE))