

休眠期に汚染されたカキの葉中および果実中放射性セシウムの挙動および樹体除染処理効果の検証

Effect of aging decrement and decontamination trial to radiocesium concentration in fruits and leaves of the Japanese persimmon contaminated at the dormant periods

福島県農業総合センター果樹研究所 阿部和博 佐藤 守 瀧田克典 湯田美菜子 味戸裕幸
 学習院大学理学部 大野 剛 村松康行
 東北大学電子光物理学研究センター 菊永英寿 大槻 勤¹
¹現京都大学原子炉実験所

休眠期に汚染されたカキ樹体の部位別放射性セシウム (Cs) 濃度および樹体除染の効果について検証した。併せて葉および果実中放射性 Cs 濃度の経時的推移及び経年減衰効果を検証した。カキ樹皮の放射性セシウムの部位別濃度は、主幹が最も高く、3年生枝、2年生枝（前年生枝）、1年生枝の順に低下した。汚染翌年の葉中および果実中の放射性 Cs 濃度は開花前で高く、収穫期までその濃度は漸減した。収穫期の葉及び果実中放射性 Cs は洗浄処理区で有意に低かった。しかし、カリウム (K) の葉面散布による果実への移行抑制効果は認められなかった。成熟期の果実中 ¹³⁷Cs 濃度は 2011 年と比較して高圧洗浄処理区では約 1/4 まで低下したが、無処理区でも約 1/3 の低下となった。

キーワード：部位別放射性セシウム濃度、着生コケ、洗浄処理、カリウム葉面散布、経年減衰

1 緒言

2011 年の東京電力福島第一原子力発電所の事故で放出された放射性降下物は、休眠期のカキ樹体を汚染し、発芽後、葉や果実から多くの放射性 Cs が検出され、アンボ柿の生産自粛を余儀なくされるなど多大な影響をもたらした。休眠期の放射能汚染による放射性 Cs のカキ樹体内への移行経路やその後の動態については報告がない。そこで、汚染初年度におけるカキの樹皮、枝、葉および果実の放射性 Cs 汚染状況と樹皮表面の高圧洗浄による除染処理翌年の葉および果実中の放射性 Cs 濃度の経時的推移を調査し、放射性 Cs の経年減衰効果と除染処理の効果を検証したので報告する。

2 試験方法

(1) 試験 1 樹皮および側枝の放射能汚染実態の検証 (2011 年)

伊達市保原町地内のカキ園に植栽された‘蜂屋’30年生1樹を供試した。2011年10月18日に主幹樹皮および最下部の骨格枝から1年生枝（当年枝）、2年生枝および3年生枝を採取した。主幹樹皮以外は表皮と木部に分けて放射性 Cs 濃度を測定した。同年10月26日に樹皮剥ぎを行い、樹皮表面の放射線量を GM サーベーター (TGS146) で測定し、空間線量 (BG) 測定値を差し引いて樹皮剥皮による除染効果を検証した。また、同年11月14日に5樹から樹皮に着生するコケ (図1)、葉および成熟果、12月24日に熟柿を採取し、5樹分を混合試料として放射性 Cs 濃度を測定した。11月14日の成熟果はヘタ、果皮および果肉に分別調整した。葉は緑葉と黄葉に分別採取し、試料調整前に水道水で洗浄処理を加え、無洗浄試料と比較した。

(2) 試験 2 高圧洗浄処理による除染効果の検証と放射性 Cs の移行抑制技術の検討 (2012 年)

試験1と同一ほ場の‘蜂屋’31年生を供試し、高圧洗浄処理（洗浄区）、高圧洗浄+カリウム葉面散布処理（洗浄+カリ処理区）、無処理区として試験区を設定した。反復は樹単位で3反復とした。洗浄区は2011年12月21日に水圧10MPaで洗浄処理を行い、洗浄+カリ処理区は液体ケイ酸カリ肥料 (SiO₂ 28.0%、K₂O 17.0%) を1,000倍液に希釈し、1樹当たり60Lを2012年6月6日、6月20日および7月4日の計3回散布した。展葉後から開花前の花蕾（がくを含む）、葉（無着果新梢の最大葉）、果実（幼果期～収穫期）を経時的に採取し放射性 Cs 濃度を測定した。併せて葉面散布処理終了20日後の7月24日には⁴⁰K濃度を測定した。

(3) 試験 3 葉および果実中放射性 Cs 濃度の経年減衰効果の検証

2011年は伊達市保原町地内のカキ園に植栽された‘蜂屋’30年生を供試し、8月23日より53樹から果実及び側枝先端新梢葉を定期的に採取混合し、放射性 Cs 濃度を測定した。



図1 カキ樹皮表面のコケ着生状況 (2011年12月)



図2 カキの高圧洗浄処理 (2011年12月21日)



図3 主幹部切り下げと洗浄後の樹体

2012年の試験2で得られた葉および果実中放射性Cs濃度の経時的推移について2011年と比較するとともに、¹³⁷Cs濃度の2011年および2012年測定値を比較し、経年減衰効果を経時的に検証した。

(4) 放射性核種測定

放射性Cs濃度は、学習院大、東京大、福島大および材料科学技術振興財団においてゲルマニウム半導体検出器により測定した。分析値は採取日に減衰補正した。

3 試験結果

(1) 試験1 樹皮および側枝の放射能汚染実態の検証 (2011年)

表1 カキ‘蜂屋’の主幹、側枝および着生コケの放射性Cs濃度

測定試料	放射性Cs濃度 (Bq/kgFW)									
	¹³⁴ Cs			¹³⁷ Cs			¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs			
	濃度 ^γ	±	誤差	濃度	±	誤差	濃度 ^x	±	誤差	
主幹部	樹皮	43,600	±	2,690	49,600	±	1,760	93,200	±	3,200
1年生枝	樹皮	745	±	56	828	±	36	1,570	±	67
	木部	267	±	19	315	±	13	582	±	23
2年生枝	樹皮	10,600	±	671	12,000	±	440	22,600	±	802
	木部	658	±	45	724	±	29	1,380	±	54
3年生枝	樹皮	17,300	±	1,030	19,500	±	670	36,800	±	1,230
	木部	188	±	13	213	±	8	401	±	15
着生コケ ^z		187,000	±	11,900	217,000	±	7,900	404,000	±	14,300

^z 主幹樹皮上に着生した蘚苔類

^γ 樹体試料は10/18、着生コケは11/14に採取

表2 葉および果実の器官別放射性Cs濃度

器官名	洗浄処理	乾物率 ^γ (%)	放射性Cs濃度 (Bq/kgFW)								
			¹³⁴ Cs			¹³⁷ Cs			¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs		
			濃度	±	誤差	濃度	±	誤差	濃度	±	誤差
へた	有	35.5	194	±	15.1	228	±	10.3	422	±	18.3
果皮	有	20.2	114	±	6.9	152	±	9.3	288	±	11.5
果肉	有	21.6	63	±	3.9	75	±	2.7	138	±	4.7
果肉 (熟柿)	有	-	59	±	3.8	76	±	4.9	138	±	4.7
葉 (緑葉)	無	29.4	155	±	9.3	205	±	1.3	360	±	9.3
	有	-	128	±	8.2	188	±	11.9	316	±	14.5
葉 (黄葉)	無	-	178	±	10.8	236	±	14.5	414	±	18.1
	有	-	139	±	8.8	182	±	1.2	321	±	8.9

^z 採取日:熟柿は12/24、他は11/14

^γ - 未調査

表3 カキ樹皮洗浄後の主枝表面の放射線低減率

試験区	放射線計数率(kcpm) ^z		低減率 (%) 100-(b/a×100)
	洗浄前(a)	洗浄後(b)	
洗浄処理	2.63	0.31	88.3
無処理	3.55	3.37	5.0
t検定			** ^γ

^z 空間線量を差し引いた値

^γ 危険率1%で有意差あり

樹皮の放射性Cs濃度は、主幹部、3年枝、2年枝、1年枝でそれぞれ93,200、36,800、22,600、1,570 Bq/kgFW (kgFW:新鮮重 kg)を示し、主幹が最も高く、3年生枝、2年生枝(前年生枝)、1年生枝の順で低下した。また、側枝の木部では2年生枝のみ高く、1年生枝、3年生枝の約3倍となった。着生ゴケは404,000 Bq/kgFWで、主幹樹皮の4倍以上の高濃度を示した(表1)。樹皮剥皮前後の樹皮表面の放射線計数率は1.6 kcpm(100)および0.1 kcpm(はく皮前の8%)で、はく皮により90%以上減少した。果実の部位別放射性Cs濃度では、へたが葉と同等の濃度を示した。葉中放射性Cs濃度は緑葉と黄葉間で濃度差は認められなかった。洗浄処理により緑葉および黄葉でそれぞれ12.3および22.5%

濃度が低下した。成熟果の放射性Cs濃度は軟化前の果実と熟柿間では濃度の差は認められなかった(表2)。

(2) 試験2 高圧洗浄処理による除染効果の検証と放射性Csの移行抑制技術の検討 (2012年)

高圧洗浄機による樹皮洗浄により表面線量は平均で約88%減少した(表3)。葉中放

射性Cs濃度は葉面散布処理20日後の7月24日では⁴⁰K/(¹³⁴Cs+¹³⁷Cs)で洗浄+カリ処理区と無処理区間で有意差が認められ、洗浄+カリ処理区が高かった(表4)。また、開花期(満開日:6月15日)以降、無処理区に比較して両処理区で低く推移したが、洗浄区と洗浄+カリ処理区間では有意差は認められなかった(表5)。果実中放射性Cs濃度も無処理区に比較して

両処理区で低く推移したが、処理による有意差は認められなかった(表6)。そこで、洗浄区と洗浄+カリ処理区のデータをプールして高圧洗浄処理区とし、無処理区との比較をした結果、収穫期の10月22日(満開後130日)では、高圧洗浄処理区の葉中および果実中¹³⁷Cs濃度は有意に低かった(図4、6)。

表4 除染処理と葉中⁴⁰K/(¹³⁴Cs+¹³⁷Cs)比 (7/24採取)

処理区	¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs (Bq/kgFW)			⁴⁰ K (Bq/kgFW)			⁴⁰ K/(¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs)
	濃度 ^z	±	誤差	濃度	±	誤差	
無処理	223	±	6.0	442	±	32	2.0
洗浄処理	177	±	7.2	481	±	45	2.7
洗浄+K 散布処理	161	±	6.1	455	±	39	2.9 ^z
分散分析	ns			ns			* ^z

^z ダネットの検定で無処理区と危険率5%で有意差あり

^y * 分散分析により処理間で危険率5%で有意差あり

表5 カキ「蜂屋」の放射性Cs濃度の測定結果(葉)

採取日	処理区	¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs(Bq/kgFW)			Dunnet 法 P-値
		濃度	±	誤差	
5/24	無処理	451	±	7.3	-
5/24	除染処理 ^z	383	±	8.3	-
6/6	無処理	235	±	6.2	-
6/6	除染処理	224	±	6.4	-
7/24	無処理	223	±	6.0	-
7/24	洗浄処理	177	±	7.2	0.15
7/24	洗浄+カリ処理	161	±	6.1	0.06
8/23	無処理	221	±	5.1	-
8/23	洗浄処理	142	±	5.3	0.16
8/23	洗浄+カリ処理	173	±	7.2	0.43
9/20	無処理	181	±	7.5	-
9/20	洗浄処理	116	±	6.8	0.07
9/20	カリ処理	112	±	6.6	0.06
10/22	無処理	164	±	6.4	-
10/22	洗浄処理	97.6	±	8.2	0.01** ^y
10/22	洗浄+カリ処理	99.7	±	5.7	0.01*
11/14	無処理	144	±	2.8	-
11/14	洗浄処理	95.0	±	2.4	0.40
11/14	洗浄+カリ処理	104	±	3.5	0.53

^z 洗浄処理および洗浄+カリ処理の混合試料

^y **, * ダネットの検定により無処理と危険率1、5%で有意

表6 カキ「蜂屋」の放射性Cs濃度の測定結果(花蕾および果実)

採取日	処理区	¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs(Bq/kgFW)			Dunnet 法 P-値
		濃度	±	誤差	
6/6	無処理	255	±	8.3	-
6/6	除染処理 ^y	248	±	5.2	-
7/24	無処理	94.8	±	0.9	-
7/24	洗浄処理	73.1	±	1.1	0.26
7/24	洗浄+カリ処理	79.1	±	2.6	0.44
8/23	無処理	75.5	±	3.3	-
8/23	洗浄処理	50.8	±	2.7	0.12
8/23	洗浄+カリ処理	53.1	±	2.6	0.15
9/20	無処理	55.4	±	1.1	-
9/20	洗浄処理	38.8	±	1.0	0.33
9/20	洗浄+カリ処理	47.6	±	1.0	0.75
10/22	無処理	48.3	±	1.1	-
10/22	洗浄処理	31.0	±	0.9	0.07
10/22	洗浄+カリ処理	38.0	±	1.0	0.28
11/14	無処理	40.7	±	0.5	-
11/14	洗浄処理	29.0	±	0.7	0.37
11/14	洗浄+カリ処理	26.9	±	0.5	0.27

^z 6/6に採取し、がくを含めて調整した。

^y 洗浄処理および洗浄+カリ処理の混合

(3) 試験3 葉および果実中放射性Cs濃度の経年減衰効果の検証

2011年の葉中放射性Cs濃度は着色開始期前の8月23日が高濃度を示し、果実中放射性Cs濃度は成熟開始期の10月18日で最も高かった。葉中放射性Cs濃度は9月以降、また果実中放射性Cs濃度は収穫期の11月以降はほぼ一定濃度で推移した(図5)。これに対し、2012年の葉中¹³⁷Cs濃度は開花前の幼葉期で高濃度を示したが、成葉化した開花前7日以降は漸減した。果実中¹³⁷Cs濃度は、開花前7日

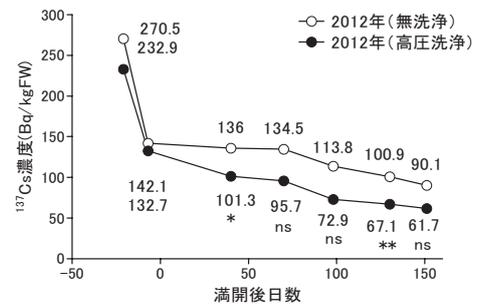


図4 高圧洗浄処理による葉中放射性Cs濃度の推移

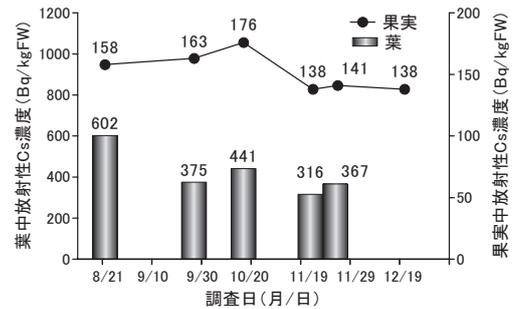
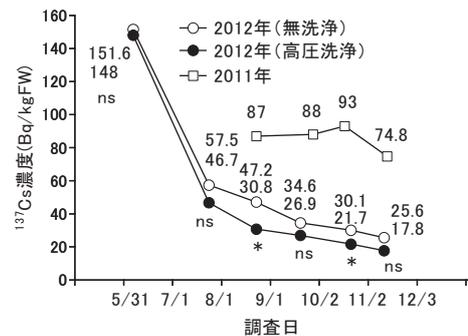


図5 葉および果実中放射性Cs濃度の推移(2011年)

図6 果実中¹³⁷Cs濃度の経時的推移と高圧洗浄による経年減衰効果

の花蕾で高かったが、結実後は次第に減少した。これらは、8月下旬から果実過熟期まで減少傾向は認められなかった2011年とは明らかに異なった。成熟期の果実中¹³⁷Cs濃度は2011年と比較して高圧洗浄処理区では約1/4まで低下したが、無処理区でも約1/3の低下となった(図6)。

4 考察

枝齢別放射性Cs濃度は、佐藤ら⁷⁾が実施した7年生「蜂屋」の解体調査においても樹皮および木部ともに1年生枝の放射性Cs濃度が最も低く、30年生「蜂屋」を供試した本報告と同様であった。しかし、7年生「蜂屋」の枝齢別木部濃度は3年生枝が高く、2年生枝で高濃度を示した本調査とは異なった。佐藤ら⁷⁾は休眠期に汚染されたウメを除く落葉果樹では樹皮から放射性Csが移行したとしている。このことは、樹皮表面の放射能汚染は樹冠の大きさや形状の影響を受ける可能性があることを示唆している。7年生「蜂屋」の樹形は主幹形であり、側枝は斜上し、樹幹内部まで結果枝が配置されているのに対し、30年生「蜂屋」は骨格枝が

長大化し、結果部は樹幹外周部が中心となっており、下垂枝が多い。本調査で、木部では2年生枝の濃度が高かったのはこのような樹形の形状が反映しているのではないかと推察された。

1年生枝は、果実と同様に放射能汚染後に発生した器官である。本調査では木部の放射性Cs濃度は葉よりも高濃度であったが、佐藤ら⁷⁾の7年生‘蜂屋’では葉の濃度(167 Bq/kgFW、2011年12月25日採取)が新梢木部(76.5 Bq/kgFW、2012年1月31日採取)より高い値を示しており本報告とは異なっていた。Al-Oudat, ら¹⁾はオリーブ、スモモおよびブドウいずれにおいても新梢より葉の移行係数が高いと報告している。Carini ら⁴⁾は葉を汚染源としたブドウの移行係数は新梢よりも葉が高く、土壌からの移行係数は新梢が葉よりも高いと報告しているが、佐藤ら⁷⁾の土壌を汚染源とする試験ではCarini ら⁴⁾とは逆の結果を示した。また、Skarlou ら⁸⁾はオレンジにおいては酸性砂質土では新梢より葉が高く、石灰質植壌土では新梢が葉よりも高かったとしている。過去の知見は葉の方が新梢よりも高濃度とする報告が多いことから、本報告の結果は供試樹の汚染環境に関する何らかの要因が影響しているのではないかと推察された。

IAEA⁶⁾報告によると地衣類(コケ)は、着生面の水分に依存しているため、汚染された雨水の影響を受けやすく、さらに、地衣類の成長速度は非常に遅いため長期間にわたって放射性核種を濃縮する。カキ主幹部の樹皮表面は細かい亀裂が入り、雨水が停滞しやすいことからコケの着生が多く認められる。このことからカキでは樹皮表面に放射性Csが沈積しやすいものと推察され、コケで高濃度の放射性Csが検出されていることからコケから樹体内への付加的移行の可能性が思料された。

成熟後期の緑葉と黄葉間では放射性Cs濃度差は認められなかったことから、落葉前の葉中放射性Csの樹体への再移行は限定的と推察された。なお、葉洗浄処理による低減率は黄葉で高かったことから、老化による放射性Cs溶脱の可能性が示唆され、落葉期の葉では洗浄処理の比較のみでの葉表面の残留性放射性Cs有無の判定には限界があるものと推察された。

葉および果実の経時的推移は汚染初年度の2011年と2012年とは異なる傾向が認められた。2011年のモモ等の主要落葉果樹の経時的推移は生育初期より経時的な減少傾向を示しており(湯田ら¹⁰⁾、本報調査での2011年の放射性Cs濃度の推移は追加的な汚染を示唆するものと考えられた。

樹皮の高圧洗浄処理により、収穫時の葉および果実中の放射性Cs濃度は有意に低下した。しかし液体ケイ酸カリ肥料の葉面散布では、葉および果実ともに移行抑制効果は認められず、取り込まれたカリウムによる散布後の放射性Csの挙動への影響はないものと考えられた。高田ら⁹⁾は、モモでは成熟期に果実中⁴⁰K含量が著しく高まったと報告している。果樹は永年性作物であり、根から吸収されたKは根および樹体内に貯蔵され、シンク活性の高い器官に容易に移動する。果実成熟期には、葉からの転流と併せて木部内Kおよび根から吸収されたKが果実に集積する。Skarlou ら⁸⁾はオレンジの器官別K濃度と¹³⁷Cs濃度の間に正の相関を認めている。一方でAntonopoulos-Domis²⁾はスモモの葉では無相関であったとしている。このように樹体内Kと¹³⁷Csの関係は確定的ではない。熱帯果樹では石灰質砂質土壌のマーシャル諸島のココナッツでK施肥による果実中¹³⁷Csの低減効果が認められているが(IAEA⁶⁾)、このココナッツは土壌

の化学性から恒常的にKの吸収が制限されている条件にある。カキへのKの施肥効果は根からの放射性Cs吸収が存在し、樹体内でのK蓄積が低レベルにある場合に限定されるものと推察された。

Antonopoulos-Domis²⁾はチェルノブイリ事故により汚染されたアンズの新生器官の¹³⁷Cs濃度は1987から1988年の間で約1/2から1/3まで減少したと報告している。本報告ではこの報告と同等以上の経年減衰率を示した。一方で、汚染から9か月後の樹皮の洗浄処理でも有意に低減したことから、洗浄処理は2年目の樹皮からの再移行に対する回避効果があったものと思料される。なお、樹皮からの移行時期を考慮すると被曝直後の樹体除染処理により、更に放射性Cs濃度の低減効果が高まったものと推察された。

謝 辞

東京電力福島第一原子力発電所の事故後、いち早く福島県に駆けつけ、測定指導および無償で分析して下さった東北大学電子光理学研究センター、学習院大学、東京大学大学院農学生命科学研究科および福島大学の皆さんに感謝いたします。

引用文献

- 1) Al-Oudat, M., A. F. Asfary, H. Mukhalallti, A. Al-Hamwi and S. Kanakri. 2006. Transfer factors of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr from soil to trees in arid regions. *Journal of Environmental Radioactivity* 90: 78-88.
- 2) Antonopoulos-Domis, M., A. Clouvas and A. Gagianas. 1990. Compartment model for long-term contamination prediction in deciduous fruit trees after a nuclear accident. *Health Physics* 58: 737-741.
- 3) Antonopoulos-Domis, M., A. Clouvas and A. Gagianas. 1991. Radiocesium dynamics in fruit trees following the Chernobyl accident. *Health Physics*, 61, 837-842.
- 4) Carini, F., E. Lombi. 1997. Foliar and soil uptake of ¹³⁴Cs and ⁸⁵Sr by grape vines. *The Science of the Total Environment* 207: 157-164.
- 5) IAEA. 2003. Modelling the transfer of radionuclides to fruit.
- 6) IAEA. 2010. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments 472: 82-96.
- 7) 佐藤 守・高田大輔・阿部和博・大野剛・高瀬つぎ子・河津賢澄・田野井慶太郎・村松康行. 2012. 休眠期に汚染された落葉果樹の放射性セシウムの樹体内への移行経路の解明. *園学研* 12 (別1): 78.
- 8) Skarlou, V., C. Nobeli. J. Anoussis, C. Haidouti and E. Papanicolaou. 1999. Transfer of ¹³⁴Cs for olive and orange trees grown on different soils. *Journal of Environmental Radioactivity* 45: 139-147.
- 9) 高田大輔・佐藤 守・阿部和博・安永円理子・田野井慶太郎. 2013. 摘果果実を用いたモモ成熟果の放射性セシウム濃度の予測について. *園学研* 12 (別1): 80.
- 10) 湯田美菜子・佐藤 守・阿部和博・額田光彦・斎藤祐一・山口奈々子・瀧田克典・味戸裕幸・大野 剛・村松康行・菊永英寿・大槻 勤. 2012. 落葉果樹における部位別放射性セシウムの経年変化と除染の効果. *園学研* 12 (別1): 79.