## 放射能汚染環境における生物の元素濃度分布

# 田崎和江<sup>1</sup>·竹原照明<sup>2</sup>·石垣靖人<sup>2</sup>·中川秀昭<sup>2</sup>·根本直樹<sup>3</sup>・横山明彦<sup>4</sup> ·木村 元<sup>5</sup>

<sup>1</sup>河北潟湖沼研究所 〒 929-0342 石川県河北郡津幡町北中条ナ 9-9
 <sup>2</sup>金沢医科大学総合医学研究所 〒 929-0342 石川県河北郡内灘町大学 1-1
 <sup>3</sup>弘前大学大学院理工学研究科 〒 036-8561 弘前市文京町 3
 <sup>4</sup>金沢大学理工研究域物質化学系 〒 920-1192 石川県金沢市角間町
 <sup>5</sup>金沢大学大学院自然科学研究科 〒 920-1192 石川県金沢市角間町

要約:2011年3月11日の福島第一原子力発電所の事故により,高濃度の放射性核種が土壌や水圏に撒き散らされた.福島県南相馬市の放射能汚染された水田土壌中のミミズ,珪藻,津波被害を受けた用水の底質中の有孔虫,水田表層のバイオマット中のバクテリアを走査型分析電子顕微鏡で観察した.その元素濃度分布写真によれば長半減期放射性核種を含むと思われる Cs, Rb, Sr, Zr, U, Pu などの分布が顕著に画像で示された. 生物が水田土壌や河川において,放射性核種と安定同位元素の吸収や移行に果たす役割の一端を明らかにした.

# SEM-EDX Elemental Content Maps of Organisms in Radioactive Environmental Pollution by FDNPP Accident in 2011

Tazaki, K., Takehara, T., Ishigaki, Y., Nakagawa, H., Nemoto, N., Yokoyama, A. and Kimura, H.

Abstract; After the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident on 11th March 2011, high radioactive dosage included radionuclide was found in paddy soils in Fukushima Prefecture in Japan. The elemental content maps of Cs, Rb, Sr, Zr, U, and Pu were detected in earthworm, diatoms, Foraminifera, and bacteria in the polluted soils, using Scanning Electron Microscopy equipped with Energy Dispersive X-ray analyzer (SEM-EDX). The results suggest that organisms in the polluted soils carry important role to absorb the radioactive materials. The variation of radionuclide dietary intake among organisms may indicate that high radionuclide exposure was accompanied by high stable isotope intake.

Keywords; Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, SEM-EDX, elemental content map, radionuclide, dietary intake, earthworm, diatoms, Foraminifera, bacteria

## はじめに

2011年3月11日に発生した東京電力福島第一 原子力発電所の事故後,放射性物質による汚染が福 島県南相馬市の水田や農業用水の広範囲に発生した. 水田に放置され放射能汚染されたワラを牛が食べた ため,牛肉が販売禁止となった.また,水田土壌の 汚染のため,南相馬市一帯は2年間耕作が禁止さ

れ、種籾が没収された、野馬追いの時代から手塩に かけて土作りされてきた水田土壌は、原発事故以来 放置され、チガヤやセイタカアワダチソウが生い茂 り、イノシシの踏み跡があちこちに見られた.しか し、2012年になると、あちこちの水田や畑では雑 草の刈り取りや鋤き起こしが行われ、7-8割の畑 では自家用の野菜が作られ始めた.なお、2013年も 稲作が禁止されたが、一部の農家は、5月には田植

## えを行った.

農地は食料を生産する場であり,放射性物質によ る汚染状況を把握することは,安全・安心な農作物 の供給に不可欠であるとともに,農地の除染と環境 回復を行い,今後の農業の方針を見極めるために必 須である(Rosner and Winkler, 2011;斉藤, 2011; 日本土壌肥料学会,2011;庄建技術,2012).特に, 放射能汚染された土壌や用水中の微生物やミミズな どの生物の挙動を把握する必要がある.

そこで本研究では、福島県南相馬市の水田土壌や 農業用水の底質を採取し、放射線量の測定を行うと ともに、分析電子顕微鏡により微生物の観察を行い、 化学組成を明らかにした.なお、微生物の主要元素 のみならず微量元素の分布も明らかにしたが、放射 性核種と安定同位元素の区別はできないので、試料 のβ、γ線の測定データと文部科学省が公表した Cs、 Sr、Pu などの放射性核種の分析データを引用した.

なお、2011年6~7月の宮城県,福島県,茨城県, 栃木県,群馬県,千葉県における農地土壌中の放射 性Cs濃度の分析値の詳細は,高田ほか(2011)で公 表されているが,SrやPuの結果は公表されていな い(天野,2001:朝日新聞,2012).また,宮城県 から岩手県南部にかけて津波浸水範囲および福島県 沖の底質について分析した結果,海底の湧出水はCs 汚染されていないと報告されている(丸井,2012).

一方, 湧出水は汚染された土壌を運ぶ役割を持っていることが指摘されているが, 陸上の津波により Cs 汚染された底質についての報告はまだない.

さらに、2012年2月8日に東京電力福島第一原 子力発電所(以下福島第一原発)から30kmほど離 れた山林で採取されたミミズから1kgあたり20,000 Bq近い放射性Csが検出された.森林総合研究所 は、ミミズをエサとする山林の野生生物への影響を 調査する必要があると述べている(Brown and Bell, 1995;NHK科学文化部、2012;森,2012).

本研究では、福島県南相馬市原町区馬場、飯舘村 長泥など放射能汚染された水田土壌や津波の被害を 受けた水田土壌や用水の底質を研究対象とした.現 地における空間線量および採取した試料の放射線量 を測定したのち、GeおよびSi半導体検出器を用い て放射性核種を定量分析した.また、エネルギー分 散型蛍光X線分析により主要化学組成の分析を行っ た.さらに、採取した試料中に生息していたミミズ や珪藻、用水の底質から採取した有孔虫、津波の被 害を受けた水田表層のバイオマット中のバクテリア や粘土について走査型電子顕微鏡で観察を行い、エ ネルギー分散型 X線分析による元素濃度分布写真を 撮り詳細に研究したので報告する.すなわち、現地 調査と試料採取を行ったのち、バルク試料の定性・ 定量分析を行い、かつ、電子顕微鏡によりマクロか らミクロの分析・観察を行い、福島県の放射能汚染 環境の実態を考察した.

## 試料および研究方法

### 研究に用いた試料

本研究に使用した放射能汚染試料は、2012年9 月16日に福島県南相馬市原町区馬場から採取した 表層水田土壌とフトミミズである.ここは福島第一 原発の北西35kmに位置し、2012年11月1日にお ける空間線量が1.32-1.55-1.70µSv/h、630cpmで あるのに対し、水田土壌の表層の放射線量は2.4-3.7µSv/h、1,200cpmと、高濃度に放射能汚染さ れている.また、2012年7月3日に採取した水田 土壌の分析では、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csはそれぞれ19,000 Bq/kgと27,000Bq/kgであった(表1).なお、文 部科学省(2011,2012)のデータによれば、Csの みならず、SrおよびPuも高い値を示している.なお、 その他の地域における空間線量や放射能除染の実証 実験結果についてはすでに他報で報告した(田崎ほ か、2011;田崎、2011).

また,津波被害を受けた福島県南相馬市大田川と つるえ川をむすぶ小沢用水の底質を採取して,有孔 虫を抽出した.2012年9月14日に試料採取した時 点で,小沢用水での空間線量は0.14-0.28µSv/h,底 質の線量は0.32-0.35µSv/h であった.

さらに、2012 年 9 月 14 日に津波被害を受けた 松川浦の水田表層に形成した厚さ 3cm の白色バイ オマットを観察した. 当日の空間線量は 0.59-0.65 µSv/h であり、水田バイオマットの線量は表面が 1.05µSv/h, 裏面は 0.48µSv/h であった.

## 放射線量の測定について

本研究に用いた放射線測定器は Aloka GM サーベ

イメータ TGS-136 (cpm) および TCS-151 ( $\mu$ Sv/h) の二つである. TGS-136 は計数率をメータで, 計数 率および積算計数をデジタルで表示できる $\beta$  ( $\gamma$ )線 用 GM サーベイメータである. 検出器に大面積端窓 形有機 GM 管を使用し, 微量の $\beta$ 線を効率よく測定 できるが,  $\alpha$ 線と $\gamma$ 線にも感度がある. また, 観測 結果を計算式によって Sv 単位に変換でき, 表面汚 染測定用として福島第一原発事故でも使用された放 射線測定機器の一つである. 本研究では, 金沢大学 RI センターにおいて, 絶対値 (<sup>137</sup>Cs 線量率校正線 源;  $\gamma$ 線のみ)と (<sup>137</sup>Cs 線源 Amersham;  $\beta$ 線+ $\gamma$ 線)を用いて校正した. なお, 1,000cpm は 1.52 $\mu$ Sv/ h に相当し, 2–3 割の誤差がある. TCS-151 ( $\mu$ Sv/h) は $\gamma$ 線のみを検出する.

## 放射性核種の分析法

土壌試料の放射能測定は、北陸環境科学研究所(福 井県福井市)および大和環境分析センター(石川県 金沢市)に設置してあるゲルマニウム半導体検出器 を用いたガンマ線スペクトロメトリーによる核種分 析法で<sup>131</sup>I,放射性<sup>134</sup>Cs,放射性<sup>137</sup>Csの3核種を 分析した.なお、半減期の短い<sup>131</sup>Iは2011年9月 の測定時点では検出されなかった.また、放射性 <sup>134</sup>Cs,放射性<sup>137</sup>Csの2核種は、カナモリ技販株式 会社(富山県高岡市)に設置してあるNaI(TI)シ ンチレーションスペクトロメータ(日立アロカメヂ カル社製)CAN-OSP-NaIにより分析した.

### Pu の定量分析方法と測定方法

採取土壌は,105℃で乾燥後,1回あたり乾燥細土 から約10gを分取して,化学分離に供した.分取し た試料を電気炉で加熱して有機物を分解した後,硝 酸を用いてプルトニウムを溶解し,イオン交換法に よりウランやトリウムから分離精製して金属板に電 着した.α線スペクトル測定装置で電着した試料の α線スペクトルを測定してプルトニウムの濃度を求 めた.なお,化学回収率を補正するため,Pu-242 トレーサを予め分析試料に20mBq添加し,測定さ れた放射能から回収率を求めた.

Puの測定は、シリコン半導体検出器で約94万秒 (約11日)以上計測した、得られたα線スペクトル のそれぞれの核種のエネルギーに対応するピークの 計数率を計算し,添加した Pu-242 の放射能をもと にそれぞれの核種の放射能を求めた.

## エネルギー分散型蛍光 X 線分析(ED-XRF)による 化学組成の分析法

土壌試料の化学組成の分析には、エネルギー分散 型蛍光 X 線分析装置(ED-XRF)(日本電子製 JSM-3201, Rh-K a 線源)を用いた.試料は乾燥させた後, 乳鉢を用いて粉砕し、マイラーフィルム(HORIBA 社製 Cell Window)の上に設置し、加速電圧 30kV, 真空雰囲気でファンダメンタルパラメータ(FP)-バルク法により定性分析および半定量分析を行った. なお、この方法で検出できるのは Na より質量の重 い元素であり、H や有機物やガス成分を除いた値で ある.検出限界はバイオマットや液体の蒸発乾固物 のような有機材料では、Na、Mg、Al が 1wt%, Si, P, S は 0.1wt%, Ca から Rh までは 0.001wt%, Pd から U までは 0.01wt% である.また、含有する Cl は、X 線管球が Rh でできているためピークが重な り、検出できない(佐藤ほか, 2010).

## 走査型分析電子顕微鏡(SEM-EDX)による元素濃 度分布

視野に対応した微小領域の化学組成分析を行うた め、走査型電子顕微鏡(S-3400N, HITACHI)にエ ネルギー分散型 HORIBA EMAX X-act を装着した もの(SEM-EDX)を用いて、加速電圧 15kV、電 流 70 - 80µA, 分析時間 1,000 秒で元素濃度分布図 およびスペクトルを得た。

SEM-EDX の最大の利点は、全元素同時分析にあ る. その特徴は、分解能が 1nm (加速電圧 15kV 時), 組成分析の対象元素は B ~ Am,局所領域および平 均的領域の元素濃度分析 (定性・定量),元素の分布 の観察 (面分析・線分析)が可能なことである.エ ネルギー分解能は~140eV である.定量化学分析を 行うには、鉱物スタンダードを用いて、加速電圧や 照射電流などの定量条件を設定し、さらに ZAF 補 正計算はコンピュータにより自動的になされ、分析 結果が算出される.例えば、黒雲母は SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, K<sub>2</sub>O に富む鉱物であるが,K<sub>2</sub>O の分 析精度を確認すると標準偏差は 0.03 を下回ってい る.含有量が 1wt% を上回る元素については相対標 準偏差も比較的小さく,再現性も認められることから,実用に耐えられると判断されている(川野ほか,2010).

一方,高井ほか(2011)は日立製と日本電子製の 3種のエネルギー分散型X線分析装置を比較し,定 性・定量分析を行い分析精度の検証を行った.そ の結果,EDX法のエネルギー分解能は130–150eV, 検出限界は0.3%,分析精度は濃度が1桁%の場合 ±0.3%程度と推察している.定量分析に関しては, 測定元素や試料の形状,装置による分析条件の選択 など不確定な要素が多いものの0.1%以上の検出濃 度であれば,ある程度信頼の置ける精度で濃度が求 められると考察している.

SEM-EDX では、試料に電子線を照射すると試料 中の元素の種類に応じて特性 X 線が発生する.そ の波長もしくはエネルギーにより元素が同定でき る.定量分析は、X 線の強度が元素の濃度とともに 増加する原理を利用する.精密度の点でエネルギー 分散分析は、湿式分析の精密度の中に収まり、ほと んど同程度の結果が得られる(森,1992).すなわち、 元素濃度分布写真は点の密度がその元素の濃度を表 し、点の密度が高いと含有量も高いことを示す.一 方、含有元素が少ない場合や微量の場合は、分析時 間を長くしても点の密度は低い.本研究では、分析 時間を 1,000 秒と設定し、低倍率から高倍率まで画 像をチェックし、その中で試料の輪郭がはっきり出 る範囲の倍率で撮影した.

K, Ca, Siなどの主要元素はKalのスペクト ルをプロットしており, K Kal, Ca Kal, Fe Kal, Al Kal, Si Kal, P Kal, S Kal と表示し, Sr など の元素はLal のスペクトルをSr Lal, Cs Lal, Ba Lal のように表示している.

## エネルギー分散型X線分析装置(HORIBA EMAX X - act)について

従来の検出器は電気的な雑音を減らすために,液 体窒素などで冷やされており,B~UのX線を同時 に測定できるタイプであったが,本研究で使用した エネルギー分散型X線分析装置(HORIBA EMAX X-act)は液体窒素が不要で,かつ高速分析が可能 であるため,定性・定量ともにマッピング時間が大 幅に短縮された.素子面積は10mm<sup>2</sup>,エネルギー 分解能は 129eV (プレミアム), 135eV (標準), 測 定元素範囲は Be(B)–U, Pu, Am まで可能である. しかし, I, Xe, Cs, Np, Pu の元素の分析に関し てはスタンダード試料と比較しておらず, 定量計 算に使用されていないピーク 8.027, 8.887, 9.419, 11.140, 12.909keV があることから, これらについ て正確な定量分析はできないが, 分析試料中のどこ に, どんな元素がどれだけ存在しているかをマッピ ングすることは可能である.

本装置は高いエネルギー分解能でマッピングが可 能であり、定量マッピングでは重なり合うピークを 分離することができるため、重なるピークの影響を 排除することができる.さらに取り込んだスペクト ルを元に、各元素の理論値に基づいて、理論スペク トルを重ね合わせて表示する<スペクトルオーバー レイ>機能を持っており、理論スペクトルとのズレ 具合で定性結果の再確認ができる.

また,事前に知りえたサンプル情報によりマッ ピングを行うことができ,微小領域に偏在してい る物質の所在も知ることが可能である.エレメント キャッチャーは測定スペクトルではほとんど検出さ れない少量の元素でも,含有の可能性がある場合は マップ上に表示される.従来は判別が難しかった元 素も正確な定量マッピングが可能になり,予想外の 元素の混入や微粒子が点在する場合も検出し判別で きる(堀場製作所,2010;Alam and Mishra, 2013).

#### 放射性核種の汚染地図

2011 年 3 月 11 日に発生した福島第一原発の事故 により、17 種の放射性核種(Sr,Y,Zr,Mo,Ru, Sb,Te,I,Xe,Cs,Ba,Ce,Pr,Nd,Np,Pu, Cm)が大気中に放出され、森林、土壌、河川水が 広範囲に汚染された.文部科学省(2011,2012)は 直ちにCsとIの放射性核種についての汚染地図 を公表したが、Srについては分析に時間がかかり、 1–1.5 年経ってから公表した.2011 年 6 月 6 日 – 6 月 14 日(第一期),6月 27 日 – 7 月 8 日(第二 期)に土壌試料が採取され、2011 年 9 月 30 日時点 の土壌についての<sup>238</sup>Pu、<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu、<sup>89</sup>Sr、<sup>90</sup>Sr の測定結果が公表された(図 1).測定された 59 箇 所については福島第一原発から 80km 圏内の各市町 村、残りの 41 箇所は警戒区域等の市町村から選定



Fig. 1. Distribution of <sup>238</sup>Pu and <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu near the FDNPP in Fukushima Prefecture, Northeast Japan (data after Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology, Japan, 2011). Numerals left and right of slash represent concentrations of <sup>238</sup>Pu and <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu in soils (Bq/m<sup>2</sup>) respectively.
● ■ : sites at where <sup>238</sup>Pu and/or <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu accumulated after FDNPP accident. ● : sites at where <sup>238</sup>Pu and <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu were detected. ■ : site at where only <sup>238</sup>Pu was detected. ▲ : sites at where only <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu were detected. Chain line: boundary of municipalities.

図 1. 福島第一原子力発電所周辺における<sup>238</sup>Pu,<sup>239</sup>Pu<sup>+</sup> <sup>240</sup>Pu の測定結果(文部科学省,2011に基づき作成).
 ●■:福島第一原子力発電所事故に伴い新たに<sup>238</sup>Pu,<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu が沈着したと考えられる箇所.
 ●:<sup>238</sup>Pu および<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu が検出された地点.
 ■:<sup>238</sup>Pu のみが検出された地点.
 ▲:<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu のみが検出された地点.
 (F) の右の数値:<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu の測定値(Bq/m<sup>2</sup>).

し,2kmメッシュに1箇所の地点で土壌試料を採取 したものである.

<sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu の分析は, 土壌 50g を放射化 学分析し, シリコン半導体検出器を用いて約 20 時 間計測した. 検出限界値はともに約 0.5Bq/m<sup>2</sup>であ る. <sup>89</sup>Sr, <sup>90</sup>Sr については, 土壌 30g を放射化学分析し, 低バックグラウンドβ線測定装置を用いて約 60 分 計測した. 検出限界値は<sup>89</sup>Sr で約 300Bq/m<sup>2</sup>, <sup>90</sup>Sr で約 40Bq/m<sup>2</sup> である (文部科学省, 2011, 2012).

なお,この調査において<sup>134</sup>Cs や<sup>137</sup>Cs の沈着量の 最高値が検出された箇所における 50 年間積算実効 線量と比べ,下記のように非常に小さいことが確認 されている.

<sup>238</sup>Pu: 0.027mSv

 $^{239}$ Pu +  $^{240}$ Pu: 0.12mSv

<sup>89</sup>Sr: 0.61µSv (0.00061mSv)

90Sr: 0.12mSv

<sup>134</sup>Cs: 71mSv

<sup>137</sup>Cs: 2.0Sv (2,000mSv)

一方,今回の調査で<sup>238</sup>Pu,<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu の双方が 検出された(図1 ●). これら5箇所は福島第一原 発から北西の方向に位置し,双葉町,浪江町,飯舘 村などのホットスポットである.<sup>238</sup>Pu/(<sup>239</sup>Pu+<sup>240</sup>Pu) の測定値は,それぞれ 0.55/0.66 Bq/m<sup>2</sup>(双葉町 000N006 地点), 2.3/1.8 Bq/m<sup>2</sup>(浪江町 016N018 地点), 4.0/1.8 Bq/m<sup>2</sup>(葛尾町 010N016 地点), 0.77/0.60 Bq/m<sup>2</sup>(飯舘村 030N028 地点), 0.82/2.5 Bq/m<sup>2</sup>(飯舘村 036N028 地点) である.

文部科学省(2011)の報道発表によれば、平成 11-20年までの全国調査において観測されている <sup>238</sup>Pu / <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu の比率は、全国平均で 0.026 程 度であるのに対して、本調査において<sup>238</sup>Pu、<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Puの双方が検出された5箇所の調査箇所の 比率はそれぞれ 0.82/2.5 = 0.33, 0.77/0.60 = 1.28, 4.0/1.8 = 2.22, 2.3/1.8 = 1.28, 0.55/0.66 = 0.83 であ る. すなわち. 今回の比率は 0.33-2.22 程度であり, 事故発生前より比率が大きいことから、これらの5 箇所については今回の事故に伴い新たに沈着したも のと考えられる.

なお。<sup>89</sup>Sr が検出された土壌について。<sup>137</sup>Cs に 対する<sup>89</sup>Srの沈着量の比率について計算したところ、 5.6×10<sup>-4</sup>~1.9×10<sup>-1</sup>(平均:9.8×10<sup>-3</sup>)と大きく ばらついた.この結果より、放射性 Sr および放射 性 Cs の沈着量の分布は一様ではないことが確認さ れた(文部科学省, 2011).

本研究で水田土壌を採取した飯舘村長泥(表1. No.1)および南相馬市原町区馬場(表1, No.3)は、 福島第一原発から 33 ~ 35km 圏内である.

## 結果

#### 水田土壌の化学組成

相馬市原町区馬場の水田土壌をエネルギー分散型 蛍光X線分析 (ED-XRF) した結果を表1, No.3 に示した. 比較のために、高濃度に汚染されている 飯舘村長泥の水田土壌(表1, No.1とNo.2).放 射能汚染されていない清浄な石川県金沢市俵町の水 田土壌(表1. No. 5)と無機的な試料としてスライ ドガラス(表1, No.4)の蛍光X線分析結果も示 した.水田土壌の主成分は、岩石、鉱物、粘土組成 を反映して Al, Si が多く、少量の Na, Mg, P, S, K. Ca. Ti. Mn. Fe. W が認められた. また. 微 量元素として、Cl. Cr. Co. Ni, Cu. Zn. Rb. Sr. Zr, Pb が検出された. なお, ED-XRF では Cs, U, Pu は検出されなかったし、放射性核種と安定同位 体の区別はできない。

馬場の水田土壌(表1, No.3)は、2012年7月 6日の時点でAl (24.9wt%), Si (40.0wt%), K (3.12wt%), Ca (2.45wt%) を主成分とし、Ti (1.04wt%)と鉄(8.84wt%)も含まれていた. さらに,の風化産物であるため,鉱物および粘土鉱物組成は 微量元素として Zn (0.029wt%), Rb (0.025wt%), Sr (0.032wt%), Zr (0.049wt%) が検出された(表1, 9.92 Å, 7.15 Å) から、スメクタイト、緑泥石、イ

No.3). 馬場の強熱減量 (600℃)は 16.7wt% であっ tc.

一方、放射能汚染されていない金沢の水田土壌の 化学組成は、馬場の水田土壌と比較した場合、Ba が 0.108wt% 検出されたものの Ca. Fe については 大差なく、Coは未検出であった(表1, No. 5). なお、 蛍光X線分析による金沢の水田土壌の分析は、2011 年9月16日に行い。<sup>134</sup>Cs,<sup>137</sup>Csはいずれも検出限 界以下か未検出であった。ED-XRF による定量分析 結果は、後述する SEM-EDX の面分析によるカラー マッピング結果と比較できる.

#### 放射性核種の分析結果

ゲルマニウム半導体検出器を用いることで、放射 性核種である<sup>134</sup>Cs,<sup>137</sup>Cs,<sup>89</sup>Sr,<sup>90</sup>Sr が福島県の水 田土壌 (No. 1. 2. 3) 中に検出されたが、金沢の 水田土壌 (No. 5) 中には検出されなかった (表1下). なお、 蛍光 X 線分析は 2012 年 7 月 6 日に行い、 ゲ ルマニウム半導体検出器による<sup>134</sup>Cs.<sup>137</sup>Csと<sup>89</sup>Sr. <sup>90</sup>Sr の分析はそれぞれ、2011 年 6 月 14 日、9 月 16 日、 2012 年7月3日に行ったが、半減期の短いIはい ずれの場合も検出されなかった. 馬場の試料での放 射性<sup>134</sup>Cs および放射性<sup>137</sup>Cs の濃度は.長泥の試料 と比較していずれも半分以下であった.

馬場における 2012 年7月3日の時点での<sup>134</sup>Cs の放射線量は 19,000 Bq/kg,<sup>137</sup>Cs のそれは 27,000 Bq/kgであった(表1, No. 3).<sup>137</sup>Csの物理学的 半減期は30.04年、生物学的半減期が70日、実効 半減期が70日と言われているが、水田土壌中の放 射性<sup>137</sup>Csの半減期は9-24年、畑作土壌中の放射 性<sup>137</sup>Csの半減期は8-26年と、実効半減期や生物 学的半減期に大きな幅があることが報告されてい る (Kamamura et. al, 2005; 野口, 2011a, b; 浅見, 2011). また、文部科学省(2011, 2012)が公表し た<sup>89</sup>Sr,<sup>90</sup>Sr の値も場所により大きな隔たりがあるの で、現段階では比較できない。

#### 水田土壌の鉱物組成

長泥の水田土壌と馬場の水田土壌はともに花崗岩 よく似ている.X線粉末回折による反射(14.19Å,

- Table 1. Chemical composition of paddy soils collected from Fukushima Prefecture (No. 1, 2, 3) and Ishikawa Prefecture (No. 5), Japan, compared with that of slide glass (No. 4). The concentrations of <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>89</sup>Sr, and <sup>90</sup>Sr in the polluted soils from Fukushima Prefecture are quite high in 2011 and 2012 after FDNPP accident.
- 表1. 蛍光X線分析による水田土壌の分析結果(2012年7月6日測定)およびゲルマニウム半導体検出 器による<sup>134</sup>Cs,<sup>137</sup>Csと<sup>89</sup>Sr,<sup>90</sup>Srの分析結果(2011年6月14日,9月16日,2012年7月3日測定). No.1:福島県飯舘村長泥の水田土壌. No.2:飯舘村長泥の水田土壌にミドリムシを入れて培養したもの. No.3:福島県南相馬市原町区馬場の水田土壌. No.4:X線回折分析用スライドグラス. No.5:清浄な 石川県金沢市俵町の水田土壌.

Element	No.1 wt(%) Nagadoro	No.2 wt(%) Nagadoro (cultivated)	No.3 wt(%) Baba	No.4 wt(%) Slide glass	No.5 wt(%) Kanazawa City
Na	1.22	1.03	0.567	10.4	1.86
Mg	0.924	0.945	0.974	4.96	1.44
Al	20.0	19.4	24.9	2.74	21.0
Si	52.2	49.2	40.0	63.4	53.1
Р	0.294	1.93	0.816	-	0.368
S	0.215	0.276	0.224	0.152	0.121
Κ	4.44	5.30	3.12	0.698	4.27
Ca	3.96	3.50	2.45	17.1	2.07
Ti	0.948	0.976	1.04	-	0.988
Mn	0.119	0.111	0.138	0.0305	0.157
Fe	6.06	6.04	8.84	0.276	9.07
Sn	-	-	-	0.146	-
Ba	-	-	-	-	0.108
W	1.23	0.442	0.0796	-	-
Cl	-	-	-	-	0.047
Cr	0.044	0.048	0.029	-	0.027
Со	0.052	0.031	-	-	-
Ni	-	-	0.013	-	0.063
Cu	-	-	0.019	-	0.058
Zn	0.023	0.023	0.029	-	0.023
Rb	0.024	0.022	0.025	-	0.024
Sr	0.044	0.038	0.032	0.022	0.057
Zr	0.074	0.072	0.049	0.051	0.031
Pb	-	-	-	-	0.050
Heated 600°C wt(%)	8.2	10.6	16.79	-	5.3

- ; not detected

Ge Semiconductor detector				Analitical date	
Cs-134 (Bq/kg dried)	41,000	47,000	19,000	3rd July 2012	
Cs-134 (Bq/kg dried)	42,000			16th Sep. 2011	not detected
Cs-137 (Bq/kg dried)	59,000	68,000	27,000	3rd July 2012	
Cs-137 (Bq/kg dried)	50,000			16th Sep. 2011	not detected
Sr-89 (Bq/ m <sup>2</sup> )	22,000		2,500	14th June 2011	*
Sr-90 (Bq/ m <sup>2</sup> )	4,800		600	14th June 2011	*

\* Analized by Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology

		chemical yield	Pu-239 + Pu-240	Pu-238
Sample	Location	(%)	(Bq/kg dried)	(Bq/kg dried)
1	Paddy soils at Nagadoro	53	$0.027\pm0.005$	< 0.01
2	Paddy soils with bacteria at Nagadoro	29	$0.031 \pm 0.007$	< 0.01
3	Paddy soils with rainwater at Baba	44	$0.283 \pm 0.018$	< 0.01

Table 2. Result of Pu quantitative analyses of paddy soils using a Si semiconductor detector. 表 2. Si 半導体検出器による水田土壌試料中の Pu の定量分析結果.

ライトなどの雲母類粘土鉱物,多量のカオリン鉱 物の存在が示された.また,ギブサイト(4.82 Å), 石英(3.33 Å),長石(3.179 Å)も含んでいる.な お,エチレングリコール処理により14Åのピークは 14.5Åに移動したので,スメクタイトと同定した.

金沢の水田土壌は火山岩(戸室石と呼ばれている) の風化産物を主とする.赤戸室石および青戸室石 の化学組成は SiO<sub>2</sub> (58~75%), Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (16~25%), MgO (2~3%), CaO (2~3%), Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1~2%), Na<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1~8%), K<sub>2</sub>O (1%), TiO<sub>2</sub> (0.2~0.3%) であり, 風化してスメクタイトやゼオライトを産出する(田 崎, 2008).

#### Pu の定量分析結果

Si 半導体検出器を用いて水田土壌試料中の Pu の 定量分析を行った結果を表 2 に示した.長泥の水田 土壌(試料 1),長泥の水田土壌を微生物培養した物 (試料 2),馬場の水田土壌に雨水を入れて自然培養 した物(試料 3)の収率は 29~53% であり,<sup>239</sup>Pu +<sup>240</sup>Pu は 0.027~0.283Bq/kg(乾燥土)といずれも 1Bq/kg以下であった.また,<sup>238</sup>Pu はいずれの試料 においても未検出であった.本試料の<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu の値は長泥よりも馬場の試料のほうが約 9 倍高い. 生物培養実験と自然培養実験結果については別報で 詳細を述べる.

なお、福島の原発事故の影響があれば<sup>238</sup>Puが検 出されることから、これらの結果は通常の核実験レ ベルの値といえる、しかし、図1に示した文部科学 省(2011)のデータによれば<sup>238</sup>Puと<sup>239</sup>Pu+<sup>240</sup>Pu の双方が検出されたのは北西方向の5ヶ所であった (図1■,●).Puは場所によりかなり局在している ことが示唆される.

## 走査型電子顕微鏡写真とエネルギー分散分析 (SEM-EDX)

水田土壌中のミミズ (図2)

馬場の水田土壌中で採取したフトミミズの頭部 の表皮の走査型電子顕微鏡写真,元素のスペクト ル,特定元素の質量濃度(%),原子数濃度(%)を 図 2b, d に示す.フトミミズの表皮には体節が並び, その間には剛毛が密に並んでいる.表皮全体の面分 析のスペクトル 0-20keV の間には,主成分である Cl, Ca, C, O, Fe, Cu, Mg, Al, Si, S, Pd, Cl, Ca, Sn, Ptのピークが認められる.なお,ここで,, Pt と Pd は蒸着の成分由来である.

フルスケールは 115,926 カウントである.少量・ 微量の元素はスペクトルでは見えないが、あらか じめ設定した元素(Sr,Y,Zr,Mo,Ru,Ag,Sb, Te,I,Xe,Cs,Ba,Ce,Pr,Nd,Th,U,Np, Pu)に関して重なり合うピークを分離して、定量 計算がなされた.ここで指定した元素には、文部科 学省(2011,2012)が公表した 17 放射性核種が含 まれている.この分析結果により、ZrL(51.50%), MoL(13.90%),ThM(5.06%)が顕著であり、 少量のRuL(0.99%),CsL(0.50%),BaL(0.30%), CeL(0.64%),PrL(0.35%),NpM(0.48%)が 存在することが示された.なお、前述のように、I, Xe,Cs,Np,Puはスタンダードと比較していない.

一方,同じミミズの体内の土壌や鉱物粒子の走査型電子顕微鏡写真,元素のスペクトル,特定元素の質量濃度(%),原子数濃度(%)を図2a,cに示す.
ZrL(33.31%),MoL(11.16%),CsL(1.12%),BaL(6.61%),PrL(1.18%),ThM(8.95%),NpM(8.60%),PuM(6.39%)が顕著である.また,少量のRuL(0.83%),UM(0.03%)が認められた.フトミミズの表皮と体内の土壌を比較すると、Cs,



- Fig. 2. Scanning electron micrographs and EDX spectra of earthworm which collected from paddy soils in Baba, Haramachi, Fukushima Prefecture. (a) Scanning electron micrograph of soils inside of the earthworm, (b) Scanning electron micrograph of skin surface of it, (c) EDX spectrum of soils inside of the earthworm, (d) EDX spectrum of skin surface of it.
- 図2. 福島県南相馬市原町区馬場の水田土壌中から採取したフトミミズの表皮(b)およびその体内の土壌(a) の走査型電子顕微鏡写真とそれらの面分析のスペクトル (c, d). 表皮からは Zr, Mo, Th が検出され, 微量の Ru, Cs, Ba, Ce, Pr, Np も認められたが、Pu は検出されなかった. 一方, 体内の土壌からは Zr, Mo, Cs, Ba, Pr, Th, Np, Puが検出され、微量のRuとUも認められた.

Ba, Pr, Th, Np, Puの元素はすべて土壌の方に多 く含まれており、文部科学省(2011, 2012)が公 藻殻はSiを主とし、Mg, Rb, Sr, Zr, Pが顕著 表した福島第一原発から放出された17放射性核種 の一部が検出されたことと一致する.

## 水田土壌中の珪藻と粘土(付図 1-4)

馬場の水田土壌の走査型電子顕微鏡写真を付図1 に,元素濃度分布写真を付図2に示す.下方に長さ 約30µmの珪藻殻が認められる.また、中央上方に

土鉱物と鉱物の粒子で埋められている(付図1). 珪 である. また, Ca, K, Cl, N, Uが広範囲に分布 しているが、Puは粘土と鉱物に局在している. Cs. Ba, S, Th, Ra は微量に含まれる(付図 2).

馬場の水田土壌中の長さ80µmのフナガタケイソ ウ類の殻と周辺の土壌の走査型電子顕微鏡写真を付 図3に示した. 珪藻殻はシリカ (SiO<sub>2</sub>) から構成さ れるため、Si が顕著に認められる. その他には Na, は長さ 30µm 細い微生物が認められ、その周囲は粘 Rb, Sr, Zr, Pの濃集が顕著である.また、少量の S, Pu. Th. Al. Ra はほとんど存在しない.

一方. フナガタケイソウの周辺にある鉱物粒子に は Mg, K, Pu が顕著に濃集している(付図 3, 4 右上すみ). また、その鉱物粒子には Sr, Zr, Al, P, S, Yも認められる. さらに、Puのカラーマップの右 下すみにも小さい粒子があり、K. Sr. Pu. Zr. Al の濃集が顕著である。なお、Puは自然界にはほと んど存在しない元素であり、<sup>238</sup>UからPuができる ことが知られている.

なお、馬場における空間線量は2012年9月16日 で1.38 - 1.74 - 2.31µSv/h と高い値を示していた.

## 用水の底質中の有孔虫(付図 5, 6)

福島県南相馬市の大田川とつるえ川をつなぐ小沢 用水の底質に生息する直径 400µm の有孔虫の走査 型電子顕微鏡写真を付図5に示す. この用水には 低塩分濃度に耐性のある Ammonia beccarii が優勢 であり、津波の影響を示唆している。なお、この底 質自体の放射線量は 0.21µSv/h である. A. beccarii のような石灰質有孔虫の殻は炭酸塩(CaCO<sub>3</sub>)で 構成される. それを反映して Ca が顕著に認められ る. その他には、Zr、Pが特に顕著に濃集し(付図 6), また, Na, Mg, K, Rb, Sr, Y, U, P, S, N などの元素が濃集している. さらに, Cs, Ba, Ra, Th. U. Pu. Al. Si も 微量含まれる. なお. 他の 地域の有孔虫に関しては、別報で詳しく述べる。

### 津波後の水田表面のバイオマット(付図7,8)

相馬市松川浦周辺の水田は、2011年3月11日の 津波により海水で覆われた. その後約1年で海水は 土壌に吸収され、または蒸発乾固し、厚さ数 mm か ら1cmの白色バイオマットが形成していた. 津波 から 1.5 年たった 2012 年 9 月 15 日のバイオマット の表面は 0.62µSv/h, 裏面は 0.59µSv/h と高い放射 線量を示した、一方、まだ湿っている地点の表面の 線量は 1.1-0.62µSv/h とさらに高かったが, 裏面は 0.48µSv/hと低かった.いずれもバイオマットの表 面の方が裏面より高い線量を示した.

白色バイオマットの表面には糸状またはらせん状 のバクテリア(長さ 50-60µm)が多量に生息してい た、バクテリアの走査型電子顕微鏡写真とその元素

Cl, N, Y が微量存在するが, Mg, K, Ca, Cs, Ba, U, 濃度分布写真を付図7, 8 に示す。付図7の対角線 上の長さ 50µm の微生物には、Na, Mg, Sr, Zr, P, S. Clが顕著に濃縮している。Ca. K. Ba. Csも 少量存在し、Ti, Al, Fe, Si は微生物の輪郭が不明 瞭である(付図 8). この微生物では特に Sr. Zr. P が明瞭である.

> 放射能汚染した水田土壌、用水の底質、水田表面 のバイオマット中に生息する生物、微生物は電子顕 微鏡観察により、放射性核種と安定同位元素を取り 込んでいることが明らかである.

#### 考察

本研究により、ゲルマニウムおよびシリコン半導 体検出器による放射性核種の定量分析, ED-XRF に よる主要化学組成の分析, SEM-EDX による微細形 態と元素濃度分布図を組み合わせて、放射能汚染物 質を観察・分析した.その手法は、放射能汚染環境 の把握と環境回復のために、放射能汚染を迅速かつ 視覚的にとらえる利点があることが示された.本研 究では、福島県南相馬市原町区馬場の放射能汚染さ れた水田中のミミズと珪藻と粘土,用水の底質中の 有孔虫,津波被害を受けた水田土壌表面に形成した バイオマット中の微生物について報告した. これら の生物・微生物の中に、文部科学省(2011, 2012) が公表した17種の放射性核種の一部が存在するこ とを示すとともに、生物濃縮の一端を明らかにした.

#### SEM-EDX による分析法の利点

本研究では、SEM-EDX を用いて、放射能汚染 された土壌中のミミズ, 珪藻, 有孔虫, 微生物, 粘 土粒子の微細形態と含有する放射性核種を含む化学 組成を定量・定性的に示した. 元素濃度分布図はミ クロンオーダーで局在する元素の分布状態をカラー マップで明らかにした. この分析法では放射性核種 と安定同位体の区別はできないが、両者の存在の 有無や量の多少が半定量的に推定できる可能性を 示した.特に,SEM-EDXによる全元素同時分析 結果である分布図は、より迅速・簡便に特徴のあ る元素の有無を視覚的にとらえる上で有効である (Pantazopoulos and Vazdivanidis, 2009).

本研究では、放射能汚染された土壌中に生息する

ミミズの表皮と体内の糞の化学組成が異なることを 示し、糞に放射性物質が移行し濃集することを示唆 した.珪藻殻には Si の主成分のみならず、Rb、Sr、 Zr、P が顕著に濃集すること、さらに、土壌中に Pu、 Mg、K を含む微細な鉱物粒子が局在することも示 した.このように SEM-EDX 法により、放射性物質 がミクロンオーダーで局在することを明らかにした.

### 汚染環境中の生物や微生物の生態

ミミズや微生物の定量・定性元素濃度分布写真 により,長半減期放射性核種を含むと思われる Cs, Rb, Sr, Zr, U, Pu などの存在が顕著に画像で示 された.生物が水田や河川において,放射性核種や 安定同位体を含む土壌を吸収・吸着し,糞などに移 行させる役割の一端を明らかにした.

環境微生物学の視点からも、地球環境を守る微生物の役割は大きく、汚染環境における微生物の応用 と利用により環境回復した例も多く報告されている(たとえば、Lovley, 2000;大垣, 2002; Tazaki *et al.*, 2004; Tazaki, 2006; Mulligan, 2007;田崎, 2010, 2011; 久保ほか, 2011; Krejci *et al.*, 2011; Vysotskii and Kormilova, 2011).

本研究により、珪藻殻と有孔虫殻では含まれる元 素の濃度が大きく異なっていることが明らかとなっ た. 有孔虫殻にはCaと比較して1%程度のMg. 0.1% 程度の Sr. 0.000001% 程度の U が含まれているこ とがわかっている (たとえば, Russell et al., 2004). Meece and Benninger (1993) はサンゴの骨格が Pu を取り込んでいることを示した. サンゴの骨格も炭 酸塩で構成されているので、珪藻殻と有孔虫殻に濃 集する元素の違いは、殻の化学組成の相違を反映し ていると思われる. 特に, Cs, U, Puは環境中に 長い間存在するので、汚染環境中の生物の実態を把 握し、環境回復の方法を探る研究が望まれる. ED-XRF では検出されなかった Cs. U. Pu. Ba などの 元素も、SEM-EDX では検出されたが、ゲルマニウ ムおよびシリコン半導体検出器と併用することでよ り詳細な実態が明らかになるであろう.

チェルノブイリ事故の場合, Pu 同位体と<sup>241</sup>Am は腐植物質であるフミン酸とフルボ酸に存在するこ とが報告されている (Amano *et al.*, 1997). 腐植物 質は森林の落葉を材料とすることが多いが, 同時に 放射性核種も多く含まれることになる. それを食べ るミミズ, ミミズを食べるモグラを含む小動物, さ らにそれを食べる鳥類と, 食物連鎖によって汚染が 拡大することになる.

水田土壌中には粘土鉱物とともに珪藻や様々な微 生物がコロニーを作って生存し,安定同位体と放射 性核種の区別無く Rb, Sr, Zr, Cs, Puを取り込ん で固定している. その様子を本研究で可視化したが, 今後,放射性物質の生体内濃縮のメカニズムと土壌 中の放射能耐性菌の実態を明らかにする必要がある.

#### 放射性核種 Pu と Np の存在について

Si 半導体検出器による長泥と馬場の水田土壌中 の<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu と <sup>238</sup>Pu の分析結果 (表 2) は,通常 の核実験レベルの値を示した.また同時に,SEM-EDX の元素濃度分布からは,図 2C,付図 2,付図 4,付図 6 に示したように,Pu は生物や粘土・鉱物 粒子にミクロンオーダで局在していることを可視化 した.

一方, 1954 年 3 月 1 日にマーシャル島で行われ た核実験により, 第 5 福竜丸の乗組員 23 名が"ビ キニの灰"を浴び, 1 名の死者を出した. その 40 年後に第 5 福竜丸の Bontenchiku 試料を分析したと ころ,<sup>237</sup>Np が 11.5 ± 0.8mBq g<sup>-1</sup> 検出された. ま た,<sup>237</sup>Np : <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu の比が, (2.2 ± 0.2) X 10<sup>-3</sup>, および<sup>237</sup>Np : <sup>239</sup>Pu の比が (0.42 ± 0.04) であった (Yamamoto *et al.* 1996).

さらに、2013 年 3 月に福島県で採取したユズから も、Puおよび Np が多量に検出されたが、詳細は次 報に譲る.現在、I、Cs、Sr の測定データが比較的 多く公表されるようになったが、今後、放射性核種 でも長い半減期を持つ Pu や Np についても継続し た研究が必要であると考える.特に、Ge、Si 半導 体検出器による定量分析とともに電子顕微鏡のよう にミクロンオーダで放射性物質を可視化できる方法 を併用すべきである.

### まとめ

2011 年 3 月 11 日に発生した東京電力福島第一 原子力発電所の事故後,放射性物質により汚染され た福島県南相馬市の水田土壌や津波の被害を受けた 農業用水中の底質で採取した生物試料を分析電子顕 微鏡で観察・分析した、土壌中のフトミミズ、珪藻 殻、有孔虫殻、微生物の濃度分布写真から、特に自 然界にはほとんど存在しない Pu が認められたこと により、今回の福島第一原発の事故に伴い Pu が放 出され、生物や土壌に沈着したことを示唆した、ま た、公表された文部科学省の<sup>90</sup>SrとCsの値が大き くばらついていたが、本研究で対象とした放射能汚 染された土壌においては、粘土からも微生物からも Rb, Sr, Zr がセットになって多量に検出され、Cs との相関はなかった. これらの生物の元素濃度分布 写真により、長半減期放射性核種を含むと思われる Cs, Rb, Sr, Zr, U, Pu などの分布が顕著に画像 で示されたことは、生物が汚染された土壌や河川に おいて、放射性核種や安定同位体の区別なく、両者 を一緒に吸収・移行する役割の一端を担っているこ とを明らかにした。特に、Sr は汚染土壌、清浄な土 壌に関係なく、そこに生息する微生物に高濃度に認 められ、人工放射能と自然放射能を選択しないこと を示している、中川(2012)は、これらの生体濃縮 について報告している.

福島県相馬郡飯館村長泥の水田土壌は,2012年6 月時点で放射性<sup>134</sup>Csが42,000 Bq/kg,放射性<sup>137</sup>Cs が50,000Bq/kgと,依然として高い値を示している. 将来的に放射性廃棄物の地層処分を行う場合,物理 化学的影響のみならず,微生物による吸収・吸着・ 固定の影響も考慮する必要があろう.

## 謝辞

本研究を行うに際し,福島県南相馬市原町区の庄 建技術株式会社,石川県能登珪藻土研究会の木地一 夫氏,石川県金沢市俵町の山本幸子氏,河北潟湖沼 研究所の高橋 久博士ならびに永坂正夫博士,井本 香如氏,権上かおる氏にご協力いただいた.皆様に 深く感謝申し上げる.

## 文献

Alam, S.N. & M. K. Mishra. 2013. SEM and EDX study of intermetallics in a copper-tin system and the oxidation behavior of tin. Microscopy and analysis. 27: 7-11.

- Amano, H., M. Watanabe, Y. Onuma, T. Ueno, T. Matsunaga & N. D. Kuchma. 1997. Speciation of Cs, Sr and transuranic elements in natural organic substances of surface soils layers. In: Drozd, J., S.S. Gonet, N. Senesi, J. Weber (Eds.). The role of humic substances in the ecosystem and in environmental protection. p. 709-716. Polish Society of Humic Substances. Wroclaw.
- 天野 光. 2001. チェルノブイリ事故炉周辺環境に おける長半減期放射性核種の分布と挙動. 保健 物理. 36: 314–321.
- 朝日新聞. 2012. ストロンチウム専門家見解. 2012. 7. 25. 13 版.
- 浅見輝男. 2011. 福島原発大事故, 土壌と農作物の 放射性核種汚染. アグネ技術センタ. 東京. 127 p.
- Brown, S. L. & J. N. Bell. 1995. Earthworms and radionuclides, with experimental investigation on the uptake and exchangeability of radiocalcium. Environ. Pollut.. 88: 27–39.
- 堀場製作所. 2010. エネルギー分散型X線分析装置 EMAX ENERGY Energy Dispersive X-ray Micro Analysis. 堀場製作所. 京都. 21 p.
- Kamamura, M., A. Tsumura, N. Yamaguchi, N. Kiho & K. Kodaira. 2005. Monitoring Sr-90 and Cs-137 in rice, wheat, and soil in Japan from 1959 to 2000. Misc. Publ. Natl. Inst. Agro-Environ. Sci.. 28: 1–56.
- 川野良信・菅野念洋・三浦亜由美. 2010. SEM-EDX による珪酸塩鉱物の定量化学分析. 地球 環境研究. 12:99–107.
- Krejci, M. R., B. Wasseman, L. Finney & I. McNulty. 2011. Selectivity in biomineralization of barium and strontium. J. Struct. Bio.. 176 : 192.
- 久保 幹・森崎久雄・久保田謙三・今中忠行. 2011. 環境微生物学;地球環境を守る微微生物の役割 と応用. 化学同人. 京都. 188 p.
- Lovley D. R. 2000. Environmental microbe-metal interactions. ASM Press. Washington, D.C. 277– 327.
- 丸井敦尚. 2012. 広域地下水流動シミユレーション による地下水汚染評価. 産業技術連合・地質関

係合同研究会、平成 24 年 12 月 6 日報告会要旨: 36-39.

Meece, D. E. & L. K. Benninger. 1993. The coprecipitation of Pu and other radionuclides with CaCO<sub>3</sub>. Geochimica et Cosmochimica Acta. 57: 1447–1458.

- 文部科学省. 2011. 文部科学省による、プルトニウム、ストロンチウムの核種分析の結果について.
- http://radioactivity.mext.go.jp/ja/contents/6000 /5048/24/5600 0930 n.pdf
- 文部科学省. 2012. 都道府県別環境放射能水準調査 (月間降下物)におけるストロンチウム 90 の分 析結果について(平成 24 年 7 月 24 日).
- http://radioactivity.mext.go.jp/ja/contents /6000/5808/24/194\_Sr\_0724.pdf
- 森 健. 1992. 分析 SEM; エネルギー分散法による
   定量分析の実際. 電子線分析機器の基礎と応用.
   日本鉱物学会 EPMA 講習会. 37–53.
- 森 敏. 2012. WINEP ブログ生きとし生ける ものはすべて放射能汚染してしまったので ある. http://moribinn.blog114.fc2.com/blogentry-1382.html
- Mulligan, C. N.. 2007. Environmental bio-treatment: Technologies for Air, Water, Soils, and Wastes. Tokai University Press. Hatano. 403 p.
- 中川恵一. 2012. 生体濃縮. https://twitter.com/ team-nakagawa

NHK 科学文化部. 2012. NHK <かぶん>ブログ. http://www9.nhk.orjp//kabunn-blog/200/108660. html

日本土壌肥料学会. 2011. 農作物への原発事故影響 WG,原発事故関連情報(1). 放射性核種(セ シウム)の土壌作物特に水稲)系での働きに関 する基礎的知見.

http://jssspn.jp/info/nuclear/post-15.html

- 野口邦和. 2011a. 放射能の話. 新日本出版社. 東京. 214 p.
- 野口邦和(監). 2011b. 原発・放射能図解データ. 大月書店. 東京. 157 p.
- 大垣昌弘. 2002. クロレラ・ブリガルスE -25 の特 性とチェルノブイリ原発事故処理作業員に対す る健康効果. Isotope News. 9:5–7.

- Pantazopoulos, G. & A. Vazdivanidis. 2009. Microbiologically influenced corrosion in water pipes: A morphological study. Microscopy and analysis. 23: 55–58.
- Rosner, G. & R. Winkler. 2011. Long-term variation (1986–1998) of post Chernobyl <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>238</sup>Pu and <sup>239,240</sup>Pu concentrations in air, depositions to ground, resuspension factors and re-suspension rates in south Germany. Science of the Total Environment. 273: 11–25.
- Russell, A. D., B. Hoenisch, H. J. Spero & D. W. Lea. 2004. Effects of seawater carbonate ion concentration and temperature on shell U, Mg, and Sr in cultured planktonic foraminifera. Geochimica et Cosmochimica Acta. 68: 4347– 4361.
- 斉藤勝裕(編). 2011. 東日本大震災後の放射性 物質汚染対策:放射線の基礎から環境影響評 価,除染技術とその取り組み.株式会社エヌ・ ティー・エス.東京. 324 p.
- 佐藤和也・田崎和江・奥野正幸・久保 博. 2010. 長野県・松代温泉におけるバイオマットへのホ ウ素の濃縮. 地球科学. 64:63-75.
- 庄建技術. 2012. 過酸化水素水+モミガラ方式, 放 射性物質除去法解説シリーズ1. http://www. syoken.co.jp/pdf/japanese.pdf
- 高井章治・高田昇治・永田陽子・日影達夫. 2011. SEMのEDX装置による定性・定量分析の 技術向上と分析精度の検証.http://etech.engg. nagoya-u.ac.jp/v14/020.pdf
- 高田祐介・神山和則・小原 洋・前島勇治・平舘俊 太郎・木方展治・谷山一郎・鷲尾英樹・齋藤 隆・池羽正晴・鈴木 聡・庄司 正・斉藤研二. 2011. 農地土壌における放射性物質の分布と動 態. 農林水産省調査研究報告書第3編. 3-1 – 3-56.
- Tazaki, K.. 2006. Clays, microorganisms, and biomineralization. In: Bergaya, F., B. K. G. Thengs & G. Lagaly (Eds.). Handbook of clay science, p. 477–497. Elsevier. Rotterdam.
- 田崎和江. 2008. 露天の足湯・岩山装置に形成した バイオマットとバイオクレー.粘土科学. 47:

240-254.

- 田崎和江. 2010. バイオミネラリゼーションから みた微生物の進化と地球環境. 化石研究会誌. 42:206-215.
- 田崎和江. 2011. 微生物を生かした放射性物質汚 染土壌処理技術開発の可能性. 斉藤勝裕編. 東 日本大震災後の放射性物質汚染対策. p. 120 -136. 株式会社エス・ティー・エス. 東京.
- Tazaki, K., T. Ishiguro & I. Saji. 2004.
  Bioaccumulation of Uranium by low plants on the weathered granite and microorganisms in the soils. In; Li, S., J. Shen & H. Xu (Eds.).
  Mineralogy and geochemistry: Resources, environment and life. p. 37–58. Geological

Publishing House. Beijing.

- 田崎和江・高橋正則・鈴木祐恵・井本香如. 2011. 東日本大震災における空間ベータ線測定. 地球 科学. 65:175-177.
- Vysotskii, V.I. & A. A. Kormilova. 2011. Low-energy nuclear reactions and transmutation of stable and radioactive isotopes in growing biological systems. J. Condenced Matter Nucl. Sci.. 4: 146– 160.
- Yamamoto, M., Ishiguro, T., Tazaki, K., Komuro, K. and Ueno, K. 1996. <sup>237</sup>Np in hemp-palm leaves of *BONTEKCHIKU* for fishing gear used by the fifth FUKURYU-MARU: 40 years after "Bravo". Health Physics. 70: 744-748.



20µm

- Appendix. 1. Scanning electron micrograph of paddy soils collected from Baba, Haramachi, Fukushima Prefecture, showing diatom, clays, and mineral grains.
- 付図1. 福島県南相馬市原町区馬場の水田土壌の走 査型電子顕微鏡写真. 下方に珪藻,中央上方に 細い微生物が認められる. 周囲は粘土鉱物と鉱 物の粒子である.



Appendix 2. SEM-EDX elemental content maps of the paddy soils shown in Appendix 1, indicating high concentration of Mg, Rb, Sr, Zr, Si, and P in the diatom, associated with Ca, K and Cl. The Pu is located in the clays and minerals.

付図 2. 付図 1 と同視野の元素濃度分布写真. 珪藻殻に Mg, Rb, Sr, Zr, Si, P が濃集している. また, Ca, K, Cl は広範囲に分布し, Cs, Ba, S, Th, Ra は微量に含まれる. Pu は粘土と鉱物に局在している.



40µm

- Appendix 3. Scanning electron micrograph of paddy soils collected from Baba, Haramachi, Fukushima Prefecture, showing cross section of diatom valve surrounded by clays and mineral grains.
- 付図3. 福島県南相馬市原町区馬場の水田土壌中の 珪藻殻の断面の走査型電子顕微鏡写真. 周囲は 粘土鉱物と鉱物の粒子である.



Appendix 4. SEM-EDX elemental content maps of the paddy soils shown in Appendix 3, indicating high concentration of Na, Rb, Sr, Zr, Si, P, S, Cl, N and Y in the cross section of diatom valve. Note that one of the mineral grains contains Mg, K, and Pu on the upper right corner.

付図4. 付図3の珪藻殻の断面の元素濃度分布写真. 珪藻殻内部にはNa, Rb, Sr, Zr, Si, Pの濃集が 顕著であり、また、少量のS, Cl, N, Yが微量に存在する. Mg, K, Ca, Cs, Ba, U, Pu, Th, Al, Raはほとんど存在しない. また、右上角にはMg, K, Puが濃集する鉱物粒子が存在する.



200 µm

- Appendix 5. Scanning electron micrograph of *Ammonia beccarii* (Foraminifera) collected from Ozawa irrigation canal, Minami Soma, Fukushima Prefecture.
- 付図 5. 福島県南相馬市の大田川とつるえ川をつ なぐ小沢用水の底質に生息する有孔虫の走査 型電子顕微鏡写真. 低塩分濃度に耐性がある *Ammonia beccarii* が優勢である. 試料の放射線 量は 0.21µSv/h である.



Appendix 6. SEM-EDX elemental content maps of the Foraminifera shown in Appendix 5, indicating the presence of almost all measured elements in *Ammonia beccarii*.

付図 6. 付図 5 と同視野の元素濃度分布写真. 有孔虫殻に Na, Mg, K, Ca, Rb, Sr, Zr, Y, U, P, S, N などの元素が濃集している. Cs, Ba, Ra, Th, U, Pu, Al, Si も微量含まれる.



Appendix 7. Scanning electron micrograph of filamentous bacteria in microbial mats on the surface of paddy soils collected from Matsukawa inlet, Soma, Fukushima Prefecture.

付図7. 福島県相馬市松川浦の水田土壌表面に生成 したバイオマットの走査型電子顕微鏡写真. 対 角線上に糸状の微生物が存在する.



- Appendix 8. SEM-EDX elemental content maps of the microbial mats on the surface of paddy soils collected from Matsukawa inlet, showing filamentous bacteria which contain Na, Mg, Sr, Zr, P, Cl, and small amounts of Ca, K, Ba, and Cs.
- 付図8. 福島県相馬市松川浦の水田土壌表面に生成したバイオマットの元素濃度分布写真. 微生物には, Na, Mg, Sr, Zr, P, S, Clが多く濃集し, Ca, K, Ba, Csも少量存在する.