

藻類による放射性元素の生物濃縮と除染の可能性

岩本 浩二・白岩 善博*

東日本大震災時の福島第一原子力発電所事故による放射性物質の漏出と拡散は、事故直後の住民の避難や農産物の出荷停止などの被害をもたらした。しかし、それに留まらず、現在も、居住制限区域や帰還困難区域への立ち入り制限や風評被害など、社会的・経済的影響を及ぼし続けている。そのため、福島県およびその近隣地域の復興には、放射性物質の一刻でも早い除去（除染）が求められており、陸上では、現在、拭取りや表土剥離などの物理的方法を中心にさまざまな方法で除染が進められている。

一方、環境修復という点では、目的物質がきわめて低濃度でしか存在しない場合でも生物濃縮機能により効率よく吸収できるなどの利点から、「バイオレメディエーション」と呼ばれる生物を用いた手法が注目されている。特に、植物や藻類など光合成により独立栄養的に成長する生物を用いた「ファイトレメディエーション」は、コスト面で大きなアドバンテージを有すると考えられ、技術開発が行われている。

そこで本稿では、河川や湖沼、海洋さらには原子炉の冷却水の貯留槽からの放射性物質の除去、特に人体影響上注意が必要な放射性のセシウム、ストロンチウムおよびヨウ素の藻類による吸収、吸着機能について概説する。さらには、藻類を用いたこれら物質の除染の可能性を、筆者らが得た最新の知見を含めて紹介する。

放出された放射線核種と総量

福島第一原子力発電所の事故により大量の放射性物質が環境に拡散された。資料や評価手法により異なるが、経済産業省の資料（2011年6月6日公表、10月20日訂正¹⁾によると、その総量は11.64 EBq（1164京ベクレル、1 EBq（エクサベクレル）= 10の18乗Bq）にも及ぶ。この内¹³³Xeが11.3 Ebq、ついで¹³¹Iが159 PBq（ペタベクレル= 10の15乗Bq）とそれら2核種で大部分を占めたが、それぞれの半減期は5.2日および8.0日であり、現時点ではすでに検出レベル以下の水準に減衰している。また、環境に放出されたその他の核種についても、多くの核種は半減期が短く（長くても数百日程度）、ほとんどが減衰している。

除染が必要な放射性物質とその重量

表1に福島第一発電所から大気中に放出された放射性物質の内、半減期が2年を越える放射性核種を示した。

この内、¹³⁷Cs、⁹⁰Sr、および²³⁸Pu、²³⁹Pu、²⁴⁰Pu、²⁴¹Puは10年以上の半減期を有することから、拡散当時の放射活性をほぼ残していると推察される。また、ヨウ素については、¹²⁹Iは、今回の事故での直接的な放出の報告はされていないが、¹²⁹Sbや^{129m}Teの壊変によっても生成される。今回の事故では、¹²⁹Sbと^{129m}Teがそれぞれ 1.4×10^{14} および 3.3×10^{15} Bq放出されていることから、相当量の¹²⁹Iが生成されたものと考えられる。そのため、残存する放射性物質としてはセシウム、ストロンチウムおよびヨウ素の除去を考える必要がある。セシウム、ストロンチウム、ヨウ素はいずれも親生物性元素として生物に吸収されやすく、状況によっては生物濃縮により体内に高濃度に蓄積される可能性もあることから、早期の除去が必要である。実際、吸収されたこれらの放射性物質は内部被曝により健康に対するリスクを高めるものとして、多くの国で農薬や重金属と同様に食品中の⁹⁰Srや¹³⁷Cs、¹³¹Iの混入が常時監視されている²⁾。

一方、プルトニウムについては、生体影響上も注意すべき物質ではあるが、今回の事故に関しては、それほど問題視されていない。これは、放出量が少ないことに加えて、原子量が大きく不揮発性のため、飛散範囲は一部に限られているためと推測される。実際、文部科学省によるモニタリング調査では、福島第一原子力発電所の近傍地域においても検出限界以下もしくは、検出されたとしてもわずかな線量であり、50年間積算実効線量（50年間その地点に滞在した場合に生じる、土壌の再浮遊に由来する吸入被ばくや土壌からの外部被ばく線量の積算値）にしても0.12 mSvと、セシウムの推定値2710 mSvに比べて非常に小さい^{3,4)}。

表1には、環境中に拡散した放射性物質の総重量の推

表1. 福島第一原子力発電所から大気中に放出された放射性物質の内、半減期が2年を越える放射性核種¹⁾。

核種	半減期	放出線量 (Bq)	放出重量 (g)
¹³⁴ Cs	2.1年	1.8×10^{16}	373
¹³⁷ Cs	30.0年	1.5×10^{16}	4753
⁹⁰ Sr	29.1年	1.4×10^{14}	27.5
²³⁸ Pu	87.7年	1.9×10^{10}	0.03
²³⁹ Pu	24065年	3.2×10^9	1.40
²⁴⁰ Pu	6537年	3.2×10^9	0.37
²⁴¹ Pu	14.4年	1.2×10^{12}	0.33

*著者紹介 筑波大学生命環境系（教授） E-mail: emilhux@biol.tsukuba.ac.jp

定値を記載した。その値は次式を用いて計算したものである⁵⁾。

$$W = B \times 8.62 \times 10^{-21} \times M \times T$$

ここで、W：総重量，B：総ベクレル数，M：原子の質量，T：半減期（h）を示す。¹³⁴Csと¹³⁷Csを合計しても、飛散重量は5 kg程度と推定され、⁹⁰Srでは28 gに過ぎない。それが、福島県や宮城県、茨城県などに広範囲に拡散されていることから、除染において、物質質量や濃度として相当希薄な状態からの回収が求められていることがわかる。

植物による放射性物質の回収の利点

一般的に、物理的・化学的方法を用いた環境修復は即効性があり、季節や環境変動などの外部要因に大きな影響を受けにくいという利点がある。一方、吸着材や沈殿剤の大量使用および運用のための大規模な施設と多大な電気などのエネルギーを要することから、広範囲に微量しか存在しない環境汚染物質の除去に活用する場合、コスト面で不向きとされる⁶⁾。これに対して、生物活性を用いた手法の場合、効率は使用する生物や対象物質さらには気温などにより左右されるものの、微量の存在量や希薄溶液中でも効率良く吸収し、コストを低く抑えられる可能性があるとされている。そのため、バイオレメディエーション、その中でも藻類や微生物増殖のためのエネルギー投入が最小限で済むファイトレメディエーションは大きな可能性を持つと期待されている。

微細藻類や水生植物を用いる利点として、1) 増殖速度が速く回収効率が良い、2) 独立栄養生物なので増殖のためのエネルギー投入が少ない、3) 生物濃縮により高効率の回収が見込まれる、4) 自然沈殿を利用した低コスト回収が可能である、5) コンパクトなので減容化が容易などの利点が上げられる。特に、減容の容易さは藻類活用の大きなメリットである。

陸上植物による吸収と濃縮

セシウム セシウムは今回の事故で放出された放射性物質のうち、¹³⁴Csと¹³⁷Csの合計が33 PBqと比較的大量であった。さらにそれぞれの半減期が2年および30年と長寿命のため、現在もっとも多量に残存している核種であり、除染の対象となっている。生物学的にはカリウムの類似体として生態に取り込まれ、筋肉や臓器などの柔組織に多く蓄積される⁷⁾。しかし、重金属のように高度に蓄積されることはなく、動物における生物濃縮も魚類の研究から100倍程度と報告されている^{7,8)}。また、光合成生物によるセシウムの吸収についてはチェルノブイリ原子力発電所事故後に、クロレラやケイ藻、水生シダなどを用いて研究が行われた。このうちヒマワリを使った実験ではセシウムの著しい吸収が報告されている⁹⁾。

また、野生植物の実験圃場での栽培実験¹⁰⁾や、文献間の比較による門や属、種レベルのセシウム蓄積の相対値推定¹¹⁾から、アマランサス属のアオゲイトウ (*Amaranthus retroflexus*) が環境浄化用候補植物としてあげられている。ただしヒマワリについては、被災地における栽培実験の結果では、吸収率が低く除染にきわめて長い時間がかかるため、実用化が見送られている¹²⁾。

ストロンチウム ストロンチウムは福島第一原子力発電所の事故で拡散した親生物性放射性3元素の中で、総放出量が2.1 PBqともっとも少なかった元素である。さらに、ほとんどが半減期が短い⁸⁹Srであったため、現在ではすでに減衰し、残存する放射能が量的に少ないこと、準揮発性の元素であるため飛散範囲がセシウムほど広くないことからそれほど注目されていない。生物学的には、カルシウムの類似元素として吸収され、骨に蓄積されやすい⁷⁾。また一旦吸収されると、⁹⁰Srの物理学的半減期が30年で、その生物学的半減期も30~50年であることから、ほとんど排出されることなく長期間にわたる内部被曝がもたらされる。さらには、魚類で数千倍におよぶ濃縮が報告されるなど高度に蓄積される恐れもあることから¹³⁾、健康への影響の面ではもっとも注意すべき元素と考えられる。

ファイトレメディエーションに適用できる植物種の探索については、圃場での栽培実験などいくつかの報告がある¹⁰⁾。たとえばトルコの重金属で汚染された鉱山地域からはマメ科トラガカントゴムノキ (*Astragalus gummifer*) が候補として選抜されている¹⁴⁾。さらに、藻類でも、緑藻ミカツキモ (*Closterium moniliferum*) や円石藻 *Emiliania huxleyi* でストロンチウムの蓄積が報告されており^{15,16)}、藻類を用いたファイトレメディエーションへの応用が期待されている。

ヨウ素 ヨウ素は、¹³¹Iの放出量が¹³³Xeに次いで多く、特に乳幼児の健康への影響が懸念されたことから、事故直後にはもっとも注目された放射性物質である。しかし、それらの半減期はもっとも長いもので¹³¹Iの8日であり、事故当時に放出された放射性物質はすでに減衰していると推察される。しかし、すでに示したように、^{129m}Teや¹²⁹Sbの崩壊により、半減期が1600万年の¹²⁹Iが生成される。福島第一原子力発電所の事故に起因する物質質量は少ないものの、過去の核実験や原子炉の稼働で放出された分も蓄積され、さらに今後も生成・蓄積されることから、将来的に注意が必要な元素である。生物学的にはヨウ素は高等動物の必須元素の一つであり、甲状腺に濃縮される¹⁷⁾。一方、植物では必須性はなく、むしろイネの赤ガレ病がヨウ素の過剰蓄積に起因することや¹⁸⁾、緑藻クロレラの増殖が高濃度のヨウ素により抑制されることから¹⁹⁾、光合成生物にとって有毒な存在として考えられてきた。しかし、褐藻などの海藻類が時にはヨウ素を数万倍も濃縮することは古くから知られており²⁰⁾、ま

た近年、微細藻類によっては高濃度のヨウ素によっても増殖が阻害されず、むしろ増殖促進効果を示す種が存在すること²¹⁾、さらにはある種のハプト藻がヨウ素を海水のおよそ2000倍にまで蓄積する能力を有することが明らかにされた(未発表)。それらの微細藻類を用いたヨウ素の除去技術構築が可能か否か、技術開発が待たれる。

セシウム、ストロンチウム、ヨウ素を高度に蓄積する微細藻類の探索

福島第一原子力発電所の事故で拡散した放射性物質の除染において、微細藻類を用いたファイトレメディエーションの可能性を示した。そこで筆者らはほぼすべての微細藻類分類群を網羅し、8スーパーグループ、21門、45綱にわたる海水性藻類91種類、淡水性藻類86種類、水草類(維管束植物)11種類を含む合計188種類の微細藻類、水草および無色原生生物について、放射性セシウム、ストロンチウムおよびヨウ素に対する培養液からの除去能力と細胞内への蓄積能力を調べた(図1)²²⁾。試験に用いた株は、筑波大学植物系統分類学研究室に保存の株の他、国立環境研究所微生物系統保存施設(NIESコレクション)や野外からの採取などより取得した。このうち海産の藻類は天然海水をベースとしてEMS, IMKもしくはf/2液で無機栄養素を補強した培地、淡水性藻類は蒸留水を用いたC, CSもしくはAF6培地を用いて維持培養した。従属栄養性生物にはグリセロールやペプトン、酵母抽出物などを添加した有機栄養素強化培地を用いた²³⁾。株はプラスチック製の培養容器に、それぞれの株の培養に至適な培地を15 ml入れ、温度20°C、光条件100 μmol photons m⁻² s⁻¹下でインキュベートすることで維持し、実験に用いる前日に新鮮な培地に植え継いだ。ただしこのとき、淡水培地(C, CS, AF6)についてはカリウムを除去した当該の培地を用いた。その後、¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, もしくは¹²⁵Iを1 kBq/mlとなるように添加し、インキュベートした。一定期間後にサンプリングし、シリコンオイルレイヤー法により培地と細胞を分離して、それぞれに含まれる放射活性をγ線カウンターで測定した。付着性の株では培養容器の壁に細胞が付着し均一に細胞が得られないことや水草では均一に一定量の個体回収が困難であるなどの問題がある。そのため本研究では、はじめに放射性物質の除去率で比較し、その後必要に応じて細胞への蓄積能を精査した。

その結果、放射性セシウム、ストロンチウムおよびヨウ素の除去能力を有する株は、能力の高低はあるものの全188株中それぞれ167, 181および187株が見いだされた。そこで、特に高い除去活性を示した株についてより詳細な分析を行った結果、高度放射性物質除去株として、セシウム、ストロンチウム、ヨウ素についてそれぞれ5株, 3株, 8株が選抜された(表2)。

セシウム吸収株はnak 9(除去率90%: 淡水生, 種

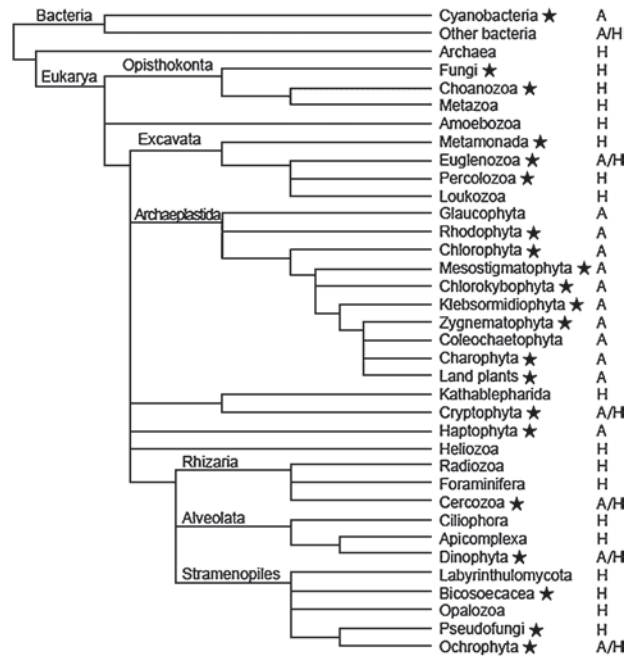


図1. 本研究で用いた微細藻類および水生植物の門レベルでの系統関係。★: 検定を行ったグループ。A: 独立栄養生物, H: 従属栄養生物, A/H: 混合栄養可能生物

名未同定, 真正眼点藻), NIES-1458(除去率38%: *Batrachospermum virgato-decaisneanum*, 紅藻), NIES-2352(除去率22%: *Chloroidium saccharophilum*, 緑藻), および水生植物のTIR2とTIR3(除去率はそれぞれ45%と66%: *Lemna aoukikusa*, アオウキクサ, 維管束植物)であった。特にnak 9は2日で90%の除去率を示すなど、高速で高効率の除去能を示した(表2)。ストロンチウムの除去については、NIES-2131(除去率41%: *Stigonema ocellatum*, ラン藻), nak 1001(除去率36%: *Oedogonium* sp., 緑藻)およびWe2(除去率34%: *Egeria densa*, オオカナダモ, 維管束植物)の3株が選抜された(表2)。また、ヨウ素についてはTIR4(除去率66%: *Nostoc commune*, イシクラゲ, ラン藻), NIES-1956(除去率62%: *Scytonema javanicum*, ラン藻), NIES-2131(除去率49%: *Stigonema ocellatum*, ラン藻), nak 8(除去率42%: *Ophiocytium* sp., 黄緑色藻), We 4(除去率39%: *Elodea nuttallii*, コカナダモ, 維管束植物), TIR 3(*L. aoukikusa*, アオウキクサ, 維管束植物), nak 1002(*Rhizochlonium* sp., 緑藻), およびWe 1(*Cabomba caroliniana*, ハゴロモモ, 維管束植物)の8株が選抜された(表2)。

汚染水の処理などのためにさまざまな無機系の吸着剤が研究されている。セシウム吸着剤としてはゼオライトや、結晶化シリコチタネート(CST)などが知られているが、特にフェロシアン化鉄(プルシアンブルー)類が数万~数十万という高いK_d分配係数(L/kg)を示すと

の報告がある(図2)²⁴⁾。また、ストロンチウムについては合成ゼオライトやチタン酸が知られ、人工ゼオライトでは数百~数千の分配係数が報告されている(図2)。実験条件が異なるため直接の比較は難しいが、本実験で得られたセシウムとストロンチウムの高吸収株であるnak 9とNIES-2131はいずれもそれらの吸着剤と同等もしくはそれらを上回る分配係数を示すことが分かった(表2, 図2)。

最近、セシウムとストロンチウムを同時に吸着できる無機吸着剤が開発された²⁴⁾。これはCST系吸着剤を表面処理しセシウム吸着能を維持したままストロンチウム吸収能を付与したもので、セシウムとストロンチウムの双方に対して K_d が 1×10^3 L/kg以上を維持している(図2)。一方、今回の検索では、放射性セシウム、ストロンチウムおよびヨウ素を複数高度に吸収する藻種を見出すことはできなかった。しかし、さらなる探索により、これらの放射性物質を同時に吸収する藻が発見されることが期待される。

微細藻類を用いた除染の具体的な方法

藻類を用いて物質回収などを行う場合、藻類による物質の吸収プロセスと並んで、藻体の回収プロセスが重要なポイントとなる。たとえば、単細胞もしくは群体浮遊性藻類の回収には時間的には遠心分離が適しているが、エネルギーコストの観点では負荷が大きい。この場合、藻類の沈降を待って上澄みを除去し、凝集沈殿剤を用い

て懸濁液の減容を図ることが求められる。

我々の研究によって、水溶液中に溶解している放射性物質を吸収・吸着により除去できる能力を有する株が選抜された²²⁾。それらは単細胞性藻類や寒天状の群体形成藻類、および糸状性藻類であったため、それぞれの体制や性質に合わせた回収方法の技術開発が今後必要である。その中で、単細胞性の藻類でセシウムを高度に吸収する能力を有する真正眼点藻nak 9を選抜した(図3)。

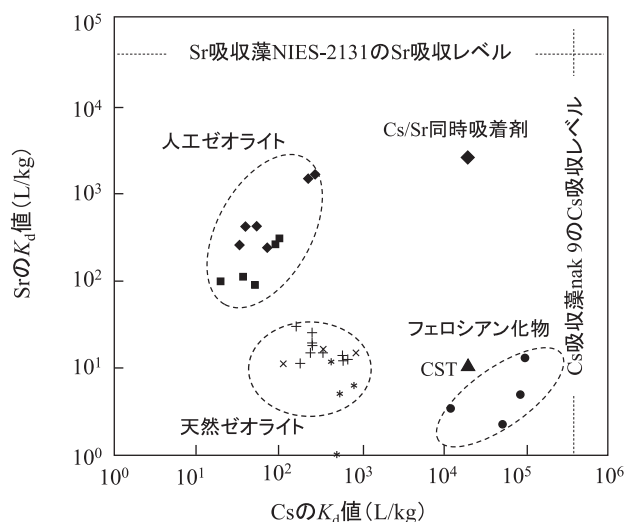


図2. 無機系吸着剤および放射性物質吸収藻の K_d 。無機系吸着剤の吸収は海水条件。文献24の図4を改変。

表2. 高度に放射性物質を除去する能力が示された微細藻類など

核種	分類群	種	コード名	除去率(%)	分配係数(L/kg)	培地	体制・生活環境
¹³⁷ Cs	真正眼点藻	新種	nak 9	89.2	4.1×10^5	AF6	淡水生, 付着性
	維管束植物	<i>Lemna aoukikusa</i>	TIR 3*	66.6	2.7×10^4	C	淡水生, 多細胞, 水面に群生
	維管束植物	<i>Lemna aoukikusa</i>	TIR 2*	44.5	1.5×10^4	C	淡水生, 多細胞, 水面に群生
	紅藻	<i>Batrachospermum virgato-decaisneanum</i>	NIES-1458	37.9	3.0×10^4	C	淡水生, 多細胞, 糸状
⁸⁸⁵ Sr	緑藻	<i>Chloroidium saccharophilum</i>	NIES-2352	22.4	2.1×10^3	AF6	淡水生, 単細胞
	ラン藻	<i>Stigonema ocellatum</i>	NIES-2131	41.3	5.2×10^4	AF6	淡水生, 群体, 糸状
	維管束植物	<i>Egeria densa</i>	We2*	33.9	1.3×10^3	C	淡水生, 多細胞, 沈水性
¹²⁵ I	ラン藻	<i>Oedogonium</i> sp.	nak 1001*	36.3	4.4×10^3	AF6	淡水生, 多細胞, 糸状
	ラン藻	<i>Nostoc commune</i>	TIR 4*	65.9	7.8×10^3	C	陸生, 群体, 寒天状
	ラン藻	<i>Scytonema javanicum</i>	NIES-1956	61.9	1.8×10^4	C	陸生, 群体, 糸状
	ラン藻	<i>Stigonema ocellatum</i>	NIES-2131	48.5	7.0×10^4	AF6	淡水生, 群体, 糸状
	黄緑色藻	<i>Ophiocytium</i> sp.	nak 8	41.6	1.0×10^5	AF6	淡水生, 群体
	維管束植物	<i>Elodea nuttallii</i>	We 4	38.8	6.0×10^3	C	淡水生, 多細胞, 沈水性
	維管束植物	<i>Lemna aoukikusa</i>	TIR 3*	37.7	8.5×10^3	C	淡水生, 多細胞, 水面に群生
	緑藻	<i>Rhizochlonium</i> sp.	nak 1002	35.6	8.2×10^3	AF6	淡水生, 多細胞, 糸状
	維管束植物	<i>Cabomba caroliniana</i>	We 1*	30.6	1.1×10^3	C	淡水生, 多細胞, 沈水性

除去率は独立した3回の実験で、放射性物質添加後2, 4, 8日後の測定における最高値の平均を示した。*: 単藻 (unialgal) ではあるが非バクテリアフリー株。

nak 9は、容器などの壁に付着しやすいという性質を有する。そのため、nak 9を放射性セシウムが溶存するタンク内で培養し、セシウムを吸収・吸着した藻体を回収し乾燥させることで、放射性セシウムを回収し、減容することが可能である。また、あらかじめ大量に培養したnak 9株をシート上に付着させ、そのシートを水底や水路に設置し、放射性セシウムを吸収させた後にシートごと回収するなどの方法が考えられる。

ヨウ素を高度に吸収するラン藻TIR 4（イシクラゲ）は寒天状の群体であるため、たとえば汚染土に付着させる場合でも、メッシュ越しに設置し、メッシュごと回収することで回収効率を上げることが可能と考えられる。さらには水面に群生する維管束植物のTIR 3（アオウキクサ）や水中で大きな糸状体を形成する緑藻 nak 1001（*Oedogonium* sp.）、沈水性の水草We 2（オオカナダモ）などでは、網などを用いての藻体の回収が可能であり、回収プロセスの最適化を図ることが可能と考えられる。

おわりに

2011年の福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性物質について、除染の対象となる核種とその除染に寄与が可能な藻類を示し、それぞれの株の体制に合わせたアプリケーションと回収の方策についての考えを紹介した。特に、筆者らが見いだした真正眼点藻類nak 9株の¹³⁷Csの吸収・除去能力は優れていることを実験的に証明した。それは、現在も福島第一原子力発電所の原子炉建屋やタービン建屋に大量に残存する高濃度汚染水に対しても有効である可能性がある。ただし、その実用化には、藻の大量培養や品質管理システムの構築が不可欠である。

また、環境に拡散した放射性物質の除染については、

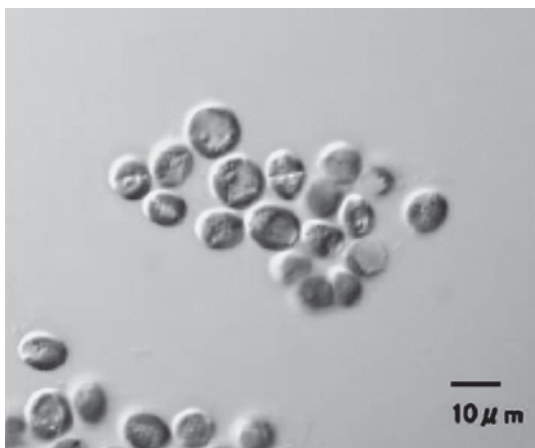


図3. nak 9の顕微鏡写真

現在喫緊の対策として放射性セシウムを対象として表土剥離によるホットスポットの解消が行われている。その結果、莫大な量の汚染土が発生し、減容を含めた汚染土の処理が次の課題となっている。しかし、放射性セシウムは土壌の極小微粒子と強固に結合し、抽出のための有効な手段がないのが現状である。そのため、汚染土の減容を行う場合は、何らかの方法でセシウムを抽出・可溶化し、その後nak 9株などの微細藻類で吸収するなどの一連の戦略が必要である。そのためには、生物学やエンジニアリングを含む多くの分野の研究者のより一層の協力体制が求められる。

本研究は内閣府・平成23年度科学技術戦略推進費「放射性物質による環境影響への対策基盤の確立」および筑波大学・東日本大震災復興・再生支援プログラム「原発事故により環境に放出された放射性セシウムの土壌からの抽出・回収システムの構築」（平成24年度および平成25年度）の研究助成により行われた。

文 献

- 1) 経済産業省：プレスリリース，平成23年10月20日（2011）。
- 2) Betsy, A. *et al.*: *J. Appl. Toxicol.*, **32**, 765 (2012).
- 3) 文部科学省：プレスリリース，平成23年9月30日（2011）。
- 4) 文部科学省：プレスリリース，平成23年8月21日（2012）。
- 5) 川瀬雅也：化学，**66**, 37 (2011)。
- 6) 王 効拳ら：埼玉県環境科学国際センター報，**3**, 114 (2002)。
- 7) 清水 誠：Radioisotopes，**22**, 662 (1973)。
- 8) 笠松不二男：Radioisotopes，**48**, 266 (1999)。
- 9) Dushenkov, S. *et al.*: *Environ. Sci. Technol.*, **31**, 3468 (1997)。
- 10) 山上 陸ら：平成20年度環境科学技術研究所年報，27 (2009)。
- 11) Broadley, M. R. *et al.*: *Environ. Pollut.*, **106**, 341 (1999)。
- 12) 農林水産省：プレスリリース，平成23年9月14日（2011）。
- 13) Smith, J. T. *et al.*: *J. Environ. Radioact.*, **100**, 950 (2009)。
- 14) Sasmaz, A. and Sasmaz, M.: *Environ. Exp. Bot.*, **67**, 139 (2009)。
- 15) Krejci, M. R. *et al.*: *J. Struct. Biol.*, **176**, 192 (2011)。
- 16) Obata, T. *et al.*: *Mar. Biotechnol.*, **6**, S66 (2004)。
- 17) 横山正孝：ヨウ素化合物の機能と応用，p. 243，シーエムシー出版（2005）。
- 18) Watanabe, I. and Tensho, K.: *Soil Sci. Plant Nutr.*, **16**, 192 (1970)。
- 19) Greenfield, S. S.: *Am. J. Bot.*, **29**, 121 (1942)。
- 20) 福田 理：地質ニュース，**199**, 1 (1971)。
- 21) Iwamoto, K. and Shiraiwa, Y.: *Procedia Environ. Sci.*, **15**, 34 (2012)。
- 22) Fukuda, S. *et al.*: *J. Plant Res.*, **127**, 79 (2014)。
- 23) 笠井文恵ら：保存株リスト第7版，p. 49，独立行政法人国立環境研究所（2004）。
- 24) 可児友子，浅野 隆：Isotope News，**716**, 18 (2013)。