



Title	福島県浜通り地域における野草中の ¹³⁷ Csの測定
Author(s)	
Citation	令和3（2021）年度学部学生による自主研究奨励事業研究成果報告書. 2022
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/85625
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

令和3年度大阪大学未来基金「学部学生による自主研究奨励事業」研究成果報告書

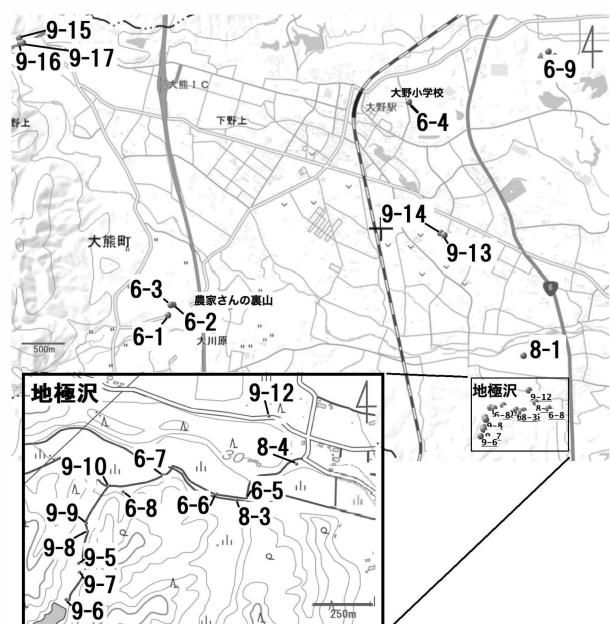
ふりがな 氏名	のぼりお ゆうへい 登尾 悠平	学部 学科	工学部 地球総合 工学科	学年	3年			
ふりがな 共同 研究者氏名	おかむら たくみ 岡村 拓実	学部 学科	理学部 物理学科	学年	2年			
	おおはら りさこ 大原 理彩子		人間科学部 共生 学科目		3年			
	ひらい たけひろ 平井 雄大		人間科学部 教育 学科目		3年			
アドバイザー教員 氏名	高橋 賢臣	所属	安全衛生管理部					
研究課題名	福島県浜通り地域における野草中の ^{137}Cs の測定							
研究成果の概要	研究目的、研究計画、研究方法、研究経過、研究成果等について記述すること。必要に応じて用紙を追加してもよい。(先行する研究を引用する場合は、「阪大生のためのアカデミックライティング入門」に従い、盗作剽窃にならないように引用部分を明示し文末に参考文献リストをつけること。)							

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震とそれに伴う福島第一原子力発電所事故から10年が経過した。震災直後と比べると、この10年間で原発事故による帰還困難区域の範囲は狭まり、住民の帰還も始まっているが、未だに大きな影響が残っている。本研究のフィールドである飯館村も大部分の避難指示は解除され住民の帰還が進んでいるが、住民の20%ほどが帰還したところで頭打ちになっている現状がある。大熊町では、町の約半分が帰還困難区域となっており、住民の帰還は進んでいない。私たちは、夏学期に開講されている集中講義である「福島県浜通り地区環境放射線研修」に参加し、その一環として飯館村で土壤や植物の採取と測定を行ったり、飯館村やその周辺地域について学習したりした。さらに ^{137}Cs の環境動態や、土壤から植物・動物への放射性物質の移行について調査することでより理解を深めたいと考えた。本研究では、放射性物質の土壤から植物への移行に焦点を絞った。食用となる植物の部位ごとの ^{137}Cs 濃度と土壤中の ^{137}Cs 濃度を比較し考察することを目的とする。

2. 試料採取・処理

2021年6月から同年9月にかけて計3回、飯館村と大熊町において試料採取を行った。調査を行う植物は、野生・栽培を問わず、食用となるものを中心に選定した。大熊町で24箇所から20種類、飯館村で4箇所から4種類の植物と、それぞれの根元の土壤を併せて採取した。選定した地点では、地面から高さ1m及び5cmの空間線量率を測定した後、採土補助器を用いて直径5.0cm深さ5.0cmの土壤を採取した。試料を採取した地点は、以下の図1,2に示した。なお、地図中の採取地点に書かれた数字は、「(採取した月)ー(試料番号)」を表している。



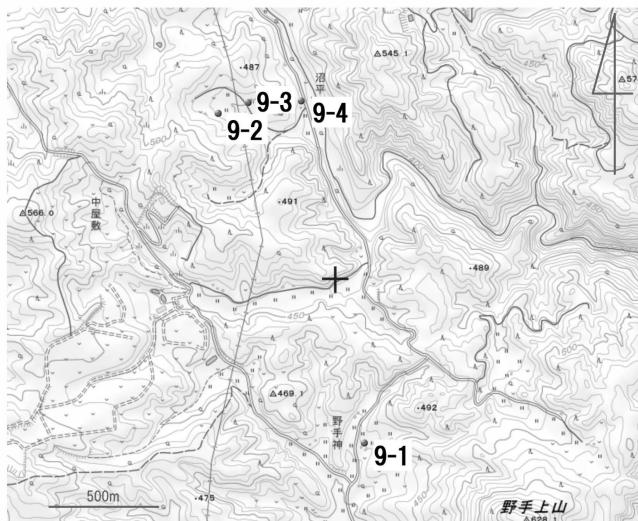


図 2: 飯館村での試料採取地点



図 3: 処理した試料の例

試料はできる限り均質で幾何学的条件の揃った状態で測定できるようにする。乾燥や裁断などの処理を施した試料を充分に攪拌した上で、放射線測定容器(U-8 容器)に充填することで幾何学的条件を一様にする。

土壤の試料は、一度ビニール袋に移し替えて均一になるように充分攪拌した後、U-8 容器に充填した。また、野草の試料については、茎・葉・花など部位ごとに分けて細かく裁断し、乾燥させたうえで U-8 容器に充填した。さらに、果物の試料については、実・皮・種など部位ごとに分けて冷凍し、真空乾燥した上で粉碎・攪拌し、同じく U-8 容器に充填した。処理した試料は図 3 のような状態にして測定に供する。

3. 測定解析

試料中の ^{137}Cs の放射能測定は、Ge 半導体検出器による γ 線スペクトロメトリ⁽¹⁾により行った。 ^{137}Cs について 662keV の γ 線を測定し、濃度既知の試料との比較を行うことにより放射能濃度を求めた。

解析の手順は以下のとおりである。

1. Ge 半導体検出器を用いて、それぞれの試料についてスペクトルを得る。今回は、2台の Ge 半導体検出器を用いた。(以下、検出器①と検出器②と表記)
2. ^{137}Cs の 662keV のピークについて、検出器①では、鉛による遮蔽を行っているため、関心領域においてほかの核種のピークや、近くに置いてあった試料に含まれる ^{137}Cs によるピークの影響が無視できる。このことから、バックグラウンドを直線であると仮定してピーク下部の台形領域とピーク全体の計数との差から計数を求めた。検出器②では、近くに置いた試料の影響が無視できないため、試料測定中と同様の状況で測定したバックグラウンドのピーク計数を規格化したものと試料を測定した際のピーク全体の計数との差から計数を求める。
3. 幾何学的条件を考慮して ^{137}Cs 濃度が既知である試料(^{137}Cs 濃度が $20340 \pm 652\text{Bq/kg}$ の土壤)から、試料の形状に対する効率曲線を求める。すべての試料は U-8 容器に充填しているので、幾何学的条件は試料の充填高さに依存する。ピーク計数 n と試料の放射能 $A(\text{Bq})$ は、検出効率 ϵ と測定時間 t を用いて式(1)のように求められる。

$$A = \frac{n}{\epsilon t I_\gamma} \quad (1)$$

ただし、 I_γ は ^{137}Cs 由来の γ 線のうち 662keV のピークに含まれるもののが割合。

先述の ^{137}Cs 濃度が既知である試料を用いて、高さ $i \times 10(\text{mm})$, ($i = 1, 2, 3, 4$) の試料 i を用意し、式(1)に従って ε の具体的なデータ ε_i を 4 点分測定し、 ε を試料高さ h の一次関数と仮定して、

$$\varepsilon(h) = ah + b \quad (2)$$

とおき、最小二乗法により a と b を決定した。ただし、

$$\varepsilon_i = \frac{n_{gi}}{R t_{gi} w_{gi} l_\gamma} \quad (3)$$

w_{gi} : 試料 i の質量(kg) n_{gi} : 試料 i の計数 (count)

t_{gi} : 試料 i の測定時間(s) R : 試料 i の ^{137}Cs 濃度(Bq/kg)

この関係から測定した試料の放射能を決定する。

4. 試料ごとの放射能を試料の重量で除して、放射能濃度を決定する。この際、試料の重量は乾燥後の重量を用いるため、試料採取時と比較すると放射能濃度が高くなっていることに留意する。

以下に試料を測定した際のスペクトルの例を示す。図 4 が 210618 ワラビ土壌、図 5 が 210618 ワラビ葉のスペクトルである。

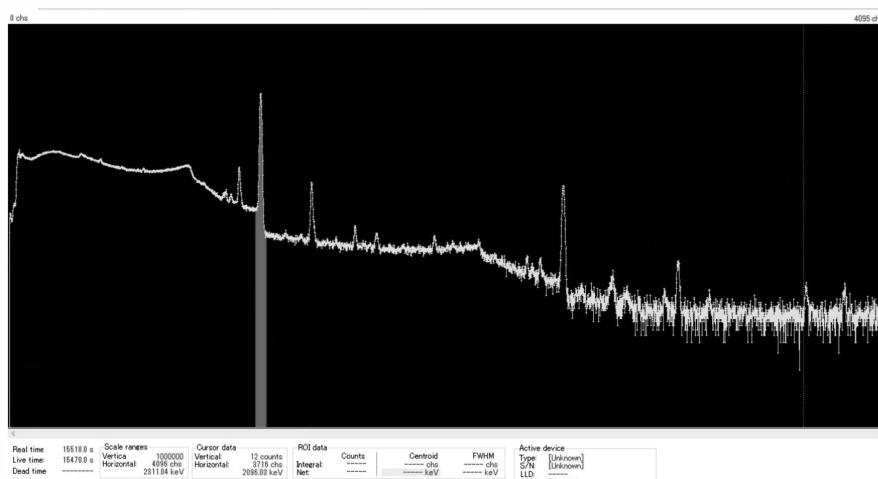


図 4: 210618 ワラビ土壌のスペクトル

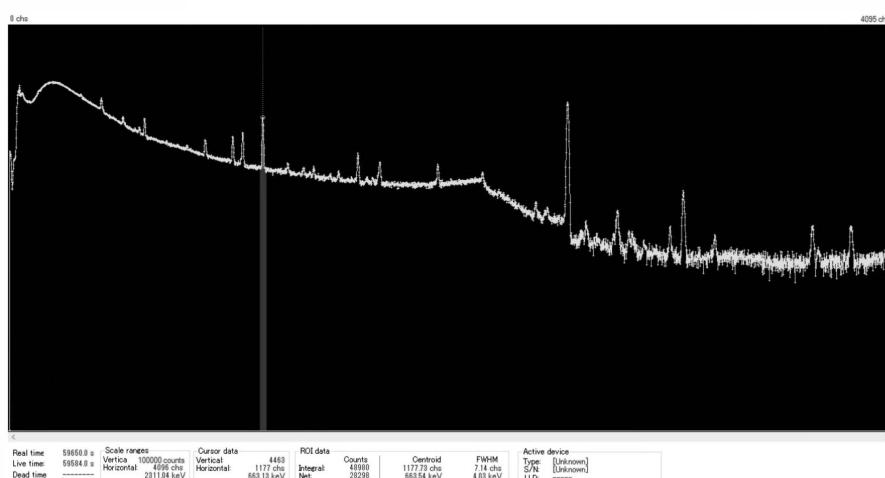


図 5: 210618 ワラビ葉のスペクトル

図 4, 5 では、今回の測定対象である ^{137}Cs のピークをハイライトしている。ピークの位置は天然放射性核種によるピークとの比較から決定した。エネルギー校正是 ^{137}Cs の 662keV のピークと ^{40}K の 1460keV のピークにより行った。

また、誤差の評価については、放射能濃度を求めるための入力量のうち、最終的な放射能濃度への寄与の大きさから、試料のピーク計数、校正に利用した既知試料の放射能濃度、校正時のピーク計数、バックグラウンドのピーク計数の 4 つを考慮している。

誤差は次のように求めた。検出効率 ε の誤差 σ_ε については、 ε と同様に高さ依存性が考えられるので、 ε_i の誤差 $\sigma_{\varepsilon i}$ を、式 (4) を用いて求め、最小二乗法により線形フィッティングを行った。

$$\sigma_{\varepsilon i} = \sqrt{\left(\frac{\sqrt{n_{gi}}}{Rt_{gi}w_{gi}}\right)^2 + \left(\frac{n_{gi}\sigma_R}{R^2t_{gi}w_{gi}}\right)^2} \quad (4)$$

$$\sigma_\varepsilon(h) = ch + d \quad (5)$$

ただし、 c, d は最小二乗法により決まる定数であり、 c, d の誤差は次の式 (6) で表される

A の誤差 σ_A に対して 2 次の微少量となるので、十分寄与が少ないこととする。

$$\sigma_A = \sqrt{\frac{n}{(\varepsilon t)^2} + \frac{\sigma_\varepsilon^2}{(\varepsilon^2 t)^2}} \quad (6)$$

また、 σ_A を相対誤差で書けば、

$$\left(\frac{\sigma_A}{A}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_n}{n}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 \quad (7)$$

n の誤差 σ_n については、誤差伝播を考えて

$$\sigma_n^2 = \left(\frac{\partial n}{\partial n_s}\right)^2 \sigma_s^2 + \left(\frac{\partial n}{\partial n_b}\right)^2 \sigma_b^2 = n_s + n_b \left(\frac{t_s}{t_b}\right)^2 \quad (8)$$

とした。

σ_ε : ピーク効率の誤差 σ_A : 放射能濃度の誤差(Bq/kg)

σ_R : 既知試料の放射能濃度誤差(Bq/kg) n_g : 校正時のピーク計数(count)

t_g : 校正時の測定時間(s) w_g : 校正時の試料重量(kg)

R : 既知試料の放射能濃度(Bq/kg) n : 試料のピーク計数(count) ε : ピーク効率

4. 解析結果と考察

これより、乾燥した植物試料と生育場所の土壌との Cs 濃度の比(以下、濃度比と表記する。)を用いて結果の考察を行う。

乾燥した植物試料と生育場所の土壌との Cs 濃度の比は以下の式のように定義する。

$$\text{濃度比} = \text{植物中の Cs 濃度(Bq/kg 乾燥重)} / \text{土壌中の Cs 濃度(Bq/kg 乾燥重)} \quad (9)$$

表 1 に今回測定を行った全試料の解析結果を示す。採取場所は図 1, 2 中に示した番号と対応しており、各試料の測定に利用した検出器も示している。

この結果について、栗の濃度比を用いた比較、シロザの濃度比の 2 点について考察を行う。

表1:試料の測定結果一覧

サンプル名	場所	検出器	重量(g)	高さ(mm)	Cs-137放射能(Bq/kg)	サンプル名	場所	検出器	重量(g)	高さ(mm)	Cs-137放射能(Bq/kg)
210618シロザ土壤	6-1	②	93.9	45	1.28±0.045*10^3	210923 丹波栗宅地実	9-2	①	34.8	34	1.77±0.088*10^2
210618シロザ	6-1	②	7.8	20	3.87±0.13*10^3	210923 丹波栗宅地鬼皮	9-2	①	18.5	38	1.33±0.084*10^2
210618シドケ土壤	6-2	②	93.9	45	2.07±0.070*10^4	210923 丹波栗宅地渋皮	9-2	①	14.5	29.5	1.06±0.073*10^2
210618シドケ茎	6-2	②	3.4	7	6.11±0.31*10^2	210923 丹波栗宅地土壤	9-2	①	133.5	47	8.31±0.27*10^2
210618シドケ葉	6-2	②	3.3	18	6.71±0.25*10^2	210923 丹波栗宅地実	9-3	①	30.7	29	3.24±0.13*10^2
210618ビワ土壤	6-3	①	76.9	39	1.18±0.041*10^4	210923 丹波栗宅地渋皮	9-3	①	27.5	41	1.31±0.046*10^3
210618ワラビ土壤	6-4	②	88.7	47	6.12±0.21*10^4	210923 丹波栗宅地土壤	9-3	①	91.8	42	5.34±0.17*10^3
210618ワラビ茎	6-4	②	5.4	10	3.17±0.11*10^3	210923 山栗宅地実	9-4	①	37.7	39	7.37±0.26*10^2
210618ワラビ葉	6-4	②	3.3	34	1.06±0.035*10^4	210923 山栗宅地鬼皮	9-4	①	15.2	34.5	6.48±0.27*10^2
210618ワラビゼンマイ	6-4	②	0.4	1	1.07±0.035*10^4	210923 山栗宅地渋皮	9-4	①	5.2	13.5	5.73±0.28*10^2
210618クズ土壤	6-5	①	50.4	24	7.87±0.28*10^4	210923 山栗宅地土壤	9-4	①	97.6	45	1.06±0.034*10^4
210618 クズ葉	6-5	①	5.7	31	8.85±0.42*10^2	210924 地極沢クワ土壤	9-5	①	96.7	45	1.23±0.042*10^4
210618 クズ茎	6-5	②	8.8	28	9.67±0.33*10^2	210924 地極沢ミゾソバ1土壤	9-6	①	54.3	29	2.32±0.082*10^4
210618ヨモギ土壤	6-6	②	55.5	22.5	1.38±0.045*10^5	210924 地極沢ミゾソバ1	9-6	①	1.8	9	2.05±0.10*10^3
210618ヨモギ茎	6-6	②	5.7	16	2.41±0.092*10^3	210924 地極沢ミゾソバ2土壤	9-7	①	98.3	38.5	1.11±0.038*10^4
210618 ヨモギ葉	6-6	①	7	41	4.38±0.16*10^3	210924 地極沢ミゾソバ2	9-7	①	1.3	6	2.02±0.099*10^3
210618 ドクダミ土壤	6-7	①	56.1	25	8.90±0.31*10^4	210924 地極沢ミゾソバ3土壤	9-9	①	85.6	32.5	1.68±0.059*10^4
210618フキ土壤	6-8	②	96.6	38	2.28±0.076*10^4	210924 地極沢ミゾソバ3	9-9	①	4.1	21	5.52±0.31*10^2
210823 田んぼ北東セイタカ土壤	8-1	①	150.97	58	6.64±0.21*10^4	210924 地極沢ミゾソバ4土壤	9-10	①	131.6	45.5	4.16±0.14*10^4
210823オブタクサ葉	8-1	②	8.7	46	1.66±0.059*10^3	210924 地極沢アケビ実	9-12	②	2.38	5	1.98±0.080*10^3
210823 クズ根元土壤	8-3	①	68.38	23	5.34±0.19*10^4	210924 大熊キウイ土壤	9-14	①	98.7	49	2.69±0.091*10^4
210823クズ②葉	8-3	②	7.6	43	1.80±0.072*10^3	210924 大熊ユズ土壤	9-15	①	34.5	26.5	2.27±0.080*10^4
210823 クズ②茎	8-3	①	9.1	24.5	1.12±0.044*10^3	210924 大熊お茶土壤	9-16	①	67.7	29.5	3.95±0.14*10^4
210823 大熊クズ	8-3	①	3	27.5	3.51±0.14*10^3	210924 大熊ミョウガ土壤	9-17	①	77.2	44.5	5.74±0.19*10^4
210823 地極沢スキ土壤	8-4	①	114.64	39	4.32±1.50*10^4	210924 地極沢クズ土壤	6-5	①	44.9	16.5	7.61±0.25*10^4
210823ススキ茎	8-4	②	10.6	45	2.56±0.10*10^2	210924 地極沢クズ2土壤	6-5	①	100.6	30.5	1.50±0.052*10^4
210923 アケビ土壤	9-1	①	98.1	40	7.94±0.275*10^3	210923 飯館送つもらつアケビ実	②	6.66	11	3.27±0.16*10^1	
210923飯館アケビ実	9-1	②	4.48	7	2.33±0.10*10^2	210924 送つもらつアケビ種	②	26.36	31	3.50±0.12*10^3	
210923飯館アケビ種	9-1	②	21.4	18	5.87±0.39*10^1	210924 地極沢アシ土壤	9-6	①	28	22	2.85±0.10*10^4

求めた濃度比は次の表2に示す。本研究では、植物中のCs濃度、土壤中のCs濃度とともに¹³⁷Csのみを用いた。ただし、植物は乾燥した状態での放射能濃度を用いるため、採取した直後の状態とは単純比較することができない。ここでは、同じ条件で求めた移行係数どうしを比較することにより考察をする。

表2:移行係数の結果一覧

サンプル名	濃度比	サンプル名	濃度比
210618クズ葉	1.13±0.066*10^-2	210923飯館アケビ種	7.39±0.56*10^-3
210618クズ茎	1.23±0.061*10^-2	210923 再__丹波栗実	6.08±0.31*10^-2
210618シドケ茎	2.95±0.18*10^-2	210923 丹波栗実渋皮	2.45±0.11*10^-1
210618シドケ葉	3.24±0.17*10^-2	210923 再__丹波栗実鬼皮	1.91±0.097*10^-1
210618シロザ	3.03±0.15	210923再__丹波栗宅地実	6.76±0.44*10^-3
210618ヨモギ茎	1.75±0.088*10^-2	210923 丹波栗宅地渋皮	1.27±0.097*10^-1
210618ヨモギ葉	3.18±0.15*10^-2	210923再__丹波栗宅地鬼皮	1.60±0.11*10^-1
210618ワラビ茎	5.18±0.25*10^-2	210923 山栗宅地実	6.98±0.34*10^-2
210618ワラビ葉	1.73±0.082*10^-1	210923 山栗宅地渋皮	5.42±0.32*10^-2
210618ワラビゼンマイ	1.76±0.083*10^-1	210923 山栗宅地鬼皮	6.13±0.32*10^-3
210823クズ②葉	3.36±0.18*10^-2	210924 地極沢ミゾソバ1	8.84±0.54*10^-2
210823クズ2茎	2.10±0.11*10^-2	210924 地極沢ミゾソバ2	1.82±0.11*10^-1
210823ススキ茎	5.93±0.33*10^-3	210924 地極沢ミゾソバ3	3.28±0.22*10^-2
210923飯館アケビ実	2.94±0.16*10^-2		

4-1 栗の移行係数を用いた比較

今回測定した試料のうち、丹波栗と山栗について部位ごとの移行係数を表3に示す。

表3:栗の部位ごとの移行係数

	丹波栗畠	丹波栗宅地	山栗宅地
実	6.08±0.31*10^-2	6.76±0.44*10^-3	6.98±0.34*10^-2
渋皮	2.45±0.11*10^-1	1.27±0.097*10^-1	5.42±0.32*10^-2
鬼皮	1.91±0.097*10^-1	1.60±0.11*10^-1	6.13±0.32*10^-3

上の表から、測定した範囲では丹波栗の濃度比は山栗の濃度比に比べて大きい傾向が読み取れる。栗について、新鮮重量での植物と乾燥重量での生育場所の土壤との Cs 濃度の比である移行係数は文献値 0.039 ~0.311⁽²⁾ である。この文献値は 2011 年のものであり、土壤からの吸収だけでなく、表面からの吸収の影響も大きいため、現在はこれよりも小さな値となっていると考えられる。本研究で用いた濃度比は、植物について乾燥重量での Cs 濃度を用いているため、移行係数よりも高い値となることが予想される。これらのこと考慮すると、求めた濃度比の値は文献値の移行係数と比較しても大きく矛盾しない。

また、山栗では実のほうが渋皮・鬼皮よりも濃度比が高く、丹波栗では鬼皮・渋皮のほうが実よりも濃度比が高い傾向が読み取れる。試料数が少ないのでさらに調査が必要だが、丹波栗と山栗では部位ごとの濃度比に差があると考えることができる。さらに考察を深めるためには、複数の樹から試料を採取しデータを増やすことや、文献の移行係数と比較ができるように、新鮮重量で求めた植物の Cs 濃度を用いて濃度比を算出することが必要である。 γ 線によるスペクトロメトリに加えてイメージングプレートを用いて放射性物質の分布を可視化することも部位ごとの放射能濃度の考察の一助となると考える。

4-2 シロザの濃度比について

今回の測定で求めた濃度比は、全試料のうちシロザが最も大きく 3.03 ± 0.15 であった。他の試料では 0.1 程度だったため、他の試料に比べて極端に高い値であるといえる。シロザをはじめとするアカザ科の植物は Cs 吸収率が高い⁽³⁾ことが知られており、実際に土壤から Cs を他の植物よりも多く取り込んでいると考えられる。しかし、移行係数の文献値は 0.047 程度⁽⁴⁾ であり、今回の濃度比に植物の乾燥重量を用いていることを考慮しても文献値と大きく離れている。これには以下の理由が考えられる。

採取したシロザは水分を多分に含んでおり、乾燥重量で比較した今回は移行係数が高く出てしまった可能性がある。また、試料採取時に生育地点付近の土壤混入により試料汚染があった可能性や、試料を処理する段階でかなり傷んでしまっていたために土壤の付着した根を葉と分別できず、一緒に裁断し測定してしまった可能性も考えられる。従って、今回求めた濃度比は、シロザが他の植物に比べて特段 Cs を取り込みやすいことを裏付けるための根拠としては不十分であった。加えて、土壤の放射能濃度が他の未除染地域と比べて低く、高線量の土壤の下での移行を調査することはできなかった。以上を踏まえた今後の課題として、植物や土壤などの試料を採取する際に、道具の汚れを毎回ふき取って試料汚染を防止し、試料は処理する前に十分に洗浄などを行い、表面に付着した土壤を取り除くようにする。また、個体差を考慮するために、1種類の試料につき 3 試料以上採取して統計処理をする。さらには、未除染区域に様々な線量でシロザが自生しやすい土壤を用意して生育し、放射能の植物への移行の様子や、成長に伴う Cs の濃縮度合の変化を調査していきたい。

5. 今後の展望

本研究では、野草や果物について部位ごとで分けるという方法でそれぞれに含まれる ^{137}Cs の濃度を定量し、その結果を考察するという方法で進めた。この方法では、部位ごとの ^{137}Cs 濃度を比較することはできるが、具体的に果実や野草のどこにどのような分布で存在しているかということは分からない。今後は、Ge 半導体検出器による ^{137}Cs の定量に加えて、イメージングプレートを用いることで、果実や野草の中に ^{137}Cs がどのように分布しているかについての考察を深めたいと考える。

また、今回の植物の測定においては放射能濃度を乾燥時の重量で除することで求めた。しかし、桃やビワといった食用の植物を実際に口にするときは、水分を多く含み、倍以上の重量がある状態で人体に入ることとなる。今回の方法では、実際に口にする状態よりも軽い状態の重量を想定しているため、放射能濃度が大幅に高く見積もられることとなる。これでは、測定結果を食用に適するかどうかの判断に使用することには適さない。乾燥前の重量を用いて放射能濃度を測定したり、果実一つごとの放射能を測定したりするなど、別の方針を模索したい。

6. 謝辞

本研究を進めるにあたり、試料そのものや試料の採取場所を提供していただきました大熊町や飯館村には心より御礼申し上げます。また、試料採取の際にご同行いただいた伊藤延由様、大熊町役場の東裕行様、志賀博英様には感謝の念に堪えません。

さらに、アドバイザー教員を引き受けてくださった安全衛生管理部の高橋賢臣准教授、試料採取にあたってご指導いただいた尚絅学院大学の齊藤敬教授、放射線科学基盤機構の岡田美智雄教授、Ge 半導体検出

器をはじめとした機器を快くお貸しくださったラジオアイソトープ総合センターの二宮和彦准教授、核物理研究センターの吉田裕介特任助教、測定解析についてご指導いただいた核物理研究センターの青井考教授、試料測定についてご指導いただき測定にもご協力いただいた理学研究科技術職員の本岡和博様、結果の考察について助言をいただいた東京慈恵会医科大学の箕輪はるか准教授、放射線科学基盤機構の中島裕夫准教授、測定や試料の処理を手伝ってくれた医学部3年の西川祥太郎君、その他様々なところでご協力いただいた、浜通り地区環境放射線研修に関わっていらっしゃる先生方など、非常に多くの方にご協力いただきました。本当にありがとうございました。

7. 参考文献

- 1) ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー, 放射能測定法シリーズ, 公益財団法人日本分析センター, 2020
- 2) 草場新之助, “クリ園における放射性セシウムの蓄積”, 農研機構,
https://www.naro.go.jp/project/results/laboratory/fruit/2011/a00a0_01_71.html
- 3) “Differences in root uptake of radiocaesium by 30 plant taxa”, Martin R. Broadley, Neil J. Willey, Environmental Pollution, Elsevier, 1997
- 4) “Radioactivity Concentrations in Soil and Transfer Factors of Radionuclides from Soil to Grass and Plants in the Chittagong City of Banglades” Journal of Physical Science, Vol.24(1), 95–113, 2013