

はつか大根への放射性セシウムの移行係数

—大熊町での環境放射線研修から学んだこと

Transfer factors of radiocesium to Radish
-learn from Environmental radiation training in Okuma town

西川静紅¹，住浜水季^{1,2}

Nishikawa Sizuku¹, Sumihama Mizuki^{1,2}

[キーワード Keyword] 放射線教育，農作物への移行係数

[所属 Institution] ¹〒501-1193 岐阜市柳戸 1-1 岐阜大学教育学部 理科教育 物理科
²〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 10-1 大阪大学 核物理研究センター
e-mail:sumihama@gifu-u.ac.jp

[要 旨 Abstract]

農作物は土壌から放射性核種を吸収する。本研究では，福島第一原子力発電所が所在する福島県大熊町で採取した土壌を用いてはつか大根を育成し，土壌からはつか大根への放射能移行（移行係数）を測定した。我々は毎年行われている環境放射線研修に参加し，大熊町で実地研修を行った。研修で採取された土壌中の放射能を測定するために，ゲルマニウム半導体検出器を使用した。大熊町で採取した土壌サンプルの放射能濃度は，¹³⁷Csが 25321.10 ± 260.43 Bq/kg，¹³⁴Csが 944.51 ± 56.35 Bq/kgと高い値が得られた。また，この土壌を用いて育成したはつか大根の放射能濃度は，¹³⁷Csが 1371.19 ± 18.38 Bq/kg，¹³⁴Csが 56.61 ± 5.68 Bq/kgと高い値であった。¹³⁷Csは，一般食品のセシウムの基準値（100 Bq/kg）のみならず，規制値（500 Bq/kg）をも大きく上回る値であった。これらの結果から，土壌からはつか大根への放射線セシウムの移行係数は，¹³⁷Csが 5.4×10^{-2} ，¹³⁴Csが 6.0×10^{-2} であることが分かった。この研究を通して放射線の生活への影響，福島復興を考えていきたい。

1. はじめに

2011年3月11日に起きた東日本大震災により，福島第一原子力発電所の原子炉が制御できなくなり水素爆発が起きた。水素爆発により建屋が破壊され，大量の放射性物質が放出された。福島第一原子力発電所が所在する福島県双葉郡大熊町は，翌日に避難指示が発令され「全町避難」となった。事故後，除染作業が行われたこと，一部の放射性物質の放射線量の減衰により，8年後の2019年4月に一部地区の避難指示が解除された。2020年3月には常磐線が全線再開されるなど復興は進んでいるものの，10年が経過した現在でも帰宅困難区域が大半を占めている[1]。今後も，除染作業が必要であり，放射線量の測定を継続的に行うことが求められている。

著者は2021年8月21日から8月26日までの6日間，福島県飯舘村と大熊町で行われた大阪大学主催の環境放射線研修に参加した（研修は毎年行われている）[2]。研修では，物理学，化学，医学，社会学といった幅広い観点から放射線を学習した。現地では，東日本大震災・原子力災害伝承館の見学，復興に関連した討論，帰宅困難区域の視察及び，空間線量測定と土壌採取を行った。採取した土壌中の放射能の測定を他大学と共同で行った。本研究では，大熊町で採取した土壌を用いてはつか大根を育成し，土壌からはつか大根への放射能移行

(移行係数)を測定することで、放射能の生活への影響を考えることにした。

2. 土壌中の放射性物質

福島第一原子力発電所の事故で放出された放射性物質は雨や雪に交じって飛散し、土壌にしみ込んだ。その放射性物質にはガンマ線を放出する ^{131}I 、 ^{134}Cs や ^{137}Cs が含まれている。 ^{131}I の半減期は8日と短く、現在は検出されていない。 ^{134}Cs は半減期が2.07年で、8年後には16分の1にまで減衰するため、現在では多くの地域で検出されなくなっている。 ^{137}Cs は半減期が30.07年と長く、今後も人々の生活に影響を及ぼす恐れがある。

^{134}Cs からは主に605 keVのガンマ線が、 ^{137}Cs からは662 keVのガンマ線が放出される。ガンマ線を検出し、エネルギーを測定することで、それぞれの放射能を測定することができる。一般に、ガンマ線測定による放射性物質の特定には、エネルギー分解能が優れているゲルマニウム半導体検出器を用いる。環境放射線研修で採取した土壌中の放射能測定にも、ゲルマニウム半導体検出器を用いた。

3. 土壌採取

福島第一原子力発電所から直線距離で4.48 kmに位置する帰宅困難区域内の田んぼで、土壌を採取した。採取場所では、震災前には米が栽培されていたが、震災から現在まで10年間手入れされておらず、人の身長ほどの雑草が生い茂っていた。まず、GPSで位置を確認し、文部科学省から借用した「はかるくん」で、地表から約5 cmと約100 cmの高さで空間線量を測定した。地表から約5 cmの高さでは $2.0\sim 2.8 \mu\text{Sv/h}$ 、約100 cmの高さでは $1.5\sim 2.1 \mu\text{Sv/h}$ であった。土壌サンプルは2種類採取した。1つ目は、深さ依存性を調べるためのサンプルで、表層から深さ30 cm、直径5 cmの円筒状に掘削した。その後、表層から2.5 cm間隔で土壌を分け、各々をU-9容器に充填した。これをライナーと呼ぶことにする。2つ目は、はつか大根育成用で、表層から深さ10 cmまでをスコップで2,500 g掘削した。

4. ゲルマニウム半導体検出器を用いた放射能測定

図1は使用したゲルマニウム検出器と実験セットアップを横から見た概略図である。ゲルマニウム検出器はGEM-20180-P, MCA-7700 SEIKOEG&G(ORTEC)で、結晶サイズが $\phi 5.30 \times 4.81$ [cm]であり、窓までの距離は0.427 [cm]である。検出器の上端に試料の受け皿が固定されており、その上にU-8(径5.6 cm, 高さ6.8 cm)またはU-9(径5.6 cm, 高さ3.9 cm)容器をのせることで、位置が固定される。外部からのガンマ線を遮蔽するために厚さ5.0 cmの鉛(Pb)ブロックでゲルマニウム結晶(Ge)を囲み、さらに内側に、鉛で発生

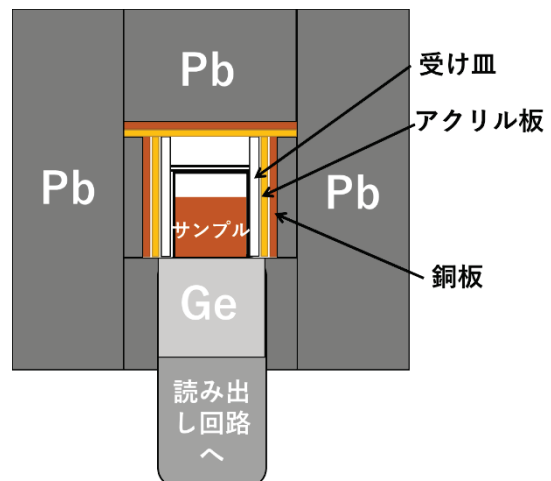


図1 ゲルマニウム検出器のセットアップ

するX線を遮蔽するための0.3 cmのアクリル板を置いた。サンプルからの β 線と鉛からの高エネルギー β 線による制動放射を低減するため、0.3 cmのアクリル板を銅遮蔽の内側に内張りした。また、鉛ブロックの外側にも0.5 cmのアクリル板、銅板で順に囲った。

検出器上の定位置に、土壌を充填した U-8 または U-9 容器を置き、測定を行った。得られたエネルギー分布より、 ^{137}Cs からの 662 keV のガンマ線を特定し、計数率を求めた。土壌サンプルの放射能濃度 x [Bq/kg] は、以下の式から求めた。

$$x = \frac{N}{\text{Br} * \varepsilon * m * f}$$

N : 計数率, Br : 662 keV のガンマ線の分岐比 (85.1%) ,

ε : 検出効率(自己吸収補正も含む), m : サンプルの質量 [kg], f : 減衰補正係数

減衰補正係数 f とは、放射性核種の放射能強度は時間の経過と共に常に弱くなるため、実際に測定して得られたデータを用いて、採取した時刻における放射能強度を算出するための係数である。減衰補正係数 f は、以下の式から求められる。

$$f = \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{t}{T}}$$

t : サンプル採取開始から終了までの時間, T : ^{137}Cs の半減期 日(秒)

検出効率 ε は、容器に充填された試料の高さに依存し 1.50~1.86% であった。

同様に ^{134}Cs からの 605 keV のガンマ線、 ^{40}K からの 1461 keV のガンマ線の放射能濃度も求めた。

5. 土壌サンプル (ライナー) を用いた深さ依存性

表層から深さ 30 cm を掘削した土壌サンプル (ライナー) で、放射能濃度の深さ依存を求めた。図 2 は大熊町土壌サンプルに含まれる ^{137}Cs と ^{134}Cs の深さ依存を示したグラフである。グラフは横軸が深さ [cm]、縦軸が放射能濃度 [Bq/kg] で、青色の点が ^{137}Cs 、橙色の点が ^{134}Cs を示している。 ^{137}Cs の放射能濃度は表層で 20,000 Bq/kg ほどと非常に高い値であることがわかる。 ^{137}Cs は地表から深さ 0~15 cm にかけて放射能が衰退していることが分かる。15 cm よりも深いところでは、放射能濃度は低く、100 Bq/kg 以下であった。 ^{134}Cs は半減期が約 2 年と短いことから、放射能が既に減衰し、 ^{137}Cs と比較して全体的に低くなっている。

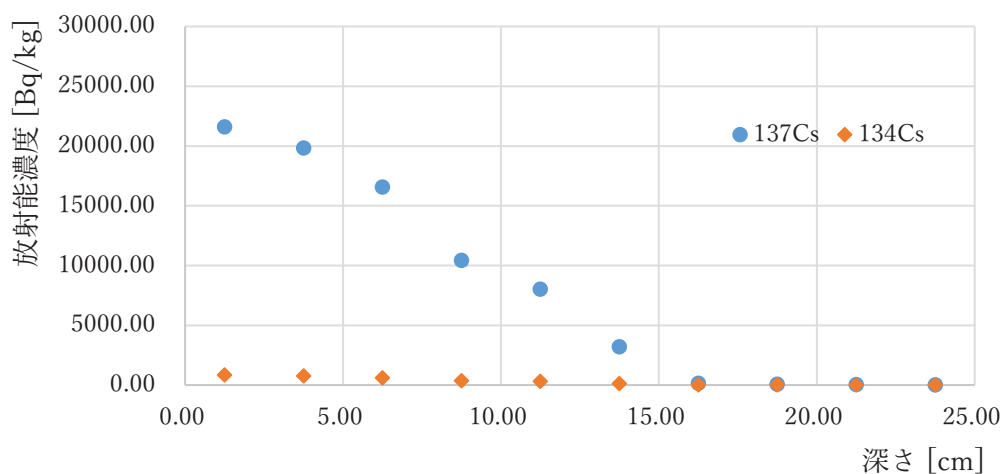


図 2 大熊町土壌サンプルに含まれる現在の ^{137}Cs と ^{134}Cs の放射能濃度

図 2 で示した放射能濃度を用いて、 ^{134}Cs と ^{137}Cs それぞれの半減期と経過年月から事故後 2011 年 3 月 15 日時点での放射能濃度を算出した。算出で用いた式を以下に示す。

$$^{134}\text{Cs} : x' = x \times \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{10.45}{2.065}}$$

$$^{137}\text{Cs} : x' = x \times \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{10.45}{30.167}}$$

x : 採取時点の放射能濃度 [Bq/kg], x' : 2011 年 3 月 15 日時点の放射能濃度 [Bq/kg]

図 3 は事故後 2011 年 3 月 15 日時点での大熊町土壌サンプルに含まれる ^{137}Cs と ^{134}Cs の深さ依存を示したグラフである。 ^{137}Cs , ^{134}Cs の放射能濃度がともに 2011 年 3 月 15 日時点では、地表付近で 27,000 Bq/kg の数値が出ている。図 2 と比較して、10 年間で ^{134}Cs の放射能濃度が大きく減っていることが分かる。また、 ^{137}Cs と同様に ^{134}Cs も深さ 0~15 cm にかけて放射能が衰退していることが分かる。

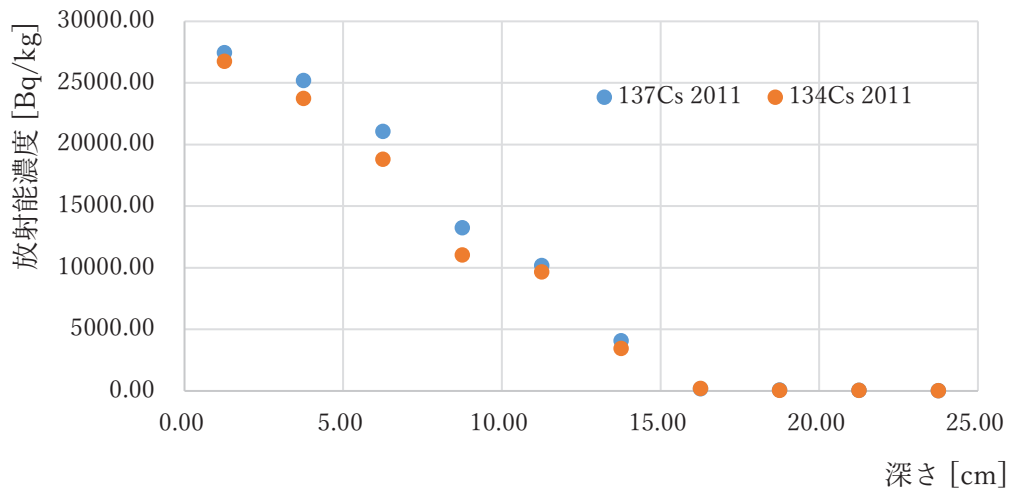


図 3 大熊町土壌サンプルに含まれる 2011 年 3 月 15 日時点での ^{137}Cs と ^{134}Cs の放射能濃度

図 4 は大熊町土壌サンプルに含まれる ^{40}K の深さ依存を示したグラフである。 ^{137}Cs と ^{134}Cs と比較して、 ^{40}K の放射能濃度は深さに依存しないことがわかる。誤差にばらつきが見られるのは、計測時間の違いに起因するものである。

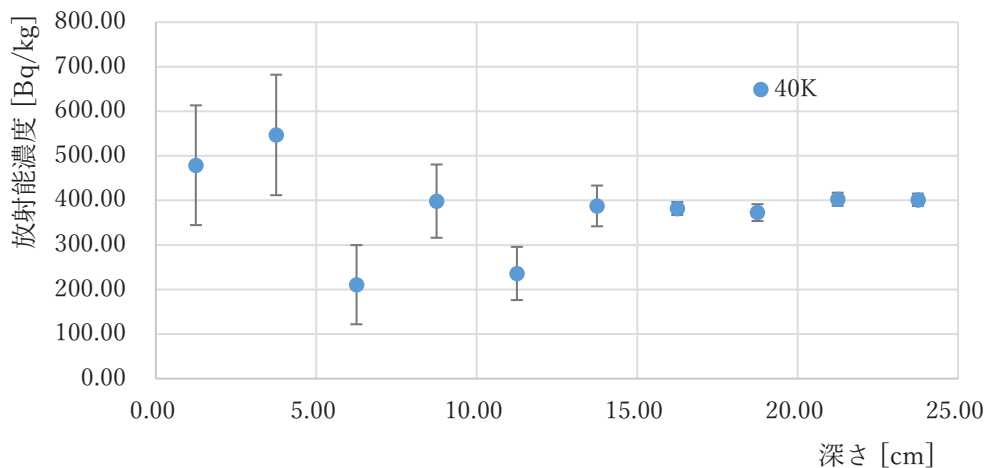


図 4 大熊町土壌サンプルに含まれる ^{40}K の放射能濃度

6. はつか大根育成用土壌サンプルの放射能濃度

図 5 は、はつか大根育成用土壌サンプルのガンマ線エネルギースペクトルである。横軸がガンマ線のエネルギー [keV]、縦軸がカウント数を示している。 ^{134}Cs からの 563, 569, 605, 796, 802 keV と、 ^{137}Cs からの 662 keV、 ^{40}K からの 1461 keV のガンマ線が観測された。これらのガンマ線の放射能濃度を求め表 1 にまとめた。放射能濃度の算出の際、バックグラウンド中の ^{40}K からのガンマ線は差し引いている。図 6 は空の U-8 容器のガンマ線エネルギースペクトルである。グラフは横軸がエネルギー [keV]、縦軸がカウント数を示している。このスペクトルはサンプル以外からの放射能であり、バックグラウンドである。 ^{134}Cs と ^{137}Cs のどちらのピークも観測されていない（検出限界以下である）ことが分かる。 ^{40}K からの 1461 keV のガンマ線は観測されており、0.0025 counts/s である。これを、サンプルで得られたカウント数から差し引いて、放射能濃度を算出している。

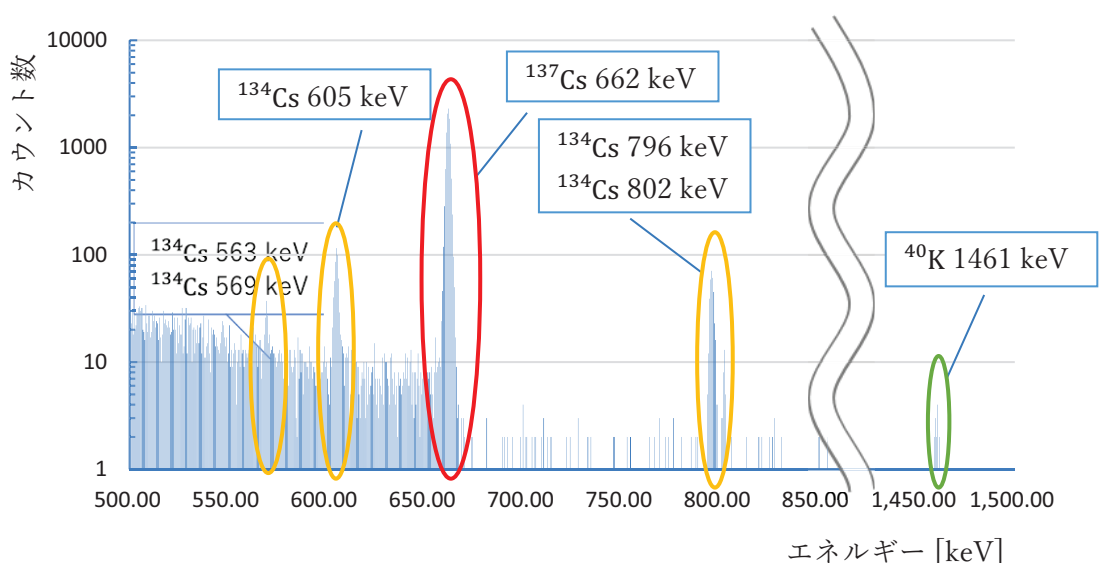


図 5 大熊町土壌サンプルから得られたガンマ線エネルギースペクトル

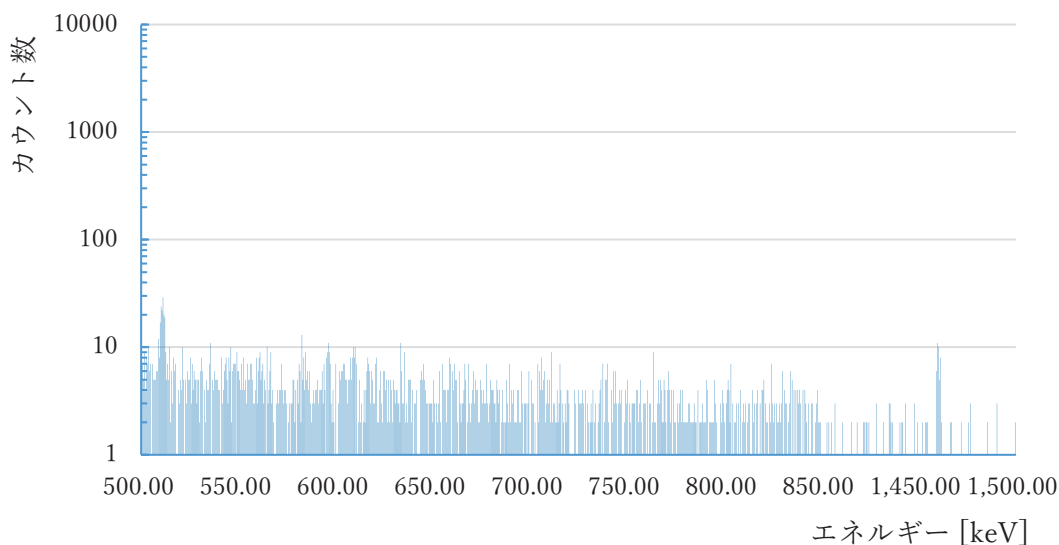


図 6 空容器から得られたバックグラウンドのガンマ線エネルギースペクトル

比較のため、岐阜大学の畑で土壌を採取し、ガンマ線のエネルギースペクトルを測定し、放射能濃度を求め、表1にまとめた。大熊町と岐阜大学の土壌中の放射能濃度を比較してみると、 ^{40}K は同等の値が得られた。 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs は、岐阜大学の土壌サンプルでは検出限界以下であったが、大熊町土壌サンプルでは高い値が得られた。このサンプルは大熊町の未除染の土壌であり、通常よりも強い放射能が検出されている。大熊町土壌サンプルに含まれる ^{137}Cs は、玄米中の放射性セシウム濃度が食品衛生法上の暫定規制値（500 Bq/kg）以下となる水田土壌中の放射性セシウムの上限值（5000 Bq/kg）[3]を大きく上回る値である。

表1 土壌サンプルの放射能濃度

	大熊町	岐阜大学
^{137}Cs (662 keV)	25321.10 ± 260.43 Bq/kg	検出限界以下
^{134}Cs (605 keV)	944.51 ± 56.35 Bq/kg	検出限界以下
^{40}K (1461 keV)	351.45 ± 131.37 Bq/kg	483.72 ± 37.44 Bq/kg

7. 放射能濃度値の評価

環境放射線研修では約 200 個の土壌サンプルを採取し、他大学と共同で放射能測定を行った。放射能測定の精度を知るために、各大学で共通の土壌サンプルの放射能を測定し、比較した。岐阜大学、尚絅学院大学、高知工科大学で得られた ^{137}Cs の放射能濃度を表 2 にまとめた。測定には 4 つのサンプルを使用した。1 つ目のサンプルは、 ^{134}Cs と ^{137}Cs が入った濃度既知の IAEA Sample 5 である。IAEA Sample 5 の放射能濃度は、2015 年 1 月 1 日時点で 715 ± 30 Bq/kg である。2~4 つ目のサンプルは、環境放射線研修で作成した深さの異なる土壌サンプルである。大熊町サンプル①は深さ 2.5~5.0 cm、大熊町サンプル②は深さ 12.5~15.0 cm、大熊町サンプル③は深さ 17.5~20.0 cm である。すべて 3σ 以内に入ることから、測定値は妥当であると言える。（ σ ：標準偏差）

表2 各大学による測定結果 放射能濃度 [Bq/kg]、誤差は統計誤差である

	岐阜大学	尚絅学院大学	高知工科大学
IAEA Sample 5	694 ± 5	710 ± 22	
大熊町サンプル①	28108 ± 267	27200 ± 869	31953 ± 167
大熊町サンプル②	716 ± 10	635 ± 22	794 ± 10
大熊町サンプル③	105 ± 3	104 ± 4	113 ± 3

8. はつか大根

農作物が土壌から放射性核種を吸収する割合は、農作物の種類ごとに特徴がある。本研究では、はつか大根を選んだ理由として、セシウムの移行係数におよぼす影響が大きいことと、育成する時期が適切であったことが挙げられる。はつか大根の移行係数は中央値で 7×10^{-2} [4] とされおり、本研究でも同程度の移行係数が算出できると考えられる。

本研究では、大熊町の土壌を用いて「赤丸はつか大根」を肥料を使用せずに、種からプランターで育成した。種をまいて 3 日後発芽、41 日後に収穫した。その後、5 日間天日干しにし、U-8 容器に詰め、放射能濃度を測定した。比較対象として、岐阜大学の畑の土壌を用いて同条件ではつか大根を育成した（6 章で用いた土壌と同じである）。図 7 は収穫したは

はつか大根の写真である。左が大熊町土壌で育成したはつか大根、右が岐阜大学土壌で育成したはつか大根である。同条件で育成したが、岐阜大学土壌と比較して大熊町土壌の方がうまく育っていないことが分かる。その後、再び育成を試みて、酸度を測定する、バーミキュライトを混ぜ入れる、肥料を与えるなど、土の改良に努めたが、発芽しなかった。10年間放置された田んぼの土壌で作物を育成することは困難であると感じた。



図7 育成したはつか大根
左：大熊町/右：岐阜大学

9. はつか大根の放射能濃度

図8は大熊町土壌で育成したはつか大根のガンマ線エネルギースペクトルである。グラフは横軸がエネルギー [keV]、縦軸がカウント数を示している。大熊町土壌サンプル同様に、はつか大根も ^{134}Cs からの 605, 796, 802 keV と、 ^{137}Cs からの 662 keV、 ^{40}K からの 1461 keV のガンマ線が観測された。測定で得られたはつか大根の放射能濃度を表3にまとめた。大熊町の土壌で育成されたはつか大根に含まれる ^{137}Cs は、一般食品のセシウムの基準値 (100 Bq/kg) のみならず、規制値 (500 Bq/kg) [5]をも大きく上回る値であった。一方、岐阜大学土壌で育成したはつか大根は、岐阜大学土壌サンプルと同様に、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs ともに検出限界以下であった。 ^{40}K については、両はつか大根ともに、同等の放射能濃度が得られた。 ^{137}Cs の放射能濃度とあまり差異がないことに注目したい。

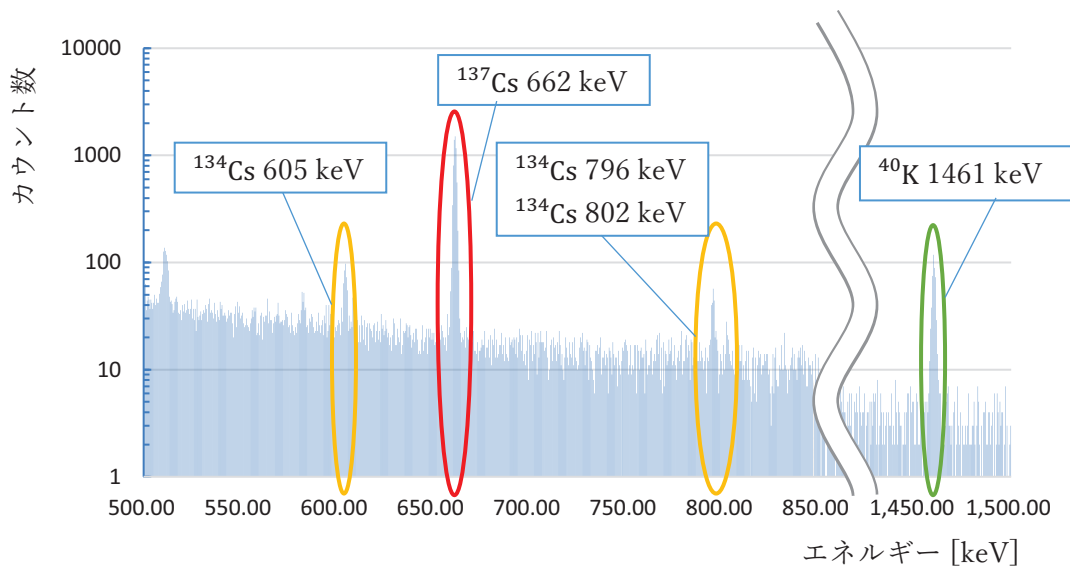


図8 はつか大根サンプル(大熊町土壌で育成)から得られたガンマ線エネルギースペクトル

表3 はつか大根サンプルの放射能濃度

	大熊町	岐阜大学
^{137}Cs (662 keV)	$1371.19 \pm 18.38 \text{ Bq/kg}$	検出限界以下
^{134}Cs (605 keV)	$56.61 \pm 5.68 \text{ Bq/kg}$	検出限界以下
^{40}K (1461 keV)	$1038.05 \pm 86.42 \text{ Bq/kg}$	$1107.14 \pm 212.44 \text{ Bq/kg}$

10. 土壌からはつか大根への放射性セシウムの移行係数

8章で述べたように、農作物が土壌から放射性核種を吸収する割合は、農作物の種類ごとに特徴があるため、植物種ごとに評価する必要がある。そこで植物種ごとおよび放射性核種ごとに、移行係数を算出し、放射性核種の吸収特性の指標とすることが多いとされている。移行係数は、以下の式から求めた。

$$\text{移行係数} = \frac{\text{農作物中の放射能濃度 (乾作物)}}{\text{土壌中の放射能濃度 (乾燥土壌)}}$$

この式から算出したはつか大根サンプルの移行係数を表4にまとめた。はつか大根の移行係数は最小値 8×10^{-3} 、中央値 7×10^{-2} 、最大値 3×10^{-1} [4]とされおり、今回の結果は妥当であると言える。

表4 はつか大根サンプルの移行係数

	大熊町	岐阜大学
^{137}Cs	$(5.41 \pm 0.09) \times 10^{-2}$	—
^{134}Cs	$(5.99 \pm 0.70) \times 10^{-2}$	—
^{40}K	2.95 ± 1.13	2.29 ± 0.47

これらの結果から、一般食品のセシウムの規制値 (500 Bq/kg) を満たすためには、

$$500 / 5.4 \times 10^{-2} = 9259.26 \text{ Bq/kg}$$

一般食品のセシウムの基準値 (100 Bq/kg) を満たして出荷するためには、

$$100 / 5.4 \times 10^{-2} = 1851.85 \text{ Bq/kg}$$

程度の放射能濃度の土壌で育成すべきであり、大熊町の土壌の放射能濃度を 1851.85 Bq/kg まで下げる必要があると考えられる。

11. まとめ

2021年8月に福島県双葉郡大熊町にて環境放射線研修を行い、土壌サンプルを採取した。福島第一原子力発電所の事故後10年が経過した現在も、放射能の継続的な調査が必要とされている。そこで、本研修で採取したサンプル中の ^{134}Cs の605 keV、 ^{137}Cs の662 keV、 ^{40}K の1461 keVのガンマ線をゲルマニウム半導体検出器で測定し、その放射能濃度を算出した。さらに、土壌を用いてはつか大根を育成し、土壌からはつか大根への放射能移行 (移行係数)

を測定した。

大熊町で採取した土壌サンプルの放射能濃度は、 ^{137}Cs が 25321.10 ± 260.43 Bq/kg, ^{134}Cs が 944.51 ± 56.35 Bq/kg と高い値が得られた。また、この土壌を用いて育成したはつか大根の放射能濃度も、 ^{137}Cs が 1371.19 ± 18.38 Bq/kg, ^{134}Cs が 56.61 ± 5.68 Bq/kg と高い値が得られた。この結果から、土壌からはつか大根への放射線セシウムの移行係数が ^{137}Cs が 5.4×10^{-2} , ^{134}Cs が 6.0×10^{-2} であることが分かった。一般食品のセシウムの基準値 (100 Bq/kg) を満たして出荷するためには、大熊町の土壌の放射能濃度を約 1851.85 Bq/kg まで下げる必要があり、農業を再開することは簡単でないと感じた。

12. 謝辞

本研究を進めるにあたり、環境放射線研究会に関わった方々皆様にお礼を申し上げます。

参考文献

- [1] 大熊町公式ホームページ
<https://www.town.okuma.fukushima.jp/>
- [2] 2021年度 環境放射線研修ホームページ
<http://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/ja/ev/iitate-seminar/2021/seminar.html>
- [3] 福島原子力発電所事故による農林水産省等への影響
<https://www.maff.go.jp/j/shokusan/export/yunyukisei/pdf/besshi1.pdf>
- [4] 原子力環境整備センター「土壌から農作物への放射性移行係数」
<https://www.rwmc.or.jp/library/other/file/kankyo1.pdf>
- [5] 厚生労働省 食品中の放射性物質への対応
https://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/iyaku/syoku-anzen/iken/dl/120801-1-saitama_2.pdf

