

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24561041

研究課題名(和文) 栽培環境制御法による植物の放射能移行メカニズムの解明

研究課題名(英文) Study on mechanism of radionuclide transfer to plants grown in artificial climate control system

研究代表者

佐藤 文信(Sato, Fuminobu)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：40332746

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：放射性セシウムの植物移行を調べるために、植物の栽培環境が制御された植物工場と放射性セシウム濃度を可視化する線スキャナーを開発した。線スキャナーは、放射性セシウムからの線を、プラスチックシンチレータ、多チャンネルMPPC(Multi-Pixel Photon Counter)で検出する。その空間分解能は、約4mm×6mm(FWHM)となっている。

放射性セシウム溶液をハツカダイコンの本葉の上に滴下して、本葉中に放射性セシウムが浸透する様子を線スキャナーで観察した。滴下6時間後には、放射性セシウムは葉の先端と葉脈にまで移動していた。

研究成果の概要(英文)：We developed a time-lapse radiography system for imaging the foliar uptake of radiocesiums. Beta rays released from radiocesiums were effectively detected with a plastic scintillator plate coupled to Multi-Pixel Photon Counter (MPPC) devices and its spatial resolving power was approximately 4 mm × 6 mm (FWHM).

In a preliminary experiment, a drop of radiocesium solution was put on the upper surface of a true leaf of radish. Radiography images of radiocesium transport in the true leaf were successfully obtained with the time-lapse radiography system. It was found that the radiocesiums were transported toward the apex and the major vein of the true leaf in 3 hours.

研究分野：放射線計測学

キーワード：放射性セシウム 植物 放射能環境汚染 線スキャナー

## 1. 研究開始当初の背景

2011年3月11日に東北地方で発生した大地震と津波によって、福島第1原発事故が発生し、大量の放射能が環境中に放出された。その結果、自然環境の土壌や農作物の放射能汚染が生じ、大きな問題となっている。放射能汚染で特に問題となっている放射性セシウム $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ は、 $^{235}\text{U}$ の核分裂反応において高い収率を持ち、その半減期はそれぞれ2年と30年である。どちらの核種も、 $\beta$ 線と $\gamma$ 線を放出する。セシウムは、土壌、生物に高い親和性をもつ元素で、野生植物と農作物は、放射性セシウムを取り込む。これまでに、放射性セシウムで汚染された土壌からの植物への移行に関するデータについては、IAEAの報告書等(IAEA, 1994)でまとめられている。その一方で、放射性セシウムの葉面吸収は様々な条件に依存すると考えられており、例えば、化学形態、植物種、植物サイクルステージなどが複雑に関係する。とくに、葉面からの $^{137}\text{Cs}$ 吸収はセシウムイオンと対をなす陰イオンが深く関係することがわかっている。例えば、 $^{137}\text{Cs}_3\text{PO}_4$ と $^{137}\text{CsI}$ による吸収率は、 $^{137}\text{CsSO}_4$ と比較して高いことがわかっている。(Middleton and Sanderson, 1965)。Hasegawa (2009)らは、非放射性セシウム $^{133}\text{Cs}$ の滴下実験をハツカダイコンで実施し、 $\text{CsCl}$ 溶液による吸収は、 $\text{CsNO}_3$ 溶液よりも高い吸収であることを示している。さらに、セシウムの植物部位への移行割合については、溶液の種類による違いが見られない事を明らかにしている。つまり、一旦吸収されたセシウムは、溶液の化学形態には関係なく、植物中で同じように振る舞う性質を持っている。福島第1原発事故直後、多くの研究者から農作物(野生植物)の放射能汚染について報告があった。そして、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ と $^{131}\text{I}$ の核種については、 $\gamma$ 線スペクトロメータやイメージングプレートで測定されている。(例えば、Niimura et al., 2014; Sakamoto et al., 2012; Yoshihara et al., 2014)  $\gamma$ 線スペクトロメータとして代表的な高純度Ge検出器は汚染された植物試料の放射能を定量的に測定するのに適しており、イメージングプレートは、植物中の放射能濃度分布(オートラジオグラフィ)を調べるに適している。ただし、イメージングプレートでは、放射能の経時観察は出来ない。別の核種、 $^{11}\text{C}$ と $^{32}\text{P}$ の植物移行については、専用のカメラシステムをもちいて経時観察に成功している。(Kawachi et al., 2011; Nakanishi et al., 2009) しかしながら、放射性セシウムの葉面吸収についての経時観察の実験報告は、これまでに無いようである。

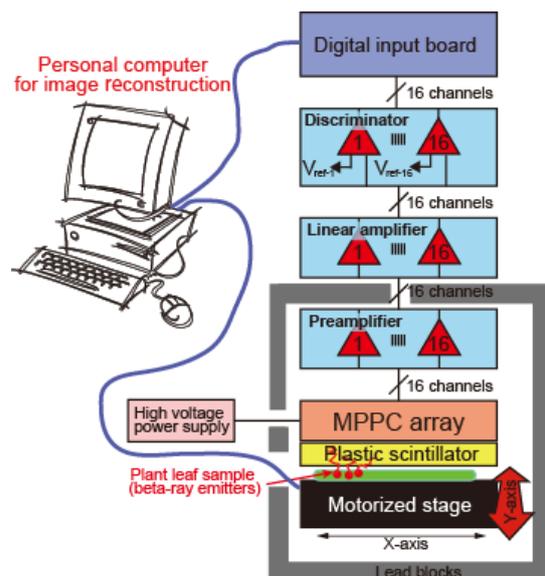
## 2. 研究の目的

放射性セシウムの葉面吸収のメカニズムを調べる目的で、経時観察が可能な $\beta$ 線スキャナーを開発する。葉に含まれる放射性セシウムからの $\beta$ 線を効率的にプラスチックシンチレータとMPPCアレイで検出することで、放

射性セシウムの2次元空間濃度分布を測定する。

## 3. 研究の方法

図1は、葉中の放射性セシウム濃度分布を可視化するための $\beta$ 線スキャナーの概略図である。 $\beta$ 線スキャナーは、おもに $\beta$ 線検出器、試料自動ステージ、遮蔽箱、パーソナルコンピュータで構成されている。試料自動ステージと $\beta$ 線検出器は5cm厚の鉛ブロックに囲まれ、外部からの自然バックグラウンドを低減している。(Mori et al., 1996) 試料台は、65mm×100mm×5mmの亚克力板で、Y軸自動ステージ(SGSP26-100, シグマ光機社製)によって試料を移動させる。放射性核種からの $\beta$ 線はプラスチックシンチレータ(NE102A)と直線に並べられた16個のMPPC(S12572-050P, 浜松ホトニクス)で検出される。MPPCはプラスチックシンチレータからのシンチレーションを検出するための光子検出素子である。MPPCからの信号は、チャンネルごとにパルス波形整形と波高弁別を行うための専用回路によって処理される。プラスチックシンチレータの大きさは、72mm×4mmで、厚さ2mmである。各々のMPPCは、3mm×3mmの大きさの受光面をもっており、70V程度の逆電圧が印加されている。MPPCからの電荷量はプラスチックシンチレータで検出された $\beta$ 線のエネルギーに比例している。パルス信号は遮蔽箱の外の比例増幅器に伝送され、波高弁別器をもちいて、 $\beta$ 線を検出する。 $\beta$ 線のロジック信号はデジタル入力ボードにより、時間系列でコンピュータに記録される。



(次頁に続く)

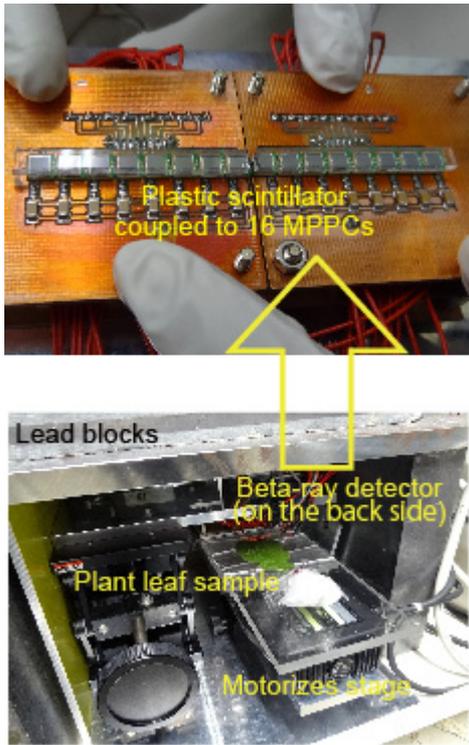


図1 β線スキャナーの概略図と写真

パルス波高のエネルギー較正は、 $^{137}\text{Cs}$  の標準β線源を用いて行った。図2は、パルス波高弁別器の閾値電圧を変化させて得られたβ線のパルス波高分布である。さらに、パルス波高分布は、電子・光子輸送コード PHITS (Sato et al, 2013) で得られたシミュレーション結果と比較された。波高弁別器の閾値は高いS/N比が得られるように150keVに設定された。そのため、自然バックグラウンドは0.6cps以下となった。特に、バックグラウンドの主な要因のひとつに、鉛遮蔽材からの特性X線(80keV)があり、100keV以下に閾値を設定した場合は、S/N比は極端に悪くなった。また、シミュレーション結果より、放射性セシウムβ線の検出効率は約20%であった。

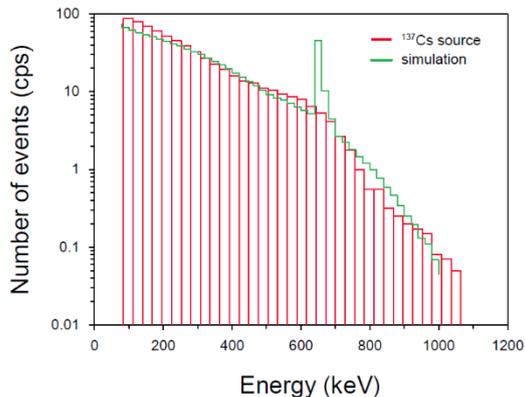


図2  $^{137}\text{Cs}$ -β線に対するパルス波高分布

得られた実験データから、コンピュータプログラムによって、放射性セシウム濃度の空間分布を再構成した。図3は、 $^{137}\text{Cs}$ -β線源に対する放射能空間分布である。線源は、直径1mmのコリメートされた $^{137}\text{Cs}$ -β線源を用いている。解像度は、サンプルの位置にわずかに依存するが、おおよそ $6\text{mm}\times 4\text{mm}$ (FWHM)である。X軸方向の解像度は隣り合った2つのMPPCの距離に関係し、Y軸方向の解像度は、MPPCの受光面とプラスチックシンチレータの大きさに関係している。

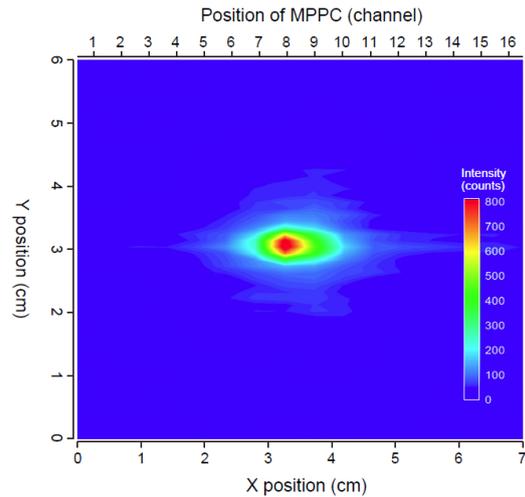


図3  $^{137}\text{Cs}$ -β線源の放射能分布

#### 4. 研究成果

葉面吸収実験に利用する放射性セシウム溶液は、放射能汚染土壌から調製した。放射能汚染土壌の放射能は、Ge検出器で測定し、 $^{134}\text{Cs}$ が $9.0\times 10^2\text{ Bq/g}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ が $1.5\times 10^3\text{ Bq/g}$ であった。土壌には、天然の放射性カリウム $^{40}\text{K}$ が含まれるが、放射性セシウムに比べて、十分に無視できる量である。はじめに、放射能汚染土壌は、1M (COOH)<sub>2</sub>溶液中(約50 ml/gの割合)で、90°Cで3時間、浸された。濾過後、溶液は $\text{H}_2\text{O}_2$ とHCl溶液で中和し、加熱によって濃縮した。濃縮溶液には、 $^{134}\text{Cs}^+$ 、 $^{137}\text{Cs}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ が含まれており、主なイオンは $\text{K}^+$ と $\text{Cl}^-$ である。また、おおよそのKClの濃度は、0.3 g/mlである。また、全放射能濃度は、液体シンチレーションカウンタ(LSC-5100, Aloka)で測定し、 $1.3\times 10^3\text{ Bq/ml}$ であった。

はじめに、ハツカダイコンの種子は暗室で純水で発芽させ、発芽後、植物工場内で、温度18~20°Cに保たれ、日照条件 $2.0\times 10^4\text{ lx}$ (12時間/日)で水耕栽培された。化学肥料は高純度の化学薬品から調製した。(Yamazaki, 1982; Hasegawa et al., 2009)

蒔種30日後の本葉に、放射能5Bqの濃縮溶液を滴下した。滴下された本葉はβ線スキャナーの試料台に置かれ、11 μm厚のポリエチレンフィルムで覆った。試料を含む72 mm×100 mm範囲を、スキャン速度0.6mm/min

で24時間測定した。

図4は本葉の放射性セシウム濃度分布の様子を示している。3時間後では、滴下した場所に高い濃度領域があり、6時間後には、徐々に拡散して、葉の先端と葉脈に移行していることがわかる。これまでの先行研究では、天然のセシウム、 $^{133}\text{CsCl}$  溶液をもちいた滴下実験では、58%のセシウムが葉にとどまり、30%は茎などに移行することがわかっている。(Hasegawa et al., 2009) 12時間後では、放射性セシウムは徐々に葉全体に広がっている。また、セシウムの化学的性質が、同じアルカリ金属に属するカリウムと類似しているため、放射性セシウムの植物移行は、カリウムの動態に関連して議論されることが多い。(Yoshihara et al., 2014) 24時間後では、葉を試料台から取り除き、著しく枯れていない事を確認した。

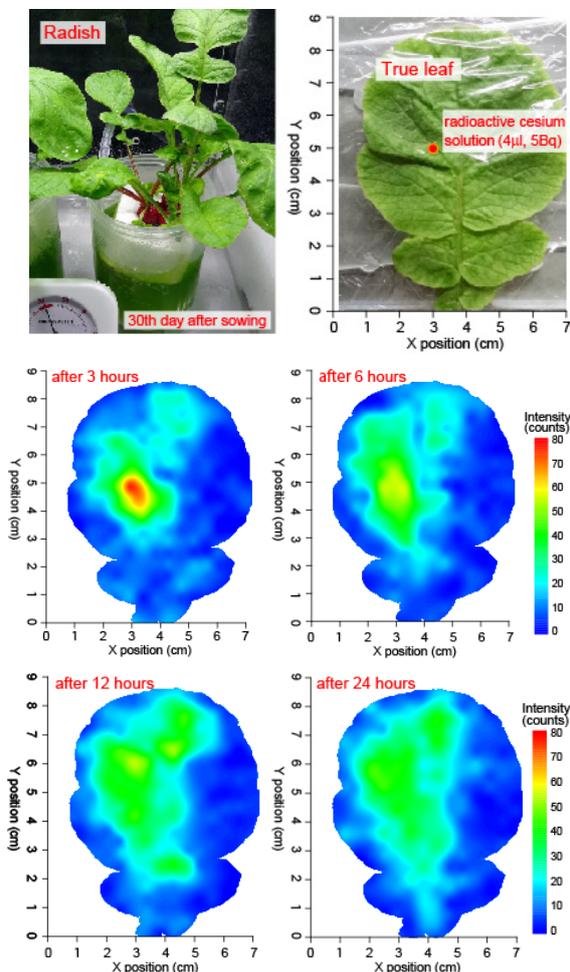


図4 ハツカダイコンの本葉の放射性セシウム濃度分布

放射性セシウムの葉面吸収を調べるために、放射性セシウム濃度分布を可視化するβ線スキャナーを開発した。β線スキャナーは、主にβ線検出器、試料自動ステージ、遮蔽箱、パーソナルコンピュータで構成されている。放射性セシウムからのβ線は、プラスチックシンチレータと16チャンネルのMPPCで検出さ

れた。MPPCからのパルス信号は増幅器と波高弁別器を用いて処理され、β線の検出信号は、時間系列でコンピュータに保存された。得られたデータより、放射性セシウムの放射能分布を再構成した。また、β線スキャナーの解像度は、約4 mm × 6 mm (FWHM)で、X軸方向は、隣あったMPPCの間隔に関係し、Y軸方向はMPPCの受光面の大きさに関係した。

滴下実験では、ハツカダイコンを植物工場で栽培した。5Bqの放射性セシウム溶液を蒔種30日後の本葉に滴下し、放射性セシウムの葉面吸収をβ線スキャナーで観察した。放射性セシウムの一部は、葉の先端部と葉脈に移動していることが観察された。

従って、本研究で開発した植物工場とβ線スキャナーが、放射性セシウムの植物移行研究に役立つことが示された。

#### 参考文献

Hasegawa, H., Tsukada, H., Kawabata, H., Chikuchi, Y., Takaku, Y., Hisamatsu, S., 2009. Effect of the counter anion of cesium on foliar uptake and translocation. *J. Environ. Radioact.* 100, 54–57.

IAEA, 1994. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. IAEA technical reports series no. 364, Vienna.

Kawachi, N., Suzui, N., Ishii, S., Ito, S., Ishioka, N., Yamazaki, H., Hatano-Iwasaki, A., Ogawa, K., Fujimaki, S., 2011. Real-time whole-plant imaging of  $^{11}\text{C}$  translocation using positron-emitting tracer imaging system. *Nucl. Instr. and Methods in Phys. Res. Sect. A* 648, S317-S320.

Middleton, L.J., Sanderson, J., 1965. The uptake of inorganic ion by plant leaves. *J. Exp. Bot.* 16 (47), 197–215.

Mori, C., Suzuki, T., Koido, S., Uritani, A., Miyahara, H., Yanagida, K., Miyahara, J., Takahashi, K., 1996. Effect of background distribution radiation shielding on natural radioactivity measurement with imaging plate. *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res., Sect. A* 369, 544–546.

Nakanishi, T.M., Yamawaki, M., Kannno, S., Nihei, N., Masuda, S., Tanoi, K., 2009. Real-time imaging of ion uptake from root to above-ground part of the plant using conventional beta-ray emitters. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 282, 265–269.

Niimura, N., Kikuchi, K., Tuyen, N.D., Komatsuzaki, M., Motohashi Y., 2014. Physical properties, structure, and shape of radiocesium from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident derived from soil, bamboo and shiitake mushroom measurements. *J. Environ. Radioact.* 3:2554., <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.12.020>.

Sakamoto, F., Ohnuki, T., Kozai, N., Igarashi, S., Yamazaki, S., Yoshida, Z., Tanaka, S., 2012. Local area distribution of fallout radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant determined by autoradiography analysis. *J.*

Atom. Energ. Soc. Jpn. 11, 1-7 (in Japanese).

Sato, T., Niita, K., Matsuda, N., Hashimoto, S., Iwamoto, Y., Noda, S., Ogawa, T., Iwase, H., Nakashima, H., Fukahori, T., Okumura, K., Kai, T., Chiba, S., Furuta, T., Sihver, L., 2013. Particle and heavy ion transport code system PHITS, version 2.52. J. Nucl. Sci. Technol. 50:9, 913-923.

Yamazaki, K., 1982. Yoekisaibaizenpen (Nutriculture). Hakuyu-sha, Tokyo, Japan (in Japanese).

Yoshihara, T., Matsumura, H., Hashida, S., Nagaoka, T., 2014. Radiocesium contaminations of 20 wood species and the corresponding gamma-ray dose rates around the canopies at 5 months after the Fukushima nuclear power plant accident. J. Environ. Radioact. 115, 60-68.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 1 件)

Yano, Y., Zushi, N., Sato, F., Kato, Y., and Iida, T., 2015. Development of Faced-Type Double NaI(Tl) Scintillation Detector System for Measurement of Radioactive Cesium Concentration. Radiation Safety Management Vol. 14, No. 1, 1-8. (Peer-reviewed)

DOI: 10.12950/rsm.14.1

〔学会発表〕 (計 1 件)

奥村 友紀, 崎山 朝喜, 関子 直城, 佐藤 文信, 村田 勲, 加藤 裕史, 飯田 敏行, "植物用放射性セシウムβ線検出スキャナーの開発", 応用物理学会 (2014 秋) 北海道大学、札幌 (北海道) 2014 年第 75 回応用物理学会秋季学術講演会.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.see.eng.osaka-u.ac.jp/seeqr/seeqr/>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

佐藤 文信 (SATO, Fuminobu)

大阪大学・大学院工学研究科

研究者番号: 40332746