

令和元年6月25日現在

機関番号：82641

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H04621

研究課題名(和文) 積算線量計を用いた簡易環境放射線測定手法の確立と環境中の放射性Csの長期動態解明

研究課題名(英文) Establishment of a novel/simple measurement procedure of environmental radiation and a long-time monitoring of radiocesium dynamics using the procedure

研究代表者

吉原 利一 (Yoshihara, Toshihiro)

一般財団法人電力中央研究所・環境科学研究所・上席研究員

研究者番号：60371506

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：1. 個人用積算線量計と鉛遮蔽を用いて、樹体や一定面積の地表面など特定の環境要素に蓄積した放射性Csからの線量を周辺環境からのバックグラウンド放射線量と識別し簡易に測定する手法を確立した。
2. 本手法により施肥の有無による樹体の放射性Csの経時的な変化、河床における降雨に伴う土壌の移動と空間線量率の変化、林床除染の有無に伴う空間線量率の経年変化の差異など、これまでの手法では困難であった環境中の放射性Csの動態を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本手法を用いることにより種々の放射性Csの動態とこれに関連するメカニズムの解明が大きく進展すると考える。また、今後は放射性Csの動態のモデル化、移行予測などへの応用を通じて、被災地の流域管理、林産物の利用における安全性の担保、剪定枝や除染廃棄物の処分・管理等の今般の原子力発電所事故における課題の解決、ならびに今後起こり得る過酷事故時の放射性物質移行予測・対策策定などに活用できると考える。

研究成果の概要(英文)：1. A simple method to monitor a specific gamma radiation mainly of ^{137}Cs deposited on an interested object (e.g., a tree and an area of soil surface) was developed using a set of personalized semiconductor cumulative dosimeter and a custom-ordered collimator.
2. Usefulness of the method was clearly certified by some long-term monitorings of gamma radiation in natural environments which were difficult by existing methods. For example, changes of gamma radiation from tree body differing in potassium fertilization was observed by our method. In addition, our method could exhibit both of drastic and delicate changes in gamma radiation from specific areas of soil surfaces in some river beds and forest floors. These phenomenon would be caused by translocation of contaminated/non-contaminated soils and plant debris with floods/heavy rains and/or seasonal defoliation.

研究分野：環境放射能学

キーワード：環境放射能 放射性セシウム 積算線量計 簡易計測 森林 樹木 土壌

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2011年3月の福島第一原子力発電所の事故によって広範な地域に種々の放射性物質が降下した。中でも¹³⁷Csは約30年と半減期が長いことから、今後相当の長期にわたって対策が必要である。しかしながら、最も汚染面積が大きく、その特質によって多量の放射性物質を蓄積した森林は、主に経済的な理由から居住地に隣接した場所以外は手つかずのまま放置されており、林業従事者等の被ばくや林産物・水源の利用に大きな疑念を生じている。これらの問題を解決するためには継続的なモニタリングと正確な移行予測が必要である。

この問題を解決し、これまでの様々なモニタリングの成果を補完・発展させるためには、放射線量(あるいは放射性物質質量)として「事象毎に」「長期にわたり」「非侵襲的に」「多点で同時に」測定ができ、「簡便、かつある程度精度の高い」モニタリング手法が必須である。しかしながら、従来の手法はいずれかの点において本目的への適用に問題があり、新たな手法の開発が望まれる。そこで、感度が高く1年程度のデータを保持でき、任意の時間積算値を示すことができる半導体型積算線量計(線量当量; μSv にて計量、以降個人用積算線量計と表記)の応用を着想した。先行的に実際のスギ林において本手法の有効性を調べたところ、鉛遮蔽を組み合わせることによって樹体と周辺環境からのガンマ線を識別し、測定対象部位の放射性Cs濃度とある程度の相関を示す可能性が認められた。

2. 研究の目的

特定の環境要素に蓄積した放射性Csからのガンマ線量を周辺環境からのバックグラウンド線量と識別して精度良く簡易に測定する手法を確立すること、および本手法により環境中の放射性Csの動態を明らかにすること。

3. 研究の方法

(1) 先行実験データを活用した暫定的手法の策定と、暫定的手法の改善

本研究採択前に得られた先行実験のデータを活用して暫定的に環境放射能モニタリング手法を策定する(立木と土壌表面それぞれについて、適切な遮蔽の形状、測定対象物との測定距離、測定時間等を決定)。また、測定に影響する要素等をモデル実験(非汚染生木の玉切り素材に既知量の¹³⁷Csを埋め込み、実験室内にて測定を行う)やモンテカルロシミュレーション法を用いて解明すると共に、影響軽減手法の導出や有意な測定データを得るためのS/N比の確保に必要な測定条件を明らかにし、暫定的に策定した測定手法を改善する。

(2) 既存手法と新規手法を併用したモニタリング

合計4カ所において各数点の測定対象を定め、改善した手法により連続的かつ精密なモニタリングを実施する。

モニタリングの対象を拡大・発展させる。

モニタリングと同一地点において樹体各部、および林床土壌等の実試料を採取し、旧来手法による精密測定・分析などによるメカニズムの解明を進めると共に、モデル実験・モンテカルロシミュレーションによる測定結果の確認・模擬・再現を図る。

(3) 実験結果の解析と統合

既存手法と個人用積算線量計による新規環境放射能モニタリング、モデル実験、シミュレーションの各結果の解析と結果の統合により、林床土壌・個別樹体のそれぞれにおける緩慢期移行・循環モデルの作成と今後の移行予測を行う。

4. 研究成果

(項目5.に示す関連する主な発表論文等〔雑誌論文〕の番号を肩書きした)

(1) 個人用積算線量計を用いた環境放射能モニタリング手法の確立(樹体各部、林床土壌等における¹³⁷Cs濃度変化と関連する環境放射能変化の推定手法の確立)

モニタリング手法の確立

自然環境中で一定面積の土壌表層、および特定の樹体のそれぞれを対象とした環境放射能モニタリング手法を確立した。すなわち、防水のためのプラスチック製の袋に入れた個人用積算線量計の測定面以外の5面を厚さ3cm以上の鉛遮蔽で覆った後、樹体をモニタリングする場合には測定面を直接樹体に接触するように固定、林床土壌をモニタリングする場合には測定面を下方に向けてステンレス製の架台に載せて固定することで、個々の対象からの限定した環境放射能のモニタリングが長期に安定して可能であることを明らかにした(図1)。

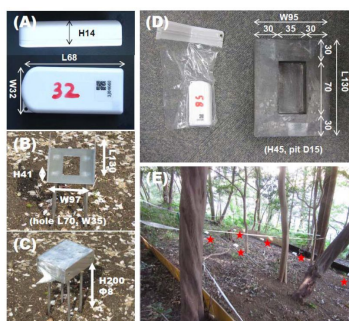


図1. 林床土壌のモニタリング事例

- (A) 個人用積算線量計
- (B) ステンレス製の架台
- (C) ステンレス製の架台に鉛遮蔽と共に装着した状況
- (D) 鉛遮蔽
- (E) 林床土壌のモニタリング状況

図中の数値の単位は全てmmで表記した。

バックグラウンド放射線量との差分の有意性の確認

対象物からの限定した放射線量の定量におけるバックグラウンド放射線量との差分の有意性などについて、実環境中におけるモニタリングのデータに加えて、使用する積算線量計の精度に関するメーカー提供データの確認実験、モンテカルロシミュレーションなどにより、例えば積算線量計の変動率が1.6%程度であることや、バックグラウンド線量との差分が有意と認められる水準、そのために必要とされる積算日数などを明らかにした。また、これらに伴い、樹体放射能濃度の季節的な変動などの測定が可能であること、概ね測定対象とした樹体各部、林床土壌等における¹³⁷Cs濃度を反映した値であることなどを明らかにした。

土壌表層モニタリングにおけるモニタリング面積の推定

鉛遮蔽を用いたコリメーションによって測定方向以外から線量計に直接入射する放射線を理論値と同程度（約96%）低減できること、およびこのことによりバックグラウンド放射線量との識別が可能であることを示した。また、この鉛遮蔽の形状と土壌との距離によって測定する面積を選択できることを示した。例えば、線量計の厚みと同等の深さの鉛遮蔽を用いて土壌表面から20cmの高さに設置した場合、検知している放射線の約70%程度が直径約100cmの円からであるのに対して、線量計の厚みより3cm深い鉛遮蔽を用いて測定した場合、ほぼ設置した高さと同程度の直径の円型土壌表面からの放射線を検知していることを明らかにした。

(2) 樹体内、および河床・林床等の土壌表層における¹³⁷Cs動態の解明

樹体における¹³⁷Csの動態については、主にスギとサクラにおいて調査を行った。その結果、例えばスギでは、事故当初には7割以上を占めていた樹体における¹³⁷Cs占有率（2011年の事故時に森林に降下した全量に対する割合）が2015年までに6%程度に低下していることや、毎年一定の割合で新葉に転流されるもののその大半は枯死してリターとなるまで事故時に直接¹³⁷Csが沈着した古い枝葉にあること、樹体においては辺材よりも心材における濃度が高いことなど、サクラでは落葉時の還流率が生物学的アナログイオンのKでは46%であるのに対して¹³⁷Csでは76%であることや、還流した¹³⁷Csの相当程度が越冬芽に蓄積されることなどを明らかにした。さらに、リンゴ苗木を用いた実験では、施肥の有無による¹³⁷Cs根根吸収の違いについて経時的な変化を捉えることができた。

一方、土壌表層における¹³⁷Csの動態については、河床等と林床において調査を行った。その結果、河床等では降雨に伴う土壌の移動と空間線量率の変化（降雨による汚染土の移動に伴う空間線量率の急激な増加、非汚染土の移動に伴う同じく急激な減少）を捉えることができた（図2）。また、林床では降雨に伴う土壌の移動、構成樹種の異なる森林や林床除染の有無による空間線量率の経年変化などを明らかにした。さらに、林冠からの汚染した枝葉の落下が、季節的な林床における空間線量率の変化をもたらすこと（およびそのような微細な変化を本技術によって測定可能なこと、図3）を明らかにした。

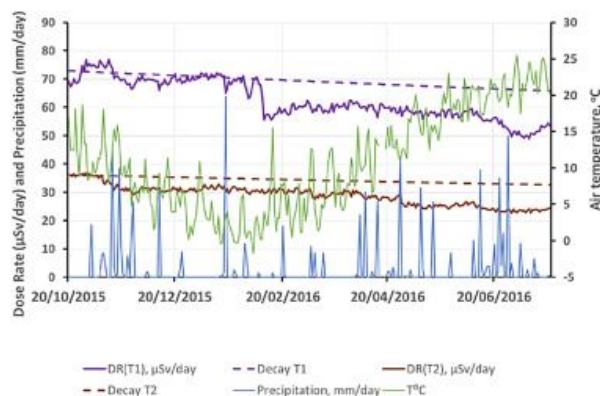


図2．河床土壌における線量率の変化

福島県内を流れる高瀬川の2箇所（DR-T1、T2）の河床において2015年10月20日～2016年7月20日までモニタリングした。その結果、1箇所（DR-T1）における実測値が2016年2月中頃に急激に低下していることが示された。また、いずれの河岸においても理論的な減衰値（Decay T1、T2）よりも顕著に早く減衰していることが明らかとなった。

(3) モデル化と予測

上述した結果を解析・統合することによって、汚染の長期マクロ的（面的）解析への応用において本手法が有用であることが明らかとなった。例えば、河床モニタリングの結果（図2）の様に理論的な減衰値よりも顕著に早い放射線量（空間線量率）の減衰を示す場合もあるが、逆に図3に示す林床土壌の様に理論的な減衰値よりも顕著に遅い放射線量（空間線量率）の減衰を示す場合もあり、対象による減衰傾向の違いを明らかにすることができた。しかしながらいずれもモニタリング期間が約1年程度と短く、経年的に同じように変化していくのか、あるいは各年次の降水量や植生や気象などのモニタリング時や地域の特性に応じた条件によって変化するのか不明であるため、残念ながら研究立ち上げ時に掲げたモデル化と予測については本研究期間中には全うできなかった。今後、測定事例を積み重ねることによって、それぞれのモニタリング対象の特性に応じたモデル化と予測が可能になると考える。また、このことによって、本研究の成果は環境科学的知見を充足させるのみならず、被災地の流域管理、林産物の利用における安全性の担保、剪定枝や除染廃棄物の処分・管理、今後起こり得る過酷事故時の放射性物質移行予測・対策策定などに活用できると考える。

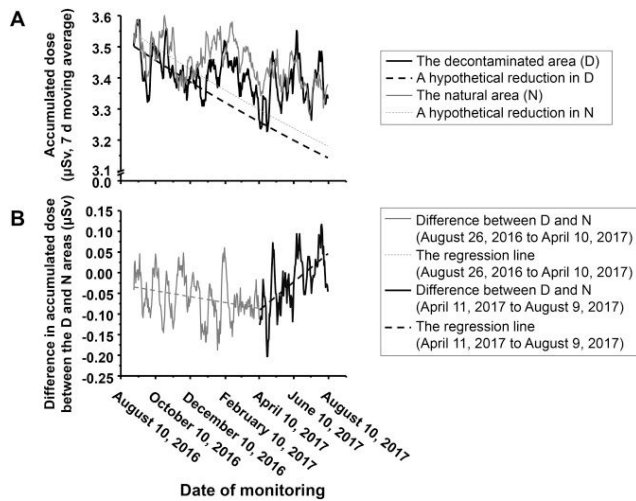


図3 . 林床土壌における線量率の変化

スギ林において有機物層までを除去した林床(D) および除去しない林床(N)のそれぞれにおける放射線量の変化を測定した。その結果、いずれにおいても実測値(実線)は理論的な減衰値(点線)よりも顕著に遅く減衰していた(A)。また、DとNの差分(B)を見ると、2017年4月中旬を境に緩やかな減少傾向から、増加傾向に変化していた。林冠からの放射性Csの落下や汚染土壌流入など、林床の特定の場所で特定の時期に減衰を遅らせる事象が生じている可能性を示唆している。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計28件)

- Iwagami, S., Tsujimura, M., Onda, Y., Konuma, R., Satou, Y., Sakakibara, K., Yoschenko, V. (2019) Dissolved ^{137}Cs concentrations in stream water and subsurface water in a forested headwater catchment after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Hydrology* 573: 688–696. DOI: 10.1016/j.jhydrol.2019.04.019
- Yoshihara T., Yoschenko V., Watanabe K., Keitoku K. (2019) A through year behavior of radiocesium in a Japanese flowering cherry tree in relation to that of potassium. *J. Env. Radioactivity* 202: 32–40. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2019.01.013
- Yoshihara T., Kurita K., Matsumura H., Yoschenko, V., Kawachi N., Hashida S-n., Konoplev A., Yoshida H. (2019) An assessment of gamma radiation from a limited area of forest floor using a cumulative personal dosimeter. *J. Env. Radioactivity* 204: 95–103. DOI:10.1016/j.jenvrad.2019.03.023
- Konoplev A., Goloso V., Wakiyama Y., Takase T., Yoschenko, V., Yoshihara T., Parenyuk O., Cresswell A., Ivanov M., Carradine M., Nanba K., Onda Y. (2018). Natural attenuation of Fukushima-derived radiocesium in soils due to its vertical and lateral migration. *J. Environ. Radioact.*, 186: 23–33. DOI:10.1016/j.jenvrad.2017.06.019
- Kurita K., Yamaguchi M., Nagao Y., Suzui N., Yin Y.-G., Yoshihara T., Kawachi N. (2018) Development of an Easy and Simple Method to Measure the Environmental Radioactivity in Trees with Efficient Personal Dosimeters. *RADIOISOTOPES*, 67: 427–434. DOI:10.3769/radioisotopes.67.427
- Yoschenko, V., Ohkubo T., Kashparov V. (2018). Radioactive contaminated forests in Fukushima and Chernobyl. *J. Forest Res.*, 23: 3–14. DOI:10.1080/13416979.2017.1356681
- Yoschenko, V., Takase T., Hinton TJ., Nanba K., Onda Y., Konoplev A., Goto A., Yokohama A., Keitoku K. (2018). Radio active and stable cesium isotope distributions and dynamics in Japanese cedar forests. *J. Environ. Radioact.*, 186: 34–44. DOI:10.1016/j.jenvrad.2017.09.026
- Wakiyama Y., Konoplev A., Wada T., Takase T., Byrnes I., Carradine M., Nanba K. (2017). Behavior of ^{137}Cs in ponds in the vicinity of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant. *J. Environ. Radioact.*, 178–179: 367–376. DOI:10.1016/j.jenvrad.2017.07.017
- Hashida S-n., Yoshihara T. (2016) Disparate radiocesium leaching from two woody species by acceleration of litter decomposition using microbial inoculation. *J. Environ. Radioact.*, 162–163: 319–327. DOI:10.1016/j.jenvrad.2016.06.010
- Konoplev A. (2016) Comparative Analysis of Radioactive Cesium Wash-off from Contaminated Catchment Areas after Accidents at the Fukushima Dai-ichi and Chernobyl Nuclear Power

Plants. *Geochemistry International* 54: 522–528. DOI:10.1134/S0016702916040042

Konoplev A., Golosov V., Laptev G., Nanba K., Onda Y. Takase T., Wakiyama Y., Yoshimura K. (2016). Behavior of accidentally released radiocesium in soil-water environment: looking at Fukushima from a Chernobyl perspective. *J. Environ. Radioact.*, 151: 568–578. DOI:10.1016/j.jenvrad.2015.06.019

Konoplev A., Golosov V., Yoschenko, V., Nanba K., Onda Y. Takase T., Wakiyama Y. (2016). Vertical distribution of radiocesium in soils of the area affected by the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Eurasian Soil Sci.*, 49: 570–580. DOI:10.134/S106422931605

Yoschenko, V., Takase T., Konoplev A., Nanba K., Onda Y., Kivva S., Zheleznyak M., Sato N., Keitoku K. (2016). Radiocesium distribution and fluxes in the typical *Cryptomeria japonica* forest at the late stage after the accident at Fukushima Dai-ichi nuclear power plant. *J. Environ. Radioact.*, 166 (Part 1): 45–55. DOI:10.1016/j.jenvrad.2016.02.017

Yoshihara T., Kominato A., Nagao Y., Kawachi N., Hashida S-n., Suzui N., Yin Y.-G., Fujimaki S. (2016) Measurement of environmental radioactivity using a cumulative gamma radiation dosimeter: Fertilization-induced changes in young fruit trees. In: Proc. ENVIRA2015, New challenges with new analytical technologies. (Eds. Ioannidou, A. & Povinec, P.P.) 21–25 Sep. 2015, Thessaloniki, Greece, pp.134–137.

Yoshihara T., Matsumura H., Hashida S-n., Nakaya K. (2016) Radiocesium contamination in living and dead foliar parts of Japanese cedar during 2011–2015. *J. Environ. Radioact.*, 164: 291–299. DOI:10.1016/j.jenvrad.2016.08.010

櫻井哲史、小川秀樹、吉田博久 (2016). ポケット線量計を用いて樹体内の放射性物質濃度を測定する試み Proc. 17th workshop Environ. Radioact. (Eds. Bessho, K, Tagami, K., Takamiya, K., Matsumura, H., & Miura, T.) 8–10 Mar. 2016, KEK, Tsukuba, Japan, pp. 213–218.

〔学会発表〕(計 52 件)

Yoshihara T., et al., Measurement of environmental radioactivity using a cumulative gamma dosimeter: A challenge to detect regional characteristics of landscapes, Second Conference on Radioecological Concentration Processes, Nov. 2016, Sevilla, Spain.

Konoplev A., et al., International Conference on Environmental Radioactivity: New Challenges with New Technologies, Sep. 2015, Thessaloniki, Greece.

Yoschenko, V., et al., The dynamics of radiocesium in Fukushima forests. 7th International Symposium on In Situ Nuclear Metrology as a tool for radioecology. April 2017, Ohrid, Macedonia.

〔図書〕(計 3 件)

Yoshihara T. Leaf ecology and radiocesium contamination in trees/forests. In *Plant Ecology-Traditional Approaches to Recent Trends*. (ed. Zubaida Y.) 66-89, Chapter 5, InTech. (2017) DOI: 10.5772/intechopen.69082

〔その他〕

国立大学法人福島大学 <http://www.ier.fukushima-u.ac.jp/>

一般財団法人電力中央研究所 <https://criepi.denken.or.jp/jp/env/result/paper.html>

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：コノプリョフ アレクセイ、ローマ字氏名：KONOPLEV, Aleksei

所属研究機関名：国立大学法人福島大学、部局名：環境放射能研究所、職名：教授
研究者番号：00745581

研究分担者氏名：ヨシエンコ ヴァシル、ローマ字氏名：YOSCHENKO, VasyI
所属研究機関名：国立大学法人福島大学、部局名：環境放射能研究所、職名：特任教授
研究者番号：40745569

研究分担者氏名：栗田 圭輔、ローマ字氏名：KURITA, Keisuke
所属研究機関名：国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
部局名：高崎量子応用研究所 放射線生物応用研究部、職名：博士研究員（常任）
研究者番号：10757925

研究分担者氏名：河地 有木、ローマ字氏名：KAWACHI, Naoki
所属研究機関名：国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
部局名：高崎量子応用研究所 放射線生物応用研究部、職名：上席研究員（定常）
研究者番号：70414521

研究分担者氏名：橋田 慎之介、ローマ字氏名：HASHIDA, Shin-nosuke
所属研究機関名：一般財団法人電力中央研究所、部局名：環境科学研究所
職名：主任研究員
研究者番号：60516649

研究分担者氏名：吉田 博久【～2016】、ローマ字氏名：YOSHIDA, Hirohisa
所属研究機関名：首都大学東京、部局名：都市環境科学研究科、職名：教授
研究者番号：20094287

研究分担者氏名：藤巻 秀【～2017】、ローマ字氏名：FUJIMAKI, Shu
所属研究機関名：国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
部局名：本部 経営企画部、職名：上席研究員（定常）
研究者番号：20354962

研究分担者氏名：小林 卓也、ローマ字氏名：KOBAYASHI, Takuya
所属研究機関名：一般財団法人電力中央研究所、部局名：環境科学研究所
職名：上席研究員
研究者番号：60371530

(2)研究協力者

研究協力者氏名：松村 秀幸、ローマ字氏名：MATSUMURA, Hideyuki

研究協力者氏名：櫻井 哲史、ローマ字氏名：SAKURAI, Satoshi

研究協力者氏名：渡邊 憲司、ローマ字氏名：WATANABE, Kenji

研究協力者氏名：鷓徳 浩司、ローマ字氏名：KEITOKU, Koji

研究協力者氏名：山口 充孝、ローマ字氏名：YAMAGUCHI, Mitsutaka

研究協力者氏名：長尾 悠人、ローマ字氏名：NAGAO, Yuto

研究協力者氏名：鈴井 伸郎、ローマ字氏名：SUZUI, Nobuo

研究協力者氏名：尹 永根、ローマ字氏名：YONG-GEN, Yin

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。