

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K02331

研究課題名（和文）コメの放射性セシウム汚染に、高濃度セシウム含有不溶性微粒子は影響しているか？

研究課題名（英文）Does the high-concentration radiocesium-containing insoluble particles affect the radiocesium contamination of rice?

研究代表者

桧垣 正吾 (Higaki, Shogo)

東京大学・アイソトープ総合センター・助教

研究者番号：50444097

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：福島県の用水路でサンプリングした水をろ過したフィルターからそれぞれ2個のRCsBPを発見し、単離に成功した。その放射能および $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比から、いずれも2号機由来のRCsBPと判断した。一方で、その年に採取されたコメ試料からはRCsBPは発見されなかった。ゆえに、コメの放射能汚染にRCsBPが関与しているとは断定できない。しかし、用水にはRCsBPが含まれていたことから、土壌などに含まれていたRCsBPが、風雨などの影響によって流入し、用水の放射性セシウム濃度の急激な上昇に寄与することが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

環境中に存在するRCsBPが、特に低濃度の放射性セシウム濃度の変動に大きな影響を及ぼす可能性を示した。今回確立したRCsBPの分離手法・分離技術の最適化により、様々な試料から多量のRCsBPの単離が可能になった。また、長時間測定によるRCsBPの精密な放射能測定が可能になったことにより、主に事故直後にサンプリングした試料から多数のRCsBPの単離や評価が可能になった。本研究の本来の目的からは外れる部分があるものの、科学的に意義のある成果を出す基礎となる重要な技術であると考えている。

研究成果の概要（英文）：Two RCsBPs were discovered from filters that filtered water collected from a waterway in Fukushima prefecture and succeeded in isolating them. Based on their radioactivity and the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ radioactivity ratio, both RCsBPs were determined to be derived from Unit 2. However, no RCsBPs were found in rice samples collected that year, so it cannot be concluded that RCsBPs are involved in the radioactivity contamination of rice. However, since RCsBPs were found in the waterway, it became clear that RCsBPs contained in soil and other substances flowed into the waterway due to factors such as wind and rain, contributing to the sudden increase in the radioactive cesium concentration in the waterway.

研究分野：放射化学

キーワード：放射性セシウム 放射性微粒子 分離 イネ 原発事故 コメ 不溶性微粒子

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、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所事故により、福島県の一部地域には放出された放射性セシウム(Cs)が多量に沈着しており、半減期30年の ^{137}Cs 、半減期2年の ^{134}Cs による汚染は現在もなお続いている。福島県の復興に向けた取り組みの一つに、コメの全袋全数検査がある。かつては食品の基準値(100Bq/kg)を超える濃度の汚染米が確認されたが、平成27年度以降はスクリーニングレベル(25Bq/kg)以上の汚染米は出ていない。にもかかわらず、現在も風評被害は払拭されてはいない。その原因の一つに、コメの放射性Cs汚染のメカニズムが未だに解明されていないことがある。

そもそも、福島第一原発事故によって放出された放射性Csの形態は、当初、水に溶ける硫酸塩エアロゾルのみと考えられていた。そのため、環境中では、降下後に殆どが土壌に吸着されると考えられていた。しかし、その後、いわゆる「セシウムボール」と呼ばれる不溶性の放射性Cs含有微粒子(以下、Radiocesium-Bearing Particlesを略したRCsBPと示す)として放出された放射性Csも含まれていることが明らかになった。RCsBPの本体はケイ酸塩ガラスであり、直径1~3 μm 、重さ10-17g程度の微粒子に ^{137}Cs が1Bq程度含まれるものが典型的である。1個の放射能は小さいが、その重さあたりの放射能は 10^{17}Bq/g となり、可溶性で吸着された土壌の放射性セシウム濃度に比べて遙かに高い。

過去の研究課題(16K00908)によって、福島県の森林下流水域での稲作環境における継続した濃度測定の中で、水田土壌や用水に放射性Csの季節変動があることを確認してきた。また、2017年に用水中の放射性Cs濃度が前年より10倍も上昇したことを確認しており、上流の森林等から新たな放射性Csの流入があることを明らかにした。このように、稲作環境において、急激な放射性Cs濃度上昇が観測されるということは、環境からコメへの放射性Cs移行のメカニズムに、放射性Cs濃度が極めて高いRCsBPの寄与が大きい可能性があると考えた。

2. 研究の目的

食の安心安全を取り戻し風評被害の払拭に貢献できるよう、これまでに申請者が研究フィールドとしてきた福島県の稲作環境において、環境からコメへの放射性セシウム移行メカニズムを、放射能濃度への寄与の大きいRCsBPに着目して明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 試料採取

福島県内の隣接する2枚の水田において2019年5月から8月まで毎月、土壌・用水の試料採取を行った。また、8月には稲の試料を採取した。採取した試料は研究室に持ち帰った。しかし、2020年、新型コロナウイルス感染症の感染拡大による緊急事態宣言を受け、東京から福島県への出張を行うことができず、それ以降は試料採取を行うことが全くできなかった。そのため、過去の研究課題などによって2018年度以前に採取し、保存している試料についても検討を行うことにした。

(2) 試料からRCsBPの搜索

試料を以下の方法で前処理した。

土壌：放射能測定法シリーズの手法に準拠し、粒径2mmでふるいをかけ、110°Cで乾燥させた。

用水：プレフィルターで粒径10 μm 以上の粒子を除去した上で、メンブレンフィルターにより

0.45 μ m 以上の粒子を捕集した。

イネ：茎および葉は、濃硝酸および過酸化水素水によって加熱処理して有機物を分解し、メンブレンフィルターにより 0.45 μ m 以上の粒子を捕集した。また、それぞれを分画し、電気炉で 500 $^{\circ}$ C に加熱することで灰化処理を行った。

前処理後、イメージングプレートによる短時間照射手法を利用して RCsBP の検索を行った。これまでの研究で開発された湿式分離方法を改良して、RCsBP の単離を行った。

(3) 試料の放射能測定

試料および単離された RCsBP は、Ge 半導体検出器で定量測定を行った。

4. 研究成果

図 1 に、それぞれの水田における 2015 年から 2019 年の 5 月から 8 月までの土壤中放射性セシウム濃度の変動を示す。毎月の濃度を平均した ^{137}Cs 濃度は、地点 1 が 4,610 Bq/kg、地点 2 が 2,230 Bq/kg であった。試料採取の偏りと思われる短期的な濃度の増加があるものの、約 30 年の ^{137}Cs の物理学的半減期に応じた自然減衰よりも、やや早く濃度が減少している傾向が見られた。

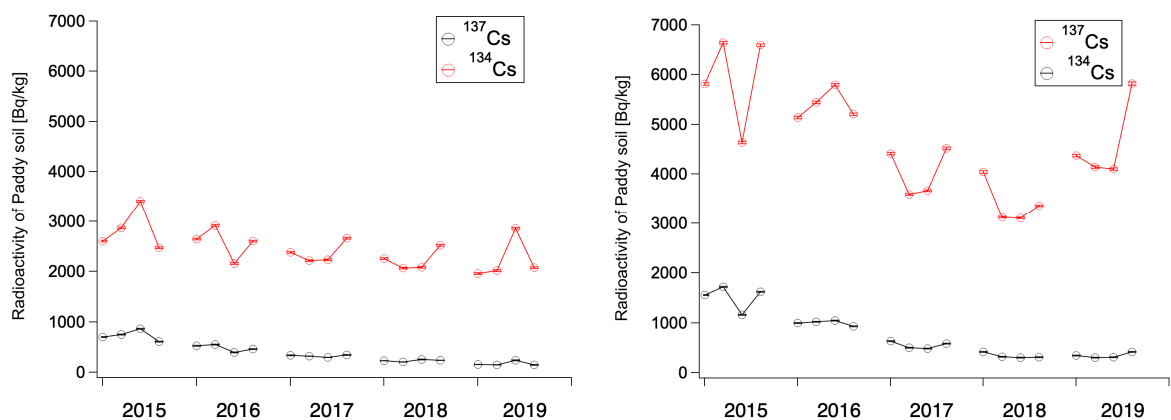


図 1 それぞれの水田における 2015 年から 2019 年の 5 月から 8 月までの土壤中放射性セシウム濃度の変動（左：地点 1、右：地点 2）

それぞれの地点のモミ全体の ^{137}Cs -137 濃度を、土壤の 5 月から 8 月までの平均 ^{137}Cs 濃度で割ることで土からコメへの移行率を求めた。表 1 に結果を示す。一般的な移行率とされている 0.5% 程度であったが、最大 2% と高くなる年もあった。なお、図 1 および表 1 に示した 2016~2018 年の結果は、過去の研究課題(16K00908)の成果によるものであるが、経年変化を理解しやすくするため共に示すものである。

表 1 土とコメ（もみ全体を測定）の測定結果、土からコメへの移行率

年	地点 1			地点 2		
	土中の ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg)	コメ (もみ全体) (Bq/kg)	コメへの移行率 (%)	土中の ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg)	コメ (もみ全体) (Bq/kg)	コメへの移行率 (%)
2015	5,920	28.4 \pm 1.7	0.48	2,840	3.8 \pm 0.4	0.13
2016	5,400	13.7 \pm 0.6	0.25	2,580	9.8 \pm 0.4	0.38
2017	4,050	3.1 \pm 0.4	0.077	2,370	2.1 \pm 0.6	0.089

2018	3,400	8.5±0.6	0.25	2,230	24.4±1.0	1.09
2019	4,610	24.1±1.7	0.52	2,230	45.2±1.7	2.03

フィルター試料から RCsBP を単離するにあたり、新たな単離手法の確立が必要になった。これは、不溶性の粒子が極めて多量に存在する土壌試料からの単離では、超音波振動を使用した湿式分離が適しているが、超音波振動により散逸しやすい素材でできているフィルターからの単離では、同手法の適用が困難なことが明らかになったためである。新たに確立した単離手法は以下の通りである。フィルター上で RCsBP が含まれる部分を特定した後、カプトンテープに付着させ、新たなカプトンテープを何度も接触させて移しとった。必要に応じてこのカプトンテープをエタノール中で超音波振動させて RCsBP を液相に移動させ、新たなカプトンテープに滴下して分離を完了させた。なお、この手法は、その他の素材からの RCsMP 単離にも応用できる。

2015年8月30日および2016年6月27日に、用水路でサンプリングした水（約4L）をろ過したフィルター（0.45μm以上の粒子を捕集）からそれぞれ1個のRCsBPを発見し、単離に成功した。それぞれの放射能（2011年3月11日に減衰補正）を表2に示す。なお、測定時間はいずれも60万秒である。

表2 単離に成功した RCsBP の放射能（2011年3月11日に減衰補正）
および $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比

サンプリング日	^{134}Cs [Bq]	^{137}Cs [Bq]	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比
2015年8月30日	0.357±0.094	0.334±0.006	1.07±0.28
2016年6月27日	0.640±0.135	0.554±0.010	1.16±0.24

その放射能および $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比から、いずれも2号機由来のRCsBPと判断した。一方で、2015および2016年に採取されたコメ試料からはRCsBPは発見されなかった。ゆえに、コメの放射能汚染にRCsBPが関与しているとは断定できない。しかし、用水にはRCsBPが含まれていたことから、土壌などに含まれていたRCsBPが、風雨などの影響によって流入し、用水の放射性セシウム濃度の急激な上昇に寄与することが明らかになった。

今回確立したRCsBPの分離手法・分離技術の最適化により、様々な試料から多量のRCsBPの単離が可能になった。また、長時間測定によるRCsBPの精密な放射能測定が可能になったことにより、主に事故直後にサンプリングした試料から多数のRCsBPの単離や評価が可能になった。本研究の本来の目的からは外れる部分があるものの、科学的に意義のある成果を出す基礎となる重要な技術であると考えている。分離作業の中で、イメージングプレートによる平面分布が通常のRCsBPとは明らかに異なる粒子が見つかった。このことは、これまで報告例が少ない球状ではない2号機由来のRCsBPが存在していること、あるいは、高濃度の可溶性放射性セシウムが飛来して降下および沈着が起こったことの2つの可能性を示唆している。現在、これらの研究成果を取りまとめ、英文誌に投稿している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 BEKELESI Wiseman Chisale, BASUKI Triyono, HIGAKI Shogo, NAKASHIMA Satoru	4. 巻 21
2. 論文標題 Distinction of Migration of Strontium-90 and Cesium-137 for Fukushima Soil and Sediment following the Fukushima Accident	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Radiation Safety Management	6. 最初と最後の頁 26 ~ 35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.12950/rsm.220527	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 後藤 康彦、桧垣 正吾、柴田 尚、保坂 健太郎	4. 巻 63
2. 論文標題 福島第一原子力発電所事故後に富士山で採取された野生食用きのこ3種の方位別および標高別の放射性セシウム濃度	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本菌学会会報	6. 最初と最後の頁 53 ~ 58
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.18962/jjom.jjom.R3-12	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Jang Jaewoong, Kumakura Yoshitaka, Tatenuma Katsuyoshi, Ozeki Atsuko Nakanishi, Wada Youichiro, Akimitsu Nobuyoshi, Tsuguchi Akira, Kikunaga Hidetoshi, Higaki Shogo, Uesaka Mitsuru	4. 巻 110-111
2. 論文標題 A preliminary biodistribution study of [99mTc]sodium pertechnetate prepared from an electron linear accelerator and activated carbon-based 99mTc generator	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nuclear Medicine and Biology	6. 最初と最後の頁 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nucmedbio.2022.03.002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miura Hikaru, Ishimaru Takashi, Ito Yukari, Kurihara Yuichi, Otosaka Shigeyoshi, Sakaguchi Aya, Misumi Kazuhiro, Tsumune Daisuke, Kubo Atsushi, Higaki Shogo, Kanda Jota, Takahashi Yoshio	4. 巻 11
2. 論文標題 First isolation and analysis of caesium-bearing microparticles from marine samples in the Pacific coastal area near Fukushima Prefecture	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 5664
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-85085-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Higaki Shogo, Kurihara Yuichi, Takahashi Yoshio	4. 巻 118
2. 論文標題 Discovery of Radiocesium-Bearing Particles in Masks Worn by Members of the Public in Fukushima in Spring 2013	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Health Physics	6. 最初と最後の頁 1~1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1097/HP.0000000000001148	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kurihara Yuichi, Takahata Naoto, Yokoyama Takaomi D., Miura Hikaru, Kon Yoshiaki, Takagi Tetsuichi, Higaki Shogo, Yamaguchi Noriko, Sano Yuji, Takahashi Yoshio	4. 巻 10
2. 論文標題 Isotopic ratios of uranium and caesium in spherical radioactive caesium-bearing microparticles derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 3281
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-59933-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計9件(うち招待講演 0件/うち国際学会 1件)

1. 発表者名 高久侑己、桧垣正吾、廣田昌大、鍵裕之
2. 発表標題 福島第一原発事故直後に東京周辺の広範囲に飛来したCsMPsの分析
3. 学会等名 第66回放射化学討論会(2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Wiseman Bekelesi, Triyono Basuki, 桧垣正吾、中島覚
2. 発表標題 土壌及び湖底堆積物中の ¹³⁷ Csと ⁹⁰ Srの移行の違い
3. 学会等名 第24回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Wiseman Chisale Bekelesi, Triyono Basuki, Shogo Higaki, Satoru Nakashima
2. 発表標題 Distribution of Sr-90 in Fukushima soil using ICP-MS and liquid scintillation counting spectrometry
3. 学会等名 第3回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三好弘一、矢永誠人、桧垣正吾、森一幸
2. 発表標題 イネの成長期間中の水の放射性セシウム濃度5年間の観察
3. 学会等名 日本放射線安全管理学会第19回学術大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森井志織、鍵裕之、桧垣正吾
2. 発表標題 福島県の一般市民が着用したマスクから採取した不溶性セシウム粒子
3. 学会等名 2019年度日本地球化学会第66回年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shogo Higaki, Yuichi Kurihara and Yoshio Takahashi
2. 発表標題 Trace of radiocaesium-bearing particles in masks worn by members of the public in Fukushima
3. 学会等名 ICRP2019(5th International Symposium on the System of Radiological Protection) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 矢永誠人、出沢良樹、三好弘一、桧垣正吾、森一幸、世良耕一郎
2. 発表標題 イネおよび田水中の微量元素のPIXE分析(VI)
3. 学会等名 第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森井志織、鍵裕之、桧垣正吾
2. 発表標題 福島県の一般市民が2012年春に着用したマスクから採取された不溶性セシウム粒子
3. 学会等名 第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 桧垣正吾、吉田浩子、篠原直秀
2. 発表標題 福島第一原子力発電所周辺の住家内で着用したマスクに付着した放射性セシウム含有不溶性微粒子
3. 学会等名 第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>研究テーマと内容 https://higaki.ric.u-tokyo.ac.jp/research.html</p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------