

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博士（理学）	氏名	辻本 聖也
学位授与の要件	学位規則第4条第①・2項該当		
論文題目			
Field Study on Transfer of Radioactive Cesium into Rice Plants Derived from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident (福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの米への移行に関する実地調査)			
論文審査担当者			
主査	教授	中島 覚（自然科学研究支援開発センター）	
審査委員	教授	水田 勉	
審査委員	教授	井上 克也	
審査委員	教授	石坂 昌司	
〔論文審査の要旨〕			
<p>2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故では、環境中に大量の放射性物質が放出された。この放射性物質は環境中を移行しながら生物にも取り込まれ、外部被ばく、内部被ばくの原因となる。特に米は、日本やアジアの国々の主食であるため、放射性セシウムの水田中から米への移行を明らかにすることは、放射線災害復興を推進するフェニックスリーダー育成プログラムにとって重要な研究課題であり、放射化学が貢献できるところである。</p> <p>2013年度、日本放射線安全管理学会では福島市の近接する4枚の水田（上流から順番にA,B,C,Dとする）を調査し、その中の1枚の田（Bの田）で収穫された米で比較的高い放射性セシウムが検出された。水田中にカリウムが多いと汚染米の発現が抑制されることはすでに分かっていた。しかしながら、この相関から外れる場合があることも知られていた。そこで粒径の小さな土壤に放射性セシウムが強く吸着される性質があるので、粒径分布の違いが米への移行に及ぼす効果を明らかにすることを目的とした。さらに、田植え前から収穫までの^{137}Cs、^{134}Cs、^{40}K濃度の経時変化を調査して、どの時期に放射性セシウムが稲に吸収されるかを明らかにすることとした。</p> <p>サンプリングは、2014年、2016年、2018年に行った。特に2016年は、4月26日、5月18日、6月15日、7月5日、8月2日、8月24日、9月13日の計7回サンプリングを行った。このサンプリングの日程調整は農家の方と自身が行い、測定終了後は資料を作成して農家の方に説明を行った。放射線の測定はGe半導体検出器を用いて通常の方法で行った。^{134}Csの放射能が高いときには同時に放出されるγ線のサム効果が問題になる場合があるので、試料と検出器の距離を変えて測定してサム効果を評価し、補正した。</p> <p>2014年に4枚の田の各5点で土壤と稲穂のサンプリングを行い、土壤から稲穂への放射性セシウムの移行係数を求めた。土壤試料の分級の前に、粒径が分かっている海砂とモンモリロナイトを混合し、用いる試料の量、振とう時間を最適化した。2mmのふるいで礫を取り除いた後、75μm、250μm、850μmのふるいを使って最適化した方法で分級し、その割合を求めた。その結果、75μm未満の土壤の割合が増加するほど移行係数が小さくなるこ</p>			

とが分かった。それと同時に 250 μm 以上 850 μm 未満の土壌の割合が増加するほど、移行係数が大きくなることが分かった。このように、土壌の粒径分布も放射性セシウムの米への移行に影響を与えることが分かった。

次に、75 μm 未満の土壌の交換性カチオンと放射性セシウムの移行係数との関係を調査した。交換性カチオンについては、1M 酢酸アンモニウムを用いて交換性カチオンを溶出した後、ICP 発光分析により、交換性 K, Na, Mg, Ca の濃度を求めた。交換性カチオンの濃度の和は、A,B の田で高く、C,D の田で低いことが分かった。しかし、交換性 K のみでは、B の田で低くなり、放射性セシウムの移行係数は高くなることが分かった。交換性 K が一定濃度以上になると移行係数が変化しなくなることも示唆された。

カリ肥料を与えても水田から溶出する可能性もある。また、稲の生育のどの段階で土壌から稲に放射性セシウムが移行するかを知る必要がある。そこで田植え前の 2016 年 4 月 26 日から収穫前の 9 月 13 日までの合計 7 回、サンプリングを行った。この時には A,B の田は休耕していたので、C,D の田について調査した。フィールドでは稲丈とクロロフィルの量に比例する SPAD 値を測定した。土壌、そして稲に関しては、根、茎、稲穂に分けて Ge 半導体検出器を用いて放射能測定した。

土壌の ^{137}Cs と ^{134}Cs 濃度は 7 月頃に減少するが、9 月になると元の濃度に戻ることが分かった。一方、 ^{40}K の濃度は 7 月頃に上昇するが、9 月になると元の濃度に戻ることが分かった。水田土壌から稲なのか、水田土壌外を考えるべきなのかを確定するのは容易ではないが、水田土壌中のカリウムとセシウムはお互いに補い合っていることが分かった。根では、 ^{40}K は 6 月頃に上昇したが、その後減少し元の濃度に戻った。一方、 ^{137}Cs と ^{134}Cs の濃度は経時的に増加する傾向が認められた。茎では、 ^{40}K は最初増加したが、その後減少傾向が見られた。一方、 ^{137}Cs は最初比較的高かったが経時的に減少する傾向が認められた。稲穂では、出穂期に ^{40}K 、 ^{137}Cs とも少し高かったが経時的に減少した。

移行係数は、移行先の放射能濃度を移行元の放射能濃度で除して求める。今回新たに、土壌から根への移行係数(TF_1)、根から茎への移行係数(TF_2)、茎から稲穂への移行係数(TF_3)を定義して、移行元の ^{40}K 濃度との関係で議論した。その結果、土壌中の ^{40}K 濃度が増加すると放射性セシウムの TF_1 が小さくなる傾向が認められた。一方、根中の ^{40}K 濃度が増加すると放射性セシウムの TF_2 が大きくなり、茎中の ^{40}K 濃度が増加すると放射性セシウムの TF_3 が大きくなることが分かった。さらに、稲丈と TF_1 、 TF_2 、 TF_3 との関係、SPAD 値と TF_1 、 TF_2 、 TF_3 との関係についても議論した。これらのことから、土壌から根への放射性セシウムの吸収はカリウムと競争的であるが、放射性セシウムが一度根に吸収されると、稲中では放射性セシウムとカリウムは共同して移動することが分かった。さらに、 $\text{TF}_1 \times \text{TF}_2 \times \text{TF}_3$ は一般的に定義される移行係数になるが、これは出穂期に比較的高いが経時的に減少することが認められた。

最後に、2014 年、2016 年、2018 年の C と D の田の土壌中の ^{137}Cs と ^{134}Cs の放射能濃度は、事故後それぞれ 3500 Bq kg $^{-1}$ であったと考えると、それぞれの半減期で減衰していることが示された。

以上、審査の結果、本論文の著者は博士（理学）の学位を授与される十分な資格があるものと認める。

公表論文

1. Tsujimoto, M., Miyashita, S., and Nakashima, S., A correlation between the transfer factor of radioactive cesium from soil plants and grain size distribution of paddy soil in Fukushima, *Radiation Safety Management*, **15**, 1-8 (2016).
2. Tsujimoto, M., Miyashita, S., Nguyen, H. T., and Nakashima, S. Monthly change in radioactivity concentration of ^{137}Cs , ^{134}Cs , and ^{40}K of paddy soil and rice plants in Fukushima Prefecture, *Radiation Safety Management*, in press (2020).

参考論文

1. Nabae, Y., Tsujimoto, M., Miyashita, S., and Nakashima, S., Distribution of radioactive caesium from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant in seabed sediment from offshore Niigata Prefecture and Yamagata Prefecture, *Radioisotopes*, **67**, 573-581 (2018).
2. Basuki, T., Miyashita, S., Tsujimoto, M., and Nakashima, S., Deposition Density of Cs-134 and Cs-137 and Particle Size Distribution of Soil and Sediment Profile in Hibara Lake Area, Fukushima: an Investigation of Cs-134 and Cs-137 Indirect Deposition into Lake from Surrounding Area, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **316**, 1039-1046 (2018).
3. Nguyen, H. T., Tsujimoto, M., Miyashita, S., and Nakashima, S., Depth distribution of radioactive caesium in soil after cultivating and the difference by the year of the uptake of radioactive caesium in rice in Fukushima Prefecture after the nuclear accident, *Radioisotopes*, **68**, 13-18 (2019).
4. Nguyen, H.T., Tsujimoto, M., and Nakashima, S., Study on Paddy Soil in Fukushima Using Mössbauer Spectroscopy, *Hyperfine Interactions*, **240**, 122 (2019).