

キノコ類におけるアルカリ金属元素移行研究への PIXE 法の応用

寺川貴樹¹、石井慶造¹、松山成男¹、平方遥子¹、松山哲生¹、菅井裕之¹、押川 峻¹、
菊池航介¹、小塩成基¹、藤田明希穂¹、鈴木優生¹、渡部浩司¹、伊藤 駿¹、
長久保義和¹、櫻田喬雄¹、世良耕一郎²

¹東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻
980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-01-2

²岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

1 はじめに

福島第一原子力発電所の事故により放射性物質で汚染された地域では、可食性の野生きのこ類への放射性セシウムの移行・蓄積が問題となっている。腐食性キノコは落葉、枯木などを分解して主な栄養源としており、成長が早いために必須元素吸収も短期間に大量に行われる。特にカリウムが高集積するため、アルカリ元素である放射性セシウムも同時に取り込まれるものと考えられているが、その詳細なメカニズムは十分には理解されていない¹⁻⁴⁾。一方、天然に存在するアルカリ元素のルビジウムもキノコ類へ集積するため、放射性セシウムと同様の移行メカニズムが考えられる。

キノコ中の放射性セシウムは極微量なため放射線測定で検出する必要があるが、天然のルビジウムのキノコ中濃度は元素分析で検出可能なレベルである。したがって、放射性セシウムのトレーサとしてルビジウムの利用が可能であると期待される。さらに、放射性セシウムが存在し、さらに安定セシウムやルビジウムを添加した環境で育成したキノコを分析試料として用いれば、放射性セシウムと他のアルカリ元素の移行の相関関係を放射能測定と元素分析法で解明することが可能である。本研究では、上記の方法で PIXE 法を用い、キノコ類における放射性セシウムとアルカリ元素移行の相関関係を明らかにすることを目的とした。

2 材料と方法

キノコ試料としてシイタケを用いた。シイタケ栽培用の原木は、福島県飯舘村の民家で事故当時使用されていたものである。栽培前に炭酸セシウムと炭酸ルビジウムの水溶液を原木に噴霧した。噴霧条件は、原木表皮の密度と表面積を基に、原木表皮におけるこれらの元素濃度がそれぞれ 300 $\mu\text{g/g}$ 程度となるようにした。噴霧の時期は 2013 年 11 月 12 日で、噴霧後に 2 つのシイタケが発生し 2013 年 12 月 13 日に収穫された。

シイタケ中の放射能の濃度分布を測定するためイメージングプレートを使用した。生のシイタケを 2 つに切り、切断面をイメージングプレートに 36 時間密着させた後にイメージングプレートリーダー (Fuji film BAS-5000) で画像化した。さらに、イメージングプレートによる放射能分布測定結果より、シイタケサンプル

ルを4つの部位にわけ、各部位に含まれる ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能濃度 (Bq/kg) をゲルマニウム検出器を用いて測定した。なお、シイタケへの放射性セシウムの移行係数を求めるために、原木表皮の放射能濃度も測定した。

一方、PIXE分析は、仁科記念サイクロトロンセンターのPIXE分析システムを用いて行われた。乾燥したシイタケサンプルを硝酸灰化し⁵⁾、灰化溶液を4 μm 厚プロレンフィルムに滴下・乾燥させ、2.9 MeVの陽子ビームで分析を行った。なお、サンプル調整では内部標準元素としてインジウム(1000 ppm)を加えた。高エネルギー側のX線の測定では、低エネルギーX線吸収体として500 μm 厚マイラーを使用した。また、元素の移行係数を求めるため、原木表皮についても元素分析をした。

3 結果および議論

図1にイメージングプレートを用いて測定した生のシイタケサンプル断面の放射能分布を示す。シイタケのかさの両端の部分に強い放射能の集積が認められる。一方、かさの中央部分やシイタケの軸部分の放射能濃度は比較的低いことが判明した。シイタケの部位別の放射能濃度を測定するために、シイタケをかさ端、かさ中央、軸、および石突部分に分け、凍結乾燥・粉碎処理後にゲルマニウム検出器によるガンマ線測定を行った。また、シイタケ栽培に用いた原木の表皮についても同様に測定を行った。結果を表1にまとめる。シイタケにおける放射性セシウム濃度は一様ではなく、かさの部分、特に端の部分に顕著に集積し、軸や石突にはあまり集積しないことが確認された。

表1 乾燥シイタケ試料各部位および原木表皮の放射性セシウム濃度

試料	^{134}Cs (kBq/kg)	^{137}Cs (kBq/kg)	^{134}Cs と ^{137}Cs の合計 (kBq/kg)
かさ端	126	300	426
かさ中央	77	189	266
軸	32	79	111
石突	20	48	68
原木表皮	208	529	737

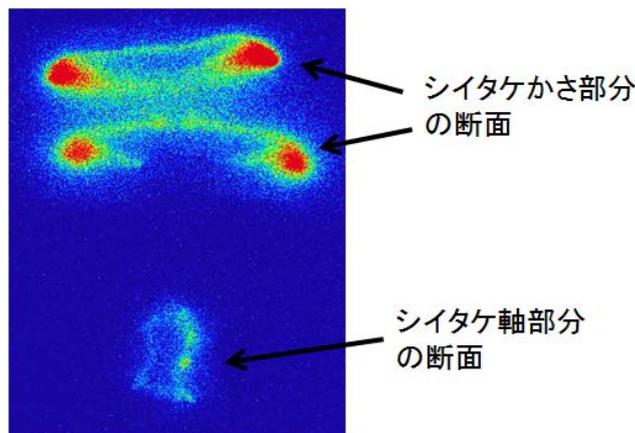


図1 イメージングプレートによるシイタケサンプル断面の放射能分布画像

図2にシイタケ試料のかさ端、かさ中央、軸、および石突きの部位における PIXE 分析で検出された元素濃度を示す。シイタケには K が最も高濃度で、かさ部分に集積していることがわかる。アルカリ金属である Rb と Cs も 100 $\mu\text{g/g}$ 前後の濃度が、かさ部分に集積していることが確認された。特にかさの端が最も高濃度であり、この結果は、イメージングプレートによる放射能分布の結果やゲルマニウム検出器による $^{134,137}\text{Cs}$ 濃度測定結果と一致した傾向である。図3は、シイタケ栽培に用いた原木表皮の各種元素濃度を示す。原木表皮では Ca が最も高濃度で K は3番目に高い濃度であった。Rb と Cs については、それぞれ 100 $\mu\text{g/g}$ 程度が原木に含まれたことを示す (Rb については天然に存在していたものを含む)。また、図4にシイタケの各部位のデータをもとにした K、Rb および Cs の濃度の相関を示す。アルカリ元素の K、Rb および Cs のシイタケへの移行には明確な相関があり、移行メカニズムが共通であることが示唆される。

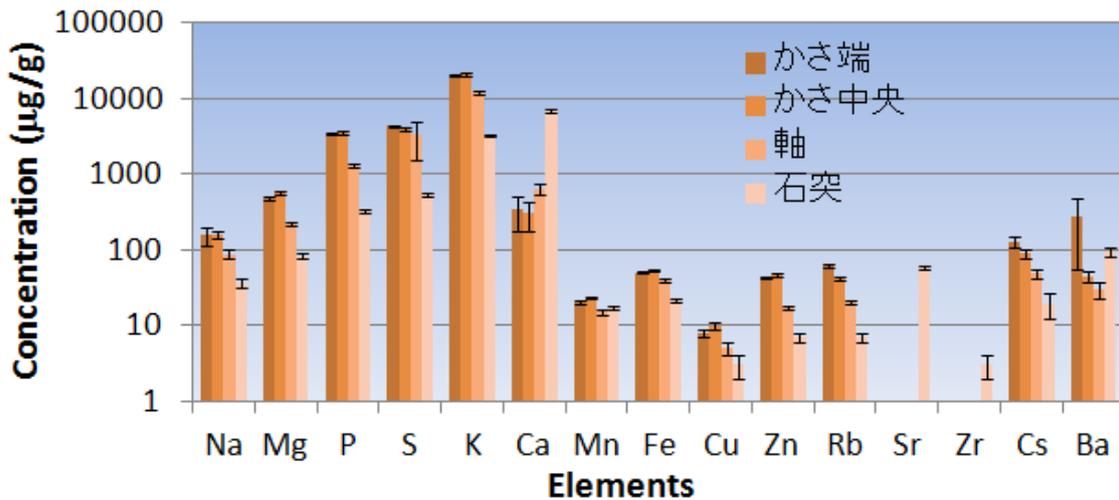


図2 シイタケのかさ(端、中央)、軸、及び石突きの各種元素濃度

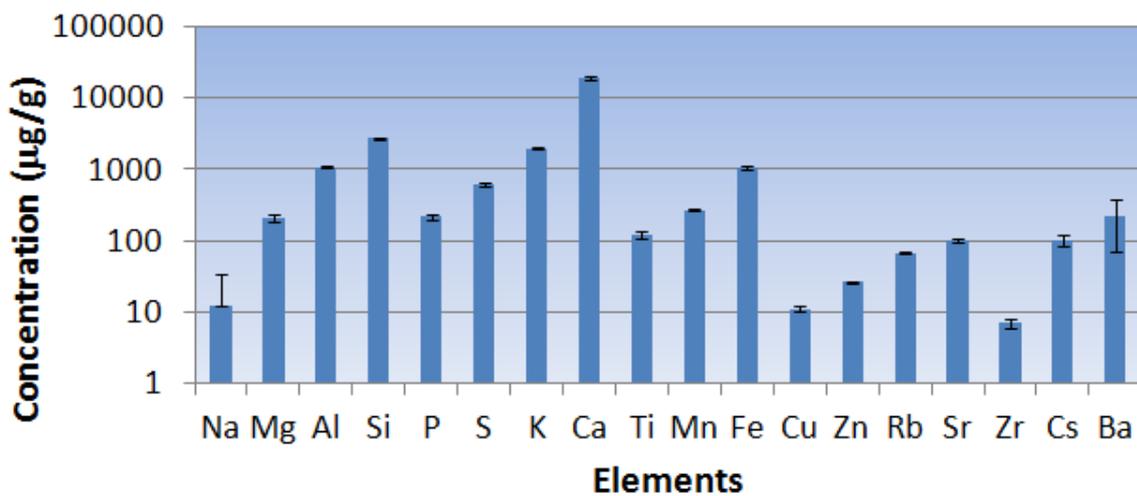


図3 シイタケ栽培に使用した原木表皮の各種元素濃度

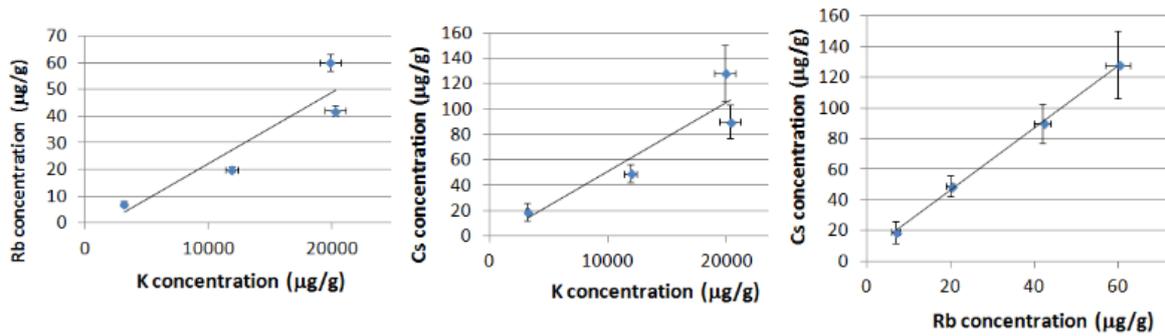


図 4 K、Rb および Cs に関するシイタケ試料への移行濃度の相関関係

表 2 シイタケの各部位における放射性セシウム の移行係数

シイタケ部位	放射性 Cs の移行係数
かさ端部	0.58
かさ中央部	0.36
軸部	0.15
石突部	0.09

表 3 シイタケの各部位における K、Rb と Cs の移行係数

アルカリ元素の移行係数			
	K	Rb	Cs
かさ端	10±0.6	0.88±0.06	1.2±0.30
かさ中央	10±0.6	0.62±0.04	0.87±0.20
軸	6.0±0.4	0.29±0.02	0.48±0.11
石突	1.6±0.1	0.19±0.06	0.18±0.08

表 2 とシイタケの各部位における放射性セシウム の移行係数を、表 3 に PIXE 分析による K、Rb および Cs のアルカリ元素移行係数をそれぞれ示す。放射性セシウム の移行係数とアルカリ元素の移行係数は以下の式により導出した。

$$\text{放射性 Cs の移行係数} = \text{シイタケ試料中の放射性 Cs 濃度(Bq/kg)} \div \text{原木表皮中の放射性 Cs 濃度(Bq/kg)}$$

$$\text{アルカリ元素の移行係数} = \text{シイタケ試料中の元素濃度(µg/g)} \div \text{原木表皮中の元素濃度(µg/g)}$$

放射性セシウム の移行係数と添加による安定 Cs および Rb の移行係数の間には類似した傾向が認められる。移行係数の違いについては、原木表皮における放射性セシウム や添加元素の濃度が一様でなく、場所による濃度差の影響が可能性として考えられる。しかしながら、放射性セシウム のシイタケへの移行や動態に関する研究において、Cs あるいは Rb を添加・移行させて代用元素とする方法が利用可能であると期待される。一方、K の移行係数は他の元素よりも 10 倍程度大きい結果となった。その原因として、必須元素の K は原

木表皮にはほぼ一様に高濃度で存在するため、効率良くシイタケに吸収されるなどの点が考えられるが、現時点でその詳細はわかっていない。

4 まとめ

放射性セシウムに汚染されたシイタケ用の原木に、安定 Cs, Rb を添加し栽培したシイタケの PIXE 分析を行った。シイタケ中の放射性セシウムの分布をイメージングプレートを用いて測定した結果、シイタケのかさの部分、特に端に集積することが確認された。また、シイタケの各部位について放射能濃度を測定し移行係数を導出した。PIXE 分析結果より、K と Cs、K と Rb、Cs と Rb の濃度間に明確な相関関係が認められた。また、添加した安定 Rb および Cs の移行係数と放射性 Cs の移行係数は類似した傾向が確認され、移行メカニズムの共通性が示唆された。放射性セシウムの移行研究において、安定 Rb および Cs を添加・移行させる方法が有効であると期待される。

参考文献

- 1) G. A. Battiston, S. Degetto, R. Gerbasi and G. Sbrignadello, "Radioactivity in Mushroom in Northeast Italy Following the Chernobyl Accident", *J. Environ. Radioactivity*, 9 (1989) 53-60.
- 2) L. Kammerer, L. Hiersche and E. Wirth, "Uptake of Radiocaesium by Different Species of Mushroom", *J. Environ. Radioactivity*, 23 (1994) 135-150.
- 3) H. Bem, W. Lasota, E. Kusmierrek, M. Witusik, "ACCUMULATION OF ^{137}Cs BY MUSHROOMS FROM ROGAZNO AREA OF POLAND OVER THE PERIOD 1984-1988.", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 145 (1990) 39-46.
- 4) Masami Shimizu and Ikuro Anzai, "Concentration of ^{137}Cs in dried *Lentinula edodes* (Shiitake) as an indicator of environmental contamination", *Journal of Oral Science*, 43 (2001) 145-149.
- 5) S. Futatsugawa, S. Hatakeyama, S. Saitou and K. Sera, "Present status of NMCC and sample preparation method for Bio-samples", *Int. journal of PIXE* 3, 4, (1993) 319-328.

Application of PIXE analysis to studies on uptake of alkali elements in mushrooms

A. Terakawa¹, K. Ishii¹, S. Matsuyama¹, H. Hirakata¹, T. Matsuyama¹, H. Sugai¹,
S. Oshikawa¹, K. Kikuchi¹, S. Koshio¹, A. Fujita¹, Y. Suzuki¹, K. Watanabe¹, S. Ito¹,
Y. Nagakubo¹, T. Sakurada¹ and K. Sera²

¹Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University
6-6-01-2 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

²Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

In this work we aimed to compare accumulation of alkali elements and radioactive cesium in radio-contaminated mushrooms cultivated with stable cesium and rubidium, and to reveal a correlation between them using particle-induced X-ray emission (PIXE). Shiitake mushrooms were cultivated at Tohoku University with radio-contaminated hardwood logs used for shiitake cultivation in Iitate Village. Before shiitake mushroom cultivation, aqueous solutions of stable cesium carbonate and rubidium carbonate were sprayed onto the logs to evaluate concentration of alkali elements in shiitake mushrooms using PIXE analysis. In order to measure spatial distribution of radioactivity in the shiitake mushroom, an autoradiographic method was employed. We cut the raw mushroom samples and attached their cutting surface on an imaging plate (Fuji film Co., Ltd.). Radioactive determination of the samples was also performed using a high-purity Ge detector. The results showed that radioactive cesium was not uniformly distributed in shiitake and strongly accumulated in the peripheral region of pileus of shiitake. The results of PIXE analysis showed that both cesium and rubidium were strongly accumulated in the peripheral region of pileus compared to other portions of shiitake, suggesting that shiitake accumulates radioactive cesium by the same mechanism as other alkali elements such as rubidium.