

平成25年度放射性廃棄物共通技術調査等事業

# 放射性核種生物圏移行評価高度化開発

平成26年3月

独立行政法人

放射線医学総合研究所



# 平成 25 年度 放射性核種生物圏移行評価高度化開発

## 目 次

第 1 章 本調査の目的 .....	1
第 2 章 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築 ..3	
2. 1. はじめに .....	3
2. 2. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査 .....	4
2.2.1. 文献調査 .....	5
2.2.1.1. 移行係数と環境要因 .....	5
2.2.1.2. 我が国の土壌-植物間移行係数 (TF) に関する調査について .....	7
2.2.1.3. 気温と文献調査の結果のまとめ .....	9
2.2.2. 土壌-農作物移行データの取得 .....	9
2.2.2.1. 採取場所の選択 .....	9
2.2.2.2. 土壌試料の前処理方法 .....	10
2.2.2.3. 農作物試料の前処理方法 .....	10
2.2.2.4. 土壌の物理化学的特性 .....	11
2.2.2.5. 土壌中の安定元素の分析 .....	13
2.2.2.6. 農作物中の安定元素の分析 .....	15
2.2.2.7. その他の元素の定量 .....	16
2.2.2.8. 分析結果および考察 .....	17
2. 3. 環境移行パラメータ変動要因の解析 .....	18
2.3.1. ヨウ素の Kd データについて .....	18
2.3.2. 独立変数とヨウ素 Kd の相関 .....	19
2.3.3. ヨウ素 Kd と土壌特性の関係性についてのまとめ .....	21
2. 4. 放射性セシウムの植物移行に関わる福島第一原発事故後のデータ .....	21
2.4.1. 果樹等からの実効半減期の導出 .....	21
2.4.1.1. 材料および測定方法 .....	22
2.4.1.2. 柿の葉および果実中の放射性 Cs の経時変化 .....	22
2.4.1.3. 果樹中の放射性 Cs 実効半減期の導出 .....	24
2.4.1.4. 果樹等からの実効半減期のまとめ .....	25
2.4.2. 樹木葉のサンプリング位置による濃度の差 .....	25
2.4.2.1. サクラの葉のサンプリング位置 .....	25

2.4.2.2. サクラの葉のサンプリング位置の違いと濃度について .....	26
2.4.2.3. 樹木葉のサンプリング位置による濃度の差についてのまとめ .....	258
2.4.3. 野生動物（食用）への濃縮係数 .....	28
2.4.3.1. 野生動物への濃縮係数データの取得について .....	28
2.4.3.2. 野生動物データソースと導出方法 .....	29
2.4.3.3. 野生動物の放射性 Cs の単位面積あたり濃縮係数 .....	29
2.4.3.4. 野生動物（食用）への濃縮係数のまとめ .....	30
2.4.4. 東電福島第一原発港湾内で採取された魚への海水からの放射性セシウムの濃縮係数 .....	31
2.4.4.1. 用いたデータの情報と計算方法 .....	31
2.4.4.2. 港湾内の魚類の CR .....	32
2.4.4.3. 魚類の CR のまとめ .....	33
2. 5. おわりに .....	33
引用文献 .....	34
第3章 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査 .....	73
3. 1. はじめに .....	73
3. 2. ガス化した $^{14}\text{C}$ の直接測定 .....	74
3.2.1. 土壌試料と培養条件 .....	74
3.2.2. 各相に配分された $^{14}\text{C}$ の放射能の回収と測定方法 .....	75
3.2.2.1. 液相中の $^{14}\text{C}$ の回収と測定 .....	75
3.2.2.2. 固相中の $^{14}\text{C}$ の回収と測定 .....	76
3.2.2.3. 気相中の $^{14}\text{C}$ の回収と測定 .....	77
3.2.3. 水酸化ナトリウム吸収剤と液体シンチレーションカクテルの混合割合 .....	78
3.2.4. 各相における $^{14}\text{C}$ 量と回収率 .....	79
3.2.4.1. 装置 1 の結果 .....	79
3.2.4.2. 装置 2 の結果 .....	79
3.2.4.3. 装置 3 の結果 .....	80
3.2.4.4. 装置 4 の結果 .....	80
3.2.5. 回収率の向上 .....	81
3.2.5.1. キャリアの効果 .....	81
3.2.5.2. $\text{CO}_2$ 吸収剤の効果 .....	81
3.2.6. $^{14}\text{C}$ 直接測定の最適化 .....	82
3.2.7. まとめ .....	83
3. 3. $^{14}\text{C}$ ガス化率の指標として土壌微生物酵素活性測定報の検討 .....	83

3.3.1. はじめに .....	83
3.3.2. 土壌微生物の酵素活性測定法の検討.....	84
3.3.2.1. 微生物活性測定対象となる酵素 .....	84
3.3.2.2. INT 試薬を用いた呼吸活性測定手順の調査.....	85
3.3.2.3. 土壌微生物呼吸活性測定法の開発.....	85
3.3.2.4. まとめ .....	88
3.3.3. 微生物呼吸活性測定実験.....	88
3.3.3.1. はじめに.....	88
3.3.3.2. 微生物呼吸活性と土壌タイプ .....	88
3.3.3.3. 国内水田土壌試料における微生物呼吸活性と $^{14}\text{C}$ ガス化率 .....	89
3.3.4. プレインキュベーション期間の検討.....	90
3.3.5. まとめ .....	92
3. 4. 微生物活動を反映した $^{14}\text{C}$ の水田環境移行モデルの検討.....	93
3.4.1. はじめに .....	93
3.4.2. 文献調査 .....	93
3.4.2.1. つくばみらい FACE 実験によるイネの高 $\text{CO}_2$ 応答の検証.....	93
3.4.2.2. 大気 $\text{CO}_2$ 増加、温暖化で水稲の生育、収量はどうなる .....	95
3.4.2.3. 異なる温度と光条件下におけるスプレーギクの光合成速度の比較 .....	95
3.4.2.4. 水稲・小麦の二毛作における熱収支・ $\text{CO}_2$ 濃度の季節変化 .....	96
3.4.2.5. 大気－植生間における $\text{CO}_2$ 等の交換と流れ.....	97
3.4.2.6. The Effect of temperature on the rates of photosynthesis, respiration and the activity of RuDP carboxylase in Barley, Rice and Maize leaves .....	98
3.4.2.7. 高温条件における水稲の生育予測、生育診断および品質向上に関する研究.....	99
3.4.2.8. 新農業気象・環境学.....	101
3.4.2.9. 新・生命科学シリーズ 植物の生態－生理機能を中心に－.....	102
3.4.2.10. 陸域生態系の炭素動態－地球環境へのシステムアプローチ .....	103
3.4.3. 微生物活動を反映した $^{14}\text{C}$ の水田における動態モデルの試作 .....	103
3.4.3.1. モデルへ組み込むためのモデル式の検討 .....	103
3.4.3.2. 環境因子を考慮した水稲全体モデルの改良および試解析.....	105
3.4.4. 水稲全体モデル改良のまとめ .....	108
3. 5. おわりに .....	109
引用文献 .....	110
第 4 章 重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の超高精度分析による環境移行パラメータ収集 .....	151

4. 1. はじめに .....	151
4. 2. 重要核種 Pu および Cl の超高精度分析 .....	151
4.2.1. 文献調査 .....	151
4.2.2. 土壌中 Pu 同位体の超高精度分析開発 .....	153
4.2.2.1. 装置 .....	153
4.2.2.2. 測定試料.....	155
4.2.2.3. 試薬 .....	155
4.2.2.4. 化学分離法の検討 .....	155
4.2.2.5. 分析法の確立 .....	156
4.2.3. 土壌中 Pu 同位体の分析結果と考察 .....	159
4.2.4. 塩素の化学分離法の調査・研究 .....	160
4. 3. 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集 .....	162
4.3.1. Pu の土壌-米間移行係数 (TF) の文献調査 .....	162
4.3.2. 塩素の土壌-植物間移行係数 (TF) の文献調査 .....	163
4. 4. まとめ .....	164
4.4.1. 重要核種 Pu および Cl の超高精度分析 .....	164
4.4.2. 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集.....	164
引用文献.....	165
第5章 まとめ .....	191
5. 1. はじめに .....	191
5. 2. 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築	191
5. 3. 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査.....	192
5. 4. 重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の超高精度分析による環境移行パラメータ収集 .....	193
放射性核種生物圏移行評価高度化開発検討会委員 .....	197
平成 25 年度検討会開催日 .....	198
謝辞 .....	199

## 図 表 リ ス ト

第 2 章 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築	
表 2.2-1. ドイツの安全評価で用いられた TF と気候変動に伴うファクター .....	39
表 2.2-2. TRS-472 に記載されている熱帯、亜熱帯および温帯の TF の比較 .....	40
表 2.2-3. 露地およびトンネル栽培による気温の違いと Zn, Cd, Cu 及び Pu の移行量 .....	41
表 2.2-4. 土壌-植物試料の採取状況 .....	42
表 2.2-5. 試料の採取地点と採取日 .....	46
表 2.2-6. 土壌の種類と仮比重および送付時水分含量 .....	47
表 2.2-7. 作物の種類、廃棄率および水分含量 .....	48
表 2.2-8. 土壌特性 .....	49
表 2.2-9. 土壌中元素濃度 .....	50
表 2.2-10. 植物中元素濃度 .....	51
表 2.2-11. 各項目の測定値 (幾何平均値) と既存値との比較 .....	52
表 2.2-12. TF の比較 .....	53
表 2.3-1. ヨウ素 Kd (4°C と 23°C で採取、各々 I <sup>-</sup> および IO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ) の相関 .....	54
表 2.3-2. 各ヨウ素 Kd 値に対して土地利用と相関が認められなかった項目 .....	54
表 2.3-3. 全試料のヨウ素 Kd 値と項目との単相関 (pH 以外是对数変換、順位相関) .....	55
表 2.3-4. 畑土壌のヨウ素 Kd 値と項目との単相関 (pH 以外是对数変換、順位相関) .....	56
表 2.3-5. 水田土壌のヨウ素 Kd 値と項目との単相関 (pH 以外是对数変換、順位相関) .....	57
表 2.4-1. 果樹の放射性セシウム実効半減期 .....	58
表 2.4-2. 放射性 Cs の面積当たりの移行係数 (Tag, m <sup>2</sup> /kg) .....	59
表 2.4-3. 福島第一原発港湾内の魚類の濃縮係数 (震災後 650-992 日後) .....	60
図 2.2-1. 放射性核種の移行経路と温暖化で影響を受け易い経路 (赤) (Dowdall ら、2008) .....	61
図 2.2-2. ドイツにおける一般化した地下水シナリオ (Staudt ら、2013) .....	61
図 2.2-3. 玄米中の <sup>137</sup> Cs および <sup>90</sup> Sr 濃度の経年変化. (Komamura ら 2005 より 14 箇所のサ ンプリング地点データの幾何平均値をプロット) .....	62
図 2.2-4. 水田中の <sup>137</sup> Cs および <sup>90</sup> Sr 濃度の経年変化. (Komamura ら(2005)より 14 箇所のサ ンプリング地点データの幾何平均値をプロット) .....	62
図 2.2-5. 水田土壌-玄米の農作物/土壌中濃度比の経時変化 .....	63
図 2.2-6. 玄米への <sup>90</sup> Sr および <sup>137</sup> Cs の移行係数の気温の影響 .....	63
図 2.2-7. ナシの部位 (果梗および種子) への元素の移行係数 (長野と鳥取) .....	64

図 2.3-1. 対数変換したヨウ素 Kd 値の温度による比較 (左: I-, 右: IO3-)	64
図 2.3-2. 対数変換したヨウ素 Kd 値 (水田土壌) と Rb および Ba 濃度との関係	65
図 2.4-1. 洗浄/未処理の柿の葉中の-Cs 定量結果の比較と経時変化	66
図 2.4-2. 果肉、果皮、種子およびヘタ (葉) に分割した柿果実の各部位の-Cs の経時変化 (左) と果実中の放射性 Cs 存在割合 (右)	66
図 2.4-3. 果肉と葉中の-Cs 濃度の経時変化の比較	67
図 2.4-4. 食品モニタリングデータ (厚生労働省発表) による福島市で収穫された果実中の <sup>137</sup> Cs 濃度の経時変化	67
図 2.4-5. 植物の養分循環の模式図	68
図 2.4-6. 葉のサンプリング位置	68
図 2.4-7. サクラの葉 (L および H 位置) の-Cs 濃度の経時変化 (2013 年)	69
図 2.4-8. 野生動物への面積当たりの移行係数 (T <sub>ag</sub> ) データの度数分布	69
図 2.4-9. 各野生動物中の T <sub>ag</sub> の比較	70
図 2.4-10. ある採取エリアにおけるイノシシ中の <sup>137</sup> Cs 濃度の経時変化	70
図 2.4-11. 港湾内海水中の-Cs 濃度の経時変化	71
図 2.4-12. 港湾内の 5 種類の魚類中の <sup>137</sup> Cs 濃度の経時変化	71
写真 2.4-1. 調査対象とした柿の樹。3 本が半径 5m 以内に植生	72
写真 2.4-2. サンプリングに用いた柿の実	72
第 3 章 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査	
表 3.2-1 用語とその説明	115
表 3.2-2 土壌試料の土壌分類と物理化学特性	115
表 3.2-3 第 3 章 2 節で用いた記号とその概要	116
表 3.2-4 NaOH と Hionic-Fluor の混合割合試験	116
表 3.2-5 装置 1 における各測定値	117
表 3.2-6 装置 1 の測定値より求めた各 <sup>14</sup> C 濃度と回収率	117
表 3.2-7 装置 2 における各測定値	118
表 3.2-8 装置 2 の測定値より求めた各 <sup>14</sup> C 濃度と回収率	118
表 3.2-9 装置 3 における各測定値	119
表 3.2-10 装置 3 の測定値より求めた各 <sup>14</sup> C 濃度と回収率	119
表 3.2-11 装置 4 における各測定値	120
表 3.2-12 装置 4 の測定値より求めた各 <sup>14</sup> C 濃度と回収率	120
表 3.2-13 装置 2 における各測定値 (キャリア効果の検討)	121

表 3.2-14	装置 2 の測定値より求めた各 $^{14}\text{C}$ 濃度と回収率 (キャリア効果の検討)	121
表 3.2-15	装置 1 における各測定値 ( $\text{CO}_2$ 吸収剤の効果)	122
表 3.2-16	装置 1 の測定値より求めた各 $^{14}\text{C}$ 濃度と回収率 ( $\text{CO}_2$ 吸収剤の効果)	122
表 3.3-1	土壌試料とその土壌タイプ・採取地・酢酸添加時のガス化率	123
表 3.3-2	土壌試料とその土壌タイプ・採取地・酢酸添加時のガス化率	123
表 3.4-1	水稲・小麦の二毛作における熱収支・ $\text{CO}_2$ 濃度の季節変化 (篠崎, 2005) において測定された項目	123
表 3.4-2	式 3.4-1 および式 3.4-2 より求めたイネ重の量補正值	124
図 3.2-1	乾燥後ふるいにかけて礫を除いた土壌試料	125
図 3.2-2	湛水土壌試料の褐色ガラスバイアル瓶	125
図 3.2-3	GF/F ガラスフィルター上に捕集した土壌試料	125
図 3.2-4	遠心分離後に生じた沈殿物	126
図 3.2-5	ろ液測定試料	126
図 3.2-6	コンバストコーン上に採取した土壌試料	126
図 3.2-7	サンプルオキシダイザ (上) とオキシダイザによる土壌の燃焼 (下)	127
図 3.2-8	ガス化した $^{14}\text{C}$ の回収装置	128
図 3.2-9	管状炉と石英管の触媒	129
図 3.2-10	$^{14}\text{C}$ ガス直接測定装置概略図	129
図 3.2-11	最適化した装置における $^{14}\text{C}$ の液相率, 固相率, 気相率	129
図 3.3-1	INT ホルマザンの吸光スペクトル	130
図 3.3-2	INT ホルマザンの検量線	130
図 3.3-3	振とう培養時の試料配置様子	131
図 3.3-4	INT ホルマザン生成量と INT 振とう時間	131
図 3.3-5	INT ホルマザン抽出量と抽出溶媒 (メタノール) 量	131
図 3.3-6	INT ホルマザン抽出量と抽出時間	132
図 3.3-7	測定方法の概略図	132
図 3.3-8	INT 振とうおよび遠心分離後の様子	133
図 3.3-9	INT ホルマザン生成量と土壌タイプ	133
図 3.3-10	63 水田土壌試料の INT ホルマザン生成量と酢酸由来の $1, 2\text{-}^{14}\text{C}$ ガス化率	134
図 3.3-11	粘土質の割合と INT ホルマザン生成量	134
図 3.3-12	活性鉄・炭素量・pH と INT ホルマザン生成量の関係	135
図 3.3-13	INT ホルマザン生成量の経時変化	136
図 3.3-14	振とう培養後にみられた気泡: (左上) あり (右上) なし	137
図 3.3-15	INT 添加し振とうした後の遠心分離後に確認された白色のフィルム状の物質	137

図 3.3-16	INT ホルマザン生成量と振とう培養日数 .....	138
図 3.3-17	添加する有機物を変化させた時の培養 1 日目の土壌試料の呼吸活性に対するガス化率の関係 .....	139
図 3.4-1	イネの成長曲線に対する CO <sub>2</sub> 濃度および気温の影響の考慮 .....	140
図 3.4-2	CO <sub>2</sub> 濃度と気温を変数とした時の光合成速度に対する回帰式 .....	141
図 3.4-3	検証ケース 1 (気温 25°C) におけるイネ各部の <sup>14</sup> C 量 (Bq) 経時変化 .....	142
図 3.4-4	検証ケース 1 (気温 25°C) におけるイネ周辺コンパートメントの <sup>14</sup> C 濃度 (Bq/g-C) 経時変化 .....	143
図 3.4-5	検証ケース 2 (CO <sub>2</sub> 濃度 470 ppm) におけるイネ各部の <sup>14</sup> C 量 (Bq) 経時変化 .....	144
図 3.4-6	検証ケース 2 (CO <sub>2</sub> 濃度 470 ppm) におけるイネ各部の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq/g-C) 経時変化 .....	145
図 3.4-7	感度解析 No.4 (近傍大気 of 交換半減期 10 day 一定) におけるイネ各部の <sup>14</sup> C 量 (Bq) 経時変化 .....	146
図 3.4-8	感度解析 No.4 (近傍大気 of 交換半減期 10 day 一定) におけるイネ各部の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq/g-C) 経時変化 .....	147
図 3.4-9	感度解析 No.6 (近傍大気 of 交換半減期を出穂前 0.1day, 出穂後 10day) におけるイネ各部の <sup>14</sup> C 量 (Bq) 経時変化 .....	148
図 3.4-10	感度解析 No.6 (近傍大気 of 交換半減期を出穂前 0.1day, 出穂後 10day) におけるイネ各部の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq/g-C) 経時変化 .....	149
第 4 章	重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の超高精度分析による環境移行パラメータ収集	
表 4.2-1.	SF-ICP-MS (Element 2) と APEX-Q システムにおける機器セッティングおよびデータ取得条件 .....	171
表 4.2-2.	Element 2 と Element XR の比較 .....	172
表 4.2-3.	環境固体試料中の Pu 分離法におけるウラン除去係数 .....	173
表 4.2-4.	標準物質中の <sup>239+240</sup> Pu 放射能濃度および <sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu 原子数比 .....	173
表 4.2-5.	1969-1977 年に採取した土壌中 Pu 分析結果 .....	174
表 4.2-6.	塩素分析法の比較 .....	177
表 4.3-1.	重要核種の T F データ数一覧 (IAEA-TRS-472 より) .....	178
表 4.3-2.	海外の Pu 土壌-米間の移行係数 (TF) データ .....	178
表 4.3-3.	海外の塩素 TF データ .....	179
図 4.2-1.	高導入効率システムを用いた SF-ICP-MS (Element 2) の概略図 .....	180
図 4.2-2.	SF-ICP-MS (Element 2) と APEX-Q 試料導入システムによる質量数 (m/z) 239 にお	

けるバックグラウンド・シグナルとウラン濃度の関係 .....	180
図 4.2-3. ジェットインターフェイス構成 .....	181
図 4.2-4. ウラン溶液（1 ppb）を用いた感度の比較：Element 2 vs. Element XR .....	182
図 4.2-5. AG MP-1M（100-200 メッシュ）樹脂カラムにおける Pu, U および Th の吸着・溶 離挙動. ....	183
図 4.2-6. SF-ICP-MS による定量のための陰イオン交換樹脂によるクロマト分離を導入した 土壌中のプルトニウム分析操作 .....	184
図 4.2-7. 土壌中 Pu 定量のための主な分析操作の様子 .....	184
図 4.2-8. 典型的なブランク試料と土壌試料の質量スペクトル .....	185
図 4.2-9. 放医研により 1969-1977 年に採取された校庭土壌試料の採取地図 .....	186
図 4.2-10. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料（校庭、民家、公園）中の $^{239+240}\text{Pu}$ 放 射能濃度の度数分布 .....	186
図 4.2-11. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料中の $^{239+240}\text{Pu}$ 放射能濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比 .....	187
図 4.2-12. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の度数分布	188
図 4.2-13. 降下物標準物質（Otsuji-Hatori ら，1996）に用いられた月間降下物およびその採 取地点 .....	188
図 4.2-14. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料中の $^{241}\text{Pu}$ 放射能濃度の度数分布 ...	189
図 4.2-15. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料における $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能濃度比	189
図 4.2-16. TMAH 抽出-ICP-MS 測定と水抽出-IC 測定による塩素定量結果の比較.....	190



## 第 1 章 本調査の目的

放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価では、地下の処分場から放射性核種が地下水により移動し、最終的に人間の生活環境を含む生物圏に到達する事が予想される。したがって、その生物圏における核種移行プロセスとこれによる被ばく経路について適切にモデル化を行い、人間への影響を評価することが必要である。長期の安全評価を行うためには、生物圏移行モデルに使用するデータベースも気候変動等を考慮したものを構築することが必要である。また、C-14等の環境移行では微生物が重要な役割を果たすが、微生物の活動は温度や栄養分など様々な環境要因に左右される。したがって、安全評価においては、その影響を統括的に評価する事が必要である。さらに、Pu, Am, Th及び塩素(CI)は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価として、データが少なくかつ重要核種である。しかし、その重要核種の測定は極めて高度の分析技術が要求され、核種移行モデルに使用される環境移行パラメータは十分蓄積されていない。

本研究は、以下の3つの課題について調査・研究を行い、我が国の生物圏における環境移行パラメータのデータベースの高度化を目指すものである。

- (1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築
- (2) 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査
- (3) 重要核種 (Pu, Am, Th および CI 等) の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

以下、本年度行った調査について、それぞれの課題毎に詳しく述べる。

- (1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築

環境移行パラメータには、気温によって値が変動するものがある(炭素-Kd, ヨウ素-Kd, TF等)。放射性廃棄物の地層処分に於ける長期の安全性について現実的な評価を行うためには、気候変動を考慮した我が国独自のデータベースを構築することが必要である。そのために平成25年度は、以下の調査を実施した。

- ① 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査
  - ア 気温と TF に関する文献調査
  - イ 気温が相対的に高い地域からサンプリングした土壌および農作物試料の元素分析 (20 元素程度)
  - ウ TF を導出し、データベースに追加
- ② 変動要因の解析

既存のヨウ素の Kd データを用い、異なる温度での結果に対して統計的手法を用いて相関の高い物理化学項目の抽出

(2) 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

放射性廃棄物地層処分における長期的な安全性確保の観点から、放射性炭素の環境移行に関与することが示唆されている微生物活動の影響を評価することは重要であるが、その影響は温度や栄養分など様々な環境要因に左右される。したがって、安全評価においては、その影響を統括的に評価する事が必要である。平成25年度は、以下の調査を実施した。

① 微生物と環境移行パラメータ

- ア 試料の培養条件、培養期間を考慮した実験系の確立
- イ 土壌から発生する<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>ガスの分析条件の検討
- ウ 土壌酵素抽出法の検討および土壌微生物の呼吸活性測定法の開発

② 微生物活動を反映した移行パラメータの提案（統括的指標の検討）

- ア 統括的指標のための文献調査
- イ 統括的指標をモデルに導入するための検討

(3) 重要核種（Pu, Am, Th および Cl 等）の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

Pu, Am, Th 及び塩素(Cl)等は、放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価上、重要核種であるが、その測定には極めて高度の分析技術が要求されるため、核種移行モデルに使用される環境移行パラメータも世界的にデータが少ない。本課題では土壌および農作物中の重要核種の超高精度分析技術の開発を行い、これらの核種について我が国独自の土壌-農作物の環境移行パラメータを収集する。平成25年度は、以下の調査・研究を行った。

① 超高精度分析法開発

- ア 農作物中の Pu および Cl の分析法の文献調査および化学分離についての検討
- イ Pu については高分解能 ICP-MS を用い、土壌中の実用的な超高精度質量分析法の開発

② 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

文献調査により、国内外で得られたデータを元に、Pu および Cl の移行係数の収集

さらに、東京電力福島第一発電所事故により環境中に放出された放射性核種の移行パラメータも収集した。得られたデータは、環境における放射性核種の中・長期の挙動予測にも活用可能であり、事故により環境中に放出された放射性核種の廃棄物処分や中間貯蔵施設の安全評価等にも活用できるものである。

本調査で得られる我が国の環境移行パラメータのデータベース、モデルなどを用いることにより、放射性核種の環境挙動予測の精度が向上し、放射性廃棄物地層処分の安全評価がより適切なものとなることが期待される。

## 第2章 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築

### 2. 1. はじめに

放射性廃棄物処分施設が閉鎖された後、放射性核種が十分減衰するまでには超長期が見込まれる。その間、地殻では隆起・侵食が起こり、また生物圏の気候はある周期をもって変遷すると予想される。長期変遷を考慮した閉鎖後長期の生物圏安全評価に関する技術開発課題として、Geosphere-Biosphere Interfaceを含む生物圏モデルの開発が挙げられている (NUMO, 2011)。近年では IAEA のプロジェクト MODARIA (Modelling and Data for Radiological Impact Assessments) においても、ワーキング・グループ 6 (WG6) において Common framework for addressing environmental change in long term safety assessments of radioactive waste disposal facilities (放射性廃棄物処分施設の長期安全性評価における環境変遷に関わる取り組みの共通的な枠組み) が検討され始めており、また、氷河期サイクルに関する検討書が SKB の Technical Report として報告されている (Helmens, 2013)。WG6 において、地球温暖化におけるプロセス (数千年単位) と、さらには古気象学に基づく将来の氷河期を含む施設閉鎖後数十万年から百万年程度における環境変化の程度 (気温, 雨量, 地形の変化, 河川流量等々) がそれぞれ検討されている。

これまでの気候変動を考慮した生物圏評価は、不確実性の幅が広い状況であるが、科学的に得られている環境移行パラメータを用いて、より確からしい評価を行うことができるようになると考えられる。海外の生物圏影響評価の一例としてドイツ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) のレポート (2008) を挙げることができる。このレポートでは、ドイツ国民の生活様式をそのままとして安全評価を試みている。欧米の食生活は我が国と異なり、肉類や乳製品等を摂取することによる線量寄与が高いのが特徴である。しかし、我が国では家畜に依存する割合は欧米に比べて低く、したがって、気候変動を考慮した生物圏評価を行うためには、我が国の生活様式や食習慣に見合った、気候変動を考慮した環境移行パラメータのデータベースを準備しておくことが重要である。

本研究は、生物圏移行パラメータに及ぼす気温等の影響評価を行うと共に、その変動を考慮したデータベースを構築するものである。そのため、今年度は土壌-植物間移行係数 (Transfer Factor, TF) に対する気温影響について文献調査を開始した。特に IAEA が 2010 年に報告している Technical Report Series No.472 (TRS-472) では温帯に加えて熱帯・亜熱帯の TF が整理されていることから、このデータについてとりまとめた。さらに国内データについても、和文論文誌のサーベイを行った。なお、本検討を進めるにあたって、実測データが重要であることから、フィールド調査も行った。今年度は土壌-葉菜類について 20 セットを収集し、生長期間と移行係数の関係を明らかにするための主要元素の移行係数の比較を試みた。また、土壌-土壌溶液間分配係数 (soil-soil solution distribution coefficient, Kd)

については、二種類のヨウ素の化学形 ( $I^-$ および  $IO_3^-$ ) で求められた  $K_d$  と温度の影響について、77項目の土壌特性との相関から要因を探索した。

放射性 Cs のうち、長半減期核種である  $^{135}Cs$  ( $2.3 \times 10^6$  y) は長期環境影響評価における重要核種の一つであることから、フィールドにおける Cs の環境移行パラメータを充実させるために、東京電力福島第一原子力発電所（以下、東電福島第一原発）の事故により環境中に放出された放射性 Cs のデータに着目した。実環境中での放射性 Cs の定量測定を行うとともに、これまでに一般に公表されているデータを用いて環境安全評価モデルに用いられる環境移行パラメータへの変換とデータ蓄積を行った。具体的には、樹木等からの実効半減期と野生動物等への濃縮係数を求めた。

これらの研究結果について、以下に報告する。

## 2. 2. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査

土壌-植物間移行係数 (TF) は、廃棄物処分場から生物圏に到達した放射性核種が、土壌から経根吸収により農作物に吸収され、その農作物を人が摂取すること、もしくは、放射性核種を吸収した牧草等を給餌された家畜を介して人が摂取することを評価するために必要なパラメータである。TF はある放射性核種の植物中濃度 (Bq/kg-生または Bq/kg-乾) を土壌中の濃度 (Bq/kg-乾) で割ったものである。放射性核種ではなく、安定元素に用いられる場合には、元素濃度で導出される。実際には TF の範囲は 2-5 桁程度となることもある (TRS-472, 2010)。原因として、TF は単に土壌中の総量に対する植物中の量を示すため、化学的かつ植物生理学的なプロセスが考慮されていないことが挙げられているが、一方で、全ての放射性核種に対して植物への可給態の量を評価することも困難である。

このような不確実性を含む数値であることを考慮しつつも、環境安全評価において、まずはもっとも安全側に評価するためには最大値（土壌から最大限植物に吸収される値）を用いるという考え方があり。しかしながら、今後、廃棄物処分場の安全評価において、より現実的な評価を行うためには、もっとも確からしいパラメータ値を用いることが求められると考えられる。例えば余裕深度処分の管理期間終了以後における安全評価に関する考え方（原子力安全委員会、2010）の基本シナリオの安全評価の考え方として「発生の可能性が高く、通常起きるものと考えざるをえないようなシナリオに基づき、確からしい状態設定のもとで確からしいパラメータを用いた評価を行うものである。ここで確からしいパラメータとは十分な統計的データが存在する場合には、例えばその確率分布の中央値を意味し、確からしい設定が困難な場合には、その不確かさが評価結果に及ぼす影響を勘案し、合理的で尤もらしく、それぞれのシナリオに対して適切な範囲で保守側になるように設定することを意味する。ただし、これらの不確かさの影響は変動シナリオで詳細に評価されるので、基本シナリオにおいては過度に保守的に設定する必要はない。」と記述している。

TF に変動を与える要因としては、植物の種類や部位、生長速度、また植物が生育する場

である土壌中での核種（元素）の動き易さ（土壌特性との関係）、さらにこれら土壌-植物系に影響を与えている気温や降雨量などが挙げられる。気温や降雨量の違いは、現在の気候帯の分類にあてはめることができ、将来的な変動については、現在の気候帯から別の気候帯に変わることによってカバーする考え方がある。TF と変動要因について、これまで IAEA から出された環境移行パラメータでは土壌の土質別（有機質土壌、粘土質土壌、砂質土壌、壤土）に報告されているが、近年 IAEA から出された環境移行パラメータ集 TRS-472 では、気候帯の違いにも着目し、温帯、熱帯、亜熱帯および寒帯で分類したデータの取りまとめが行われている。本調査では、気候帯の区分に重要な気温の違いに着目した。

気温は短期的には地球の温暖化により上昇すること、一方、長期的には、周期的な寒冷化が考えられ、このような気候変動が TF に影響を及ぼすことになる。Dowdall ら（2008）は、温暖化により変化する土壌要因によって、放射性核種の TF の変化が見込まれることを指摘している。土壌—植物系の放射性核種の移行経路のうち、特に温暖化に伴って影響を受けやすい経路について Dowdall らの論文から抜粋し、図 2.2-1 に示した。これらの要因の考察において、彼らは温暖化によって人が受ける線量が大きく変化することがないようにみえるとも記述しているが、この評価は TF のとりうる範囲を考慮しているため、必ずしも確からしい値と評価されたものではない。そこで、温暖化や寒冷化というプロセスの中で現実的な評価を行うために、放射性廃棄物由来の放射性核種による人への線量がどの程度なのかを知ること、特に TF が環境安全評価に影響する可能性があるならば、気温が高い場合と低い場合における TF のデータセットとして揃えておくこと、またその変動要因を調べておくことは重要である。そこで、文献調査と実測により、気候変動と TF についてデータを収集しデータベース化することを進めることを目標とした。

## 2.2.1. 文献調査

### 2.2.1.1. 移行係数と環境要因

高レベル廃棄物処分施設からファー・フィールドと生物圏への移行経路における気候変動の影響に関わる GRS レポート(2008)では、TF に影響する要因として降水量、温度、土壌が挙げられている。TF は重要としながらも、現状における温帯の TF と上記の要因から考慮した TF 変換係数を求めてそれぞれの地域における TF として利用している。表 2.2-1 には、GRS（2008）に記載されている食品群のうち、いくつかの農作物群とそれに対する TF、および、温帯の TF に対して寒帯に用いる TF に変更する際の変換係数を記載した。温度範囲は北部寒冷帯から砂漠地帯までの広い範囲であり、現存する主要な 6 パターンの気候条件における計算が行われている。アルカリ、アルカリ土類金属、重金属等の TF に影響を与える環境プロセスについては、Ehlken と Kirchner（2002）のレビューがあり、ここに記載されている因子、すなわち、土壌—植物系に存在する競合イオンの存在量、根圏域におけるプロセス、さらには土壌中の放射性核種の移動や可給性に影響を及ぼす微生物の

影響が計算の根拠となっている。

Staudt ら(2013)は、GRS で行われたアプローチではなく、IAEA-Tecdoc-1616 (2009) に記載された寒帯、温帯、熱帯・亜熱帯の TF を用いて算出し、TF が重要であることを示している。しかしながら、IAEA-Tecdoc-1616 やそれを取りまとめた TRS-472 に記載されたデータは実測ということであっても、必ずしもデータのクオリティが揃った状態ではないことは考慮しておく必要がある。なお、GRS および Staudt らのドイツの事例では、地下水シナリオの中でも灌漑水を与える場合(井戸水シナリオ)、灌漑水を作物全体に掛けることから、表面吸収 (Interception と foliar uptake および可食部への translocation を含む) を考慮している (図 2.2-2 参照)。日本の場合、灌漑水は畑作物の際考慮されているが、水田ではイネの根元に与えることから、このような経路を考慮することも、気温や湿度の状況によっては検討する必要がある。また、地下水上昇シナリオでは、土壌が還元化することによりヨウ素が I<sup>-</sup>に還元されて易動性が高くなり植物吸収が高まること、また、さらに寒冷化した場合、Cs については、土壌 pH の低下と有機物結合態が増えることによって TF が高くなることが指摘されている。

国際的に環境移行パラメータが取りまとめられている資料は、IAEA の TRS-472 である。表 2.2-2 は、TRS-472 に記載されている熱帯、亜熱帯および温帯の TF を比較のために作物群毎にまとめたものである。熱帯で得られた幾何平均値 (GM) は、必ず、Cs の TF が温帯よりも 5 倍以上高く、葉菜類、果菜類等、根菜類および豆類では 10 倍以上の差が見られた。Robison et al. (2000)や Simon et al. (2002)が報告しているように、例えばマーシャル諸島のように珊瑚礁起源の土壌では非常に高い Cs の TF が見いだされている。珊瑚礁起源の土壌では K や Ca などの Cs と競合する元素濃度が高く、さらに粘土鉱物が少ないことから Cs の固定が進まないため、Cs がイオン状で存在する可能性が高い。また、このような土壌条件下において、気温が高いことによって植物の蒸散が促され、根からの水の吸収が多くなり、結果として高い Cs の TF が観察されたものと考えられる。このような特殊な条件のデータではあるが、高温な気候帯において、特に植物からの蒸散流により経根吸収が増えることは、元素の移行にとって重要なファクターとなりうる。

一方で、熱帯の TF が温帯に比べて必ず低くなっていた元素は Th であり、表 2.2-2 に示すように、ほとんどの作物種で 1/10 以下になっていた。温帯に比べて Th が土壌溶液に溶出しにくいのかどうかは明確ではない。熱帯の植物は温帯に比べて水を多く吸収するが、積極的に吸収・植物体中濃度がコントロールされる必須元素と異なり、非必須元素は恐らく根の水吸収とともに移行していると考えられる。Th は非必須元素であり、同族元素も非必須であることから、水吸収とともに植物に移行すると考えるのが妥当である。ここで、熱帯と温帯における Th の土壌—土壌溶液間分配係数が同様であれば、水が多く吸収される分、熱帯の植物中の Th は温帯よりも高くなる可能性があるが、本データは逆の傾向を示している。Kd については、温度帯による区分がなされていないが、特に TF に影響を及

ばす可能性がある場合には、注意すべき要因であることを示唆している。

亜熱帯のデータについては、Pu の TF が葉菜類、果菜類等、根菜類および芋類で 10 倍以上温帯の TF と異なっていた。これについては、上述の水吸収量が影響している可能性があるが、なぜ熱帯と亜熱帯の Th と Pu が反対の傾向を示すのかについては、不明な点が多く、詳細な実測データが必要である。したがって、本調査では Th および Pu のデータを詳しく検討するために、分析法の検討を行っている（後述）。

他にも、例えば重金属元素（Zn, Cd, Cu 及び Pb）のハクサイへの移行に対する気候条件の影響について、トンネル栽培を行った場合と露地で行った場合の違いについても検討されている（Moreno, et al., 2002）。対象区（露地栽培）は平均 14.1°C、一方、トンネル栽培では 24°C であり、光量はトンネル栽培の方が 1 割程度低い条件での実験である。その結果の一部を表 2.2-3 に抜粋したが、収量はトンネル栽培の方が 2 倍高くなった。Zn, Cd 及び Pb の濃度は対象区とトンネル栽培で有意差はなく、TF という観点からは Zn, Cd および Pb は気温に影響を受けていない。ただし、収量が増えた分、総量という意味では土壤から多く吸収されたことになる。なお、Cu についてはトンネル栽培の方が濃度は高かったことから、温度に影響を受ける可能性が示唆された。

#### 2.2.1.2. 我が国の土壤-植物間移行係数（TF）に関する調査について

文献調査として、分析化学、日本食品化学学会誌、日本土壤肥料科学雑誌の 3 誌について、オンラインで入手可能な資料から、気温、無機元素、定量、作物等をキーワードとし、タイトルおよびアブストラクトから論文を選別した。しかしながら、これらの文献検索からは、気温と TF に関わる直接的な研究は我が国では行われていないことがわかった。ただし、農産物について、産地判別のための手段として種々の元素濃度を測定することでその指標とする試みは行われており、違う地域で同一作物の濃度データが収集されている。この場合注意しなければいけないのは、多くの場合で土壤中濃度が示されていない点である。例えば、ある元素について土壤中の濃度と植物中濃度が比例関係にあるとき、明らかに土壤中濃度が高い地域では、植物中の濃度も高くなり、したがって、他の地域と濃度を比較した場合には産地を判別できるが、TF という観点からは変動がない、ということもあり得る。したがって、植物中濃度データについては、今後のためにデータを分類し蓄積することにとどめることにした。

現在のところ国内で利用可能なデータは「放射性核種生物圏移行評価高度化調査」で採取された全国の農耕地 142 地点 60 元素近くの TF（放射線医学総合研究所、2013a）、Komamura らが 1959～2000 年まで全国 17 地点から採取した玄米へのグローバル・フォーラムアウト  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の TF（2005）、さらには Tsukada と Nakamura（1998）が青森県内で 150 地点から収集した TF である。放医研のデータについては全国の平均的な値を求めるためのデータベースであり、気候帯別ではデータ数がそれほど多くないことから、

今後のデータ採取と蓄積が必要である。Komamura らのデータは多くのデータ数を確保できているが、玄米、白米、小麦データだけである。Tsukada と Nakamura のデータは青森県内に偏っていることから、寒冷地のデータとして利用可能であるが、個別データが報告されていない。

Komamura ら(2005)は、1959 年から放射能調査の一環として北海道から福岡までの農耕地において土壌と米及び小麦をサンプリングし、移行データをとりまとめている。本調査では特に玄米に着目してデータ整理を行った。報告されているサンプリング地点のうち、年平均気温の低い3地点（北海道，秋田，岩手：1971年から2000年までの平均気温として、8.5-11.4°C）と高い3地点（東京，大坂，福岡：1971年から2000年までの平均気温として、15.9-16.6°C）について比較を行った。用いたデータは1980年から2000年である。1986年については、チェルノブイリ原発事故の影響も懸念されたが、全国14地点の玄米および土壌中濃度の年毎の幾何平均値からは、1986年における濃度の変化が顕著ではなかった（図 2.2-3-2.2-4）。出穂期の Cs 降下量が米の濃度に影響を及ぼすことが知られているが（Ichikawa et al., 1962, Uchida and Ohmomo, 1999），チェルノブイリ原発事故時のイネは幼苗であり，急激な成長はフォールアウトがほとんど無くなってからであったため，TF には影響していなかったと考えられる。図 2.2-5 には植物中濃度と土壌中濃度比を示した（穂への直接沈着経路もあるため，ここでは TF を用いない）。1980年以降は横ばい傾向が続いていることがわかる。

地域毎に TF をまとめた結果を図 2.2-6 に示す。 $^{90}\text{Sr}$  の TF については，気温が低い地域で得られたデータ数  $n=64$ ， $\text{GM}=1.68 \times 10^{-2}$ （範囲： $(0.37-8.05) \times 10^{-2}$ ），気温が高い地域で得られたデータ数  $n=49$ ， $\text{GM}=3.19 \times 10^{-2}$ （範囲： $(0.56-11.5) \times 10^{-2}$ ）であり， $p<0.01$  で気温の高い地域の TF の方が高かったが，その差は2倍程度である。Sr の穀類 TF について，TRS-472 では，熱帯では温帯に比べて5倍程度高い値であり（それぞれ  $\text{GM}=6.0 \times 10^{-1}$  と  $\text{GM}=1.1 \times 10^{-1}$ ），傾向としては類似しているが，一方で，亜熱帯のデータ（ $\text{GM}=5.1 \times 10^{-2}$ ）については，むしろ温帯よりも低いデータとなっている。TRS-472 のデータにおいて，熱帯と亜熱帯で逆の傾向にあることについては触れられていないが，まだデータ数が少ないことに注意しなければならない。したがって，より多くのデータを用いた解析が必要であろう。

一方， $^{137}\text{Cs}$  の TF については，気温が低い地域で得られたデータ数  $n=80$ ， $\text{GM}=1.02 \times 10^{-2}$ （範囲： $(0.11-3.84) \times 10^{-2}$ ），気温が高い地域で得られたデータ数  $n=58$ ， $\text{GM}=3.66 \times 10^{-3}$ （範囲： $(0.39-50.3) \times 10^{-3}$ ）であり， $p<0.01$  で気温の低い地域の TF の方が3倍程高かった。TRS-472 では，熱帯で Cs の穀類 TF（ $\text{GM}=2.3 \times 10^{-1}$ ）の方が温帯（ $\text{GM}=2.9 \times 10^{-2}$ ）よりも高い。ただし，温帯と亜熱帯（ $\text{GM}=3.1 \times 10^{-3}$ ）での比較では，亜熱帯よりも気温の低い温帯の TF の方が高い結果であること，また，GRS（2008）でも寒冷帯の方が Cs の TF が高くなると想定しており，本調査の結果と同じであったが，米だけではなく他の農作物につ

いても同様のことが言えるのか情報の追加が必要である。

その他のデータとして、上述した産地判定のために、長野と鳥取で採取された同じ品種のナシの 11 元素の濃度について比較を行った。井上ら (2007) は、ナシの果肉そのもののデータではないが、果梗 (枝から果実へ養分を送る器官) と種子について元素分析を行い、さらに土壤中濃度も報告している。ここでは果梗と種子について仮に TF として導出し、長野と鳥取のデータを比較した。なお、長野は年平均気温 11.7°C であり鳥取は 14.6°C と 3°C ほどの違いがある。結果を図 2.2-7 に示した。ほとんどの元素で TF が一致していることがわかる。5 倍程度の差が見られたものは、果梗で Cu, 種子で Cu および B であった。やや気温の高い鳥取の方が Cu の TF が高い傾向にある。同様の結果が Moreno et al. (2002) のトンネル栽培の結果からも得られており、Cu については、気温が高い方が TF は高くなる可能性が示唆された。

### 2.2.1.3 気温と文献調査の結果のまとめ

文献調査により、元素によって、気温が変動することで TF が変動することがわかった。特に重要核種である Cs については、気温が低い地域の方が TF は上昇することが国際的なデータからは示唆されており、国内データでも、玄米の結果ではあるが、寒冷地の Cs の TF が温暖な地域に比べて 3 倍程度にまで上昇することがわかった。一方、温暖化することにより植物の蒸散量が増え、土壌水と一緒に経根吸収される元素については結果として濃度が増えると予測される。Cu や Sr では濃度が上昇する結果を得たが、他の元素では明確な差は得られていない。

元素毎の影響の程度についても今後検討する必要がある。さらに比較する際には、データの質がある程度揃っていることが重要なことから、今後さらに文献調査を行う上で、データの信頼性についても十分検討し、より確からしい値を蓄積することが必要である。また、実環境におけるデータも採取しながら、放射性核種の移行と気温の関係およびその要因について検討する必要がある。

## 2.2.2. 土壌-農作物移行データの取得

### 2.2.2.1. 採取場所の選択

土壌-農作物の採取については、葉菜類に着目した。また、サンプリング期間は 12 月から 1 月の冬期である。これまで放射性核種生物圏移行評価高度化調査においてデータベース化した試料の採取は、全国規模であり、かつ夏から秋にかけての暖かい時期にサンプリングを行っている。この期間においては降水量も多く、また高温・高日射量であるため、植物の生長が早い。一方、冬期においては、気温が下がり、日射量も減ることから、植物の生長が遅く、したがって栽培期間は夏～秋期よりも長くなる。したがって、気温の影響が見られる可能性がある。なお、葉菜類は降雪がある地域では冬期に栽培されないため、

比較的温暖な気候である、高知、熊本、宮崎、鹿児島および沖縄の5県を対象に20試料を収集した。

高知県：ネギ、ハクサイ、キャベツ、タカナ

熊本県：キャベツ、ハクサイ、ハウレンソウ、レタス

宮崎県：キャベツ、ネギ、ハクサイ、ハウレンソウ

鹿児島県：キャベツ、ネギ、ハクサイ、ハウレンソウ

沖縄県：キャベツ、チンゲンサイ、ネギ、ハウレンソウ

土壌は作物の根が広がる表層の作土層のみを作物の採取時期に合わせて採取した。サンプリングはシャベル、スコップ等を用いて作土層から分析用として生土を一試料あたり総量約5kg(5地点から約1kgずつ採取し混合)を採取し、ポリエチレン袋に封入した。その他に同一スポットから土壌密度測定用に生土を100mL容コアースAMPLERで採取した。農作物の採取は同一耕作地で平均的に生育している作物の可食部を対象として行った。サンプリングは作物の収穫時期に合わせて、総量約15kg(生重量)を採取した。採取した土壌および農作物試料は、直ちに実験室に送付し、以下に示す前処理を行った後、土壌の物理化学的特性の測定、土壌および農作物の元素分析に供した。サンプル発送時と到着時の状態を表2.2-4に示す。試料の採取地点と採取日は表2.2-5、土壌の種類と仮比重および送付時水分含量については表2.2-6、作物の種類、廃棄率および水分含量は表2.2-7に示す。

#### 2.2.2.2. 土壌試料の前処理方法

土壌試料については、土壌は均一化したのち、生土を100g分取し、5℃の低温保管庫に保存した(土壌微生物の試験等に利用するため)。残りについて石や根などの大きな固形物を除去し、指で潰せる土塊については破碎し、良く混合した。この時に生重量を測定している。さらに室温にて風乾し、目視により十分風乾されたと判断したのち、重量を再度測定して、生土に含まれていた水分含量を求めた。風乾土壌は孔径2mmの標準ふるいを通させたものを風乾細土試料とし、室温で保管した。この試料から50g程度を分取し、ボールミルでさらに粉碎して微量元素測定用試料とした。

#### 2.2.2.3. 農作物試料の前処理方法

農作物試料(約14kg/サンプル)は質量測定(生重)を行い、さらに可食部・非可食部に分離したうえで各部の質量測定(生重)を行い、廃棄率を測定した。ネギの2検体(宮崎ネギと鹿児島ネギ)については、白ネギ部分と青ネギ部分に分け、計4検体とした。

上記のように前処理を行った可食部については、ホコリ等を落とすために軽く水洗いし、最後に純水ですすぎ、水切りした。ハウレンソウは根のみ切除(茎の根元の赤い部分は残

した), ネギは根を切除, 白ネギは表面の皮 1 枚を除き, キャベツの芯部分は非可食部とした。上記の処理を行った試料 (可食部) は, セラミック製の包丁で小片 (0.5cm~数 cm 大程度) に細断して, よく混合した。

上記の処理を行った試料の質量約 1 kg をとり, 真空凍結乾燥した。真空凍結乾燥した試料は, セラミックミルを用いて粗く粉碎後, メノウ乳鉢を用いて均一にし, 一部(約 10 g) を分取して安定元素分析に供した。残りの凍結乾燥試料は 600 mL 容量のポリプロピレン製容器に入れて保管した。

凍結乾燥用試料を採取した後の残り試料 (可食部) は清浄なポリプロピレン製カゴに入れ, 80°C の送風乾燥器または定温乾燥器中に数日間置き, 恒量 (偏差 1g 程度以下) を確認した後, ビニール袋に入れて保管した。

試料名称は以下の通りとした。下表で xx は通し番号とする。

試料と前処理	土壌, 風乾, <2 mm	野菜可食部, 80°C 乾燥	野菜可食部, 凍結乾燥
略号の意味	Ene_Field_2_Soil Dried	Ene_Field_2_Crop Dried	Ene_Field_2_Crop Freeze-dried
略号	EFII-SD-xx,	EFII-CD-xx,	EFII-CF-xx

#### 2.2.2.4. 土壌の物理化学的特性

##### (1) 風乾時含水率

風乾が完了した試料の適量を秤量瓶に秤取し, 105°C の送風乾燥器中で一晚 (~16 時間程度) 乾燥した。乾燥前後の質量変化を計測し, 含水率を求めた。

##### (2) pH(H<sub>2</sub>O)

土壌養分分析法 (土壌養分測定法委員会編, p.29-32) 及び土壌環境分析法 (日本土壌肥料学会編, p. 195-197) に従って実施した。

試料 20 g に純水 50 mL を加えて攪拌したのち, 約 1 時間静置した。測定前に軽くかき混ぜて懸濁状態とし, pH 電極を静かに液中に浸し, 30 秒以上経過して pH 表示が安定した値を読み取った。試料 20 g に純水 50 mL を加えて攪拌したのち, 約 1 時間静置した。測定前に軽くかき混ぜて懸濁状態とし, pH 電極を静かに液中に浸し, 30 秒以上経過して pH 表示が安定した値を読み取った。

pH メータ: 東亜電波製 HM-40V (電極: 東亜電波製 GST-5421C)

### (3) 塩基置換容量 (セミマイクロ Schollenberger 法)

土壌養分分析法 (p. 208-211) 及び 土壌環境分析法 (p. 33-38) に記載されているセミマイクロ Schollenberger 法に従って以下のように行った。

土壌浸出装置は、上部から洗浄液容器 (100 mL, コック付き), 浸透管 (長さ 12cm, 内径 13.6 mm), 受器 (200 mL 容) から成る。

<置換操作> 洗浄液容器に 1M 酢酸アンモニウム液 (pH 7) を 100 mL 加え, 浸透管の底部に脱脂綿およびセルロースパウダーでろ過層を作成し, 浸透管底部を密栓したのち管の 2/3 程度まで 1M 酢酸アンモニウム液を満たした。次に浸透管に 2 mm 篩を通過した土壌を少量ずつ落下沈降により充填し, その厚さが 7-8 cm 程度になるよう調整した。浸透管底部の栓を外して浸透管を受器に連結し, 洗浄液容器から 1M 酢酸アンモニウム液を 4~20 時間かけて滴下することで陽イオン交換サイトをアンモニウムイオンで置換した。受器に貯まった溶液は定容し, 置換性 Ca および K の検液とした (A 液)。

<洗浄操作> 少量のエタノール (80%, pH 7) で浸透管上部内壁を洗い流し, 洗浄液容器にエタノール (80%, pH 7) を 50 mL 入れ, 浸透管を接続して滴下することにより分析試料の間隙に残存する余剰の酢酸アンモニウムを除去した。

<浸出操作> 洗浄液容器に 10% 塩化ナトリウム溶液を 100 mL 加え, 4~20 時間かけて滴下することで, 土壌中のアンモニウムイオンをナトリウムイオンで置換・浸出した。この溶液を純水でメスアップし 200 mL に定容した (B 液)。

得られた B 液を蒸留後, イオンクロマトグラフィーでアンモニウムイオンを定量し, アンモニウムイオン当量を供試試料質量で除して, 塩基置換容量 (CEC) を求めた。

イオンクロマトグラフ : Dionex 製 DX-320

カラム : IonPac CG12A  $\phi$ 4mm x 50mm, IonPac CS12A  $\phi$ 4mm x 250mm

溶離液 : 20 mM メタンサルホン酸

流速 : 1.0 mL/min.

注入量 : 25  $\mu$ L

検出器 : 電気伝導度検出器

### (4) Al, Fe, Ca, K 総量

粉碎試料 0.5 g をフッ素樹脂製容器に秤取し, 硝酸, 過塩素酸, ふっ化水素酸を添加後, 酸循環分解装置を用いて加熱分解を行った。これを希王水で加温溶解して 50 mL に定容し, 得られた溶液について, ICP 発光分光分析法により Al, Fe, Ca を定量し, K についてはフレ

ーム原子吸光法により定量し、それぞれ総量を求めた。

ICP 発光分光分析装置 Perkin Elmer 製 OPTIMA 4300DV

RF 出力：1.4 kW

補助ガス流量：0.5 L/min

プラズマガス流量：15 L/min

キャリアガス流量：0.8 L/min

測定波長： Al:396.153nm

Fe:238.204nm

Ca:317.933nm

原子吸光光度計 島津製作所製 AA-6200

アセチレン流量：2.3 L/min

エア流量：7.5 L/min

バーナ：標準 10cm

光源:ホロカソードランプ (K 単独)

スリット幅: 0.7 nm

測定波長： K:766.5nm

#### (5) 置換性 Ca 及び K

(3) の塩基置換容量 (CEC) の項の浸出液 (A 液) について、ICP 発光分光分析法により Ca を定量して置換性 Ca 量を、フレイム原子吸光法により K を定量して置換性 K 量を求めた。測定条件は (4) と同じである。

#### (6) 活性 Al, Fe (酸性シュウ酸塩溶解法)

試料 1.0 g を 250 mL プラスチック製容器に秤取し、pH 3.0 シュウ酸アンモニウム + シュウ酸 (1:0.75) 溶液を 100 mL 添加し、4 hr 振とうした。得られた溶液を 25mL 分取して遠心分離 (3000 rpm, 10 min) を行い、上澄み液を試料溶液とした。

得られた溶液について、ICP 発光分光分析法により Al, Fe を定量し、活性 Al および Fe 量を求めた。測定条件は (4) と同じである。

#### 2.2.2.5. 土壌中の安定元素の分析

土壌の安定元素分析法と測定条件などを以下に記す。

##### (1) ケイ素 (Si)

試料 0.5 g を白金皿に秤取し、炭酸ナトリウム (少量のほう酸を併用) を加えて加熱融

解した。これを塩酸（1+1）で加温溶解し、粉末ろ紙とポリエチレンオキサイド溶液を添加して攪拌した。放冷後、ろ紙（No.5）で沈殿をろ別し、塩酸（1+50）と水で洗浄した。ろ液は 250 mL に定容し、ICP 発光分光分析法により Si を定量した。

ろ紙および沈殿は、白金るつぼに移して硫酸(1+1)を滴加し、加熱炭化の後、1000℃の電気炉で灰化をした。化学天秤による質量計測ののち、フッ化水素酸処理・電気炉加熱、再び化学天秤による質量計測操作を順次行い、前後の質量減少分を SiO<sub>2</sub>とした。これらの結果から試料中の Si 含有量を求めた。

ICP 発光分光分析装置 エスアイアイ・ナテクノロジー製 SPS3000

RF 出力：1.2 kW

補助ガス流量：0.4 L/min

プラズマガス流量：16 L/min

キャリアガス流量：0.4 L/min

測定波長 Si: 251.611 nm

#### （2）ホウ素（B）

試料 0.1 g を白金製るつぼに秤取し、炭酸ナトリウム 1g を加えて加熱融解した。これを純水に溶解し、さらに希硝酸を加えた後、50 mL に定容した。

得られた溶液について、ICP 発光分光分析法（SPS3000、波長 182.641 nm）により B を定量し、試料中の含有量を求めた。

#### （3）水銀（湿式分解法）（Hg）

試料 2 g をケルダールフラスコに秤取し、硝酸(1+1)と塩化ナトリウムを加えて加熱した。放冷後、残渣をろ別し分解液を得た。この分解液を三角フラスコに分取し、硫酸・過マンガン酸カリウム溶液・ペルオキシ二硫酸アンモニウム溶液を添加後、ホットプレート上で加熱処理を行った。

放冷後、ヒドロキシルアミン溶液を添加し、還元気化—原子吸光法で Hg を定量し、試料中の含有量を求めた。

原子吸光分析装置 日本インスツルメンツ製 RA-3

#### （4）Cr, P, Co, Ni, Cu, Zn 総量

試料 0.05 g をフッ素樹脂製容器に秤取し、硝酸、フッ化水素酸、過酸化水素水を加え、マイクロ波を照射して分解した。これに硫酸を加えて加熱濃縮後、さらに硝酸および過酸化水素水を加え、マイクロ波を照射して分解したのち、20 mL に定容した。

得られた溶液について、ICP 発光分光分析法により Cr, P, Co, Ni, Cu, Zn を定量し、試料中の含有量を求めた。

マイクロ波酸分解装置 マルストーンゼネラル製 ETHOS One

ICP 発光分光分析装置 (SPS3000, 条件同上)

測定波長 Cr : 267.716 nm

P : 177.496 nm

Co : 228.616 nm

Ni : 221.647 nm

Cu : 327.396 nm

Zn : 213.856 nm

#### (5) 土壌測定用の認証標準物質

安定元素分析の1バッチごとに、土壌認証標準物質（無機成分分析用土壌認証標準物質 JSAC 0402（褐色森林土）、日本分析化学会、Lot No. 1-264）を分析し、確からしさを確認した。

#### 2.2.2.6. 農作物中の安定元素の分析

農作物可食部中の安定元素分析法と測定条件などを以下に記す。

##### (1) ケイ素 (Si)

試料 1 g を白金製るつぼに秤取し、バーナーおよび電気炉にて加熱灰化した。灰化物に硝酸を加え、再びバーナーおよび電気炉にて加熱灰化した。これに炭酸ナトリウム 0.7g および、ほう酸 0.3g を加えて融解した後、希硝酸で溶解して 50 mL に定容した。得られた溶液について、ICP 発光分光分析法により Si を定量し、試料中の含有量を求めた。

ICP 発光分光分析装置 エスアイアイ・ナテクノロジー製 SPS4000

RF 出力 : 1.3 kW

補助ガス流量 : 0.5 L/min

プラズマガス流量 : 16 L/min

キャリアガス流量 : 1.0 L/min

測定波長 Si : 251.611 nm

##### (2) P, Fe, Ni, Cu, Zn, Cd 総量

試料 0.5 g をフッ素樹脂製ビーカーに秤取し、硝酸、過塩素酸、ふっ化水素酸で加熱分解した。これを加熱濃縮し、希硝酸で加温溶解して、50 mL に定容した。

得られた溶液について、ICP 発光分光分析法により P, Fe, Cu, Zn を、ICP 質量分析法により Ni, Cd を定量し、試料中の含有量を求めた。

ICP 発光分光分析装置 (SPS4000, 条件同上)

測定波長 P : 177.496 nm

Fe : 259.940 nm

Cu : 327.396 nm

Zn : 202.548 nm

ICP 質量分析装置 PerkinElmer 製 ELAN DRC

RF 出力 : 1.5 kW

補助ガス流量 : 1.2 L/min

プラズマガス流量 : 17 L/min

キャリアガス流量 : 1.0 L/min

測定質量数 Ni : 62

Cd : 111

### (3) 農作物試料測定用の認証標準物質

1 バッチごとに NIST から頒布されている認証標準物質 (Tomato leaves, SRM-1573a) を同時に測定してデータの妥当性を確認した。

#### 2.2.2.7. その他の元素の定量

##### (1) 土壌試料

粉砕試料を約 100 mg 秤量し、テフロン製分解容器に入れて、 $\text{HNO}_3$  を 7 mL, HF を 7 mL 加えた (多摩化学工業, 分析用超高純度試薬 AA-100)。分解容器をマイクロウェーブ分解装置 (CEM 社製, MARS5) 約 10 分の加熱を 3 回繰り返した。放冷後、 $\text{HClO}_4$  を 1 mL 加え、ホットプレート上で加熱し乾固させた。試料に 1 mL の  $\text{HNO}_3$  と 0.5 mL の  $\text{H}_2\text{O}_2$  を添加して残さを溶かした後、再度乾固した。再乾固した試料に 40%  $\text{HNO}_3$  を 2.5 mL 加え 50 mL ポリプロピレン製容器に移し、超純水 (ミリポア製, Milli-Q,  $>18\text{M}\Omega$ ) を用いて全量を 50 mL とした。この試料母液の硝酸濃度は 2% であり、元素濃度は、もとの土壌試料中の濃度の 1/500 である。分析操作の確認のために標準試料として旧地質調査所が提供していた岩石標準試料である JB-1a または JB-3 を用いて同様の操作を行った。

##### (2) 農作物試料

80°C で 3 時間乾燥させ、放冷後約 500 mg 秤量し、テフロン製分解容器に入れて、 $\text{HNO}_3$

3を10mL, HFを4 mL加えた。80°Cにおいて10時間加熱して有機物分解後, 分解容器をマイクロウェーブにセットし, 約10分間加熱した。放冷後, 装置から取り出した試料はそのままホットプレート上で加熱・乾固した。試料に1 mLのHNO<sub>3</sub>と0.5 mLのH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>を添加して残さを溶かした後, 再度乾固し, 最終的に40% HNO<sub>3</sub>を1 mL加え20 mLポリエチレン製容器に移し, 超純水を添加して全量20 mLとした。この試料母液のHNO<sub>3</sub>濃度は2%, 元素濃度は, もとの農作物試料濃度の約1/40である。また, 標準試料として中国の標準化国立研究センターが作成した灌木試料(GBW-07603)またはNISTが作成したトマトの葉の認証標準物質(Tomato leaves, SRM-1573a)を使用した。

ICP発光分光分析装置の分析条件は以下の通りである。

土壌試料と農作物試料ではそれぞれ含まれている元素濃度が異なるために, 希釈倍率及び, 測定条件をそれぞれの試料に合わせて設定している。以下にそれぞれの分析の概要を示す。

ICP発光分光分析装置(ICP-OES): Vista-PRO (Seiko Instruments)

軸方向観察(アキシヤル型), CCD検出器

RF Power: 1.2 kw

プラズマガス: 15 L/min

補助ガス: 1.5 L/min

ネブライザーガス: 0.7 L/min

1回測定時間: 3秒

繰り返し回数: 5回

コンセントリックネブライザー, サイクロンチャンバー

#### 2.2.2.8. 分析結果および考察

分析結果した結果, 表2.2-8に土壌特性として, 含水率, pH, CEC, 置換性Ca, 置換性K, 活性Al, 活性Feを, またCa, K, AlおよびFe総量を示した。表2.2-9には, 土壌中の元素濃度総量の結果を, B, Na, Mg, P, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Hg, Si, V, Ti, Baについて示す。得られた元素濃度は20元素である。植物中元素濃度についても, 20元素の濃度を表2.2-10に示した(Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Rb, Sr, Cd, Cs及びBa)。これらの濃度データについて, 幾何平均値を導出し, これまで採取した土壌および葉菜類データとそれぞれ比較した結果を表2.2-11に示した。土壌についてはほとんど差がなく, 農作物については, Si, Co, Ni, CdおよびCsについて2倍以上の差があった。差が生じた原因については, 来年度以降に元素数を増やして分析を行い, 元素の種類によってどのような差が生じたのか検討する必要がある。

葉菜類のTFについては, Al, P, K, Ca, Cr, Fe, Co, Ni, CuおよびZnについて, すでにデー

データベース化されている値と今回取得した値を t 検定により比較した結果を表 2.2-12 に記載した。その結果、ほとんどの元素で有意差が認められなかったものの、Ni は有意差がある結果となった。上述したように、土壌濃度にはほとんど差がないことから、栽培する季節や種類の影響があるかもしれない。詳細については、より多くの元素濃度を測定し、TF を比較しなければならない。

## 2. 3. 環境移行パラメータ変動要因の解析

環境安全評価モデルに用いられる環境移行パラメータには、長期的な気候変動において、地下水位や河川流量など、放射性核種が処分施設から地表に到達した後に物理的に影響を与えるパラメータと、土壌の反応性（例えば土壌—土壌溶液間分配係数, Kd）や農作物への移行係数（TF）等、生物的化学的な要素を含むパラメータが含まれている。ここでは、生物的化学的な環境移行パラメータの中で、温度変動により影響が認められたものについて、温度以外の項目との相関の有無を検討する。温度が変化することにより、環境移行パラメータと相関が生じたり、一方、相関がなくなる項目は、気候変動により環境移行パラメータに影響を与える因子と考えられるためである。本調査ではヨウ素 Kd データセットを用いて解析を行った。

### 2.3.1. ヨウ素の Kd データについて

長半減期核種である放射性ヨウ素-129 ( $^{129}\text{I}$ ,  $T_{1/2}=1.57 \times 10^7$  y) は、熱中性子による  $^{235}\text{U}$  や  $^{239}\text{Pu}$  の核分裂収率がそれぞれ 0.543% および 1.37% であり、 $^{135}\text{Cs}$  ( $2.3 \times 10^6$  y) の 5.5-7% に比べて低い。処分場を構成する人工バリア材や母岩への収着率が低いことから、放射性廃棄物の被ばく線量評価において線量支配核種とされている。放射性核種生物圏移行評価高度化調査（平成 19 年度から 24 年度）において、 $^{129}\text{I}$  の土壌収着能を測定するために、 $^{125}\text{I}$  ( $T_{1/2}=59.4$  d) を用いて、農耕地土壌（水田土壌 63 試料、畑土壌 79 試料）に対し、固液比 1:10 で土壌—土壌溶液間分配係数（Kd）を求めている。その際、評価した化学形は、一般に想定されている  $\text{I}^-$  と  $\text{IO}_3^-$  である。どちらの化学形でも、土壌溶液に添加し、 $23^\circ\text{C}$  において 7 日間培養する間に、添加したヨウ素の一部がガス化したこと、また、7 日間の培養では平衡に達しない結果を得た。一方、温度のみを低くして ( $4^\circ\text{C}$ ) 同様の手法で Kd 値を求めた場合、7 日後で十分に平衡に達し、また、Kd 値は  $23^\circ\text{C}$  に比べて低い結果が得られた。すなわち、温度により影響が出たことを示している（放射線医学総合研究所, 2013a）。

ヨウ素の分配係数 Kd ( $4^\circ\text{C}$  と  $23^\circ\text{C}$ ) について、 $\text{I}^-$  と  $\text{IO}_3^-$  のそれぞれの間の相関を表 2.3-1 に示す（Kd 値は対数変換した値）。なお、 $4^\circ\text{C}$  において  $\text{I}^-$  の化学形で取得した Kd を  $\text{Kd\_I\_}4^\circ\text{C}$  と表記し、以下、同様の方法で、 $\text{Kd\_I\_}23^\circ\text{C}$ 、 $\text{Kd\_IO}_3^-_4^\circ\text{C}$  および  $\text{Kd\_IO}_3^-_23^\circ\text{C}$  と示す。 $\text{Kd\_I\_}4^\circ\text{C}$  と  $\text{Kd\_I\_}23^\circ\text{C}$ 、 $\text{Kd\_IO}_3^-_4^\circ\text{C}$  と  $\text{Kd\_IO}_3^-_23^\circ\text{C}$  のプロットを図 2.3-1 に示す。全土壌試料を対象とした場合、 $\text{I}^-$  の  $4^\circ\text{C}$  と  $23^\circ\text{C}$  の間の相関係数 R は Student の t-検定により

0.817 ( $p < 0.001$ ) であり、また、ほとんど全ての土壌で、温度が高くなると  $K_d$  が高くなる結果を得た。一方、 $\text{IO}_3^-$  では、0.770 ( $p < 0.001$ ) であった。これらの結果から、化学形が同じであれば、 $4^\circ\text{C}$  と  $23^\circ\text{C}$  では高い相関が得られたが、 $\text{IO}_3^-$  では温度上昇に対し、 $K_d$  値が高くなる傾向があるものの、 $\Gamma$  ほど明確な温度影響は見られなかった。なお、 $4^\circ\text{C}$  の  $K_d$  間では、化学形が異なると  $R=0.17$  ( $p=0.045$ ) で相関はほとんど得られなくなったが、 $23^\circ\text{C}$  の  $K_d$  間では、 $R=0.649$  ( $p < 0.001$ ) となり、比較的高い相関が得られた。また、畑土壌および水田土壌に分けて解析した結果も表 2.3-1 に示した。この結果は、異なる化学形でも、温度が高くなると相関が認められることを意味する。これは、Ishikawa ら (2012) が示したように、微生物活性等が高まることに由来する可能性がある。しかし、微生物活性は直接的・間接的に  $K_d$  に影響していると考えられるが、ヨウ素  $K_d$  について直接的および間接的影響を区別せずに微生物活性を指標とすることは適切ではない。そこで本研究では、土壌特性との相関について検討することにより、温度による  $K_d$  値の違いが生じた要因を明らかにできるかどうかを調査した。

ヨウ素の  $K_d$  値について、用いた土壌を対象に測定した 77 項目、すなわち、Sand%, Silt%, Clay%, 含水率、土壌溶液の電気伝導度 (EC), pH, 陽イオン交換容量 (CEC), 交換性 Ca (ex. Ca), 交換性 K (ex. K), 活性 Al (act. Al), 活性 Fe (act. Fe), 元素濃度 (C, N, Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, As, Se, Br, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Cd, Sn, Sb, I, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, W, Hg, Tl, Pb, Th, U), および土壌溶液中イオン濃度 ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{++}$ ,  $\text{Ca}^{++}$ ,  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PO}_4^-$ ,  $\text{SO}_4^{--}$ ) との相関係数を求めた。

### 2.3.2. 独立変数とヨウ素 $K_d$ の相関

ヨウ素  $K_d$  の正規性を確認したところ、全て対数正規分布で適合した (Shapiro-Wilk の  $W$  検定)。また、上述した 77 項目については、平成 19 年度から平成 24 年度に行った環境移行パラメータ推定法の検討において、ほとんどの項目は対数正規分布が適合する結果を得たことから、すでに対数表記になっている pH を除き、対数変換値を用いることとした。4 種類のヨウ素  $K_d$  について、全土壌、畑土壌、水田土壌の 3 種類の土地利用に分類した場合と、各独立変数項目の単相関係数 (順位相関) と  $p$  値を算出した結果、どの  $K_d$  値とも相関が得られなかった項目を表 2.3-2 に示す。土壌溶液中の陰イオンとは、 $\text{F}^-$  を除き、ヨウ素と同族元素である  $\text{Cl}^-$  も相関がなかったことがわかった。 $\text{Cl}^-$  は土壌中において可溶性および移動性が高いことが知られており、したがって、ヨウ素とは異なる挙動を示したものと考えられる。その他、一部の重金属類や希土類元素とは相関が得られなかった。

相関が得られた項目については、土地利用別に相関係数と  $p$  値を示す (表 2.3-3-2.3-5)。もっとも高い相関係数 (0.696) が得られたのは、畑土壌の  $K_d_{\text{IO}_3^-}$   $4^\circ\text{C}$  と act. Al の組み合わせであり、ヨウ素  $K_d$  では 0.8 を超える高い相関が得られる組み合わせはなかった。全土

壤では、 $Kd_{IO_3^-}_{4^\circ C}$  と  $F^-$  ( $R=0.635$ )、水田土壌では、 $Kd_{IO_3^-}_{4^\circ C}$  と  $pH$  ( $R=0.642$ ) がそれぞれの土地利用形態で最も高い値であった。化学形別では、 $I^-$  よりも  $IO_3^-$  の方が独立変数の項目との相関が多く得られた。全土壌では、 $EC$ ,  $ex.Ca$ ,  $ex.K$ ,  $Mn$ ,  $I$ ,  $W$ ,  $K^+$ ,  $Mg^{++}$  で  $I^-$  の方が  $IO_3^-$  よりも高い傾向があったが、相関係数は高くはなかった。畑土壌では、 $I^-$  の方が  $IO_3^-$  よりも高い項目はなく、水田では  $Rb$  や  $Ba$  等で  $I^-$  の方がやや高いが、全土壌と一致する項目はなかった。

$Kd$  と温度差の影響の有無については、 $4^\circ C$  または  $23^\circ C$  が  $p<0.01$  かつ  $R>0.5$  であるが一方は  $p>0.01$  の場合、もしくは、 $4^\circ C$  および  $23^\circ C$  とも  $p<0.01$  において相関係数に 0.2 の開きがある時に温度差があると判定することとした。結果は表 2.3-3-2.3-5 に示したが、全土壌では  $Mo$  ( $IO_3^-$  に対して)、畑土壌では  $Mo$  と  $I$  ( $IO_3^-$  に対して)、および水田土壌では  $Rb$  と  $Ba$  ( $I^-$  と  $IO_3^-$  に対して) で温度により違う相関が得られた。畑土壌では酸化還元に関連がある元素が選択された。 $Kd_{IO_3^-}_{4^\circ C}$  との相関が  $Kd_{IO_3^-}_{23^\circ C}$  よりも高かったことから、単に酸化還元のような化学反応が影響している可能性がある。

一方、水田土壌で  $Rb$  や  $Ba$  が選択された。理由は不明であるが、興味深いことに、 $I^-$  と  $IO_3^-$  のどちらでも、 $23^\circ C$  において  $4^\circ C$  よりも相関が高くなった (図 2.3-2)。 $K$  や  $Ca$  といった必須元素の関連元素ではあるが、温度が高くなることにより土壌微生物活性が高まり、相対的に  $K$  と  $Ca$  が不足し、代替物として  $Rb$  と  $Ba$  が使用されたのであれば、同様の傾向が畑土壌でも見られて良いはずであるが、確認できなかった。

しかし、温度が高くなることにより、 $Kd$  値が  $I^-$  と  $IO_3^-$  で良い相関が得られることから、温度が高い実験条件下では、化学形が添加時とは異なり、土壌によって徐々に化学形別割合が似てくることが要因になっているかもしれない。Yuita (1992) は 2 種類の土壌について土壌溶液中のヨウ素の化学形分析を行い、畑水分条件下において  $IO_3^-$  が最も多く (83% と 88%, 平均 86%), 一方、湛水条件下においては  $I^-$  が平均 87% (84% と 90%) を占めていることを示した。なお、実験条件は  $30^\circ C$  で 2 週間の培養期間とのことであり、本研究の  $23^\circ C$  の方に近い条件である。一般に、土壌  $Kd$  を求める実験は湛水条件で行われるが、必ずしも還元化が進む訳ではない。しかし、Yuita の結果から、土壌種が違っても、同じような化学形になったことは、すなわち、 $I^-$  や  $IO_3^-$  で添加されても、同じ土壌を同じ条件下に置くことで、最終的には同じような化学形の割合になることが示唆され、そうであれば、本研究の結果と一致することになる。 $20-30^\circ C$  程度の違いが土壌中に含まれる元素の濃度に影響することは化学的にはほとんど考えられないが、生物的反応が加わることで、濃度や化学形に影響を与えるであろうことは容易に想像できる。温度  $4^\circ C$  では微生物活性が低く、 $Kd_{I^-}_{4^\circ C}$  と  $Kd_{IO_3^-}_{4^\circ C}$  の相関が見られなかったことから、ヨウ素の化学形が変化しにくいことが考えられることから、土壌に供給されたときの化学形を長く保ち続ける可能性がある。なお、土壌溶液中における  $I^-$  と  $IO_3^-$  の化学反応は行われにくいことが知られている。さらに、土壌に添加された化学形の内、 $I^-$  が植物に吸収され易いことから (内

田, 1989), 低温状態において I<sup>-</sup>として土壤に添加された場合には, K<sub>d</sub> が低く, 可給態として長く存在することから, 移行係数も高くなると考えられる。

### 2.3.3. ヨウ素 K<sub>d</sub> と土壤特性の関係性についてのまとめ

異なる温度条件下 (4°C と 23°C) で採取された 2 種類の化学形のヨウ素 K<sub>d</sub> について, それぞれ関連する 77 土壤特性項目について検討した。温度に関連する変化が見られた項目は, 畑土壤を用いた場合, 酸化還元に関連する元素の Mo および I (安定) が選択された。K<sub>d</sub>\_IO<sub>3</sub>\_<sup>-</sup>4°C との相関の方が K<sub>d</sub>\_IO<sub>3</sub>\_<sup>-</sup>23°C よりも高かったことから, 低温の場合, IO<sub>3</sub><sup>-</sup>で添加されたときには, 単純な化学反応が K<sub>d</sub> 値に影響することが示唆された。一方, 水田土壤では Rb と Ba に対し, どちらの化学形でも 4°C よりも 23°C の方が相関は高くなった。土壤微生物活性が高まり, 相対的に K と Ca が不足し, 代替物として Rb と Ba が使用された可能性があるが, 水田土壤にだけ見られる理由は不明である。さらに考察を行った結果, 低温状態においては, 酸化還元のような化学反応以外の影響でヨウ素の化学形が変化するとは考えにくいことから, 土壤に供給されたときの化学形を比較的長く保ち続ける可能性がある。

今後はこのように温度依存が起こりうる重要核種に着目し, 環境移行パラメータ変動要因の解析を進める必要がある。

## 2. 4. 放射性セシウムの植物移行に関わる福島第一原発事故後のデータ

<sup>135</sup>Cs (2.3×10<sup>6</sup> y) は長期環境影響評価において重要核種であることから, この環境移行パラメータを取得する必要がある。本調査では, 東電福島第一原発の事故により環境中に放出された放射性 Cs のデータに着目した。以下に 4 つの調査結果について報告する。

### 2.4.1. 果樹等からの実効半減期の導出

放射性廃棄物の埋設処分を考慮した場合, 放射性核種は土壤や灌漑水を介して根から吸収されて植物体内に入る。一方, 福島第一原子力発電所やチェルノブイリ原子力発電所の事故でも見られたように, 放射性セシウムが大気中に放出されると, 植物の地上部表面に付着し, その一部が表面吸収される経路がある。どちらの経路でも, 吸収された放射性セシウムは数年間植物体内に留まるという観点からは, 表面吸収も経根吸収も同様の効果をもたらす。仮に土壤や灌漑水からスパイク的に植物に供給された場合, 樹木等に吸収された放射性 Cs は, 落葉や落枝などのプロセスにより徐々に排出されるものの, 植物体内に数年間は留まると考えられる。したがって, 植物体内に吸収されたのち, どのくらいの速さで減少するのかを知ることは重要である。これまでのチェルノブイリ原発事故後のデータでは, 実効半減期は早く減少する第一成分と遅く減少する第二成分とから成り立っていることが報告されている (Antonopoulos-Domis et al, 1996; Unlu et al, 1995)。

植物体内の放射性 Cs の濃度減少が非常に緩やかになった後は、土壌からの放射性 Cs の供給と樹木からの排出のバランスが保たれている状態、すなわち平衡に達すると考えられ、したがって、その状況において土壌—植物間移行係数 (TF) を求めることができる。人が多く利用する樹木に対して TF を求めることは、人への被ばく線量を推定する上で重要である。建材等に用いられるもの (外部被ばく線源と考えられる) もあるが、内部被ばくに影響するものとして、果樹等のように食用にすることができる樹木についての情報は重要である。しかしながら、我が国においては果樹への TF の情報はほとんどない。現在、福島第一原発事故による環境中への放射性セシウムの放出により、実環境中における移行係数を求めることができる可能性が出てきた。しかしながら、果樹もまた、福島第一原発の直接汚染を受けており、植物体内に蓄積されたと考えられることから、TF を求めるためには平衡になるまでの期間を考慮しなければならない。そのためにも実効半減期を求めておくことは重要である。

そこで、本研究では果樹を対象として、実効半減期を得る方法について検討を行った。

#### 2.4.1.1. 材料および測定方法

果樹内における放射性 Cs 濃度の減少速度、すなわち、実効半減期を調べるために、柿 (*Diospyros kaki*) をモデルケースとした。対象とした柿は放医研内に複数生えているが、そのうちの 2 本に着目した (写真 2.4.1)。その理由として、柿は隔年結果性が強いことから、1 本の樹だけでは毎年果実がサンプリングできなくなってしまう。そこで、結果周期の違う 2 本を選択した。また、同じような場所に生えていることで、受けた降下物の量を同等と見なすことができる。なお、2 本のカキの木の葉中の放射性 Cs 濃度はほぼ一致しているため、2 本を区別していない。樹齢は不明であるが、2 本とも樹高は 8 m 程度に達している。葉のサンプリングは 2011 年 4 月末から開始し、適当な間隔でサンプリングを行った。また、果実については、果実が熟する前の幼果からサンプリングを始めた。

採取した植物試料は、1 時間以内に直ちに実験室に持ち帰り、果実については水道水で流水洗浄後、RO 水で洗浄し、表面についた水滴をペーパータオルで良く拭き取った。さらに果実を可能な限り果肉、果皮および種子に分け、生重量を測定した (試料のサイズ等の状況については、写真 2.4.2 を参照のこと)。葉については、土壌の舞い上がり由来する塵埃による濃度影響を調べるために、試料を 2 分割し、重量を測定後、一方を無処理とし、もう一方を食器用洗剤で 1 回洗浄したのち、泡がなくなるまで水道水で 5 回洗浄し、RO 水でさらに 1 回洗浄した。各試料は 80°C にて乾燥、粉碎ののち、U8 容器に詰めて Ge 半導体検出器 (Seiko EG&G Ortec) により 10,000 秒から 40,000 秒の測定を行った。

#### 2.4.1.2. 柿の葉および果実中の放射性 Cs の経時変化

図 2.4-1 に葉を洗浄した場合としなかった場合の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の差について、震災後からの

経過日数でプロットした。データは乾物重ベースである。この結果から、葉を洗浄した場合としなかった場合では有意な差は見られず、土壌等に由来する塵埃が舞い上がって葉に付着していたとしても、ほとんど影響していないことがわかる。フキの葉に対して行った実験でも同様の結果が得られている（田上，内田，2013）。したがって、洗浄／未洗浄の差はないものとしてここでは扱うことにした。

果実中の濃度については、果肉，果皮，種子，ヘタの部分に分離して測定を行った結果を図 2.4-2 に示した。乾燥重ベースでは、果肉と果皮が同程度の濃度であったが、種子はやや高く、ヘタの部分はおよそ 2 倍程度の濃度であった。水分含量について果皮と果肉を比較すると、71-77%（平均 74%）と 81-88%（平均 84%）であり、水分含量が多い分、果肉のほうが生で放射性 Cs 濃度を評価したときに果皮に比べて低くなるといえる。柿の実の中における分布割合は果肉に 70% 近く存在していることがわかった。したがって、果実の濃度については、果肉を調べることが、果実全体の変動を示すことができることがわかった。

葉と果肉中の  $^{137}\text{Cs}$  の経時変化を図 2.4-3 に示す。濃度を対数値変換した場合、どちらも相関係数が 0.8 以上と高く、また、p 値も 0.01 よりも小さい結果が得られた。したがって、放射性 Cs は時間とともに指数関数的に減少していることを示している。これまでチェルノブイリ原発事故後の短期間（Antonopoulos-Domis, et al., 1991; Unlu et al., 1995）および、グローバル・フォールアウト等の長期の観測結果（Pröhl et al., 2006; Paller et al., 2013）から、それぞれ指数関数でフィッティングでき、

$$C=A \exp(-\lambda a \times m) + B \exp(-\lambda b \times m), m>1$$

で表すことができる。A, B,  $\lambda a$  と  $\lambda b$  は定数であり、C (Bq/kg) は m 年経過後の植物中濃度である。短期的には遅い半減期の成分は観察することができないので、二成分では表記せず、単成分で表される。そこで濃度減少を指数関数モデルでフィッティングした結果、葉については、 $C=477 \times \exp(-0.00338i)$ 、果実については  $C=110.26 \times \exp(-0.00326i)$  が得られた。ここで、C は 2011 年 3 月 11 日からの経過日数 i 日における放射性 Cs 濃度である。これらの式から実効半減期が算出でき、その値はそれぞれ 205 日と 213 日であり、ほぼ同じ値が得られた。樹の各部位の重量割合は、樹の生育によって異なるが、毎年更新される葉や果実は、樹の状態を反映していると考えられる。したがって、カキの木全体としてはこの実効半減期で放射性 Cs 濃度が樹全体から減少していると推定することができる。

このように毎年葉を測定しつづけることで実効半減期を求めることができる。しかし、2011 年から連続して測定しているケースが少ない場合もある。ただし果樹の場合、食品モニタリングで公表されている果実のデータがあることから、これを実効半減期の導出に用いることが可能であるといえる。

#### 2.4.1.3. 果樹中の放射性 Cs 実効半減期の導出

上述の結果から、果実のデータを用いて実効半減期の導出を試みたが、特に汚染が高かったと考えられる福島県内の果樹に着目してデータを収集することとした。福島県内の果樹は、2011 年秋から 2012 年初頭にかけて、高圧洗浄や剥皮などの作業が行われていたことにより、全く除染が行われていない自然条件下の樹木に比べて実効半減期が早くなると予想され、その場合には、大幅に濃度が減少することから、2012 年、2013 年と時が経つにつれて放射性 Cs 濃度を定量できるものが少なくなり、実効半減期を求めることが困難な種類も出てくるものと考えられる。また、果物のデータは産地表示しか行われていないため、同一木から採取が行われているかどうかについては不明である。しかしながら、以下のいくつかの条件を設定し、実効半減期を導出した

- 産地（すなわち、市町村）内において、放射性 Cs の降下レベルはほぼ同等であったと仮定する。
- 果実のモニタリングが 2 年以上に渡って行われている種類を選択する。
- 対象の種類果樹について、一つの産地内に複数のデータが各年度にあること。
- データが検出下限値以下の場合、検出下限値の半値をもってデータとするが、同一産地内の対象果樹（例えばモモ）の果実データがすべて検出下限値未満である場合には解析に用いない。
- 2012 年度のデータが欠測している場合でも、2011 年と 2013 年に複数の定量データがある場合には解析を行う。
- 解析を行った結果、指数関数が適用できない場合（ $p$  値が低い、指数関数での相関係数が低い）には、解析結果を用いない。

福島市で収穫された農作物のうち、モモ、リンゴ、ウメ、カキのデータを図 2.4-4 にプロットした。リンゴとモモについては指数関数で近似できず、モモのフィッティング結果から、すでに二つの関数の組み合わせで表記した方が適切な状況にあることがわかった。一方、ウメとカキについてはフィッティングが可能であった。同様に他の地域でも上記の条件にあったケースについてフィッティングを行い、実効半減期を導出した。各果樹に対する実効半減期の結果を表 2.4-1 に示す。放医研敷地内で採取した夏ミカンおよびクリのデータおよびサクラの葉から得られたデータも同時に示す。どの果樹も同様の実効半減期（196-360 日）であり、千葉のデータ（196-237 日）と同等であった。また、チェルノブイリ原発事故後に Antonopoulos-Domis ら（1991）が測定した実効半減期（241-314 日）とも類似していた。これまでの結果から、我が国の果樹においても、今後はチェルノブイリ原発事故後と同様の経過を辿って、平衡に達するものと推測される。既存データの結果から、したがって、数年以内に果樹中の濃度が再び上昇に転じる可能性は低いと考えられる。

今後、引き続き調査を行い、平衡に達する前の、半減期の長い成分についても明らかに

していくことが、正確な TF を求めるために重要であると考えられる。

#### 2.4.1.4 果樹等からの実効半減期のまとめ

柿の樹の詳細な測定結果から、葉と果実の実効半減期が同じであり、したがって、果実の半減期を観察することで、種々の果樹の実効半減期を求めることができることを示した。その結果、実効半減期は、千葉県、福島県を問わず、多くの樹種で 200-300 日程度であることがわかった。その後徐々に平衡に達し、環境移行パラメータとして重要な土壌-果実 TF を求めることができることになると考えられるが、半減期の遅い成分はどの位の長さなのかについては不明であることから、今後も調査を継続する必要がある。一方で、食品モニタリングデータでは検出下限値での報告が増えていることから、詳細な実効半減期を求めることが困難になりつつある。できるだけ多くの樹種で定期的に詳細な濃度データが採取されることが、長期において土壌が汚染した場合に確からしい果実への TF データを得るために重要である。

#### 2.4.2. 樹木葉のサンプリング位置による濃度の差

上述したように、長期的には木の実効半減期は 2 成分で表せる可能性があるが、精度の良い実効半減期を得るためには一つの木を連続的に測定することが適当だと考えられる。

2.4.1 では放医研敷地内における 2 本の柿の木に着目して定量を行っており、柿の果実については指数関数で葉よりも相関係数の高いフィッティングができた。詳細にデータを取得した葉でのフィッティングにばらつきがある理由として、木の葉については季節変動が報告されており、その影響が出ていることも考えられる (Guha and Mitchel, 1966)。他に影響する要因として、サンプリングする位置の影響はあるのかどうかに着目した。

一般に必須無機元素が木の中でリサイクルされる場合、光合成産物である炭水化物が木の根や幹等に移行・貯蔵していくことに伴うと考えられる (Loescher, et al., 1990; Marschner, et al., 1996; Rosecrance, et al. 1998; 近藤, 大賀, 2000)。図 2.4-5 は光合成産物および無機元素の挙動を模式的に示したものである (Marschner et al., 1996 より一部抜粋)。一旦根等に貯蔵された Cs が再び利用される場合に、木部を通して生長器官に送られることになる。特に落葉樹については春に芽吹くことから、この季節には活発に根や幹の貯蔵器官から芽が伸長する生長点へと K とともに Cs が移動すると考えられる。したがって、根や幹から生長点までの移動距離が放射性 Cs 濃度に影響するかどうかについて検討を行った。

##### 2.4.2.1. サクラの葉のサンプリング位置

測定の対象にした試料は千葉県千葉市にある放医研敷地内にあるソメイヨシノ (*Cerasus ×yedoensis* (Matsum.) A.V.Vassil. 'Somei-yoshino') である。樹齢については不明であるが、胸高直径は 1m であった。当該木周辺での調査により  $^{137}\text{Cs}$  総量として約  $14 \text{ kBq m}^{-2}$  であっ

た。太い幹（主幹）から直接伸長した不定芽の葉（L）と樹冠外周部新梢（H）から葉をサンプリングした。サンプリング位置の模式図を図 2.4-6 に示す。サンプリングは 2013 年 3 月 23 日の新芽伸長開始時期，4 月 19 日（葉の展開は不十分），6 月 6 日および 8 月 8 日に行った。H についてはさらに 10 月 8 及び 29 日にもサンプリングを行った。試料量は生重で 20-60 g である。いくつかの試料については洗浄と非洗浄を作成したが，上述の柿の例と同様に，差がはっきりしなかったため，両方の処理の試料データともここでは同様とみなして用いた。

それぞれの試料は採取後すぐに実験室に持ち帰り，葉の生重量を測定後，洗浄する場合には洗剤を用いて葉の表面をよく洗ったのち，水道水を用いて 5 回洗剤を洗い流し，最後に RO 水でリンスした。その後，それぞれの試料は乾燥機を用いて 2 日以上 80 °C で十分乾燥させ，乾燥重量を測定した。乾燥後は粉碎してよく攪拌したのち，U8 容器に詰めて Ge 半導体検出器（Seiko EG&G）により 40,000-50,000 秒の測定を行った。測定機は校正線源で校正されている。本測定において， $^{134}\text{Cs}$  のピークも確認されているが，濃度が低かったため以下では放射性セシウム濃度としては  $^{137}\text{Cs}$  のデータについて報告する。また，比較のために  $^{40}\text{K}$  についても定量を行った。

#### 2.4.2.2. サクラの葉のサンプリング位置の違いと濃度について

L および H 位置からサンプリングした葉の乾物重あたりの  $^{137}\text{Cs}$  濃度変化を図 2.4-7 に示す。葉の濃度は L の方が H よりも 3-4 倍高く推移していることが分かる（6-8 月において，L の葉は  $62 \pm 12 \text{ Bq/kg dry}$  であったが，H の葉は  $17 \pm 3 \text{ Bq/kg dry}$ ）。それぞれの位置で， $^{137}\text{Cs}$  濃度は 3-4 月の試料で高く，その後濃度が低下し，6-8 月ではほとんど変化がなかった。これに対し， $^{40}\text{K}$  濃度は若干の変動があるものの，L と H でははっきりとした差異はなかった。この結果から，放射性 Cs 濃度はサンプリング位置によって違い，さらに K と放射性 Cs では樹体内での挙動は一致しないことがわかった。根や幹等に貯蔵された K と放射性 Cs の挙動に加え，これらの経根吸収による樹体への移行の程度が影響している可能性がある。

位置 L や H では，貯蔵部位である主幹の横方向からの放射組織を通じた供給（拡散を含む）があると考えられる。特に L は主幹から直接篩部や木部を共有しており，軸方向の物質の上下移動にも敏感に反応しながら生長する可能性がある。前年度貯蔵された糖（光合成産物）の移動については，根に貯蔵されていた糖の方が，主幹や枝に貯蔵されたものよりも優先的に利用され，また，種類によるが，横方向よりも軸方向の移動が大きいものがあることを示している（近藤，大賀，2010）。放射性 Cs も同様に動いていると考えると，主幹の横方向からの放射性 Cs の移動に加え，根に貯蔵されていた Cs が樹幹方向へ移動する途中において吸収してしまうため，濃度が高くなっている可能性がある。これらのことから，供給源の貯蔵量の差と主な貯蔵部位である根や幹からの距離が L と H の葉中の  $^{137}\text{Cs}$

濃度に差をもたらしたものと考えられる。

なお、葉中の K 等無機元素濃度の季節変化を測定した報告では (Guha and Mitchel, 1966), K 濃度は葉が展開し始めた初期に高く、その後徐々に低くなっており、本実験の Cs の結果と類似するが、K とは異なる結果であった。供給源や木部を通じた分配、樹体表面からの水分蒸散による樹体内での水の移動速度等について、同じアルカリ元素でも K と Cs という元素の違いが影響して植物の部位における濃度の違いを生じさせている可能性があり、これは既存の報告とも一致する (Yoshida et al., 2011; Goor and Thiry, 2004; 田上, 内田 2012)。さらに K と Cs の違いについては、経根吸収からの供給に着目しなければならない。K については、落葉・落枝等で土壌表面に供給され、有機物分解が進むにつれて K が溶脱し土壌中へ入っていく。しかし、K は土壌中に大量に存在し土壌固相への収着能が低いいため高い易動性を維持する。土壌中に十分 K があれば、植物の活動が活発になり始める頃には、新根部で K が積極的に吸収される。すなわち、本実験の葉中 K 濃度変動の結果は、根や幹等に貯蔵されていたリサイクル K に加えて経根吸収により十分供給され、K 不足が起りにくくなっていたことを反映していたと考えられた。一方、放射性 Cs については、土壌固相に収着されてしまうため、可給態量が極めて低い。したがって、芽が伸長し始める頃には貯蔵部位からの再分配放射性 Cs を先に位置 L の葉が利用していくが、その後は経根吸収による供給がほとんど無くなるため、軸方向の放射性 Cs 濃度は、H の葉まで L と同様の濃度に保てないことが濃度勾配を生じる原因となっている可能性がある。

さらに長期間を考慮すると、樹体中の放射性 Cs の植物中循環においては経根吸収が重要な供給源となる。可給態 Cs が経根吸収によって木に吸収される量を推定するための手法として、草本植物を可給態量推定に用いることができる (Kruyts et al., 2000)。一般に根の機能は高等植物であれば草本植物でも木本植物でも同様であると考えられる。複数の種類の木の葉と野菜の葉中の元素濃度を比較した結果、Cs を含むほとんどの元素で有意差がないことが示されている (Tagami and Uchida, 2010)。したがって、根圏域中の放射性 Cs 濃度が同じ場合、草本植物の放射性 Cs 濃度をモニタリングすることにより、木本植物中の経根吸収による放射性 Cs 濃度もおおよそ推定することができる。そこで、同時期に当該サクラの木周辺で測定した、複数種の草本植物の放射性 Cs 濃度を測定した結果も、図 2.4-7 に記載した。草本植物の  $^{40}\text{K}$  はサクラの葉中の濃度と同程度であったが、 $^{137}\text{Cs}$  についてはサクラの葉中の濃度の方が高かった。草本植物の根圏域は木本植物よりも浅いこと、および、原発事故により環境中に放出された放射性 Cs は未攪乱土壌の深度分布を調べると、表層 1-2 cm までしか到達していないこと (田上, 内田, 2012) から考えると、サクラの木が草本植物と同程度の可給態放射性 Cs を吸収できるとしても、根圏域の放射性 Cs 濃度が草本植物のそれと比べて低いため、草本植物よりも経根吸収による量は低くなるはずである。しかしながら本研究で測定したサクラの葉のデータは、L および H とともに、草本植物よりも放射性 Cs 濃度が高かった。この結果は、やはり現時点では、直接沈着—表面

吸収された放射性 Cs が経根吸収よりも多く樹体内を循環しているため、と考える方が妥当であろう。

#### 2.4.2.3. 樹木葉のサンプリング位置による濃度の差についてのまとめ

本研究の結果、放射性 Cs の方が根から再分配を受ける際に、根に近い生長点ほど放射性 Cs の濃度が高くなる可能性が示唆された。放射性 Cs を木のある部位に付着させその部位から非汚染部位へ移動する現象については、汚染原位置点からの距離が遠くなるほど枝中の濃度が下がることが報告されており (Carini, 2001)、本研究結果と同様の傾向であることを示している。すなわち、採取する植物の器官 (例えば葉) であっても、一つの木の個体での採取部位が異なれば、放射性 Cs 濃度が違う可能性があることを意味している。一個体の継続したモニタリングにおいて誤差を減少させるためには、サンプリングの位置にまで注意したものでなければならないといえる。

#### 2.4.3. 野生動物 (食用) への濃縮係数

##### 2.4.3.1. 野生動物への濃縮係数データの取得について

食用とすることができる野生動物については、魚介類を含む場合があるが、2.4.4 節において魚介類についての濃縮係数を導出していることから、ここでは陸上に生息する動物、すなわち、イノシシ、クマ、シカ、キジ、ヤマドリ、マガモおよびカルガモを対象とする。一般の消費者はマーケットで流通している食品を購入しており、その流通経路に野生動物がのることはほとんどない。野生動物の肉は狩猟等で得られ、通常は自家消費に近い形で食用とされている。野生動物の場合、その餌もまた野生から得ていること、また、家畜等に比べると行動範囲が広いこと、放射性核種を蓄積する機会も増える。ここでは、福島第一原発事故後に得られた放射性 Cs の濃縮係数について検討する。

濃縮係数とは一般に、例えば陸上生物であれば、平衡状態に達した環境中において、土壌 1 kg に含まれる放射性 Cs に対し、肉 1 kg 中に含まれる放射性 Cs の割合を示す方法が用いられている (ICRP Pub. 114, 2009)。IAEA-TRS-472 等にも、家畜等については基本的にはそのような観点での取りまとめが行われている。しかしながら、現状は土壌中の放射性 Cs 濃度は鉛直方向に向かって不均一分布しており、表面に高いことから、濃度と濃度の比を用いることが適当ではない。そこで、このような状況下では面積あたりの移行係数 (aggregated transfer factor,  $T_{ag}$ ) が使われる。チェルノブイリ原発事故後に欧米で得られた野生動物への値も主に  $T_{ag}$  であり、次式で表される。

$$T_{ag} (\text{m}^2/\text{kg}) = \text{部位中の放射能濃度 (Bq/kg)} / \text{単位面積あたりの放射能濃度 (Bq/m}^2\text{)}$$

一方、我が国においては、 $T_{ag}$  はほとんど求められていないため、野生動物を食用とする

場合には、欧米のデータを用いなければならない。我が国の気候・条件にあった値であるのかどうかを検証するのは困難であることから、ここでは我が国の  $T_{ag}$  を求めることとした。

#### 2.4.3.2. 野生動物データソースと導出方法

野生動物（肉）の濃度は、厚生労働省から公表されている食品モニタリング結果 <http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r9852000001m9tl.html> から、福島県内のデータを選択している。また、福島県においては、発表されている野生動物がどこで採取されたものであるのかについてのリストを、福島県鳥獣保護区等位置図を元に 2012 年から公表している [http://wwwcms.pref.fukushima.jp/pcp\\_portal/PortalServlet;jsessionid=54F58ACF9AB152EED01FE41838424857?DISPLAY\\_ID=DIRECT&NEXT\\_DISPLAY\\_ID=U000004&CONTENTS\\_ID=26118](http://wwwcms.pref.fukushima.jp/pcp_portal/PortalServlet;jsessionid=54F58ACF9AB152EED01FE41838424857?DISPLAY_ID=DIRECT&NEXT_DISPLAY_ID=U000004&CONTENTS_ID=26118)。この位置情報と、文部科学省から公表されている福島県内における未攪乱土壤中の放射性 Cs モニタリングデータ（例えば、平成 23 年度科学技術戦略推進費「放射性物質による環境影響への対策基盤の確立」『放射性物質の分布状況等に関する調査研究』を含む）において、第一次から第三次調査として報告されているデータを用いた（<http://ramap.jmc.or.jp/map/eng/>）。すなわち、ある野生動物が採取されたエリアにおいて、第一次から第三次調査までの間に複数ポイントの土壤データがあれば、その幾何平均値を用いることとし、 $Bq/m^2$  を求めた。一方、データポイントがない場合、そのエリアに隣接するエリア内のデータをピックアップし、幾何平均値を算出した。なお、 $^{134}Cs$  の半減期が短いことから、正確な  $T_{ag}$  を求めるために、 $^{137}Cs$  のみのデータを用いることとした。

#### 2.4.3.3. 野生動物の放射性 Cs の単位面積あたり濃縮係数

上記の方法により、 $T_{ag}$  は 2013 年末までの時点でイノシシ 535 件、ニホンジカ 16 件、ツキノワグマ 118 件、キジ 55 件、ヤマドリ 28 件、カルガモ 36 件、マガモ 10 件、合計 798 件を収集することができた。データの累積度数分布を図 2.4-8 に示す。全体的にデータは類似しており、正規分布よりも対数正規分布が適当であった。それぞれの動物種毎の  $T_{ag}$  箱ヒゲ図を図 2.4-9 に示す。ANOVA テストでは有意差はなかったが、傾向としては大型のは乳類で高く、鳥類で低い傾向にあった。

データが得られた期間において、減少傾向は見られなかったのであろうか。Paller 等は米国サバンナリバー・サイトにおける white tailed deer の環境半減期として 11.8 年を導出した（Paller et al., 2013）。ただし、植物等で述べられてきたように、環境半減期が速い成分と遅い成分の二成分に分かれる傾向ではなく、逆に近年、減り方が速くなっていることが指摘されているのは興味深いところである。また、IAEA Teccdoc-1616 にも、イノシシの環境半減期は 10.5 年との報告がある。福島県内のデータはニホンジカの報告件数が少ないために明確な結果を得るのは難しいが、海外のデータが示唆するように、数年程度では減少

傾向が見えない可能性がある。一方、イノシシについては、ある採取エリアについて多くのデータが得られていることから、経時変化があるのかどうかについてプロットを行った結果を、図 2.4-10 に示す。対数値変換を行ってから経過時間との相関を t—検定により求めると、相関係数は-0.33 と低かったものの、 $p=0.00764$  であり、相関があることがわかった。したがって、指数関数的に徐々に減少していると言える。得られたデータから、432日の半減期であり、長期観測からのデータよりも短い。この理由は、恐らく、福島第一原発事故からの経過に伴い、徐々に放射性 Cs が土壌等に収着され、平衡に達する過程にある過渡期であることが原因ではないかと考えられる。このデータからは、しかしながら、1年以上の半減期であるため、現時点での移行係数  $T_{ag}$  という観点からは、事故後1年以内の比較的早い時期に得られたデータと、3年目では2、3倍程度に変化している可能性があるものの、全体としては変動の幅にあり、データを期間毎に区切る必要はないと言える。

表 2.4-2 には単位面積当たりの移行係数  $T_{ag}$  の算術平均、幾何平均最および最小・最大値を記載し、既存データとも比較した。幾何平均値として、イノシシ： $4.7 \times 10^{-3}$ 、ニホンジカ： $6.7 \times 10^{-3}$ 、ツキノワグマ： $3.1 \times 10^{-3}$ 、キジ： $7.5 \times 10^{-4}$ 、ヤマドリ： $1.7 \times 10^{-3}$ 、カルガモ： $6.4 \times 10^{-4}$ 、マガモ： $1.1 \times 10^{-3}$ であった。TECDOC-1616 と比較すると、キジ・ヤマドリ (Pheasant) では日本のデータの方が1桁程度高かったが、他のイノシシ、ニホンジカ、ツキノワグマ、カモとも、 $T_{ag}$  は日本の方が1桁程度低い値であった。また、特にヨーロッパのイノシシで見られたように、秋期に筋肉中の放射性セシウムが高くなる傾向は見られない (図 2.4-10)。すなわち、野生動物は同じ種であっても、それぞれの環境に合う独特の生活をしていることの表れであり、長期に渡っては、欧米とのデータとは違ってくる可能性がある。

#### 2.4.3.4. 野生動物 (食用) への濃縮係数のまとめ

野生動物の実効半減期は Paller (2013) や Pröhl (2006) の長期観察データからも推定されるように、数年から十数年程度と考えられる。現在見られている半減期は過渡期にあるため、既存データよりもやや早い半減期がデータの多いイノシシで見られているが、全体としては未だに減少傾向が明確ではない種も多い。このような条件下において、 $T_{ag}$  を導出したが、表 2.4-2 に示したようにチェルノブイリ原発事故後に見られた値が多く収録されている TECDOC-1616 と比較すると、キジ・ヤマドリ (Pheasant) では日本のデータの方が1桁程度高かったが、他のイノシシ、ニホンジカ、ツキノワグマ、カモとも、 $T_{ag}$  は日本の方が1桁程度低い値であった。この違いは地域差に伴う植生や野生動物の食習慣の違い等を反映しているものと考えられる。これまで我が国の環境移行パラメータとして野生動物のデータがほとんどなかったことから、今回得られた値は有用である。しかし、今後どのような値に推移するのかについては、引き続きデータを注意深く収集し解析する必要がある。

#### 2.4.4. 東電福島第一原発港湾内で採取された魚への海水からの放射性セシウムの濃縮係数

福島第一原発事故以前には、わが国においては、グローバル・フォールアウトを指標として研究が続けられてきた。しかしながら、グローバル・フォールアウトの量が最も多かった1960年代からすでに50年余り経過し、その挙動については、特に海洋中において、安定Csと平衡状態にあると考えられる。そのため、本事業においては安定Csを用いて放射性Csの環境移行パラメータが求められてきた。しかしながら、福島第一原発事故以降は、放射性Csが環境中に留まっており、実環境中において放射性Csの挙動を測定することができる。そこで、環境中に新たに加わった放射性Csがどのような早さで平衡に達するのか、また、平衡に達した後どのような環境移行パラメータ値を得ることができるのかを調査することとした。このようなデータを蓄積しておくことにより、放射性廃棄物処分施設から $^{135}\text{Cs}$ が環境に到達することを考慮したとき、精度が高く、かつ現実的なパラメータ値を与えることができる。

魚介類への濃縮係数（Concentration Ratio, CR）については、文部科学省が行ってきた環境放射能調査（HP）からのデータを用い、主にグローバル・フォールアウト起源の放射性CsのCRの報告がある（Tagami and Uchida 2012, 2013）。また、安定CsのCRについても報告されている（放射線医学総合研究所 2013b, 白坂 2013）が、沿岸生物を対象としており、移動性の高い魚類についてはデータが不足している。福島第一原発周辺海域については、海水中濃度が著しく減少していることを反映し、海水中濃度および魚介類濃度もほとんどが検出下限値未満となり、平衡状態における魚類の濃縮係数を得ることが困難である。そこで、東電福島第一原発港湾内の魚類に着目し、データ整理を行った。

##### 2.4.4.1. 用いたデータの情報と計算方法

福島第一原発の港湾の面積は約  $0.3 \text{ km}^2$  であり、外の海水との交換が行える場所は一箇所である。港湾内には、放射性物質が港湾外に容易に流出することを防ぐために、原子炉建屋前の海にはシルトフェンスが設置され、また、港湾出入り口付近には海産生物の移動が妨げられるようにブロックフェンスが設けられるなどの対策が行われている。したがって完全に外の海と仕切りされているわけではないが、これらのフェンスの設置により、海水の交換が遅くなって放射性Cs等の濃度は近海よりも高く推移していると考えられる。また、港湾内の魚はサンプリングされ、一部の魚については濃度が公表されている（東京電力, 2014）。736検体のデータのうち、シルトフェンス内で採取された魚は6検体であり、また、検出下限値未満が5検体であったので、725検体のデータが登録されている。これらのデータを元に、東日本大震災発生から650日後から992日までのデータを蓄積し、また、港湾内の海水中濃度については、港湾口（海水出入り口付近のサンプリングポイント）と物揚場前（シルトフェンス外側の最も陸寄りのサンプリングポイント）のデータ（Bq/L）

を用いて、CR を求めた。CR は、魚中の放射性核種濃度 (Bq/kg) を海水中の濃度 (Bq/kg) で割ったものである。海水の比重は 1.0 ではないが、ここでは便宜的に  $L=kg$  として CR を算出した。

#### 2.4.4.2. 港湾内の魚類の CR

港湾内の海水中の  $^{137}Cs$  濃度の経時変化を図 2.4-11 に示す。港湾内の濃度は港湾口と物揚場前においてほとんど変化していないことが分かる。一方、南放出口付近 (港湾外への放出口) においてサンプリングした結果と比較すると、約 1 桁程度高い値でほぼ平衡濃度になっていることが分かった。魚類が採取され始めるのが 650 日後からであるが、600 日後程度から海水中濃度はほぼ平衡に達していたことから、600 日から 1000 日後までのデータの幾何平均値として 5.24 Bq/L (範囲：検出下限以下 $<x<42$ ) を使用した。

採取された魚類の内、多く採取されたアイナメ ( $n=74$ )、シロメバル ( $n=90$ )、ヒラメ ( $n=90$ )、マコガレイ ( $n=71$ ) およびムラソイ ( $n=68$ ) について、海水中濃度がほぼ平衡に達した後の魚体中  $^{137}Cs$  濃度について、経時変化を示した結果を図 2.4-12 に示す。アイナメとシロメバルは時間とともに濃度が減少し ( $p<0.01$ )、その実効半減期はそれぞれ 73 日と 107 日であった。Iwata ら (2013) は福島県沖の魚類について生態学的半減期を求めている。アイナメについては 216-286 日、シロメバルについては 197 日を得ており、港湾内ではそれよりも早い速度で減っていることを示している。一方、ヒラメ、マコガレイ、ムラソイについては t-検定の結果、時間との相関は得られなかった。ヒラメは 362-379 日、マコガレイは 285-346 日と、港湾外においても 1 年程度の生態学的半減期であることが要因と考えられる。このように、アイナメのように解析対象とした期間に  $^{137}Cs$  濃度が時間とともに減少する可能性があるが、本調査では、濃度変化までを考慮しないで CR を計算した。

報告値のある魚の種類は 34 種類であったが、サンプル数が少ない魚種 ( $n<3$ ) 以外の 29 種類について、CR を計算し、幾何平均値 (GM)、最小と最大値をまとめた結果を表 2.4-3 に GM の昇順に示す。範囲は 2-97328 と 5 桁近い開きがあるが、GM が低い魚種ほど 1-2 桁の違いであり、GM が高くなるにつれて徐々にバラツキが広がる傾向があった。これまでに魚の CR として、グローバル・フォールアウトによる研究により 15-481 が平衡時の値として得られている (Tagami and Uchida, 2012)。既存のデータと比較すると、今回導出した CR の  $GM<100$  の魚種は、最大値が既存のデータ範囲を超えることがあるが、平衡時の値とほぼ同じ範囲であり、平衡状態に近づきつつあることが示唆された。なお、TRS-422 での Cs の魚類への CR は 100 が推奨されている。また、CR の高さは魚体の大きさには影響されていないようである。なお、回遊性の魚であるシロザケについては、この港湾内に外から入ってきた可能性があり、そのために CR が低くなったと考えられる。

一方、今回の計算結果では、魚種によっては平衡時の値を大きく上回るものがあり、約数百倍になった。これらの魚種は浅瀬の岩礁域に生息する肉食魚で、多くがメバル属

(Sebastes) に属する近縁種であり、生態的にも似ている。将来的にはこれらの種についても、グローバル・フォールアウトの調査で得られたような平衡状態においては、CR が 100 程度にまで低下することが期待される。しかしながら、650-992 日までの調査では減少傾向が明確ではなく、平衡に達するまでには長期間かかると考えられる。さらに、興味深いのは、CR に大きな幅をもつ魚種、例えばアカエイやメバルであり、港湾内に留まるものが居る一方、港湾外から入ってきている可能性がある、すなわち、魚が港湾内を出入りしていることを示しているものと考えられる。

#### 2.4.4.3. 魚類の CR のまとめ

福島第一原発港湾内において、ほぼ放射性  $^{137}\text{Cs}$  濃度が一定濃度を保っている状態であることから、約 30 種類の魚類の CR を求めた。その結果、一部の魚ではすでに平衡に近い値になっているが、一方で、極めて高い値を示す魚種（メバル属が多い）もあった。港湾内は限られた狭い空間であり、Iwata ら（2013）が求めたような、より広範囲な生息域における生態学的半減期と比べて、長くなるのか短くなるのかは重要なポイントである。引き続き調査を継続する必要がある。

## 2. 5. おわりに

本研究は、生物圏移行パラメータに及ぼす気温等の影響評価を行うと共に、その変動を考慮したデータベースを構築するものである。さらに、長半減期核種である  $^{135}\text{Cs}$  を考慮し、その環境移行パラメータに反映させるために、東電福島第一原発の事故により環境中に放出された放射性 Cs データに着目してデータを収集した。

土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査については、文献調査と実測を行った。文献調査の結果、元素によって、気温が変動することで TF が変動することがわかった。Cs については、気温が低い地域の方が TF は上昇することが、国際的なデータベースと、実際に玄米の国内 TF データから明らかになった。文献調査により Cu や Sr で得られた結果のように、基本的には、温暖化により植物の蒸散量が増え、結果として経根吸収量が多くなる元素については濃度が増えると予測される。今後は元素毎の影響の程度についても検討する必要がある。比較する際には、データの質がある程度揃っていることが重要なことから、実環境におけるデータも採取しながら、放射性核種の移行と気温の関係およびその要因について検討する必要がある。そこで、温暖地域の冬期に採取された葉菜類について主要元素の分析を行い、TF をこれまでのデータと比較した。

土壌-土壌溶液間分配係数 (Kd) については、二種類のヨウ素の化学形 (I および  $\text{IO}_3^-$ ) で得た Kd と温度の影響について、77 項目の土壌特性との相関から要因を探索した。これらから、統計的手法を用いて単相間により温度に関連する変化が見られた項目を抽出したところ、畑土壌を用いた場合、酸化還元に関連する元素の Mo および I (安定) が選択され、

水田土壌では Rb と Ba に対し，どちらの化学形でも 4°C よりも 23°C の方が相関は高くなった。今後はこのように温度依存が起こりうる重要核種に着目し，環境移行パラメータ変動要因の解析を進める必要がある。

放射性 Cs をトレーサーとした実環境中での定量測定を行うとともに，これまでに一般に公表されているデータを用いて環境安全評価モデルに用いられる環境移行パラメータへの変換とデータ蓄積，具体的には，樹木等からの実効半減期と野生動物等への濃縮係数を求めた。果樹等の半減期については，ほとんどの種類で 200-300 日程度の実効半減期であることがわかった。現在はまだ濃度減少が続いている過渡期であることから，平衡に達することを想定し，土壌-果実間 TF のデータ蓄積が行われることが望まれる。一方，葉を測定することで実効半減期を求めていく際には，サンプリング位置により濃度が異なる可能性が本研究によって明らかになったため，濃度が低い場合には注意が必要である。さらに，陸上野生動物や海水魚についても濃縮係数を導出し，既存のチェルノブイリ事故後に得られたデータとの比較も行ったが，樹木と同様に現在も濃度が変動している最中であるため，さらなる測定の継続が必要であることがわかった。

我が国では，例えば，GRS で行ったように灌漑水による Interception とそれによる取り込み（もしくは表面汚染）を考慮したパラメータについては，まだデータが収集されていない。そのため，例えば東電福島第一原発事故後に収集されたデータを見直すことにより，我が国の環境移行パラメータを追加できる可能性があることから，安全評価に用いられるパラメータを念頭にした見直し作業が重要である。

## 引用文献

- Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Gagianas, A. (1991): Radiocesium dynamics in fruit trees following the Chernobyl accident. *Health Phys.* 61, 837-842.
- Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Gagianas, A. (1996): Long term radiocesium contamination of fruit trees following the Chernobyl accident. *Health Phys.* 71, 910-914.
- Carini, F. (2001): Radionuclide transfer from soil to fruit, *J. Environ. Radioactiv.* 52, 237-279.
- Dowdall, M., Standring, W., Shaw, G., Strand, P. (2008). Will global warming affect soil-to-plant transfer of radionuclides? *J. Environ. Radioactiv.* 99, 1736-1745.
- 土壌養分測定法委員会編「土壌養分分析法」養賢堂(1983).
- Ehlken, S., Kirchner, G. (2002): Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: a review. *J. Environ. Radioactiv.* 58, 97-112.
- 原子力安全委員会 (2010) : 余裕深度処分の管理期間終了以後における安全評価に関する考え方. 22 安委第 24 号

- Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH (2008): Impact of climate change on far-field and biosphere processes for a HLW-repository in rock salt. GRS-241.
- Guha, M.M., Mitchell, R.L. (1966): The trace and major element composition of the leaves of some deciduous trees, *Plant Soil* 24, 90-112.
- Goor F., Thiry Y. (2004): Processes, dynamics and modeling of radiocaesium cycling in a chronosequence of Chernobyl-contaminated Scots pine (*Pinus sylvestris* L.) plantations. *Sci. Total Environ.* 325, 163-180
- Helmens, F. K. (2013): The last interglacial-glacial cycle (MIS 5-2) re-examined based on long proxy records from central and northern Europe, SKB (Swedish Nuclear Fuel and Waste management Co.), Technical Report TR-13-02
- 放射線医学総合研究所 (2013a) : 放射性廃棄物共通技術調査等委託事業「放射性核種生物圏移行評価高度化調査」6年間(平成19年度～24年度)のまとめ詳細版(内田滋夫編集), p. 197.
- 放射線医学総合研究所 (2013b) : 「平成25年度放射性核種生物圏移行評価高度化調査」(内田滋夫編集), p. 419.
- IAEA (2009): Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. IAEA-TECDOC-1616.
- IAEA (2010): Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series No.472 (IAEA-TRS-472).
- Ichikawa, R., Eto, M., Abe, M. (1962): Strontium-90 and Cesium-137 Absorbed by Rice Plants in Japan, 1960, *Science* 135, 1072.
- ICRP (2009): Environmental protection: transfer parameters for reference animals and plants. ICRP Publication 114, *Ann. ICRP*39(6).
- 井上博道, 梅宮善章, 喜多正幸 (2007) : ニホンナシ‘二十世紀’の果実中元素濃度を用いた産地判別, *日本土壌肥料科学雑誌* 78, 565-571.
- Iwata, K., Tagami, K., Uchida, S. (2013): Ecological Half-Lives of Radiocaesium in 16 Species in Marine Biota after the TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *Environ. Sci. Technol.* 47, 7696-7703.
- Kamei-Ishikawa, N., Tagami, K., Uchida, S. (2013): Effect of biological activity due to different temperatures on iodide partitioning in solid, liquid, and gas phases in Japanese agricultural soils, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295, 1763-1768.
- Komamura, M., Tsumura, A., Yamaguchi, N., Kihou, N., Kodaira, K. (2005): Monitoring  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in rice, wheat and soil in Japan from 1959 to 2000. Miscellaneous publication of National Institute for Agro-Environmental Sciences, No.28.
- 近藤民雄, 大賀祥治 (2000): 落葉広葉樹でみられる春先の木部輸送. *九大演報* 81, 77-91.

- Kruyts, N., Thiry, Y., Delvaux, B. (2000): Respective horizon contributions to cesium-137 soil-to-plant transfer: a rhizospheric experimental approach, *J. Environ. Qual.* 29, 1180-1185.
- Loescher W.H., McCamant, T., Keller, J.D. (1990): Carbohydrate reserves, translocation and storage in woody plant roots, *Hortscience* 25, 274-281
- Marschner, H., Kirkby, E.A., Cakmak, I. (1996): Effect of mineral nutritional status on shoot-root partitioning of photoassimilates and cycling of mineral nutrients, *J. Exp. Bot.* 47, 1255-1263.
- Moreno, D.A., Villora, G., Hernandez, J., Castilla, N., Romero, L. (2002): Accumulation of Zn, Cd, Cu, and Pb in Chinese cabbage as influenced by climatic conditions under protected cultivation.
- 日本土壤肥料学会編 (1997) : 「土壤環境分析法」 博友社.
- NUMO (2011): 地層処分事業の安全確保 (2010 年度版) -確かな技術による安全な地層処分の実現のために-, NUMO-TR-11-01.
- Paller, M.H., Jannik G.T., Baker, R.A. (2013): Effective half-life of <sup>137</sup>Cs in various environmental media at the Savannah River Site, *J. Environ. Radioactiv.* (online available. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenrad.2013.10.024>)
- Pröhl, G., Ehlken, S., Fiedler, I., Kirchner, G., Klemm, E., Zibold, G. (2006): Ecological half-lives of <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs in terrestrial and aquatic ecosystems. *J. Environ. Radioactiv.* 91, 41-72.
- Robison, W.L., Conrado, C.L., Hamilton, T.F., Stoker, A.C. (2000): The effect of carbonate soil on transport and dose estimates for long-lived radionuclides at a U. S. Pacific Test Site. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 243, 459-465.
- Rosecrance, R., Weinbaum S.A., Brown, P.H. (1998): Alternate bearing affects nitrogen, phosphorus, potassium and starch storage pools in mature pistachio trees, *Annals of Botany* 82, 463-470.
- 白坂純一, 鍵谷茂雄, 鄭建, 青野辰雄, 高田兵衛, 田上恵子, 内田滋夫 (2013) : 日本沿岸域の海産生物における安定 Cs の濃縮係数, 第 50 回アイソトープ・放射線研究発表会, 東京, 2013.07.03-05.
- Simon, S.L., Graham, J.C., Terp, S.D. (2002): Uptake of <sup>40</sup>K and <sup>137</sup>Cs in native plants fo the Marshall Islands. *J. Environ. Radioactiv.* 59, 223-243.
- Staudt, C., Semiochkina, N., Kaiser, J.C., Pröhl, G. (2013): Modeling the impact of climate change in Germany with biosphere models for long-term safety assessment of nuclear waste repositories. *J. Environ. Radioactiv.* 115, 214-223.
- Tagami, K., Uchida, S. (2010): Can elemental composition data of crop leaves be used to estimate radionuclide transfer to tree leaves? *Radiat. Environ. Biophys.* 49, 583-590.
- Tagami, K. Uchida, S. (2012): Some Considerations on Water-to-Fish Transfer Data Collected in Japan for Radionuclides and Stable Elements, *Waste Management 2011. Proceedings,*

No.11252, 1-9.

- Tagami, K. Uchida, S. (2013): Marine and freshwater concentration ratios (CR<sub>wo-water</sub>): review of Japanese data. *J. Environ. Radioactiv.* 126, 420-426 (2013).
- 田上, 内田 (2012): 福島第一原発事故後のツクシへの  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  の移行と分布及び調理・加工による除去, *Radioisotopes* 61, 511-516 (2012)
- 田上恵子, 内田滋夫 (2013): 福島第一原子力発電所事故で放出された放射性物質を含む土壌の付着による植物葉からの放射性セシウム吸収について, *放射化学* 28, 1-8.
- 田上恵子, 内田滋夫 (2014): カキの果実および葉中の放射性セシウムの濃度の比較, 2011春-2013年夏までの結果. *Radioisotopes* 63, 87-92.
- 東京電力: 福島第一原子力発電所周辺の放射性物質の分析結果, <http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/fl/smp/index-j.html> (accessed on 21 Jan. 2014)
- Tsukada, H., Nakamura, Y. (1998): Transfer factors of 31 elements in several agricultural plants collected from 150 farm fields in Aomori, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 236, 123-131.
- Uchida, S., Ohmomo, Y. (1999): Impact of radionuclides on soil, groundwater, and crops and radionuclide cleanup in Japan. 96-125. In *Soils and groundwater pollution and remediation: Asia, Africa, and Oceania* (eds. Huang, P.M., Iskandar, I.K.), CRC Press.
- 内田滋夫 (1989): 放射性ヨウ素( $^{129}\text{I}$ )の農作物への移行に関する研究 (博士論文), 京都大学, p.140.
- Ünlü, M.Y., Topcoglu, S., Küçükcezzar, R. Varinlioglu, A. Güngör, N., Bulut, A. M., Güngör, E. (1995): Natural effective half-life of  $^{137}\text{Cs}$  in tea plants. *Health Phys.* 68, 94-99.
- Yoshida, S., Watanabe, M., Suzuki, A. (2011): Distribution of radiocesium and stable elements within a pine tree, *Radat. Prot. Dosim.* 146, 326-329.
- Yuita, K. (1992): Dynamics of iodine, bromine, and chlorine in soil II. Chemical forms of iodine in soil solutions, *Soil Sci. Plant Nutr.* 38, 281-287.



表 2.2-1. ドイツの安全評価で用いられた TF と気候変動に伴うファクター  
(GRS, 2008 より抜粋)

核種	TF (生重ベース)				TF に掛けるファクター	
	牧草	小麦、ライ麦	ジャガイモ 根菜類	葉菜類	井戸水 寒冷、ツンドラ	地下水位上昇 寒冷、ツンドラ
Cl-36	2	2	2	2	1	1
Ni-59	0.01	0.05	0.005	0.005	1	1
Se-79	0.05	0.02	0.003	0.003	1	0.3
Zr-93	0.002	0.001	0.0001	0.0004	1	1
Nb-94	0.004	0.004	0.001	0.002	1	1
Tc-99	1	0.1	0.1	1	0.1	0.1
Pd-107	0.03	0.03	0.005	0.02	1	1
Sn-126	0.005	0.005	0.001	0.003	1	1
I-129	0.1	0.01	0.01	0.01	1	10
Cs-135	0.05	0.02	0.05	0.05	50	50
Ra-226	0.02	0.001	0.01	0.01	0.5	0.5
Th-230	0.01	0.002	0.0002	0.0001	1	1
Pa-231	0.0005	0.0002	0.0001	0.0003	1	1
U-238	0.002	0.002	0.001	0.005	1	1
Np-237	0.01	0.003	0.002	0.002	1	1
Am-243	0.0002	0.00002	0.0001	0.0001	1	1
Pu-239	0.0001	0.00001	0.00001	0.0001	1	1

表 2.2-2. TRS-472 に記載されている熱帯、亜熱帯および温帯の TF の比較

Element	Tropical				Sub-tropical				Temperate			
	n	GM	min	max	n	GM	min	max	n	GM	min	max
穀類												
Co									61	8.5E-3	4.0E-4	7.2E-1
Cs	4	2.3E-1	6.0E-2	1.0E+0	23	3.1E-3	1.0E-3	2.6E-2	470	2.9E-2	2.0E-4	9.0E-1
I					1	1.5E-4			13	6.3E-4	1.0E-4	1.1E-2
Pb	1	2.5E-3							9	1.1E-2	1.9E-3	4.8E-2
Ra	3	3.5E-3	1.7E-3	1.0E-2					24	1.7E-2	8.0E-5	6.7E-1
Sr	2	6.0E-1	4.4E-1	7.6E-1	8	5.1E-2	3.6E-2	6.5E-2	282	1.1E-1	3.6E-3	1.0E+0
Tc					1	3.0E-2			2	1.3E+0	1.8E-1	2.4E+0
U	3	1.8E-2	6.0E-4	8.2E-1					59	6.2E-3	1.6E-4	8.2E-1
Zn	2	2.2E+1	1.8E+1	2.6E+1					89	1.8E+0	2.0E-2	1.4E+1
葉菜類												
Ag					8	2.1E-2	2.0E-3	1.2E-1	5	1.8E-4	5.9E-5	1.3E-3
Co	41	9.2E-2	3.2E-2	2.8E-1	19	1.1E-1	4.8E-3	1.5E+0	185	1.7E-1	1.3E-2	1.0E+0
Cs	49	9.8E-1	1.1E-1	2.9E+0	35	3.8E-2	1.1E-3	1.4E+0	290	6.0E-2	3.0E-4	9.8E-1
I					8	3.0E-2	6.7E-3	8.0E-2	12	6.5E-3	1.1E-3	1.0E-1
Mn					4	1.0E+0	2.3E-1	1.3E+1	103	4.1E-1	5.2E-2	3.0E+0
Pu					2	1.1E-3	1.9E-4	2.0E-3	13	8.3E-5	1.0E-5	2.9E-4
Ra	22	2.7E-2	3.0E-3	4.3E-1					77	9.1E-2	1.8E-3	1.3E+2
Sr	34	3.6E+0	1.4E+0	1.2E+1	36	9.8E-1	5.2E-2	5.0E+0	217	7.6E-1	3.9E-3	7.8E+0
Tc					6	7.2E-1	1.7E-1	1.3E+0	10	1.8E+2	4.5E+0	3.4E+3
Th	6	3.4E-5	1.8E-5	7.6E-5					24	1.2E-3	9.4E-5	2.1E-1
U	19	4.8E-2	4.4E-3	4.1E-1					108	2.0E-2	7.8E-5	8.8E+0
Zn	41	1.7E+0	7.3E-1	4.8E+0	18	8.9E-1	1.1E-1	1.4E+1	112	2.4E+0	1.0E-1	1.7E+1
果菜類等												
Ag					1	3.0E-3			5	6.4E-4	2.5E-4	2.0E-3
Co	7	1.4E-1	5.7E-2	2.3E-1	3	7.9E-1	7.3E-1	8.8E-1	28	3.1E-1	1.4E-1	6.9E-1
Cs	38	7.0E-1	5.0E-2	1.1E+1	13	1.9E-2	2.3E-3	3.0E-1	38	2.1E-2	7.0E-4	7.3E-1
I					3	1.2E-3	6.5E-4	2.7E-3	1	1.0E-1		
Pu	1	1.7E-5			2	8.2E-4	4.3E-4	1.2E-3	9	6.5E-5	6.0E-6	2.0E-4
Pb	2	7.0E-3	7.0E-3	7.0E-3					5	1.5E-2	1.5E-3	3.9E+0
Ra	9	3.2E-3	5.2E-4	7.0E-2					44	1.7E-2	2.4E-4	6.3E+0
Sr	16	1.2E+0	2.6E-1	4.2E+0	15	1.1E-1	1.9E-2	6.5E-1	19	3.6E-1	7.1E-3	7.9E+0
Tc					2	3.0E-1	3.0E-1	3.0E-1				
Th	2	5.3E-6	3.3E-6	7.3E-6					17	7.8E-4	6.2E-5	1.6E-2
U	14	2.6E-2	4.3E-3	1.8E-1					38	1.5E-2	5.2E-4	2.0E-1
Zn	28	1.7E+0	5.8E-1	3.4E+0	3	1.3E+0	1.2E+0	1.5E+0	3	4.2E-1	1.0E-1	9.5E-1
根菜類												
Ag					2	2.3E-2	2.3E-2	2.3E-2	6	1.3E-3	5.7E-4	3.9E-3
Co	7	1.2E-1	6.3E-2	2.1E-1	10	1.3E-3	1.9E-4	8.4E-3	14	1.1E-1	4.7E-2	7.2E-1
Cs	9	4.3E-1	1.3E-1	8.1E-1	10	3.5E-2	3.9E-3	3.5E-1	81	4.2E-2	1.0E-3	8.8E-1
I					2	5.6E-2	5.1E-2	6.1E-2	28	7.7E-3	1.4E-3	4.7E-2
Mn					11	6.0E-3	4.7E-4	1.5E+0	13	4.2E-1	1.5E-2	3.9E+0
Pb	3	2.4E-3	1.8E-3	4.0E-3					27	1.5E-2	2.4E-4	3.3E+0
Pu					2	4.6E-3	5.3E-4	8.6E-3	5	3.9E-4	7.0E-5	5.8E-3
Sr	4	1.8E+0	1.2E+0	2.8E+0	12	4.1E-2	3.2E-3	8.7E-1	56	7.2E-1	3.0E-2	4.8E+0
Tc					1	1.9E+0			2	4.6E+1	1.4E+1	7.9E+1
Th	5	1.9E-5	9.0E-6	3.9E-5					33	8.0E-4	8.2E-6	9.5E-2
U	6	4.7E-2	8.3E-3	2.6E-1					46	8.4E-3	4.9E-4	2.6E-1
Zn	7	1.2E+0	5.6E-1	2.2E+0	11	1.1E-1	2.4E-2	1.4E+0				

赤：温帯の TF の 5 倍以上。太字：10 倍以上。

青：温帯の TF の 1/5 以下。太字：1/10 以下。

表 2.2-2. TRS-472 に記載されている熱帯、亜熱帯および温帯の TF の比較 (続き)

Element	Tropical				Sub-tropical				Temperate			
	n	GM	min	max	n	GM	min	max	n	GM	min	max
芋類												
Co	4	3.7E-1	3.6E-1	3.9E-1					56	5.4E-2	1.0E-2	6.7E-1
Cs	8	4.3E-1	6.0E-2	3.0E+0	34	6.5E-2	9.0E-3	4.1E-1	138	5.6E-2	4.0E-3	6.0E-1
K	1	2.7E+0			18	2.4E-1	1.0E-1	4.1E-1				
Pb	16	5.7E-4	1.5E-4	2.3E-3					30	1.5E-3	1.5E-4	2.6E+0
Pu					6	1.5E-3	6.2E-4	4.8E-3	87	1.1E-4	3.8E-6	5.0E-3
Ra	42	1.9E-3	2.6E-4	1.9E-1					45	1.1E-2	2.4E-4	3.9E+0
Sr	2	6.8E-1	6.6E-1	7.0E-1	29	4.5E-1	5.3E-2	3.6E+0	106	1.6E-1	7.4E-3	1.6E+0
Tc					3	5.0E-1	8.0E-2	4.0E+0	8	2.3E-1	1.3E-2	6.5E-1
Th	13	8.9E-6	2.9E-6	3.5E-5					24	2.0E-4	1.3E-5	1.8E-2
U	4	2.0E-2	7.3E-3	4.3E-2					28	5.0E-3	1.8E-4	8.0E-2
Zn	4	1.1E+0	9.2E-1	1.5E+0					20	3.0E-1	5.0E-2	6.3E-1
豆類												
Ag					2	8.0E-3	8.0E-3	8.0E-3				
Co	19	6.6E-1	2.0E-3	3.6E+0	3	1.1E-1	8.0E-2	1.8E-1	105	3.6E-2	5.0E-3	5.0E-1
Cs	7	1.1E+0	1.9E-1	4.1E+0	31	1.6E-2	2.0E-3	3.1E-1	126	4.0E-2	1.0E-3	7.1E-1
I					1	3.0E-3			23	8.5E-3	2.0E-4	1.4E-1
Mn					1	1.0E-1			92	2.2E-1	2.2E-2	2.8E+0
Pb	9	3.3E-3	6.5E-4	8.9E-3					17	5.3E-3	4.6E-4	4.9E+0
Ra	31	2.1E-2	7.6E-4	2.7E-1					40	1.4E-2	3.2E-4	6.2E+0
Sr	6	3.7E+0	1.8E+0	8.2E+0	26	2.8E-1	2.0E-2	2.5E+0	148	1.4E+0	1.3E-1	6.0E+0
Tc					2	5.0E-1	2.0E-1	8.0E-1	5	4.3E+0	1.1E+0	3.0E+1
Th	4	6.3E-5	2.6E-5	2.1E-4					22	5.3E-4	2.5E-5	4.8E-1
Zn	2	1.8E+1	1.5E+1	2.0E+1					86	9.1E-1	2.5E-1	1.3E+1

赤 : 温帯の TF の 5 倍以上。太字 : 10 倍以上。

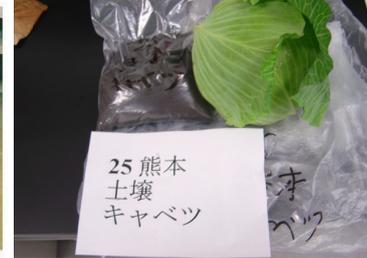
青 : 温帯の TF の 1/5 以下。太字 : 1/10 以下。

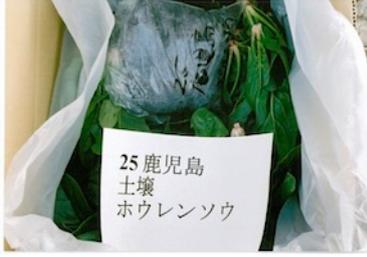
表 2.2-3. 露地およびトンネル栽培による気温の違いと Zn, Cd, Cu 及び Pu の移行量 (Moreno et al., 2002 より抜粋)。

栽培方法	露地栽培	トンネル栽培
気温 (°C)	14.1	20.4
照度 (W/m <sup>2</sup> )	237.1	207.2
生重 (g/plant)	236.2	525.6
乾重 (g/plant)	11.8	15.9
Zn (mg/kg-dry)	63	68
Cd (mg/kg-dry)	0.58	0.59
Cu (mg/kg-dry)	10	17
Pb (mg/kg-dry)	35	37

注 : 各処理区 10 検体。ハクサイは播種後 35 日目に移植。80 日目にトンネル用ポリエチレンシートを除去。95 日目に収穫。

表 2.2-4. 土壌-植物試料の採取状況

採取場所 野菜の種類	試料名	送付前と到着時状況
高知 ネギ	EFII-SD-1 EFII-CD-1 EFII-CF-1	 
高知 ハクサイ	EFII-SD-2 EFII-CD-2 EFII-CF-2	 
熊本 キャベツ	EFII-SD-3 EFII-CD-3 EFII-CF-3	 
熊本 ハクサイ	EFII-SD-4 EFII-CD-4 EFII-CF-4	 
熊本 ホウレンソウ	EFII-SD-5 EFII-CD-5 EFII-CF-5	 

採取場所 野菜の種類	試料名	送付前と到着時状況	
熊本 レタス	EFII-SD-6 EFII-CD-6 EFII-CF-6		
鹿児島 キャベツ	EFII-SD-7 EFII-CD-7 EFII-CF-7		
鹿児島 ネギ (二分割) a: 白 b: 緑	EFII-SD-8 EFII-CD-8a EFII-CF-8a EFII-CD-8b EFII-CF-8b		
鹿児島 ホウレンソウ	EFII-SD-9 EFII-CD-9 EFII-CF-9		
宮崎 ホウレンソウ	EFII-SD-10 EFII-CD-10 EFII-CF-10		

採取場所 野菜の種類	試料名	送付前と到着時状況	
沖縄 キャベツ	EFII-SD-11 EFII-CD-11 EFII-CF-11		
沖縄 ネギ	EFII-SD-12 EFII-CD-12 EFII-CF-12		
沖縄 ホウレンソウ	EFII-SD-13 EFII-CD-13 EFII-CF-13		
沖縄 チンゲンサイ	EFII-SD-14 EFII-CD-14 EFII-CF-14		
宮崎 キャベツ	EFII-SD-15 EFII-CD-15 EFII-CF-15		

採取場所 野菜の種類	試料名	送付前と到着時状況	
宮崎 ネギ (二分割) a: 白 b: 緑	EFII-SD-16 EFII-CD-16a EFII-CF-16a EFII-CD-16b EFII-CF-16b		
宮崎 ハクサイ	EFII-SD-17 EFII-CD-17 EFII-CF-17		
高知 キャベツ	EFII-SD-18 EFII-CD-18 EFII-CF-18		
高知 タカナ	EFII-SD-19 EFII-CD-19 EFII-CF-19		
鹿児島 ハクサイ	EFII-SD-20 EFII-CD-20 EFII-CF-20		

表 2.2-5. 試料の採取地点と採取日

No.	土地利用	県名	市町村名	土壌採取日
1	畑地	高知	土佐市	12/4
2	畑地	高知	南国市	12/4
3	畑地	熊本	合志市	12/4
4	畑地	熊本	合志市	12/4
5	畑地	熊本	合志市	12/5
6	畑地	熊本	合志市	12/5
7	畑地	鹿児島	鹿屋市	12/12
8	畑地	鹿児島	鹿屋市	12/12
9	畑地	鹿児島	鹿児島市	12/12
10	畑地	宮崎	都城市	12/12
11	畑地	沖縄	糸満市	12/24
12	畑地	沖縄	糸満市	12/25
13	畑地	沖縄	糸満市	12/25
14	畑地	沖縄	糸満市	12/25
15	畑地	宮崎	都城市	12/25
16	畑地	宮崎	都城市	12/25
17	畑地	宮崎	都城市	12/25
18	畑地	高知	南国市	1/14
19	畑地	高知	高岡郡四万十町	1/28
20	畑地	鹿児島	南さつま市	1/28

表 2.2-6. 土壌の種類と仮比重および送付時水分含量

No.	県名	市町村名	土壌群	土壌亜群	土壌統群	仮比重	送付時水分含量 (対 風乾)
1	高知	土佐市	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	1.22	17.3%
2	高知	南国市	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	1.05	16.0%
3	熊本	合志市	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.62	25.7%
4	熊本	合志市	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.70	30.7%
5	熊本	合志市	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.60	27.8%
6	熊本	合志市	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.60	34.0%
7	鹿児島	鹿屋市	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.66	29.5%
8	鹿児島	鹿屋市	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.71	25.6%
9	鹿児島	鹿児島市	黒ボク土	淡色黒ボク土	礫質	0.70	28.0%
10	宮崎	都城市	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.65	33.5%
11	沖縄	糸満市	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.12	16.1%
12	沖縄	糸満市	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.05	20.2%
13	沖縄	糸満市	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.08	20.9%
14	沖縄	糸満市	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.04	20.2%
15	宮崎	都城市	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.56	32.5%
16	宮崎	都城市	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.61	30.6%
17	宮崎	都城市	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	多腐植質	0.72	30.3%
18	高知	南国市	灰色低地土	普通灰色低地土	礫質	1.15	15.8%
19	高知	高岡郡四万十町	黄色土	台地黄色土	細粒質	1.16	13.5%
20	鹿児島	南さつま市	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.79	22.4%

表 2.2-7. 作物の種類、廃棄率および水分含量

No.	県名	市町村名	作物 採取日	作物	品種名	廃棄率 %	水分含 量, %
1	高知	土佐市	12/4	ネギ	あいぐる	7.5	89.4
2	高知	南国市	12/4	ハクサイ	黄ごころ85	21.5	92.1
3	熊本	合志市	12/4	キャベツ	豊光	16.1	90.9
4	熊本	合志市	12/4	ハクサイ	晴黄75	34.1	90.4
5	熊本	合志市	12/5	ハウレンソウ	ミストラル	12.9	90.5
6	熊本	合志市	12/5	レタス	シスコ	30.1	95.6
7	鹿児島	鹿屋市	12/12	キャベツ	T532	4.9	92.0
8	鹿児島	鹿屋市	12/12	ネギ	夏扇4号	6.6	91.4
9	鹿児島	鹿児島市	12/12	ハウレンソウ	プロGRES	5.8	90.3
10	宮崎	都城市	12/12	ハウレンソウ	サブライズ7	3.8	90.9
11	沖縄	糸満市	12/24	キャベツ	早どりかんらん	20.6	92.2
12	沖縄	糸満市	12/25	ネギ	黒泉夏用	16.3	93.8
13	沖縄	糸満市	12/25	ハウレンソウ	ビジョン	1.7	93.8
14	沖縄	糸満市	12/24	チンゲンサイ	沖縄チンゲンサイ	9.0	96.6
15	宮崎	都城市	12/25	キャベツ	若峰	22.4	91.1
16	宮崎	都城市	12/25	ネギ	吉蔵	11.2	90.0
17	宮崎	都城市	12/25	ハクサイ	黄ごころ90	26.9	94.8
18	高知	南国市	1/14	キャベツ	おきな	12.0	90.3
19	高知	高岡郡四万十町	1/28	タカナ	コブタカナ	4.4	87.4
20	鹿児島	南さつま市	1/28	ハクサイ	黄楽90α	11.6	93.2

表 2.2-8. 土壤特性

EFII -SD-	含水率 %乾土	pH (H <sub>2</sub> O)	強熱減量 %乾土	塩基性置換容量 (CEC), meq/100g	置換性 Ca mg/100g-dry	置換性 K mg/100g-dry
1	2.6	6.1	7.7	15	190	19
2	2.1	6.8	9.4	16	260	16
3	11.0	6.1	30.0	41	470	29
4	11.0	6.2	30.5	34	380	29
5	11.0	6.8	31.7	41	540	58
6	12.0	6.1	32.5	45	490	57
7	11.0	6.4	31.6	37	330	15
8	8.9	6.2	27.4	36	310	23
9	8.6	6.4	18.0	17	130	13
10	8.2	6.6	24.8	39	480	30
11	3.3	8.3	10.7	20	830	47
12	3.2	8.4	9.7	18	730	44
13	2.8	8.5	9.7	16	700	39
14	3.2	8.5	9.3	17	700	41
15	7.9	5.8	19.5	29	190	45
16	7.1	6.3	21.1	30	280	31
17	6.9	6.3	15.8	21	220	18
18	1.5	6.0	5.4	9	110	14
19	3.0	7.3	9.0	17	350	41
20	8.8	5.8	21.4	23	140	22

EFII -SD-	活性 Al g/kg-dry	活性 Fe g/kg-dry	Total Ca g/kg-dry	Total K g/kg-dry	Total Al g/kg-dry	Total Fe g/kg-dry
1	1.9	6.9	17	14	52	53
2	2.5	2.7	5	10	52	32
3	54	20	9.9	6.3	90	56
4	54	21	7.2	5.9	61	57
5	54	20	11	5.6	75	55
6	48	22	13	5.2	79	57
7	46	13	17	6.0	72	44
8	37	12	20	6.9	65	47
9	52	8.9	24	5.8	97	52
10	30	10	28	6.8	58	45
11	1	4.8	36	20	63	44
12	1.1	7.5	23	19	67	48
13	1.1	8	24	20	67	47
14	1.3	8.5	21	19	55	47
15	30	8.7	20	8.0	59	41
16	27	8.2	20	8.1	51	41
17	20	6.4	25	8.6	59	39
18	1.4	2.2	2.8	8.2	31	21
19	1.1	3.3	6.7	21	53	38
20	40	10	17	6.0	59	47

表 2.2-9. 土壤中元素濃度

EFII -SD-	B mg/kg-dry	Na mg/kg-dry	Mg mg/kg-dry	P mg/kg-dry	Cr mg/kg-dry	Mn mg/kg-dry	Fe mg/kg-dry	Co mg/kg-dry
1	56	7945	7906	4500	230	938	53000	36
2	37	15376	18761	1100	88	1852	32000	20
3	23	5343	3706	4100	56	1302	56000	28
4	22	5292	2804	2400	53	1270	57000	29
5	22	5787	3652	4000	54	1438	55000	29
6	32	6085	5290	6900	97	1546	57000	28
7	DL	13073	6757	2600	17	1308	44000	20
8	13	15403	10737	3100	18	1390	47000	20
9	14	17534	14606	2200	18	1479	52000	23
10	26	15513	14470	5400	27	1357	45000	23
11	85	8213	11443	1300	83	992	44000	23
12	91	7620	10247	1000	90	1161	48000	25
13	93	7823	11614	1100	90	1175	47000	25
14	93	7668	14336	1200	93	1212	47000	25
15	21	19928	10781	4600	22	1652	41000	18
16	23	20927	12353	4100	17	1602	41000	17
17	26	19612	11746	4100	34	1315	39000	19
18	33	5598	6254	1700	79	706	21000	12
19	92	7263	2116	2400	54	1509	38000	21
20	17	16541	8247	2300	19	1696	47000	19

EFII -SD-	Ni mg/kg-dry	Cu mg/kg-dry	Zn mg/kg-dry	Hg mg/kg-dry	Si mg/kg-dry	Ti mg/kg-dry	V mg/kg-dry	Ba mg/kg-dry
1	100	66	200	0.21	25.5	4979	509	543
2	43	25	72	0.22	31.0	6203	488	2942
3	28	56	120	0.33	16.9	6952	633	440
4	25	52	150	0.06	16.8	7263	640	398
5	27	55	98	0.07	15.6	7530	464	191
6	29	59	100	0.12	15.5	7054	474	225
7	9	22	73	0.09	16.7	4944	452	159
8	10	30	85	0.25	18.9	4732	474	213
9	10	19	110	0.05	19.1	5541	571	220
10	15	72	170	0.06	18.8	4115	389	86
11	44	26	100	0.04	22.6	5386	571	816
12	47	27	110	0.05	23.8	5929	564	692
13	46	28	110	0.05	25.7	5962	574	734
14	46	29	110	0.05	24.0	5891	561	803
15	11	33	140	0.04	21.1	3937	398	350
16	10	34	160	0.08	21.1	4833	410	408
17	16	37	120	0.08	22.5	4040	426	415
18	30	15	58	0.11	34.6	3478	340	367
19	29	48	140	0.18	25.2	4329	322	111
20	9	20	100	0.09	20.2	5151	361	143

表 2.2-10. 植物中元素濃度

EFII- CD-	Na mg/kg-dry	Mg mg/kg-dry	Al mg/kg-dry	Si mg/kg-dry	P mg/kg-dry	K mg/kg-dry	Ca mg/kg-dry
1	159	1220	13	7	3000	24000	4740
2	302	948	15	11	6200	39500	6000
3	472	1170	13	4	2800	31800	7550
4	368	1390	5	10	2700	28050	5410
5	380	7630	224	170	5200	81130	5990
6	461	1730	17	21	3700	51530	4430
7	483	1670	17	11	2100	28400	6960
8a	30	1020	29	14	2300	17280	2350
8b	46	2800	131	-	-	26370	7990
9	369	11760	411	1100	5100	90290	8690
10	315	10850	222	370	6500	103470	11620
11	665	1920	13	3	4100	40910	12050
12	549	3490	144	160	6100	56140	20120
13	5180	10330	862	1100	6100	117260	8910
14	5450	3760	299	450	8000	91440	29670
15	382	1580	10	7	3900	35360	4780
16a	22	1140	62	3	2400	22090	2790
16b	70	2880	87	360	1900	28620	9710
17	2450	1950	39	33	6500	48550	9030
18	366	1300	4	<3	3000	27590	6000
19	216	2950	47	180	5800	42250	15590
20	977	1710	16	14	3200	40930	7520

EFII- CD-	V mg/kg-dry	Cr mg/kg-dry	Mn mg/kg-dry	Fe mg/kg-dry	Co mg/kg-dry	Ni mg/kg-dry	Cu mg/kg-dry
1	0.020	0.21	13	25	0.71	2.50	2.5
2	0.021	0.47	11	35	0.11	0.25	3.5
3	0.024	1.66	13	43	0.06	0.11	1.6
4	0.125	-	17	32	0.30	0.12	1.9
5	0.172	0.76	56	150	1.96	0.60	4.6
6	0.070	0.41	41	52	0.82	0.28	4.5
7	0.094	0.51	19	31	0.04	0.11	1.1
8a	0.090	0.24	6	17	0.02	0.12	2.8
8b	0.091	0.74	17	51	3.77	-	4.3
9	0.252	0.88	30	420	0.51	-	6.7
10	0.402	0.76	31	170	0.48	0.41	8.4
11	0.210	0.47	21	44	0.45	0.36	2.6
12	0.252	0.53	18	96	0.36	0.42	12.0
13	0.829	1.42	50	300	2.23	-	9.9
14	0.427	0.97	38	140	0.57	0.41	5.8
15	0.090	0.42	17	38	0.10	0.25	1.9
16a	0.086	0.45	7	17	0.01	0.16	2.7
16b	0.174	0.44	17	100	0.05	0.25	5.0
17	0.095	0.39	16	43	0.29	0.42	2.9
18	0.045	0.16	9	21	0.05	0.38	1.5
19	0.069	0.30	28	69	0.15	1.10	6.1
20	0.025	0.04	25	39	0.23	0.19	2.0

表 2.2-10. 植物中元素濃度（続き）

EFII- CD-	Zn mg/kg-dry	Rb mg/kg-dry	Sr mg/kg-dry	Cd mg/kg-dry	Cs mg/kg-dry	Ba mg/kg-dry
1	25	3.3	3.7	0.040	0.008	0.36
2	27	10.6	11.9	0.280	0.020	9.2
3	19	36.4	15.9	0.020	0.068	14.8
4	27	35.8	11.6	0.060	0.143	9.1
5	57	54.1	13.5	0.670	0.070	8.0
6	35	49.9	10.8	0.120	0.096	7.8
7	15	28.4	7.8	0.010	0.326	6.8
8a	21	11.6	4.9	0.004	0.056	2.3
8b	45	19.8	5.5	0.006	0.085	2.2
9	94	42.5	14.2	0.300	0.104	11.7
10	130	61.2	15.9	0.350	0.068	5.7
11	26	6.4	33.9	0.080	0.050	1.2
12	39	11.3	69.7	0.030	0.062	2.1
13	44	20.0	40.1	0.584	0.129	2.8
14	40	18.9	130.4	0.370	0.088	2.9
15	39	26.8	8.9	0.010	0.105	5.1
16a	31	9.3	6.1	0.020	0.044	4.2
16b	48	15.1	8.7	0.030	0.076	4.9
17	37	38.6	21.7	0.150	0.157	15.6
18	12	8.5	7.9	0.020	0.046	4.7
19	40	11.4	108.2	0.060	0.055	39.6
20	33	39.9	17.2	0.120	0.125	11.4

表 2.2-11. 各項目の測定値（幾何平均値）と既存値との比較

項目	土壌 (単位：表 2.2.8 および 9 参照)		元素	作物 (単位：表 2.2.10 参照)	
	日本全国調査	今回		日本全国調査	今回
含水率	4.9	5.6	Na	459	356
pH	6.2	6.7	Mg	2240	2410
塩基置換容量	14	24	Al	41	43
置換性 Ca	252	333	Si	127	40
置換性 K	44	28	P	4080	3950
活性 Al	6.2	10.2	K	31600	42100
活性 Fe	7.6	8.5	Ca	7760	7560
B	20	34	V	0.08	0.10
Al	81260	61610	Cr	0.32	0.45
Si	255000	213000	Mn	23	19
P	2050	2570	Fe	66	57
K	11010	9240	Co	0.08	0.23
Ca	11240	14830	Ni	0.70	0.30
Cr	56	47	Cu	5.4	3.5
Fe	42170	44540	Zn	30	35
Co	13	22	Rb	15	20
Ni	22	23	Sr	22	15
Cu	38	34	Cd	0.12	0.06
Zn	116	111	Cs	0.02	0.07
Hg	0.13	0.09	Ba	8.0	5.2

表 2.2-12. TF の比較

元素*	サンプル数	最小	最大	平均	中央値	標準偏差
Al-All	26	5.9E-5	1.6E-2	1.7E-3	3.2E-4	3.4E-3
Al-5Pref	22	8.1E-5	1.3E-2	1.8E-3	5.6E-4	2.9E-3
			有意差	なし		
P-All	26	7.2E-1	6.4E+0	2.3E+0	1.8E+0	1.5E+0
P-5Pref	21	4.6E-1	6.7E+0	2.2E+0	1.3E+0	2.0E+0
			有意差	なし		
K-All	26	7.4E-1	2.1E+1	4.1E+0	2.6E+0	4.1E+0
K-5Pref	22	1.7E+0	1.6E+1	5.7E+0	4.6E+0	4.2E+0
			有意差	なし		
Ca-All	26	8.2E-2	5.6E+0	8.9E-1	6.2E-1	1.1E+0
Ca-5Pref	22	1.2E-1	2.3E+0	6.7E-1	4.1E-1	6.0E-1
			有意差	なし		
Cr-All	26	5.9E-4	5.2E-2	1.1E-2	5.4E-3	1.4E-2
Cr-5Pref	21	9.1E-4	4.9E-2	1.6E-2	1.4E-2	1.4E-2
			有意差	なし		
Fe-All	26	3.0E-4	1.6E-2	2.5E-3	9.4E-4	3.4E-3
Fe-5Pref	22	3.6E-4	8.1E-3	1.9E-3	1.0E-3	2.0E-3
			有意差	なし		
Co-All	26	1.0E-3	3.9E-2	9.9E-3	5.2E-3	1.1E-2
Co-5Pref	22	8.2E-4	1.9E-1	2.6E-2	1.3E-2	4.2E-2
			有意差	なし		
Ni-All	26	3.1E-3	1.6E-1	5.4E-2	4.5E-2	4.6E-2
Ni-5Pref	19	3.9E-3	3.8E-2	1.6E-2	1.3E-2	9.4E-3
			有意差	あり ( $p<0.01$ )		
Cu-All	26	2.6E-2	3.8E+0	2.8E-1	8.8E-2	7.2E-1
Cu-5Pref	22	2.9E-2	4.4E-1	1.3E-1	1.0E-1	1.1E-1
			有意差	なし		
Zn-All	26	1.3E-1	1.3E+0	3.2E-1	2.8E-1	2.2E-1
Zn-5Pref	22	1.3E-1	8.6E-1	3.5E-1	3.0E-1	1.9E-1
			有意差	なし		

\*All: 全国データ、5Pref: 今回のデータ

表 2.3-1. ヨウ素 Kd (4°C と 23°C で採取、各々Iおよび IO<sub>3</sub>) の相関

項目	試料数	I- <sub>4</sub> C				I- <sub>23</sub> C				IO <sub>3</sub> - <sub>4</sub> C			
		対応のある相関		順位相関		対応のある相関		順位相関		対応のある相関		順位相関	
		相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値
全試料													
I- <sub>23</sub> C	142	0.817	0.0000	0.828	0.0000	-	-	-	-	-	-	-	-
IO <sub>3</sub> - <sub>4</sub> C	142	0.169	0.0445	0.183	0.0293	0.247	0.0031	0.220	0.0084	-	-	-	-
IO <sub>3</sub> - <sub>23</sub> C	142	0.461	0.0000	0.494	0.0000	0.649	0.0000	0.630	0.0000	0.770	0.0000	0.753	0.0000
畑土壌													
I- <sub>23</sub> C	79	0.855	0.0000	0.861	0.0000	-	-	-	-	-	-	-	-
IO <sub>3</sub> - <sub>4</sub> C	79	0.119	0.2957	0.182	0.1086	0.133	0.2413	0.149	0.1901	-	-	-	-
IO <sub>3</sub> - <sub>23</sub> C	79	0.407	0.0002	0.499	0.0000	0.559	0.0000	0.555	0.0000	0.796	0.0000	0.798	0.0000
水田土壌													
I- <sub>23</sub> C	63	0.581	0.0000	0.541	0.0000	-	-	-	-	-	-	-	-
IO <sub>3</sub> - <sub>4</sub> C	63	0.155	0.2258	0.157	0.2181	0.384	0.0019	0.367	0.0031	-	-	-	-
IO <sub>3</sub> - <sub>23</sub> C	63	0.414	0.0008	0.433	0.0004	0.773	0.0000	0.762	0.0000	0.725	0.0000	0.680	0.0000

表 2.3-2. 各ヨウ素 Kd 値に対して土地利用と相関が認められなかった項目 (pH 以外は対数変換値)

土地利用	項目
全て (全試料、畑土壌、水田土壌)	Sand%, Silt%, CEC, Mg, P, Ca, Sc, Cr, Ni, Zn, Y, Zr, Nb, Cd, Sn, Sb, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Pb, U, NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , Ca <sup>++</sup> , Cl <sup>-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , PO <sub>4</sub> <sup>-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>-</sup>
全試料と畑土壌	Clay%, Cs, Tl
全土壌と水田土壌	Cu
畑土壌と水田土壌	EC, ex. Ca, ex. K, Ni, Ga, Sm, W, Hg, K <sup>+</sup> , Mg <sup>++</sup>
畑土壌	Na <sup>+</sup>
水田土壌	含水率, act. Al, act. Fe, Al, Ti, V, Fe, Co, As, Se, Br, Hf

表 2.3-3. 全試料のヨウ素 Kd 値と項目との単相関 (pH 以外は対数変換、順位相関)

全試料		I-_4C		I-_23C		IO <sub>3</sub> -_4C		IO <sub>3</sub> -_23C		各項目との相関、温度による Kd 差の有無		
		順位相関		順位相関		順位相関		順位相関		I-*	IO <sub>3</sub> -*	温度差 <sup>#</sup>
項目	数	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値			
含水率	142	-0.067	0.4280	-0.009	0.9111	0.519	0.0000	0.327	0.0001		○	
EC	142	-0.279	0.0008	-0.202	0.0159	-0.040	0.6403	-0.066	0.4387	○		
pH	142	-0.342	0.0000	-0.383	0.0000	-0.476	0.0000	-0.512	0.0000	○	○	
ex. Ca	142	-0.255	0.0022	-0.135	0.1099	-0.117	0.1653	-0.112	0.1846	○		
ex. K	142	-0.444	0.0000	-0.376	0.0000	0.072	0.3923	-0.129	0.1264	○		
act. Al	142	0.016	0.8520	-0.017	0.8370	0.532	0.0000	0.400	0.0000		○	
act. Fe	142	-0.089	0.2943	0.083	0.3283	0.492	0.0000	0.360	0.0000		○	
C	142	0.062	0.4609	0.087	0.3045	0.381	0.0000	0.335	0.0000		○	
N	142	0.085	0.3127	0.111	0.1893	0.349	0.0000	0.333	0.0001		○	
Na	142	0.099	0.2430	0.037	0.6630	-0.385	0.0000	-0.278	0.0008		○	
Al	142	0.115	0.1713	0.167	0.0471	0.255	0.0022	0.246	0.0031		○	
Si	142	0.040	0.6384	-0.020	0.8127	-0.502	0.0000	-0.392	0.0000		○	
K	142	0.039	0.6434	-0.085	0.3156	-0.424	0.0000	-0.381	0.0000		○	
Ti	142	-0.011	0.8926	0.081	0.3357	0.387	0.0000	0.275	0.0009		○	
V	142	-0.037	0.6635	0.045	0.5914	0.377	0.0000	0.304	0.0002		○	
Mn	142	-0.343	0.0000	-0.350	0.0000	0.025	0.7671	-0.132	0.1168	○		
Fe	142	-0.093	0.2691	-0.013	0.8766	0.363	0.0000	0.270	0.0012		○	
Co	142	-0.086	0.3065	-0.032	0.7053	0.250	0.0027	0.167	0.0468		○	
Ga	142	-0.021	0.8023	0.005	0.9496	0.271	0.0011	0.136	0.1071		○	
As	142	-0.180	0.0322	-0.087	0.3060	0.270	0.0012	0.124	0.1403		○	
Se	141	-0.051	0.5495	-0.015	0.8625	0.414	0.0000	0.266	0.0014		○	
Br	142	-0.249	0.0028	-0.250	0.0027	0.392	0.0000	0.147	0.0817	○	○	
Rb	142	-0.079	0.3516	-0.219	0.0089	-0.340	0.0000	-0.413	0.0000	○	○	
Sr	142	-0.082	0.3343	-0.132	0.1171	-0.361	0.0000	-0.352	0.0000		○	
Mo	142	-0.163	0.0522	-0.080	0.3413	0.512	0.0000	0.316	0.0001		○	○
I	142	-0.471	0.0000	-0.453	0.0000	0.413	0.0000	0.069	0.4154	○	○	
Ba	142	-0.171	0.0419	-0.261	0.0017	-0.363	0.0000	-0.440	0.0000	○	○	
La	142	-0.070	0.4082	-0.174	0.0382	-0.326	0.0001	-0.386	0.0000		○	
Ce	142	-0.064	0.4458	-0.167	0.0465	-0.371	0.0000	-0.409	0.0000		○	
Pr	142	-0.076	0.3714	-0.159	0.0589	-0.264	0.0015	-0.350	0.0000		○	
Nd	142	-0.086	0.3097	-0.158	0.0605	-0.223	0.0077	-0.331	0.0001		○	
Sm	142	-0.077	0.3641	-0.137	0.1037	-0.125	0.1391	-0.254	0.0023		○	
Hf	142	0.109	0.1967	0.196	0.0194	0.267	0.0013	0.259	0.0019		○	
W	142	0.363	0.0000	0.326	0.0001	0.011	0.9003	0.160	0.0567	○		
Hg	142	0.201	0.0163	0.221	0.0081	-0.159	0.0584	-0.044	0.6035	○		
Th	142	-0.122	0.1482	-0.235	0.0048	-0.236	0.0046	-0.373	0.0000	○	○	
Na+	142	0.123	0.1438	0.247	0.0030	-0.021	0.8073	0.053	0.5288	○		
K+	141	-0.405	0.0000	-0.406	0.0000	-0.040	0.6370	-0.211	0.0119	○		
Mg++	142	-0.270	0.0012	-0.215	0.0102	-0.120	0.1551	-0.136	0.1068	○		
F-	128	-0.095	0.2882	-0.121	0.1754	-0.635	0.0000	-0.461	0.0000		○	

注：p 値ブルー：p<0.01、\*相関があると判断、相関係数（黄色）0.8>x>0.5、相関係数（緑）：0.5>x>0.3

<sup>#</sup>温度差について、4℃または23℃がp<0.01かつR>0.5、もしくは、4℃および23℃がp<0.01において相関係数に0.2の開きがある時に温度差があると判定。

表 2.3-4. 畑土壌のヨウ素 Kd 値と項目との単相関 (pH 以外は対数変換、順位相関)

畑		I_4C		I_23C		IO <sub>3</sub> _4C		IO <sub>3</sub> _23C		各項目との相関、温度による Kd 差の有無		
		順位相関		順位相関		順位相関		順位相関		I-*	IO <sub>3</sub> -*	温度差 <sup>#</sup>
項目	数	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値			
含水率	79	0.214	0.0580	0.265	0.0185	0.689	0.0000	0.519	0.0000		○	
pH	79	-0.189	0.0952	-0.113	0.3211	-0.406	0.0002	-0.399	0.0003		○	
act. Al	79	0.196	0.0842	0.160	0.1598	0.696	0.0000	0.566	0.0000		○	
act. Fe	79	0.146	0.1992	0.184	0.1051	0.600	0.0000	0.457	0.0000		○	
C	79	0.228	0.0432	0.234	0.0375	0.460	0.0000	0.384	0.0005		○	
N	79	0.253	0.0247	0.268	0.0171	0.418	0.0001	0.377	0.0006		○	
Na	79	0.020	0.8584	-0.003	0.9786	-0.470	0.0000	-0.321	0.0039		○	
Al	79	0.022	0.8451	0.080	0.4824	0.286	0.0107	0.295	0.0082		○	
Si	79	-0.130	0.2550	-0.138	0.2264	-0.671	0.0000	-0.541	0.0000		○	
K	79	-0.095	0.4033	-0.122	0.2857	-0.526	0.0000	-0.424	0.0001		○	
Ti	79	0.027	0.8153	0.019	0.8701	0.549	0.0000	0.383	0.0005		○	
V	79	0.078	0.4965	0.052	0.6503	0.522	0.0000	0.401	0.0002		○	
Fe	79	0.017	0.8822	0.024	0.8332	0.537	0.0000	0.388	0.0004		○	
Co	79	0.069	0.5478	0.030	0.7909	0.417	0.0001	0.292	0.0090		○	
Cu	79	-0.008	0.9443	0.044	0.7028	0.335	0.0026	0.245	0.0297		○	
As	79	0.054	0.6345	0.032	0.7807	0.331	0.0029	0.196	0.0834		○	
Se	78	0.070	0.5454	0.044	0.7023	0.580	0.0000	0.418	0.0001		○	
Br	79	0.039	0.7357	0.039	0.7325	0.603	0.0000	0.404	0.0002		○	
Rb	79	-0.129	0.2574	-0.178	0.1164	-0.402	0.0002	-0.387	0.0004		○	
Sr	79	-0.109	0.3372	-0.117	0.3047	-0.390	0.0004	-0.355	0.0013		○	
Mo	79	-0.114	0.3181	-0.083	0.4648	0.516	0.0000	0.295	0.0082		○	○
I	79	-0.204	0.0713	-0.209	0.0639	0.632	0.0000	0.311	0.0052		○	○
Ba	79	-0.315	0.0047	-0.293	0.0089	-0.470	0.0000	-0.470	0.0000	○	○	
La	79	-0.113	0.3198	-0.160	0.1590	-0.332	0.0028	-0.367	0.0009		○	
Ce	79	-0.127	0.2638	-0.163	0.1516	-0.366	0.0009	-0.373	0.0007		○	
Pr	79	-0.088	0.4420	-0.130	0.2525	-0.274	0.0145	-0.336	0.0024		○	
Nd	79	-0.068	0.5540	-0.110	0.3344	-0.217	0.0550	-0.307	0.0060		○	
Hf	79	0.107	0.3468	0.140	0.2195	0.297	0.0079	0.300	0.0071		○	
Th	79	-0.141	0.2146	-0.207	0.0668	-0.233	0.0386	-0.328	0.0032		○	
F-	70	-0.014	0.9079	0.018	0.8842	-0.632	0.0000	-0.466	0.0000		○	

注：p 値ブルー：p<0.01、\*相関があると判断、相関係数（黄色）0.8>x>0.5、相関係数（緑）：0.5>x>0.3

#温度差について、4℃または23℃が p<0.01 かつ R>0.5、もしくは、4℃および23℃が p<0.01 において相関係数に0.2の開きがある時に温度差があると判定。

表 2.3-5. 水田土壌のヨウ素 Kd 値と項目との単相関 (pH 以外は対数変換、順位相関)

水田		I-_4C		I-_23C		IO <sub>3</sub> -_4C		IO <sub>3</sub> -_23C		各項目との相関、温度による Kd 差の有無		
		順位相関		順位相関		順位相関		順位相関		I-*	IO <sub>3</sub> -*	温度差 <sup>#</sup>
独立変数	度数	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値			
Clay%	63	-0.327	0.0088	0.087	0.4974	0.102	0.4250	0.030	0.8150	○		
pH	63	-0.124	0.3340	-0.493	0.0000	-0.642	0.0000	-0.619	0.0000	○	○	
C	63	0.218	0.0863	0.314	0.0121	0.311	0.0132	0.435	0.0004		○	
N	63	0.173	0.1744	0.274	0.0297	0.263	0.0370	0.406	0.0010		○	
Na	63	-0.017	0.8940	-0.122	0.3421	-0.300	0.0169	-0.350	0.0049		○	
Si	63	-0.087	0.4967	-0.297	0.0181	-0.278	0.0276	-0.335	0.0074		○	
K	63	0.014	0.9141	-0.348	0.0052	-0.311	0.0132	-0.427	0.0005	○	○	
Rb	63	-0.150	0.2412	-0.506	0.0000	-0.261	0.0392	-0.492	0.0000	○	○	○
Sr	63	-0.098	0.4469	-0.199	0.1188	-0.331	0.0081	-0.406	0.0010		○	
Mo	63	0.058	0.6525	0.311	0.0131	0.590	0.0000	0.509	0.0000		○	
I	63	-0.165	0.1970	-0.090	0.4816	0.414	0.0007	0.147	0.2517		○	
Cs	63	-0.213	0.0942	-0.334	0.0075	-0.179	0.1593	-0.295	0.0187	○		
Ba	63	-0.229	0.0706	-0.541	0.0000	-0.210	0.0992	-0.518	0.0000	○	○	○
La	63	-0.130	0.3113	-0.390	0.0016	-0.312	0.0127	-0.458	0.0002	○	○	
Ce	63	-0.123	0.3352	-0.420	0.0006	-0.382	0.0020	-0.522	0.0000	○	○	
Pr	63	-0.126	0.3240	-0.303	0.0156	-0.248	0.0502	-0.396	0.0013		○	
Nd	63	-0.124	0.3337	-0.272	0.0309	-0.231	0.0685	-0.376	0.0024		○	
Tl	63	-0.162	0.2042	-0.356	0.0042	-0.225	0.0757	-0.345	0.0057	○	○	
Th	63	-0.192	0.1310	-0.450	0.0002	-0.253	0.0457	-0.471	0.0001	○	○	
Na+	63	-0.365	0.0033	0.004	0.9723	0.056	0.6652	-0.005	0.9702	○		
F-	58	-0.054	0.6873	-0.286	0.0294	-0.604	0.0000	-0.435	0.0006		○	

注：p 値ブルー：p<0.01、\*相関があると判断、相関係数（黄色）0.8>x>0.5、相関係数（緑）：0.5>x>0.3

<sup>#</sup>温度差について、4℃または23℃が p<0.01 かつ R>0.5、もしくは、4℃および23℃が p<0.01 において相関係数に0.2の開きがある時に温度差があると判定。

表 2.4-1. 果樹の放射性セシウム実効半減期

種類	福島県内	NIRS 千葉市	After the Chernobyl accident (Antonopoulos-Domis, <i>et al.</i> , 1991)
ウメ	Avg.: 222 ± 48 d Range: 190-418 d (n=14)		
モモ	Avg.: 196 ± 8 d Range: 186-205 d (n=4)		310 d
スモモ	Avg.: 255 ± 37 d Range: 229-281 d (n=2)		アンズ 281-307 d
リンゴ	Avg.: 237 ± 53 d Range: 179-296 d (n=5)		314 d
サクランボ (桜桃)	Avg.: 310 ± 97 d Range: 231-418 d (n=3)	(226 d)	241-248d
カキ	Avg.: 304 ± 70 d Range: 190-418 d (n=14)	196 d	
キウイフルーツ	Avg.: 235 ± 75 d Range: 131-397 d (n=9)		
柑橘類 (ミカン、ユズ)	Avg.: 285 ± 97 d Range: 162-440 d (n=6)	237 d	
クリ	Avg.: 270 ± 3 d Range: 268-272 d (n=2)	235 d	
ブルーベリー	Avg.: 360 ± 309 d Range: 169-821 d (n=4)		
イチジク	Avg.: 211 ± 65 d Range: 115-316 d (n=7)		

表 2.4-2. 放射性 Cs の面積当たりの移行係数 ( $T_{ag}$ ,  $m^2/kg$ )

種類*	n	Arithmetic mean	SD	Geometric mean	GSD	Min.	Max.
イノシシ	535	$1.4 \times 10^{-2}$	$5.9 \times 10^{-2}$	$4.7 \times 10^{-3}$	3.4	$2.1 \times 10^{-4}$	$1.2 \times 10^0$
Wild boar Czech Rep.	-			$9.8 \times 10^{-3}$ (0-5 y)			
Wild boar Austria	18			$(0.4-6.7) \times 10^{-2}$ , (1-3 y)			
ニホンジカ	16	$2.7 \times 10^{-2}$	$6.2 \times 10^{-2}$	$6.7 \times 10^{-3}$	4.6	$9.5 \times 10^{-4}$	$2.3 \times 10^{-1}$
Roe deer Sweden	35			$2.6 \times 10^{-2}$ (3 y)			
Roe deer Germany	36 6			$1.7 \times 10^{-2}$ $8.1 \times 10^{-2}$ (2 y)	1.9 1.1		
Roe deer Czech Rep.	-			$(2.7-3.8) \times 10^{-2}$ , (0-5y)			
Roe deer Austria	74			$(3.9-9.4) \times 10^{-2}$ , (0-2y)			
Red deer Europe	-			$1-5 \times 10^{-2}$			
White tailed deer, Finland	27			$(0.84-2.6) \times 10^{-2}$			
ツキノワグマ	118	$5.6 \times 10^{-3}$	$9.1 \times 10^{-3}$	$3.1 \times 10^{-3}$	2.7	$3.2 \times 10^{-4}$	$6.7 \times 10^{-2}$
Brown bear	23			$(4.3-7.1) \times 10^{-2}$ , (1-3 y)			
キジ	55	$1.3 \times 10^{-3}$	$1.5 \times 10^{-3}$	$7.5 \times 10^{-4}$	2.8	$4.9 \times 10^{-5}$	$7.7 \times 10^{-3}$
ヤマドリ	28	$3.4 \times 10^{-3}$	$6.3 \times 10^{-3}$	$1.7 \times 10^{-3}$	2.8	$2.5 \times 10^{-4}$	$3.4 \times 10^{-2}$
Pheasant Finland	3			$3.2 \times 10^{-4}$			
カルガモ	36	$1.5 \times 10^{-3}$	$3.7 \times 10^{-3}$	$6.4 \times 10^{-4}$	2.8	$1.0 \times 10^{-4}$	$2.3 \times 10^{-2}$
マガモ	10	$1.4 \times 10^{-3}$	$6.5 \times 10^{-4}$	$1.1 \times 10^{-3}$	2.6	$9.6 \times 10^{-5}$	$2.2 \times 10^{-3}$
Waterfowl Finland	51			$0.24-1.3 \times 10^{-2}$ , (1-3 y)			

\*種類名が英語表記のものは IAEA-Tecdoc-1616 より抜粋

表 2.4-3. 福島第一原発港湾内の魚類の濃縮係数（震災後 650-992 日後）

和名	学名	N	GM	min	max	体長
シロザケ	Oncorhynchus keta	9	5	2	19	80 cm
マダラ	Gadus macrocephalus	9	17	3	63	1.2 m
<b>マダラ</b>		<b>3</b>	<b>102</b>	<b>86</b>	<b>117</b>	
ヌマガレイ	Platichthys stellatus	15	36	4	349	90 cm
コノシロ	Konosirus pumctatus	10	37	6	151	30 cm
<b>コノシロ</b>		<b>1</b>	<b>75</b>			
ニベ	Nibea mitsukurii	17	55	14	279	40 cm
ウミタナゴ	Ditrema temminkii	10	57	12	189	25 cm
ケムシカジカ	Hemipterus villosus	9	57	8	235	40 cm
アブラツノザメ	Squalus acanthias L.	4	61	17	118	1 m
クロダイ	Acanthopagrus schlegeli	25	65	2	1660	50 cm
<b>タイ</b>		<b>5</b>	<b>44</b>	<b>26</b>	<b>59</b>	
ヒラメ	Paralichthys olivaceus	90	73	2	3855	100 cm
<b>ヒラメ</b>		<b>18</b>	<b>44</b>	<b>19</b>	<b>96</b>	
カスザメ	Squatinae japonica	6	76	27	307	2 m
スズキ	Lateolabrax japonicus	8	81	25	378	80 cm
<b>スズキ</b>		<b>28</b>	<b>69</b>	<b>18</b>	<b>481</b>	
ホシエイ	Dasyatis matsubarae	3	82	27	155	1.8 m
ボラ	Mugil cephalus cephalus L.	11	113	16	878	60 cm
マゴチ	Platycephalus sp.2	9	145	25	439	1 m
マルタ	Tribolodon Taczanowskii	18	195	8	7061	40 cm
コモンカスベ	Okamejei kenojei	30	226	11	1870	60 cm
ホシガレイ	Verasper variegatus	6	230	139	378	60 cm
<b>カレイ</b>		<b>21</b>	<b>48</b>	<b>19</b>	<b>95</b>	
マアナゴ	Conger myriaster	16	338	126	2214	90 cm
<b>マアナゴ</b>		<b>1</b>	<b>24</b>			
エゾイソアイナメ	Physiculus maximowiczi	27	339	111	2844	30 cm
アカエイ	Dasyatis kuhlii	30	344	5	11832	80 cm
<b>アカエイ</b>		<b>2</b>	<b>158</b>	<b>86</b>	<b>229</b>	
マコガレイ	Pleuronectes yokohamae	71	713	23	24237	50 cm
クロソイ	Sebastes schlegeli	33	1025	51	32061	50 cm
<b>ソイ</b>		<b>4</b>	<b>38</b>	<b>34</b>	<b>44</b>	
ババガレイ	Microstomus achne	3	2142	80	32443	60 cm
アイナメ	Hexagrammos otakii	74	4850	92	97328	30-40 cm
<b>アイナメ</b>		<b>6</b>	<b>59</b>	<b>30</b>	<b>96</b>	
シロメバル	Sebastes cheni	90	10023	12	61069	20-30 cm
<b>メバル</b>		<b>4</b>	<b>34</b>	<b>22</b>	<b>62</b>	
<b>クロメバル</b>		<b>6</b>	<b>39</b>	<b>15</b>	<b>103</b>	
カサゴ	Sebastes marmoratus	5	13211	8015	19275	30 cm
<b>ベニカサゴ</b>		<b>3</b>	<b>68</b>	<b>60</b>	<b>78</b>	
タケノコメバル	Sebastes oblongus	14	13943	235	52099	40 cm
ムラソイ	Sebastes pachycephalus	68	14109	172	82061	35 cm

斜体（青字）：グローバル・フォールアウト結果より（Tagami, WM），平衡時の値

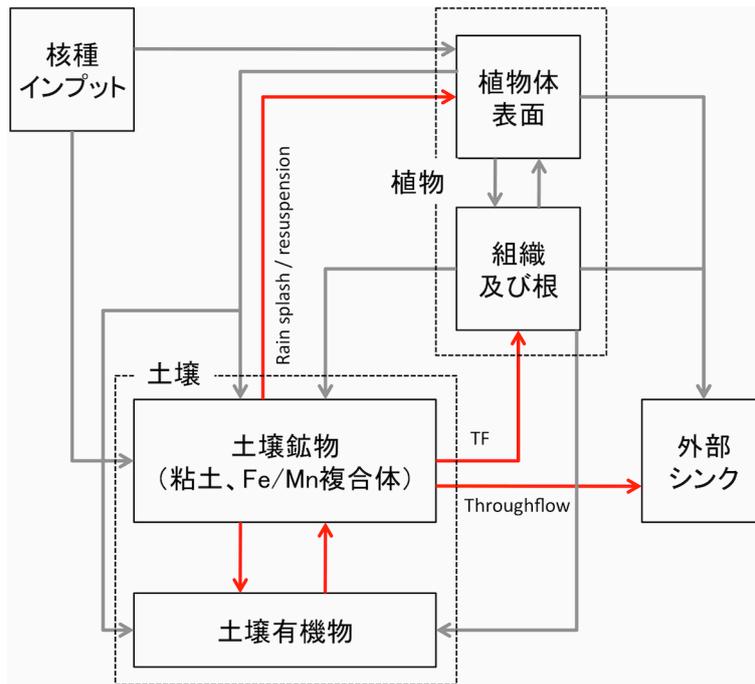


図 2.2-1. 放射性核種の移行経路と温暖化で影響を受け易い経路 (赤) (Dowdall ら、2008)

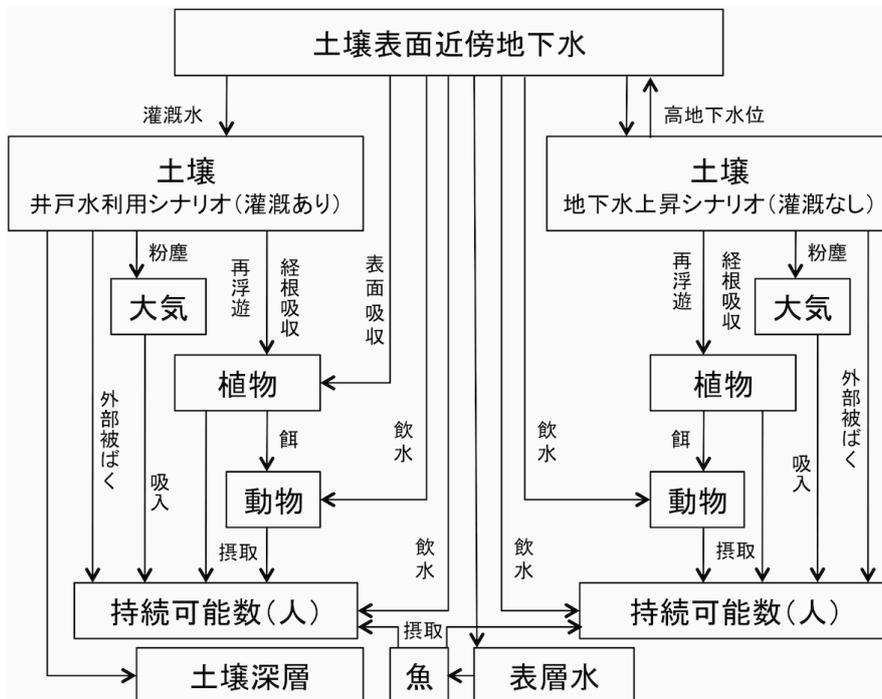


図 2.2-2. ドイツにおける一般化した地下水シナリオ (Staudt ら、2013)

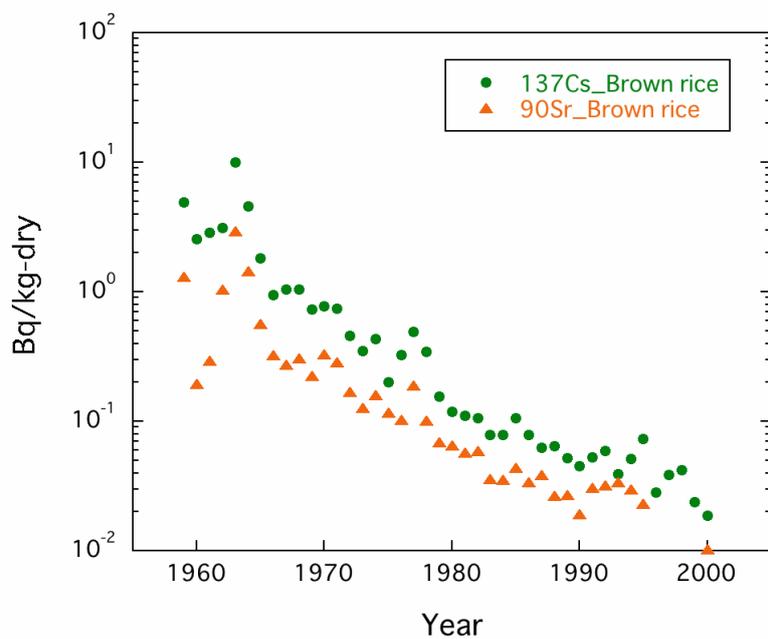


図 2.2-3. 玄米中の  $^{137}\text{Cs}$  および  $^{90}\text{Sr}$  濃度の経年変化. (Komamura ら(2005)より  
14 箇所のサンプリング地点データの幾何平均値をプロット)

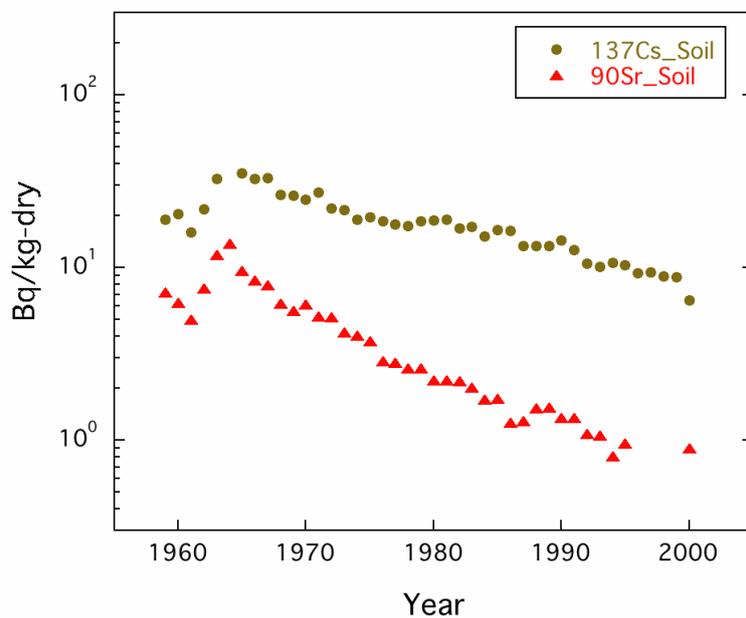


図 2.2-4. 水田中の  $^{137}\text{Cs}$  および  $^{90}\text{Sr}$  濃度の経年変化. (Komamura ら(2005)より  
14 箇所のサンプリング地点データの幾何平均値をプロット)

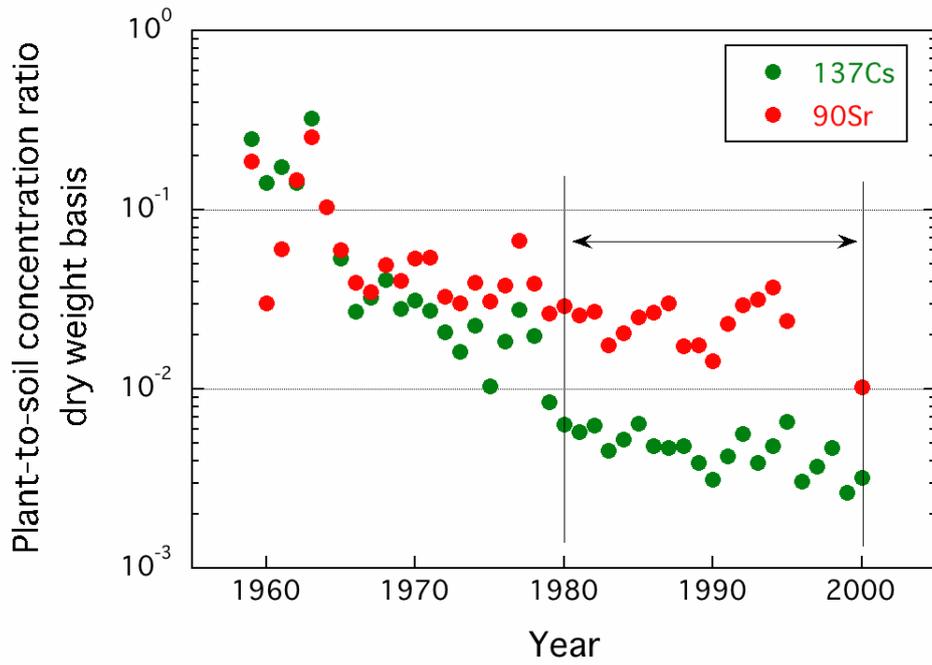


図 2.2-5. 水田土壌-玄米の農作物／土壌中濃度比の経時変化

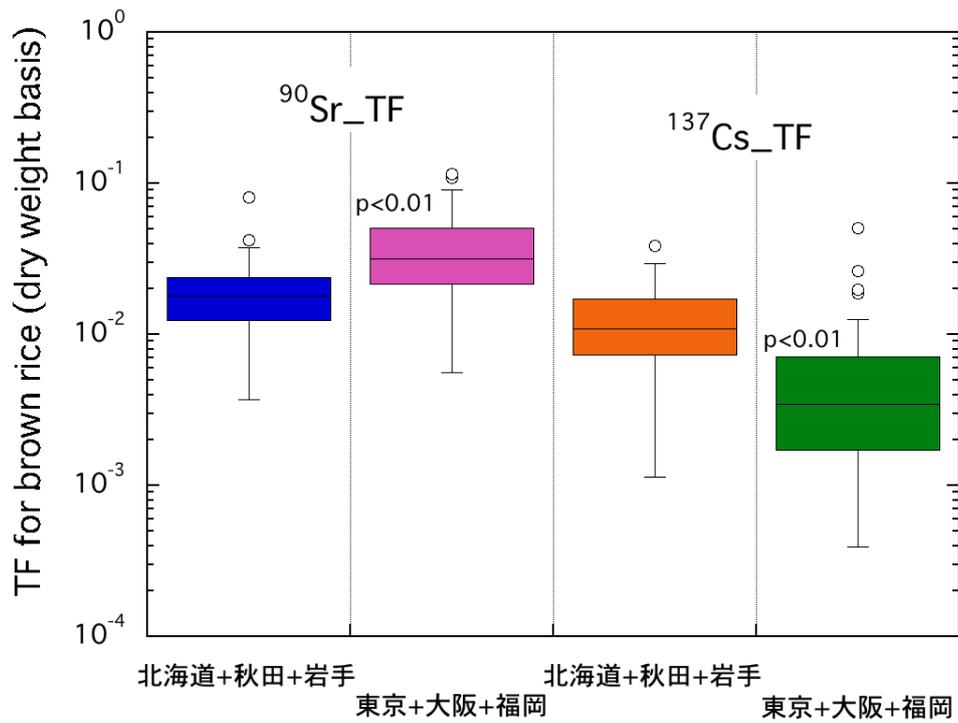


図 2.2-6 玄米への  $^{90}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$  の移行係数の気温の影響

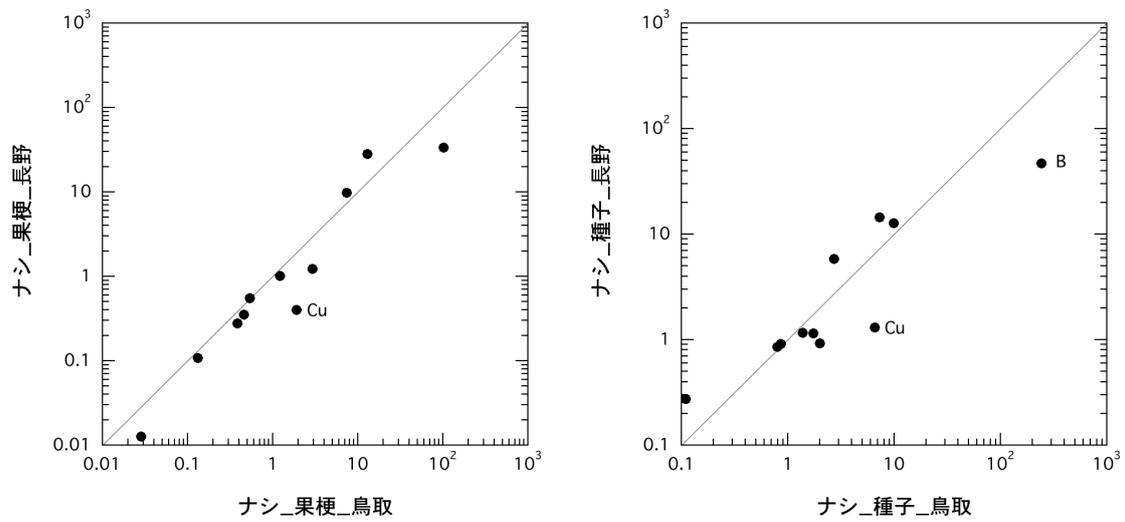


図 2.2-7. ナシの部位（果梗および種子）への元素の移行係数（長野と鳥取）

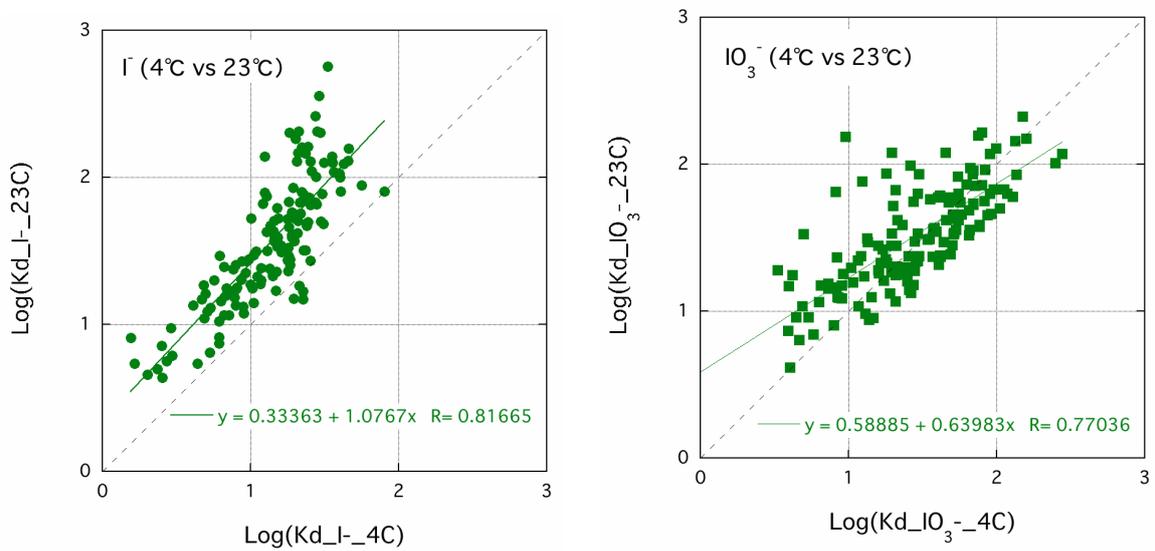


図 2.3-1. 対数変換したヨウ素 Kd 値の温度による比較（左： $\Gamma^-$ 、右： $\text{IO}_3^-$ ）

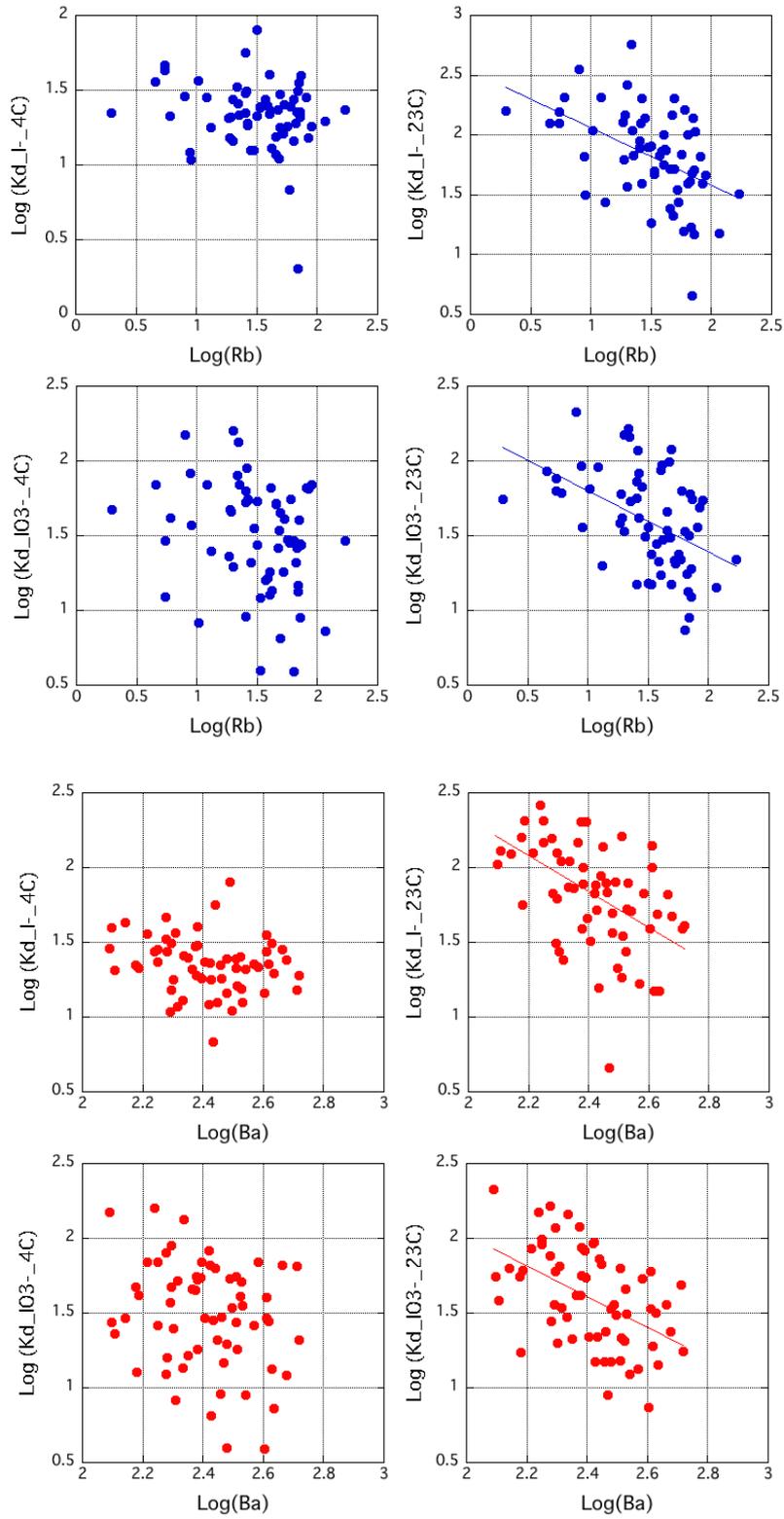


図 2.3-2. 対数変換したヨウ素 Kd 値（水田土壌）と Rb および Ba 濃度との関係

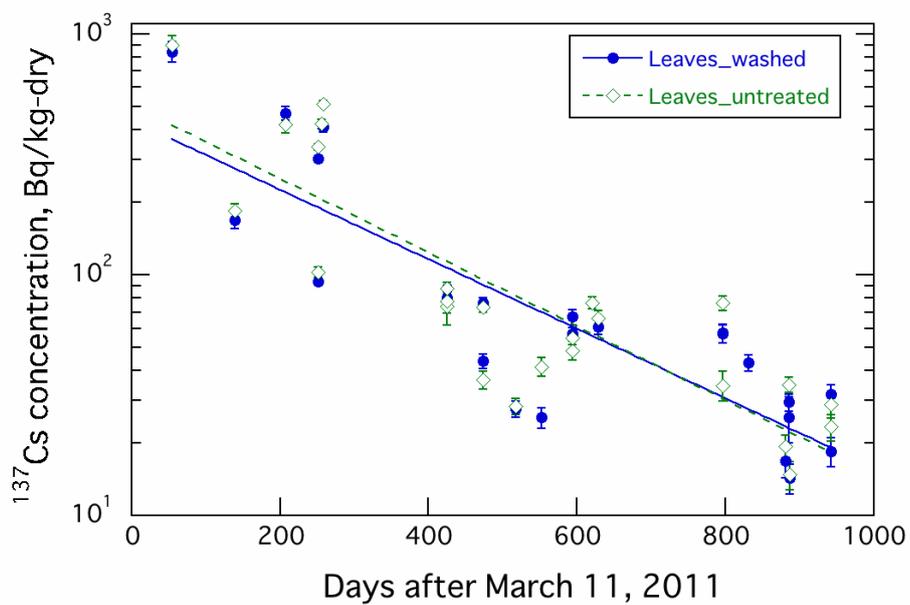


図 2.4-1. 洗浄／未処理の柿の葉中の  $^{137}\text{Cs}$  定量結果の比較と経時変化

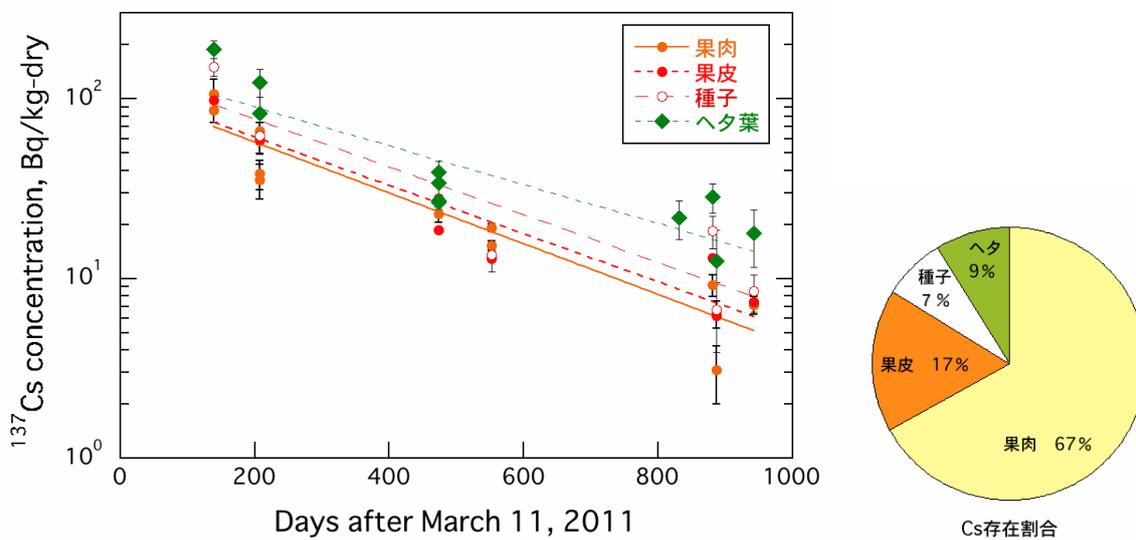


図 2.4-2. 果肉、果皮、種子およびへタ（葉）に分割した柿果実の各部位の  $^{137}\text{Cs}$  の経時変化（左）と果実中の放射性 Cs 存在割合（右）

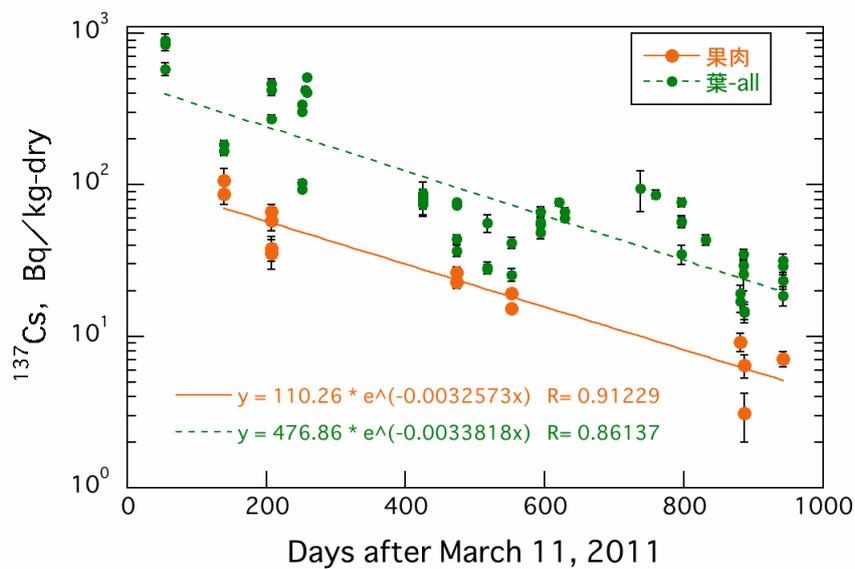


図 2.4-3. 果肉と葉中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の経時変化の比較

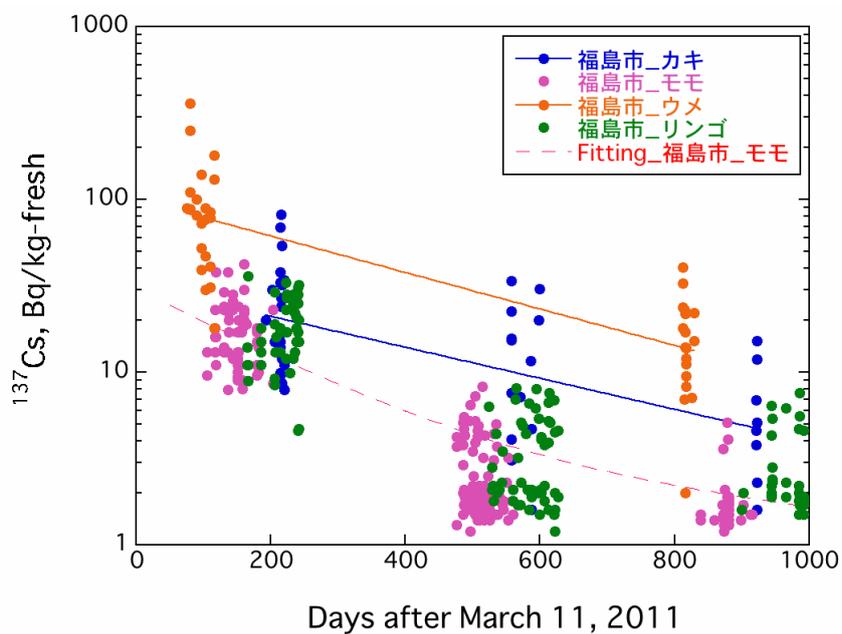


図 2.4-4. 食品モニタリングデータ（厚生労働省発表）による福島市で収穫された果実中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の経時変化

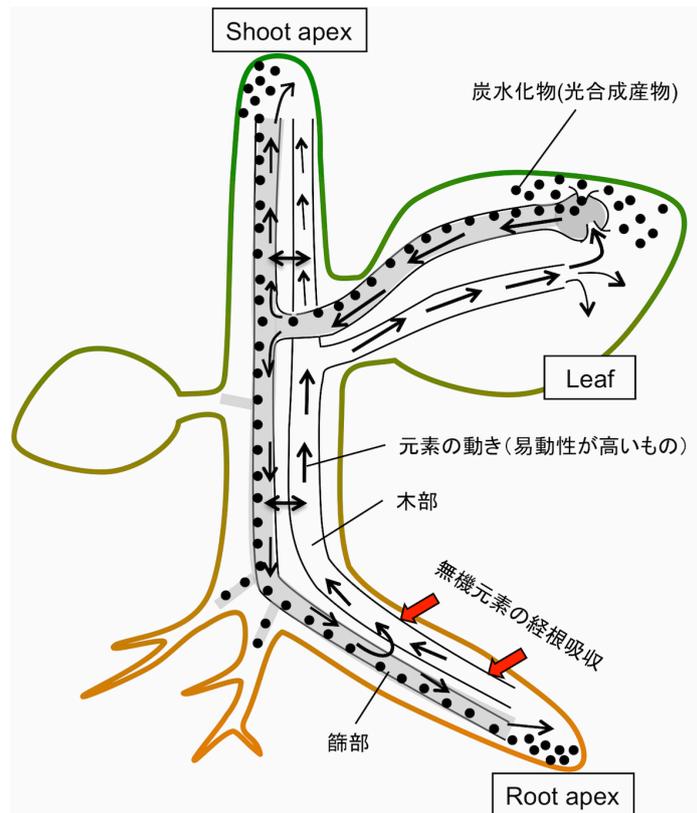


図 2.4-5. 植物の養分循環の模式図

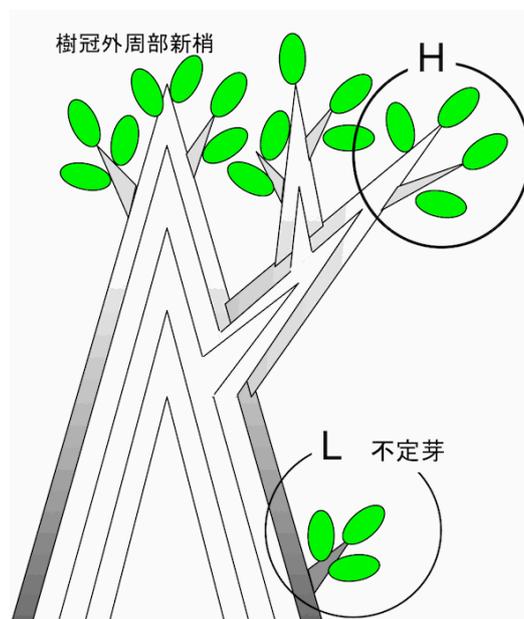


図 2.4-6. 葉のサンプリング位置

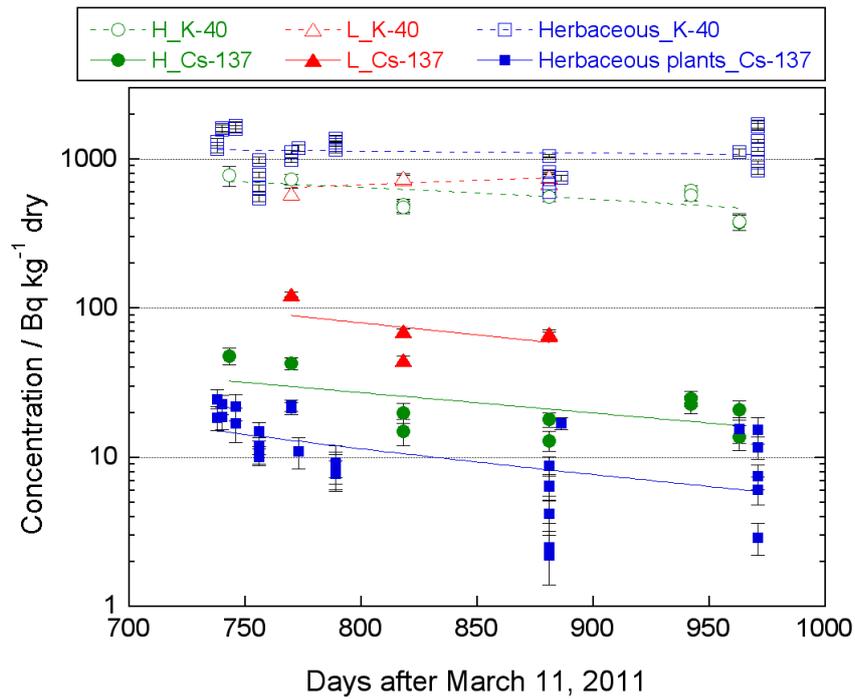


図 2.4-7. サクラの葉 (L および H 位置) の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の経時変化 (2013 年)

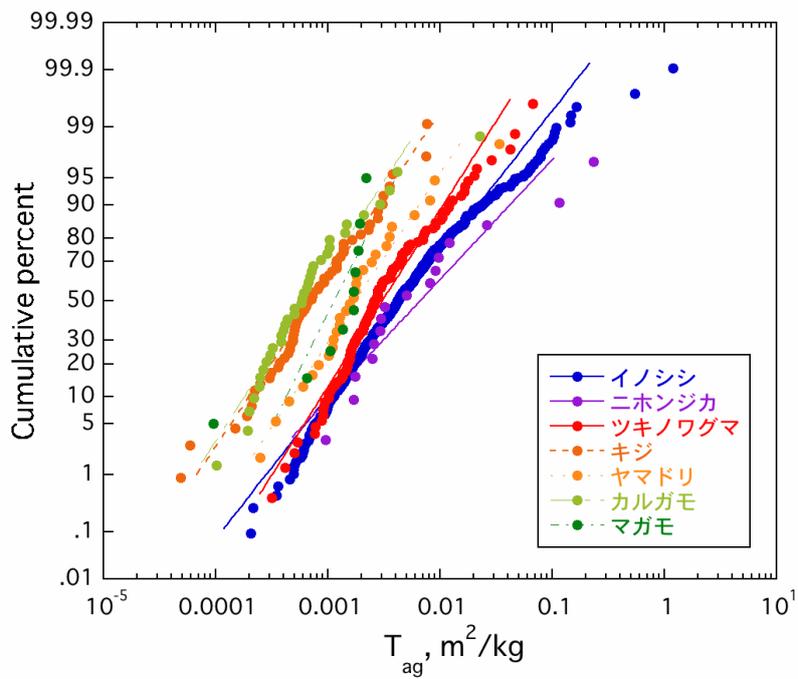


図 2.4-8. 野生動物への面積当たりの移行係数 ( $T_{ag}$ ) データの度数分布

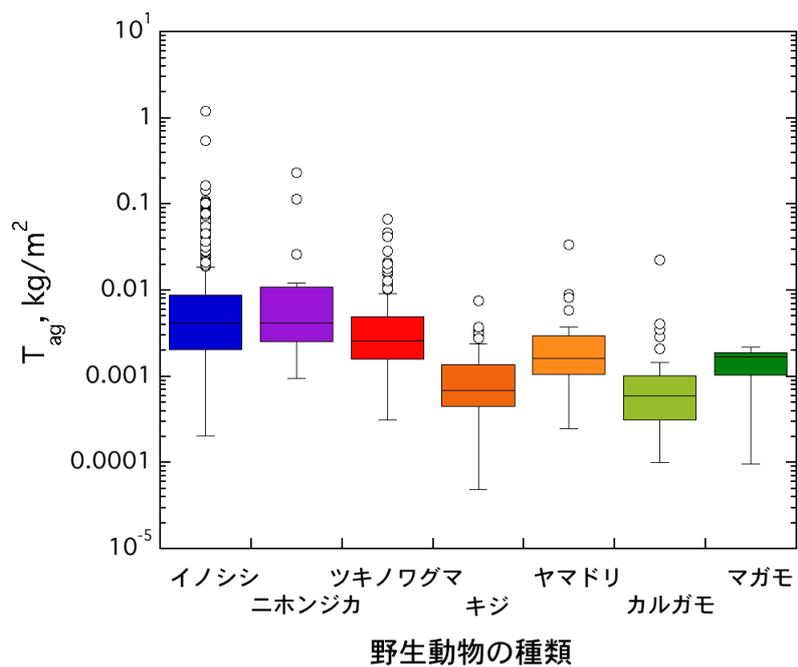


図 2.4-9. 各野生動物中の  $T_{ag}$  の比較

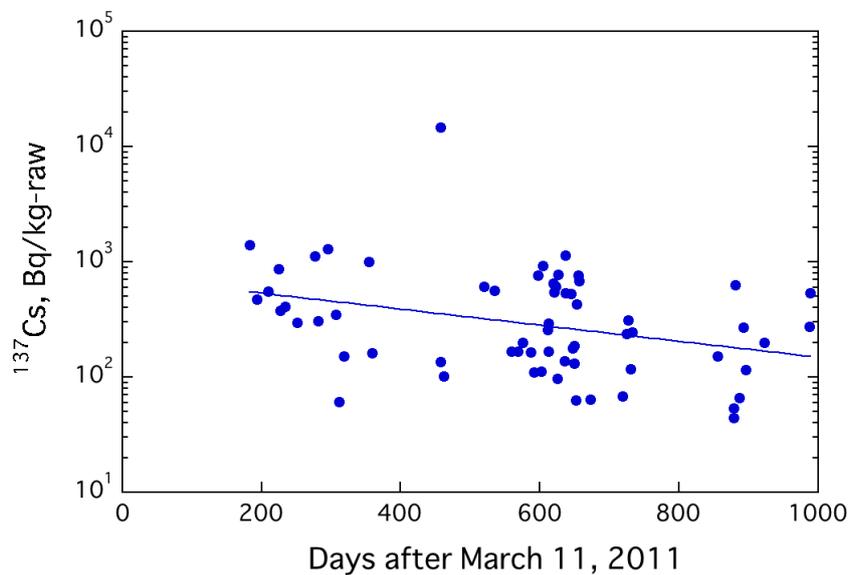


図 2.4-10. ある採取エリアにおけるイノシシ中の <sup>137</sup>Cs 濃度の経時変化

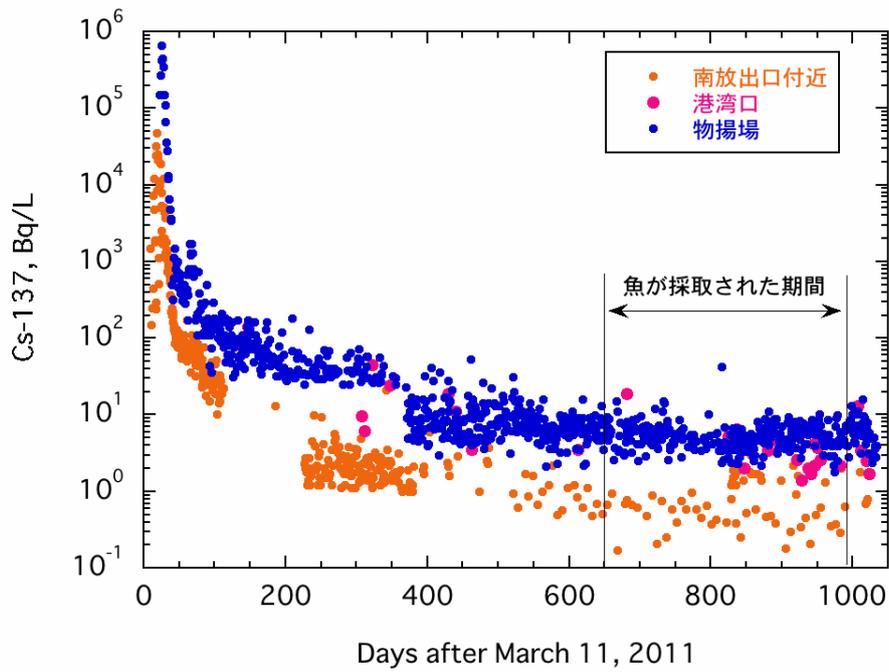


図 2.4-11. 港湾内海水中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の経時変化

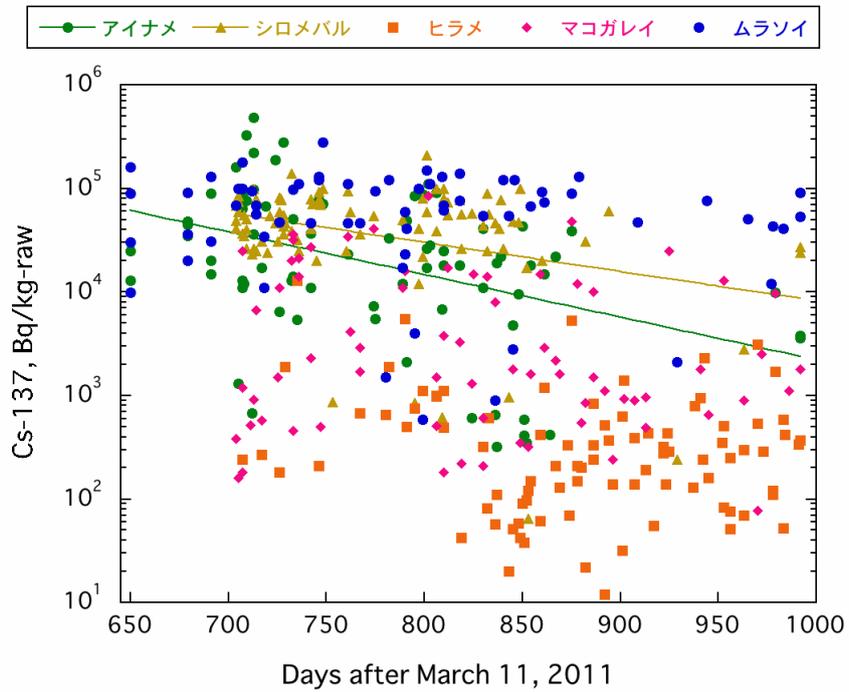


図 2.4-12. 港湾内の 5 種類の魚類中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の経時変化



写真 2.4-1 調査対象とした柿の樹。3本が半径 5m 以内に植生



写真 2.4-2. サンプルングに用いた柿の実

## 第3章 放射性炭素の移行パラメータに対する 微生物活動の影響調査

### 3. 1. はじめに

使用済み核燃料の再処理施設や MOX 燃料加工施設の操業に伴い発生する「超ウラン核種を含む放射性廃棄物 (TRU 廃棄物)」には、種類や性状そして放射能レベルの異なる放射性廃棄物が含まれる。なかでも放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) は物理的半減期が約 5730 年と長く、そして処分場を構成する人工バリア材や母岩への収着率が小さいことから、TRU 廃棄物の被ばく線量の概算において線量支配核種と評価されている (核燃料サイクル開発機構, 電子事業連合会, 2000)。 $^{14}\text{C}$  を含む長半減期放射性核種の地層処分における最終的な目標は、遠い将来にわたって放射性廃棄物が人間とその生活環境に影響を及ぼさないようにすることである。長期的安全性が求められる地層処分では、大きく分けて二つのシナリオ (地下水シナリオおよび近接シナリオ) により安全評価のためのシミュレーションが行われており、このうち地下水シナリオでは、処分場から漏洩した放射性核種が地下水を介して最終的にヒトの生活圏へと移行することが想定されている (核燃料サイクル機構, 1999)。したがって、 $^{14}\text{C}$  が処分場からヒトへ至るまでのプロセスを長期的な視点で評価することは必要である。本事業では、生物圏のなかでも農耕地土壌から農作物への  $^{14}\text{C}$  移行プロセスに着目している。

生物圏に到達した  $^{14}\text{C}$  の大部分は、農耕地においてガスとして大気中に放出されることが示唆されている (放射線医学総合研究所, 2013b)。標準状態 ( $25^{\circ}\text{C}$ , 1 気圧) でガス化する放射性核種は限られているため、ガス化は  $^{14}\text{C}$  の特徴的な環境移行プロセスと言える。環境移行パラメータとしてよく利用される土壌溶液-土壌間分配係数や土壌-農作物間移行係数は、ガス化を考慮しておらず、したがって、 $^{14}\text{C}$  の移行プロセスの評価においてガス化を考慮した新たな環境挙動パラメータの提案が望まれる。

これまでの本事業の成果として、 $^{14}\text{C}$  のガス化は主に微生物の作用により起こることが分かってきた (放射線医学総合研究所, 2013b)。つまり、農耕地における  $^{14}\text{C}$  の移行プロセスは、微生物の代謝活性に強く依存していると言える。近年、温暖化や寒冷化といった将来的な地球環境の変化が示唆されているが (Frölicher et al., 2014)、微生物代謝活性は温度の変化に対して敏感に反応する (Castro et al., 2010; Schindlbacher et al., 2011)。このことから、温暖化や寒冷化による平均気温の変化が  $^{14}\text{C}$  のガス化にも影響することが懸念される。また、微生物の代謝活動は気温の変化以外にも、湿度、pH、酸化還元電位、栄養環境など様々な物理化学的要因にも影響される。したがって、微生物の活動指標となる代謝活性はこれらの影響も統括的に評価できる  $^{14}\text{C}$  の新たな移行パラメータとして利用できる可能性がある。

本調査は、微生物の代謝活性と  $^{14}\text{C}$  のガス化との関係を検討し、新たな環境移行パラメ

ータを提案することを目的とする。この目的を達成するためにはガス化した<sup>14</sup>Cを定量する必要がある。これまでは間接的に<sup>14</sup>Cのガス化を評価してきたが、本年度はガス化した<sup>14</sup>Cを直接測定する方法について検討した。また、<sup>14</sup>Cのガス化に係わる代謝活性として呼吸活性に着目し、土壌微生物の呼吸活性測定法についても検討した。さらに、ガス化した<sup>14</sup>Cの農作物への移行評価モデルを構築するために、水稻による大気からの<sup>14</sup>Cの取り込みについて文献調査を行った。この調査で得られた知見を基に、気温、CO<sub>2</sub>濃度の影響を考慮したモデルを構築し、これまで本事業で構築された水稻全体モデルに組み込み、パラメータの妥当性を検証するための感度解析を行った。

### 3. 2. ガス化した<sup>14</sup>Cの直接測定

TRU 廃棄物に含まれるハルやエンドピース等から放出される<sup>14</sup>Cの化学形態は、酢酸、ギ酸、ホルムアルデヒド、メタノールなどの低級炭化水素化合物であることが知られている (Kaneko et al., 2003)。いずれの化合物に含まれる<sup>14</sup>Cも、農耕地環境においてその大部分がガスとして大気中に放出されるため、ガス化は<sup>14</sup>Cの特徴的な環境挙動であり、ガス化した<sup>14</sup>Cの定量は重要な課題である。本事業では、これまで間接的方法により<sup>14</sup>Cのガス化を評価してきた。つまり、試料中の<sup>14</sup>C初期添加量と培養後の固相および液相に残った<sup>14</sup>C量の差として<sup>14</sup>Cのガス化を評価してきた。しかしながら、この様に重要な移行経路である<sup>14</sup>Cのガス化については、直接的に測定することが望まれる。また、間接法ではガス化した<sup>14</sup>Cの化学形態等の情報が得られないが、直接法では炭酸ガスとそれ以外のガスに分別して測定することが可能である。炭酸ガスは光合成により農作物に取り込まれる可能性があるため、最も着目すべき化学形態である。以上の理由から、ガス化した<sup>14</sup>Cを直接測定する方法について検討した。

#### 3.2.1. 土壌試料と培養条件

2005年12月、奈良県天理市の水田より採取した土壌を用いて試験を行った。試験を行う前に、採取土壌は風乾し、2 mmメッシュの標準ふるいで礫を除いた。これを土壌試料とし(図 3.2-1)、試験に用いるまでポリプロピレン容器に入れ室温で保管した。なお、本章第2節では試料毎に特定の用語を用いている。混乱を避けるため各用語の一覧を表 3.2-1に示す。

土壌試料の基本情報を表 3.2-2に記す。それぞれの分析方法は次の通りである。粒径分布は土の粒度試験方法(JIS A 1204)に準拠した方法で測定した。pH(H<sub>2</sub>O)は、10 gの土壌試料を25 mLの純水に懸濁して1時間静置した後、再び軽く懸濁し、そこにpH計を浸し測定した。塩基置換容量はセミマイクロ Schollenberger 法およびインドフェノールブルー吸光光度法により測定した。つまり、土壌試料を酢酸アンモニウムで飽和することにより交換性陽イオンをアンモニウムイオンで置換し、塩化ナトリウムでそのアンモニウムイオン

を抽出、抽出されたアンモニウムイオンを定量した。C含量とN含量はCHNコーダー(MT-6, ヤナコテクニカルサイエンス株式会社)で測定した。

本試験で使用した土壌試料は、我が国の水田でよく見られる灰色低地土に分類される土壌であった。FAO-UNESCO 分類方式では Fluvisol に分類された。この土壌の土性区分は、粘土含量が 13.8%と低く、一方で砂(粗粒砂 + 細粒砂)の含量が 70%以上と高いことから砂壤土と分類された。奈良県の土壌診断基準によれば水田の塩基置換容量は  $15 \text{ cmol}(+) \text{ kg}^{-1}$  が推奨されているが(奈良県, 2014), この試験に用いた土壌は  $11.3 \text{ cmol}(+) \text{ kg}^{-1}$  と、わずかに基準値より低い値であった。つまり、奈良県が推奨する一般的な水田より保肥力がわずかに小さい土壌といえる。これは土壌中の砂含量が比較的多かったことに起因していると考えられる。このような特性の土壌を用いて、ガス化した  $^{14}\text{C}$  の直接測定法について検討した。

$^{14}\text{C}$  ガスを発生させるために湛水土壌試料を作成した。作成には 0.5 g の土壌試料と 5 mL の  $^{14}\text{C}$  標識酢酸溶液(約  $1.7 \text{ kBq mL}^{-1}$ )を用い、これらを 50 mL 容の褐色ガラスバイアル(図 3.2-2, 試験バイアル)において混合し、湛水状態とした。 $^{14}\text{C}$  標識酢酸溶液は、American Radiolabeled Chemicals, Inc.から購入した Acetic acid, sodium salt[1,2- $^{14}\text{C}$ ] (ARC 0173A)を脱イオン水あるいは 0.1 mM 酢酸溶液と混合することで準備した。このようにして準備した湛水土壌試料はブチルゴムで密栓し、 $25^\circ\text{C}$  で 7 日間、160 rpm の速度で振とう培養した。培養日数であるが、平成 24 年度までの事業において  $^{14}\text{C}$  の固・液・気相への分配率試験は培養後 7 日目に測定されていたので(放射線医学総合研究所, 2013b), これに合わせた。試験は繰り返し 3 回行った。

### 3.2.2. 各相に分配された $^{14}\text{C}$ 放射能の回収と測定方法

培養後、固相、液相、および気相に分配された  $^{14}\text{C}$  の測定を行った。ここでは試料調整方法と濃度測定方法について述べる。本節で用いた数式の記号については表 3.2-3 にまとめた。

#### 3.2.2.1 液相中の $^{14}\text{C}$ の回収と測定

液相中の  $^{14}\text{C}$  を測定するため、培養後の湛水土壌試料から液相を回収した。はじめに湛水土壌試料の一部を GF/F フィルターでろ過した(図 3.2-3)。GF/F フィルターは溶存態と懸濁態を分離するためによく利用されるガラス繊維フィルターであり(Panagiotopoulos et al., 2012),  $0.7 \mu\text{m}$  以上の粒子保持能力を有する。但し、湛水土壌試料には  $0.7 \mu\text{m}$  以下の微粒子も含まれるため、これら微粒子を除くためにろ液を遠心分離( $3,780 \times \text{g}$ , 10 分)した。沈殿した微粒子は目視でも確認できた(図 3.2-4)。さらに遠心分離後の上清を  $0.2 \mu\text{m}$  孔径のセルロースアセテイトメンブランフィルターでろ過した。最終的に得られたろ液をろ液測定試料とした(図 3.2-5)。 $^{14}\text{C}$  測定のために、1 mL のろ液測定試料と 17 mL の液体シン

チレーションカクテル Ultima Gold LLT (PerkinElmer Japan) を混合し、液体シンチレーションカウンタ (Tri-Carb 3100TR, PerkinElmer Japan) で  $^{14}\text{C}$  放射能を測定した。液体シンチレーションカウンタで得られる dpm (decays per minute) 値は、全てベクレル (Bq) に換算した。液相の  $^{14}\text{C}$  濃度 ( $Liq$ , Bq vial $^{-1}$ ) は式 3.2-1 より求めた：

$$Liq \text{ (Bq vial}^{-1}\text{)} = Liq_{s\_d} \times \frac{Liq_{tw}}{Liq_{s\_w}} \quad (\text{式 3.2-1})$$

ここで  $Liq_{s\_d}$  はろ液測定試料の  $^{14}\text{C}$  放射能測定値 (Bq),  $Liq_{tw}$  は湛水土壌試料の  $^{14}\text{C}$  標識酢酸溶液重量 (g vial $^{-1}$ ), そして  $Liq_{s\_w}$  は液体シンチレーションカクテルと混合したろ液試料の重量 (g) を意味する。

### 3.2.2.2 固相中の $^{14}\text{C}$ の回収と測定

固相中の  $^{14}\text{C}$  を測定するため、培養後の湛水土壌試料から固相を回収した。湛水土壌試料の一部を GF/F フィルターでろ過し、土壌をフィルター上に捕集した (図 3.2-3, 捕集土壌試料)。この捕集土壌試料から約 15 mg のサブサンプルをコンバストコーン (PerkinElmer Japan) に採取した (図 3.2-6)。捕集した土壌に含まれる全  $^{14}\text{C}$  放射能を測定することができないため、この試料からサブサンプルを採取した。土壌 (固相) は不均質な粒子の集合体であるため、サブサンプルの採取は 5 回行い、それぞれについて  $^{14}\text{C}$  を定量した。このようにして準備したサブサンプルをサンプルオキシダイザ (Model 307, PerkinElmer Japan) で 1 分間燃焼することで固相中の  $^{14}\text{C}$  を  $^{14}\text{CO}_2$  に変換し (図 3.2-7), このガスを Carbo-Sorb E (PerkinElmer Japan) で捕集した。 $^{14}\text{CO}_2$  を捕集した Carbo-Sorb E (8 mL) は液体シンチレーションカクテル Permafluor E+ (10 mL, PerkinElmer Japan) と混合し、これに含まれる  $^{14}\text{C}$  放射能を液体シンチレーションカウンタで測定した。固相の  $^{14}\text{C}$  濃度 ( $Sol$ , Bq vial $^{-1}$ ) は式 3.2-2 より求めた：

$$Sol \text{ (Bq vial}^{-1}\text{)} = (Sol_{s\_d} - Liq_{s\_d} \times \frac{Sol_{s\_tw}}{Liq_{s\_w}}) \times \frac{Sol_{tw}}{Sol_{s\_dw}} \quad (\text{式 3.2-2})$$

ここで、 $Sol_{s\_d}$  は捕集土壌試料の  $^{14}\text{C}$  放射能測定値 (Bq),  $Liq_{s\_d}$  はろ液測定試料の  $^{14}\text{C}$  放射能測定値 (Bq),  $Sol_{s\_tw}$  は捕集土壌試料の水分量 (g),  $Liq_{s\_w}$  は液体シンチレーションカクテルと混合したろ液試料の重量 (g),  $Sol_{tw}$  は湛水土壌試料の乾燥土壌重量 (g vial $^{-1}$ ), そして  $Sol_{s\_dw}$  (g) は捕集土壌試料の乾燥重量を意味する。

捕集土壌試料の乾燥重量と水分量を得るためには、この試料の含水率を求める必要がある。そこで、捕集土壌試料の一部 (含水率測定試料) を採取し、湿重量を求めた後、100°C

で 2 時間乾燥し、放冷の後、乾燥重量を求めた。得られた値をもとに、式 3.2-3 より含水率 ( $u$ ) を求めた：

$$u = \frac{S_{ww} - S_{dw}}{S_{ww}} \quad (\text{式 3.2-3})$$

ここで  $S_{ww}$  は含水率測定試料の湿重 (g),  $S_{dw}$  は含水率測定試料の乾量 (g) を意味する。さらに、捕集土壌試料の湿重 ( $Sol_{s\_ww}$ , g) と含水率測定土壌の含水率から、捕集土壌試料の乾燥重量 ( $Sol_{s\_dw}$ , g) と水分量 ( $Sol_{s\_lw}$ , g) をそれぞれ式 3.2-4 および式 3.2-5 より推定した。

$$Sol_{s\_dw} \text{ (g)} = Sol_{s\_ww} \times (1 - u) \quad (\text{式 3.2-4})$$

$$Sol_{s\_lw} \text{ (g)} = Sol_{s\_ww} \times u \quad (\text{式 3.2-5})$$

### 3.2.2.3 気相中の $^{14}\text{C}$ の回収と測定

気相中の  $^{14}\text{C}$  を直接測定するために、4 つの装置を準備し、最適な装置および測定条件について検討した。4 つの装置の概要を図 3.2-8 に示す。いずれの装置も培養後ヘッドスペースに蓄積した  $^{14}\text{C}$  ガスを酸素ガスで追い出し、炭酸ガス吸収剤で  $^{14}\text{CO}_2$  を回収する装置である。これらの装置は全て装置ラインにガス漏れが生じないことを確認してから試験を行った。

各装置共通の条件について述べる。はじめに、酸素ガスにより  $10 \text{ mL min}^{-1}$  の風量で 30 分間、湛水土壌試料に通気した。すなわち、1 試料当たり 300 mL の酸素ガスを通気した。湛水土壌試料の培養器の体積は 50 mL であり、ヘッドスペースはさらに容量が小さくなるため、発生した  $^{14}\text{C}$  ガスは完全に通気の下流側に流れると考えられる。装置 3 と装置 4 では、セラミック電気管状炉の直前に 30 mL の濃硫酸を設置した。これは管状炉を通す前にガスに含まれる水分を濃硫酸で吸湿し、ガスを乾燥することを目的として行った。装置 1 を除き、発生したガスをセラミック電気管状炉に通し、 $800^\circ\text{C}$  で燃焼した。また、燃焼を触媒するために管状炉に通す石英管には通気の上流側に 25 g 酸化銅 (キシダ化学株式会社)、下流側に 4 g Pt アルミナ触媒 (DASH-220, エヌ・イー ケムキャット株式会社) を封入した (図 3.2-9)。これは  $^{14}\text{CO}_2$  以外のガスを酸化し  $^{14}\text{CO}_2$  ガスとして回収することを目的に行った。ガスは管状炉を通過する間に完全に燃焼され  $^{14}\text{CO}_2$  として出てくるのが期待された。そこで、最終的に得られたガスは、約 16 g の  $1 \text{ mol L}^{-1}$  の水酸化ナトリウム溶液 3 本に連続的に通気することで捕集した。

次に、それぞれの装置の特徴について述べる。

<装置 1> 酸素ガスで追い出した  $^{14}\text{C}$  ガスを、3 連の炭酸ガス吸収剤で回収する。この

装置では  $^{14}\text{CO}_2$  発生量を直接測定できる他、初期添加  $^{14}\text{C}$  量から固相、液相、および  $^{14}\text{CO}_2$  量の差として  $^{14}\text{CO}_2$  以外のガス発生量も間接的に見積もることが可能である。但し、 $^{14}\text{C}$  の回収率が 100%であることを前提としていることに注意が必要である。本装置は管状炉の効果を確認するためのコントロールとしても利用した。

<装置 2> 湛水土壤試料で発生した  $^{14}\text{C}$  ガスを管状炉で燃焼し、全て  $^{14}\text{CO}_2$  として回収する。発生したガスは全て燃焼するため、発生したガスの化学形態に関する情報は得られないが、精度の高い  $^{14}\text{C}$  の回収率が期待される。

この装置を用いてキャリアの効果についても検討した。つまり、脱イオン水で希釈した [1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウムを用いた試験を行うとともに、脱イオン水の代わりに 0.1 mM の酢酸ナトリウム溶液で希釈した [1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウムを用いた試験も行った。

<装置 3> 管状炉におけるガスの不完全燃焼をできる限り排除するために、管状炉の直前に濃硫酸を設置し、発生した  $^{14}\text{C}$  ガスを乾燥した。装置 2 と同様に発生したガスの化学形態に関する情報は得られないが、 $^{14}\text{C}$  の回収率については装置 2 よりもさらに精度よく求められることが期待される。

<装置 4> 湛水土壤試料で発生した  $^{14}\text{C}$  ガスを、まず炭酸ガス吸収剤で回収し  $^{14}\text{CO}_2$  発生量を求めた後、ガスの乾燥、燃焼、 $^{14}\text{CO}_2$  ガスの回収を行う。 $^{14}\text{CO}_2$  発生量、 $^{14}\text{CO}_2$  以外のガス発生量、および精度の高い  $^{14}\text{C}$  の回収率が得られる理想的な装置と言える。但し、装置が複雑となるため、途中  $^{14}\text{C}$  の消失の可能性が高くなることに注意する必要がある。

以上の装置を用いて気相中の  $^{14}\text{C}$  を回収、測定した。すなわち、 $^{14}\text{CO}_2$  ガスを捕集した炭酸ガス吸収剤から 4~6 mL を回収し、液体シンチレーションカクテル (Hionic-Fluor, PerkinElmer Japan) と混合して総体積 18 mL とした後、液体シンチレーションカウンタで  $^{14}\text{C}$  放射能を測定した。この操作は各装置に接続した全ての炭酸ガス吸収剤でそれぞれ行った。つまり、装置 1 から装置 3 は 3 本、装置 4 は 4 本の炭酸ガス吸収剤に含まれる  $^{14}\text{C}$  を測定した (図 3.2-8)。得られたデータをもとに、式 3.2-6 式から気相の  $^{14}\text{C}$  濃度 ( $Gas$ , Bq  $\text{vial}^{-1}$ ) を求めた：

$$Gas \text{ (Bq } \text{vial}^{-1}\text{)} = \sum_{i=1}^4 Gas_{si\_d} \times \frac{Gas_{twi}}{Gas_{si\_w}} \quad (\text{式 } 3.2-6)$$

ここで、 $Gas_{si\_d}$  は各装置の  $i$  番目の炭酸ガス吸収剤の  $^{14}\text{C}$  放射能測定値 (Bq)、 $Gas_{twi}$  は  $i$  番目の炭酸ガス吸収剤の重量 (g  $\text{vial}^{-1}$ )、そして  $Gas_{si\_w}$  はシンチレーションカクテルと混合した  $i$  番目の炭酸ガス吸収剤の重量 (g) を意味する。最終的に各炭酸ガス吸収剤で吸収された  $^{14}\text{C}$  放射能の総和として気相中の  $^{14}\text{C}$  量を求めた。

### 3.2.3. 水酸化ナトリウム吸収剤と液体シンチレーションカクテルの混合割合

本試験では  $^{14}\text{CO}_2$  を捕集した水酸化ナトリウム溶液から 4~6 mL を採取し、これに総体積が 18 mL となるように Hionic-Fluor を添加し  $^{14}\text{C}$  放射能測定試料とした。PerkinElmer 社の公開資料によれば 10 mL の Hionic-Fluor による 0.5~4 M NaOH の保持量は約 1.1 mL であり (PerkinElmer, 2014), 我々の混合割合よりも小さい。そこで、本試験を行う前に、我々の混合割合でも  $^{14}\text{C}$  が測定できているか確認した。

試験に使用した試料および放射能の測定結果を表 3.2-4 に示す。本試験は独立して 3 回繰り返し行った。いずれの測定値も  $1.4 \times 10^4$  dpm であり、分散分析でも差は認められなかった。したがって、本試験の混合割合でも  $^{14}\text{C}$  放射能が正確に測定できていることが確認できた。

#### 3.2.4. 各相における $^{14}\text{C}$ 量と回収率

上述の各装置において、土壌に添加した [1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウムの  $^{14}\text{C}$  が、培養後、液相、固相、気相に分配された量を調査した。また  $^{14}\text{C}$  の初期添加量に対する回収率を求めることにより、最も効率よく  $^{14}\text{C}$  を回収できる装置について調査し、ガス化した  $^{14}\text{C}$  の直接測定に最適な装置の判断材料とした。

##### 3.2.4.1 装置 1 の結果

装置 1 で得られた測定値を表 3.2-5 に示す。本装置では湛水土壌試料から発生したガスを、直接  $\text{CO}_2$  吸収剤に通気した。この吸収剤に捕集された  $^{14}\text{C}$  は、最上流の吸収剤 (吸収剤 1) で最も多く  $1.5 \times 10^3 \pm 6.6 \times 10^1$  Bq であった。吸収剤 2 でも  $1.1 \times 10^1 \pm 1.4 \times 10^1$  Bq とわずかに  $^{14}\text{C}$  が検出されたが、吸収剤 3 では  $6.0 \times 10^{-1} \pm 2.2 \times 10^{-1}$  Bq と無視できるレベルまで減少した。以上の結果から、1M NaOH を  $\text{CO}_2$  吸収剤として用いる場合、少なくとも 2 連以上で  $\text{CO}_2$  の吸収を行う必要があることが分かった。

表 3.2-5 に示した測定値から求めた各相における  $^{14}\text{C}$  の濃度および  $^{14}\text{C}$  回収率を表 3.2-6 に示す。培養 7 日目における液相、固相、気相中の  $^{14}\text{C}$  濃度はそれぞれ  $5.1 \times 10^2 \pm 1.9 \times 10^1$  Bq vial<sup>-1</sup>,  $2.8 \times 10^3 \pm 4.2 \times 10^1$  Bq vial<sup>-1</sup>,  $3.9 \times 10^3 \pm 2.1 \times 10^2$  Bq vial<sup>-1</sup> であった。この結果は湛水土壌試料中の  $^{14}\text{C}$  は 7 日間の培養で主にガスとして気相へ移行したことを示しており、以前の調査結果と一致する (放射線医学総合研究所, 2009)。

$^{14}\text{C}$  の回収率は  $87.2 \pm 3.0\%$  で、残り 12.8% の  $^{14}\text{C}$  を回収することができなかった。 $^{14}\text{CO}_2$  として回収した  $^{14}\text{C}$  は 47.3% であったため、例え回収できなかった 12.8% が  $\text{CO}_2$  以外のガスであったとしても、湛水土壌試料から発生したガスの主成分は  $^{14}\text{CO}_2$  であると言える。未回収の  $^{14}\text{C}$  はガスを燃焼することで回収できることが期待される。

##### 3.2.4.2 装置 2 の結果

装置 2 で得られた測定値を表 3.2-7 に、これらの測定値から求めた各相における  $^{14}\text{C}$  の濃

度および $^{14}\text{C}$ 回収率を表 3.2-8 に示す。

湛水土壌試料からは $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスも発生している可能性があるため、発生したガスを $800^\circ\text{C}$ で酸化したのち、 $\text{CO}_2$ 吸収剤に通気した。装置1で回収できなかった $^{14}\text{C}$ はガスを燃焼することで回収できると期待したが、測定値はいずれも装置1と同様の値であった。そのため、培養7日目における各相の $^{14}\text{C}$ 濃度も装置1と同様の値であった。この装置の配管においてガス漏れは無かったことを確認しており、このことから回収できなかった12.3%の $^{14}\text{C}$ は、ガス漏れが原因で回収できなかったのではないと言える。以上の結果から、本装置においてガス燃焼の効果が無かったこと、そして $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスはほとんど発生しなかったことが考えられる。今後、回収できなかった $^{14}\text{C}$ の原因について詳細に検討する必要がある。

#### 3.2.4.3 装置3の結果

装置3で得られた測定値を表 3.2-9 に、これらの測定値から求めた各相における $^{14}\text{C}$ の濃度および $^{14}\text{C}$ 回収率を表 3.2-10 に示す。

本装置では湛水土壌試料から発生したガスを濃硫酸に通すことでガスの乾燥を試み、装置2で回収できなかったガスが回収できることを期待した。しかしながら、 $^{14}\text{C}$ の回収率は77.5%とこれまで検討した装置のなかで最も低い値であった。この装置において、液相および固相の $^{14}\text{C}$ 濃度は、それぞれ $5.4 \times 10^2 \pm 6.0 \times 10^1 \text{ Bq vial}^{-1}$ および $2.6 \times 10^3 \pm 1.1 \times 10^2 \text{ Bq vial}^{-1}$ であり、これらの値は装置1および装置2における $^{14}\text{C}$ 濃度とほとんど差が無かった。一方、装置3における気相の $^{14}\text{C}$ 濃度は $3.4 \times 10^3 \pm 2.8 \times 10^2 \text{ Bq vial}^{-1}$ で、装置1および装置2の気相における $^{14}\text{C}$ 濃度と比較して $500 \text{ Bq vial}^{-1}$ 程度低い値であった。したがって、気相における $^{14}\text{C}$ の低い回収率が装置3における低い回収率の原因と言える。装置3と装置1および装置2との違いは濃硫酸への通気であることから、この操作が低い回収率の原因と考えられる。

#### 3.2.4.4 装置4の結果

装置4で得られた測定値を表 3.2-11 に、これらの測定値から求めた各相における $^{14}\text{C}$ の濃度および $^{14}\text{C}$ 回収率を表 3.2-12 に示す。

本装置では湛水土壌試料の直後に設置した $\text{CO}_2$ 吸収剤（吸収剤1）に一度発生したガスを通気し（図 3.2-8）、 $^{14}\text{CO}_2$ とそれ以外のガスに分離した。吸収剤1で捕集された $^{14}\text{C}$ の濃度は、表 3.2-11 の吸収剤1の重量、測定試料重量、および放射能から $3.5 \times 10^3 \pm 4.1 \times 10^2 \text{ Bq vial}^{-1}$ と計算され、これは $^{14}\text{C}$ 初期添加量の41.2%に相当する。この回収率は装置1の吸収剤1における $^{14}\text{C}$ 回収率、約47%より6%程度低い値であった。装置1や装置2の結果からも明らかのように、湛水土壌から発生したガスは本試験で準備した $\text{CO}_2$ 吸収剤1本では十分に吸収しきれない可能性がある。装置4では湛水土壌試料直下に $\text{CO}_2$ 吸収剤を1本しか

準備しておらず、そのために発生した  $^{14}\text{CO}_2$  ガスの一部が下流に流れた可能性がある。

下流に流れたガスは濃硫酸で乾燥したのち管状炉で酸化し、 $^{14}\text{CO}_2$  として3本の  $\text{CO}_2$  吸収剤（吸収剤2～4）で  $^{14}\text{C}$  を回収した。吸収剤2から4で捕集された  $^{14}\text{C}$  放射能はそれぞれ  $7.8 \times 10^0$ ,  $4.8 \times 10^{-1}$ ,  $4.4 \times 10^{-1}$ , であり、これを容器当たりの平均濃度に換算すると、それぞれ  $30.4 \text{ Bq vial}^{-1}$ ,  $1.8 \text{ Bq vial}^{-1}$ ,  $1.7 \text{ Bq vial}^{-1}$  となった。つまり、これら3本の吸収剤で約  $34 \text{ Bq}$  の  $^{14}\text{C}$  が回収できたと試算された。これは  $^{14}\text{C}$  初期添加量の  $0.4\%$  であり、吸収剤1で捕集された  $^{14}\text{C}$  に吸収剤2から吸収剤4で捕集された  $^{14}\text{C}$  を加えても回収率は向上しなかった。ただし、この結果から湛水土壌試料で発生した  $^{14}\text{CO}_2$  の一部が吸収剤1を通過して下流に流れた可能性を否定することはできない。装置3の結果から濃硫酸は回収率を低下させる可能性があるため、吸収剤2から4で捕集された  $^{14}\text{C}$  は過小評価している可能性があることに注意しなければならない。

### 3.2.5. 回収率の向上

装置1から装置4を用いた試験において、 $^{14}\text{C}$  の回収率は最高でも  $90\%$  に達しなかった。そこで回収率向上のためキャリアの効果と  $\text{CO}_2$  吸収剤の効果について検討した。

#### 3.2.5.1 キャリアの効果

回収率装置1から装置4で用いた湛水土壌試料には、酢酸キャリアが含まれないためにトレーサーとして添加された  $[1,2-^{14}\text{C}]$  酢酸ナトリウムが器壁に付着するなど、本来とは異なる挙動をした可能性がある。その結果、 $90\%$  に満たない回収率となったのかもしれない。そこで、キャリアとして  $0.1 \text{ mM}$  の酢酸ナトリウム溶液を用いて湛水土壌試料を作成し、装置2を用いて試験を行った。得られた測定値と、測定値から得られた各相における  $^{14}\text{C}$  の濃度と回収率をそれぞれ表3.2-13と表3.2-14に示す。液相、固相、気相の  $^{14}\text{C}$  濃度はそれぞれ  $4.8 \times 10^2 \pm 5.0 \times 10^1 \text{ Bq vial}^{-1}$ ,  $2.7 \times 10^3 \pm 3.0 \times 10^2 \text{ Bq vial}^{-1}$ ,  $4.0 \times 10^3 \pm 4.9 \times 10^1 \text{ Bq vial}^{-1}$  で、回収率は  $85.8 \pm 3.4\%$  であった。これらの値はいずれもキャリアを含まない装置2の結果（表3.2-8）とほぼ一致した。以上の結果から、キャリアの有無は回収率に影響しないことが分かった。

#### 3.2.5.2 $\text{CO}_2$ 吸収剤の効果

本試験において、最終的に得られた  $^{14}\text{CO}_2$  は  $1 \text{ M NaOH}$  溶液で回収した。 $\text{NaOH}$  溶液は広く一般に利用されている  $\text{CO}_2$  吸収剤であるが、公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センターの報告によれば、 $\text{NaOH}$  は Carbo-Sorb E より液体シンチレーションカウンタによる  $^{14}\text{C}$  の検出感度が  $1.313$  倍低いとされている（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2011）。そこで  $\text{CO}_2$  吸収剤として Carbo-Sorb E の効果を検討した。検討は装置1を用い、この装置の  $\text{CO}_2$  吸収剤を  $1 \text{ M NaOH}$  溶液から Carbo-Sorb E に変更した。湛水土壌試料

はキャリアを含まない試料を準備し、7日間培養後、各相の<sup>14</sup>C放射能を液体シンチレーションカウンタで測定した。

測定の結果得られた値を表3.2-15に、これら測定値から求めた各相における<sup>14</sup>Cの濃度および<sup>14</sup>C回収率を表3.2-16に示す。Carbo-Sorb Eの場合、気相中の<sup>14</sup>C濃度は $4.1 \times 10^3 \pm 1.0 \times 10^2$  Bq vial<sup>-1</sup>となりNaOHの場合よりわずかに<sup>14</sup>C濃度が高くなったが、その値はNaOHの約1.05倍であった(表3.2-6, 表3.2-16)。以上の結果は、本試験の条件においてCO<sub>2</sub>吸収剤としてCarbo-Sorb Eを用いた場合も<sup>14</sup>Cの回収率の大幅な向上は期待できないことを示唆している。

Carbo-Sorb Eは有機系CO<sub>2</sub>吸収剤であり、もし有機形態の<sup>14</sup>Cガスが湛水土壌から発生した場合、それらも捕集してしまう可能性がある。また、高可燃性でありCO<sub>2</sub>捕集剤として管状炉の直前で使用した場合、引火する可能性があり危険である。この様な理由から、CO<sub>2</sub>吸収剤としては1M NaOH溶液を用いることが望ましいと考えられる。

### 3.2.6. <sup>14</sup>C直接測定の最適化

以上の結果をふまえ、<sup>14</sup>Cガスを直接測定する装置を工夫し、ガス化した<sup>14</sup>Cの直接測定実験を行った。装置の概略図を図3.2-10に示す。これは、湛水土壌試料で発生した<sup>14</sup>Cガスから<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>を1M NaOH溶液に通気することで回収し、続いて管状炉にて<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>以外のガスを酸化して<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>とし、これをCO<sub>2</sub>吸収剤(1M NaOH溶液)で捕集する装置である。

この装置を用いて測定した<sup>14</sup>Cガスの液相、固相、気相中の濃度を図3.2-11に示す。液相、固相、気相から回収された<sup>14</sup>Cの総量は $7.5 \times 10^3 \pm 4.6 \times 10^2$  Bqであり、これは初期添加した<sup>14</sup>C量の87.3%であった。この回収率は、最も回収率が良かった装置1の回収率と一致する。

気相の<sup>14</sup>Cガスは $3.8 \times 10^3 \pm 2.0 \times 10^2$  Bqであり、これは初期<sup>14</sup>C量の $44 \pm 2.0\%$ に相当する。また、<sup>14</sup>Cガスの内<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>、つまり管状炉で<sup>14</sup>Cガスを燃焼する前に1M NaOHで捕集した<sup>14</sup>Cは $3.7 \times 10^3 \pm 2.1 \times 10^2$  Bqであった。<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>以外のガス、つまり管状炉での燃焼後に捕集された<sup>14</sup>Cガスは $1.0 \times 10^1 \pm 9.6 \times 10^0$  Bqであり、これは初期<sup>14</sup>C量の $0.1 \pm 0.1\%$ に相当する。この結果からも、本試験で用いた土壌から発生したガスの主成分はCO<sub>2</sub>であることが分かった。

最適化した装置においても管状炉によるガス燃焼の効果が確認できなかった。おそらく湛水土壌を振とう培養したことが影響したと考えられる。炭酸ガス以外で発生する可能性があるガスとしてメタンが考えられるが、通常、メタンは嫌気的条件下でしか発生しない(Peters and Conrad, 1996)。したがって、本試験では培養器を振とうすることにより十分嫌気状態が発達せず、CO<sub>2</sub>が主要な発生ガスとなったと考えられる。実際の水田は嫌気的環境が発達しやすくメタンガスの発生も確認されていることから(Murase et al., 1994)、最適化した装置において管状炉は必須と考える。

### 3.2.7. まとめ

ガス化した  $^{14}\text{C}$  を直接測定する方法について検討した。湛水土壤試料から発生したガスははじめに  $\text{NaOH}$  で  $^{14}\text{CO}_2$  を捕集し、 $^{14}\text{CO}_2$  以外のガスは燃焼し  $^{14}\text{CO}_2$  としたのち  $\text{NaOH}$  で捕集する。この様な方法でガス化した  $^{14}\text{C}$  を  $^{14}\text{CO}_2$  と  $^{14}\text{CO}_2$  以外のガスとして直接測定することができた。 $^{14}\text{CO}_2$  は発生後、光合成により水稻に取り込まれる可能性がある最も注目すべき化学形態である。1M  $\text{NaOH}$  でガスを捕集する場合、ガスを2回以上  $\text{NaOH}$  溶液に通気する必要があることが分かった。また、本トレーサ実験においてキャリアは特に必要無いこと、 $\text{NaOH}$  は  $^{14}\text{CO}_2$  の捕集および  $^{14}\text{C}$  放射能測定において Carbo-Sorb E と同程度の能力を発揮することが分かった。しかしながら本試験で確立した方法における  $^{14}\text{C}$  の回収率は90%未満であり、さらなる回数率向上の余地がある。

## 3. 3. $^{14}\text{C}$ ガス化率の指標として土壤微生物酵素活性測定法の検討

### 3.3.1. はじめに

TRU 廃棄物から放出される  $^{14}\text{C}$  には酢酸、ギ酸、ホルムアルデヒド、メタノール、エタノールなど、低級炭化水素化合物が含まれていることが報告されている（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2004）。過去の調査において、生物圏に移行した低分子有機形態の  $^{14}\text{C}$  の多くは、ガスとして放出されることが分かっており、ガス化の要因として土壤微生物が挙げられている。微生物に取り込まれた有機物は、呼吸を通して炭酸ガスとして放出される可能性が報告されている（放射線医学総合研究所, 2013b）。地表付近に到達した低級有機炭素化合物は、微生物に取り込まれ、呼吸による酸化で二酸化炭素としてガスとして細胞外へ排出されると考えられている。したがって、ガスとして放出された  $^{14}\text{C}$  の植物への移行経路として、光合成による二酸化炭素の吸収も考慮する必要がある。現在、土壤から植物への移行係数は、従来通り土壤と植物中の濃度比から求められている。しかし、それは土壤から近傍大気への放出を介した  $^{14}\text{C}$  の移行経路を考慮したものではない。 $^{14}\text{C}$  のガス化率や放出されたガスの吸収効率等は環境要因によって左右され、その移行係数は単純に土壤-植物中の濃度比から算出出来ない可能性がある。そのため、まず新たに指標を設定し、近傍大気を媒体とした移行の端緒となるガス化率を評価することが重要である。

これまでに、土壤微生物が  $^{14}\text{C}$  のガス化率に著しい影響を及ぼすことが示されてきたが（放射線医学総合研究所, 2013b）、微生物を用いて、ガス化率などの  $^{14}\text{C}$  の生物圏での挙動を評価する手法はまだ確定されていない（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2010）。微生物活動の影響は、温度や栄養分など様々な環境要因に左右される。それゆえ、長期の安全評価においては、その影響を統括的に評価する事が必要である。土壤微生物と  $^{14}\text{C}$  ガス化率の関係を示す事が可能であれば、土壤微生物活性をガス化率の指標とし、 $^{14}\text{C}$  の移行モデルの高度化に有用になりうる。本調査では、 $^{14}\text{C}$  のガス化率の評価指標として、土壤微生物酵素活性の定量的測定法の検討を目的とした。

土壌微生物酵素活性測定手法の確立は、以下のように進めた。土壌酵素抽出法について文献調査を行い、測定対象となる酵素、用いる試薬、おおよその測定手順を選定した。試験前の土壌サンプルのプレインキュベーションについては、これまでに行われた<sup>14</sup>Cガス化率実験に合わせた条件を採用した。選定した試薬を用いて、酵素の抽出実験を実施し、抽出溶媒量および抽出時間等の詳細な条件を決定した。次に、選定した条件で、日本国内で収集された土壌試料中の微生物酵素活性を測定し、今調査に適したプレインキュベーション条件の見直しを実施した。

### 3.3.2. 土壌微生物酵素活性測定法の検討

#### 3.3.2.1. 微生物活性測定対象となる酵素

ガス化された有機形態の多くは二酸化炭素であることから、微生物の呼吸活性に着目した。土壌微生物の呼吸活性の測定には、二酸化炭素放出量の測定および酵素活性の測定などの方法がある。長期予測が必要な放射性炭素の移行パラメータに対する指標を確立するため、影響因子の管理が容易に実施可能で多種にわたる土壌試料を効率よく測定可能であるという点から、本調査では、室内実験による酵素活性の測定法について検討した。

Dehydrogenase（デヒドロゲナーゼ）は、生体内で、有機物質から水素を離脱させる反応（脱水素反応）を触媒する酵素の総称である。この反応は土壌微生物の呼吸経路および電子伝達系に関わるものである。また、デヒドロゲナーゼは生体細胞外には蓄積されず細胞内にのみ存在することから、土壌微生物呼吸活性の測定対象として適当であると考えられた（Shukla and Varma, 2011）。

デヒドロゲナーゼは、土壌中の生物活性の指標として一般的に利用されており、その測定にはテトラゾリウム塩が用いられる。テトラゾリウム塩は電子受容体として働き、脱水素酵素などが存在すると有色のホルマザンに還元される（Rossel et al., 1996）。複数あるテトラゾリウム塩の中で、土壌中のデヒドロゲナーゼの測定に広く用いられてきた試薬には、トリフェニルテトラゾリウムクロライド: 2,3,5-triphenyltetrazolium chloride [TTC] およびヨードテトラゾリウムクロライド: 2-(p-iodophenyl)-3(p-nitrophenyl)-5-phenyl tetrazolium chloride [INT]がある（Rossel et al., 1996; Welp, 1999）。2種類のテトラゾリウム塩について、比較検討するため文献調査を行った（Mersi and Schinner, 1991; Mukhopadhyay and Maiti, 2010）。

TTCは水・エタノールに可溶で、還元されると白色から不溶性で赤色のトリフェニルホルマザン（TPF）に変化する。生成したTPFはエタノールやイソプロパノールなどで抽出でき、生成量は分光光度計での測定が可能である。しかし、TPFは光感応性であるため、測定中は遮光する必要がある（Jones and Humphrey, 1978）。TTCを試薬として用いてデヒドロゲナーゼを測定した結果に不良が認められた。その理由として以下の事が挙げられている：（1）TTCの毒性がその還元を妨げる要因になっている；（2）TTCに移動できる

電子に制限がある；(3) 細胞を透過できる TTC 量に制限があるため、還元する潜在力が低い(4) 酸素と電子(水素)を競合するため、有酸素環境下では還元が阻害される(Mersi and Schinner, 1991; Mukhopadhyay et al., 2010)。

一方、INT は、水およびアルコールに多少溶解し、参加還元電位が低いため容易に還元され、不溶性の赤紫色ホルマザンとなる。INT ホルマザンは耐光性があり安定性のある化合物であるため、メタノールやエタノールまたはジメチルホルムアミドなどで容易に抽出し分光光度計で測定が可能である(Rossel et al., 1996; Welp, 1999; Mersi and Schinner, 1991)。INT は、有酸素および無酸素環境において、一定の還元反応を示す。また、TTC とは異なり毒性が低いため、好氣的呼吸の抑制は微小である(Mukhopadhyay et al., 2010)。

各試料ともに、再現性が高く、これまでに多くの土壌種を対象に試験されてきたが(Mersi and Schinner, 1991; Mukhopadhyay et al., 2010)、上述した理由から、INT がより優越した試薬であると考え、本試験に用いた。

#### 3.3.2.2. INT 試薬を用いた呼吸活性測定手順の調査

培養条件等は試料および用いる抽出溶液によって異なるため、まずは文献調査を実施し、目的に適した実験系の確立のため、以下のおおまかな実験手順を確認した。

乾燥保存した土壌試料に超純水を適量加えプレインキュベーションし、0.02~0.4%の INT 水溶液を土壌試料に添加した後(Trevors et al., 1982; Mwinyihija et al., 2006; Quilchano and Marañón, 2002; Ragusa et al., 2004)、2~6 時間培養し(Trevors et al., 1982; Mwinyihija et al., 2006; Ragusa et al., 2004)、メタノールやエタノールまたはジメチルホルムアミドなどの抽出溶媒を用いて INT ホルマザンを抽出し、使用した溶媒毎に適した波長で分光光度計を用いて吸光度を測定する(Trevors et al., 1982; Mwinyihija et al., 2006; Quilchano and Marañón, 2002)。今回、抽出溶媒にはメタノールを使用する。短時間での抽出が可能であり、実験に用いるシリンジおよびセルロースアセテイトメンブランフィルターを侵食せず、また安価で入手可能なためである。メタノールを用いて抽出した INT ホルマザンは、0.2  $\mu\text{m}$  孔径のセルロースアセテイトメンブランフィルターで濾過し、その濾液を分光光度計で測定する。

#### 3.3.2.3. 土壌微生物呼吸活性測定法の開発

##### 1) 分光光度計による INT ホルマザンの吸光度測定

INT を用いた呼吸活性の測定では、微生物から抽出した INT ホルマザンを定量する必要がある。そこで、INT ホルマザンの吸光特性を調査し、吸光度がピークとなる波長を求めた。メタノールをブランク溶液とし、メタノールに溶解した INT ホルマザンの吸光スペクトルを分光光度計で測定した。測定した吸光スペクトルを図 3.3-1 に示す。メタノール中の INT ホルマザンは、波長 480 nm において吸光度が最高値を示したため、本実験で抽出した INT ホルマザンは波長 480 nm における吸光度を測定することとした。

次に、測定した吸光度を定量分析するため、検量線を作成した。今回の測定対象がメタノールであることから、15~30 µg の INT ホルマザン試薬を 100 mL のメタノールに溶解したものを標準溶液とし、これをメタノールで希釈し検量線作成用の試料とした。検量線は、調製した溶液を用いて実験日毎に作成した。図 3.3-2 に作成した検量線の一例を示す。INT ホルマザンを抽出した瀘液中の濃度は、得られた検量線（式 3.3-1）から求めた（有効数字 3 桁）：

$$y = 0.0410x - 0.00409 \quad (\text{式 3.3-1})$$

ここで、 $y$  は瀘液中の INT ホルマザン濃度 ( $\mu\text{g mL}^{-1}$ )、 $x$  は吸光度を意味する。

標準溶液は、数値に大きな変化が認められない限り、調製後最長約 1 ヶ月保存し、使用した。ただし、溶液中のメタノールが蒸発すると、吸光度が上昇するため（特に高濃度溶液）、密封して（冷）暗所で保存した。

抽出した INT ホルマザンも比較的安定な化合物であるが、上記同様、メタノールが蒸発した場合、数値に誤りが生じる可能性があるため、抽出後は速やかに密封できる容器に入れ、測定時（同日中）にのみ使用量を分取し測定した。

## 2) ガス化率測定実験を考慮したプレインキュベーション

50 mL 容の遠沈管（ポリプロピレン容器）内に風乾土壌と超純水（Milli-Q）を個液比 1:10（土壌 0.5 g, 超純水 5.0 mL）で混合し、ポリプロピレンキャップで封をした後、7 日間 140 rpm で連続振とう培養を行った。なお、振とう条件は、本調査が微生物酵素活性とガス化率との関係の評価するのが目的であるため、ガス化率実験時の条件（上記固液比、25°C、暗条件）に一致させた。振とう培養中の土壌の沈殿を防ぐため、遠沈管は振とう器内で振とう方向（横振とう）に合わせて傾けて設置した（図 3.3-3）。

INT ホルマザンは、微生物酵素に限らず土壌によって還元される可能性があるため、対照実験を実施する必要がある。そこで、土壌試料毎にネガティブコントロールを用意した。ネガティブコントロールは、上記同様に湛水土壌試料を作り、熱による変形を防ぐため、ポリプロピレンキャップを外した状態で遠沈管およびキャップをそれぞれアルミホイルカバーし、121°C で 20 分オートクレーブ滅菌処理を行った。処理後の減量分は、滅菌処理を施した超純水で補充した。用意したネガティブコントロールは、他の実験群と共にプレインキュベーションした。

## 3) INT 水溶液

文献調査では、INT 水溶液の濃度が 0.02~0.4% と幅があった（Trevors et al., 1982; Mwinyihija et al., 2006; Quilchano and Marañón, 2002; Ragusa et al., 2004）。Trevors (1984) によ

ると、生成される INT ホルマザン量は、添加された INT 試薬の総量に比例するため、添加する INT 水溶液の濃度の違いは支障がないと考えられる。INT 試薬は室温で水に溶けにくいため、比較的容易に準備可能な 0.05% を採用した。INT 試薬溶解時には、超純水は沸点以下の温度（手で触れる温度）に温めて使用した。INT 試薬は感光性であるため、作業は終始暗条件で行い、使用当日ごとに調製した。

#### 4) INT ホルマザン生成

INT 水溶液添加前に、プレインキュベーション済みの湛水土壌試料を遠心分離 (2,110 × g, 18 分) し、ピペットで上清を除去した。土壌により粒子が懸濁しやすいものがあるため、全ての湛水土壌試料において確実に上清だけを除去するため、除去量は一律して 4 mL とした。上清除去後、固液比を 1:10 で固定したまま実験を続けるため、4 mL INT 水溶液を添加した。再度ポリプロピレンキャップで封をした後、ボルテックスミキサーで素早く攪拌し、完全に混合された湛水土壌試料を 25°C・暗条件で振とう培養を行った。

INT 水溶液添加後の振とう時間については、文献により 2~6 時間と大きく差があったので (Rossel et al., 1996; Welp, 1999; Mukhopadhyay and Maiti, 2010), INT が還元される最適時間を調査した。この調査では、振とう培養を最長 5 時間継続し、INT ホルマザン抽出量の経時変化を調べた。抽出時には、再度、湛水土壌試料を同条件で遠心分離 (2,110 × g, 18 分) し 4mL 上清を除去した後、メタノール 4 mL を添加し 1 分間攪拌させ (暫定条件)、フィルターで濾過した濾液を回収し、分光光度計で吸光度を測定した。図 3.3-4 に INT ホルマザン抽出量の経時変化の結果を示す。INT ホルマザンの抽出量は、INT 水溶液添加直後に経時的な増加をみせたが、3 時間以降は増加が認められなかったため、試薬添加後の振とう時間は 3 時間とした。

#### 5) INT ホルマザン抽出方法

細胞内で形成された INT ホルマザンを抽出するために、本試験ではメタノールを用いることとした。メタノールによる INT ホルマザンの抽出を効果的に行うため、メタノール添加量と添加後の抽出時間について検討した。

##### a) 抽出溶媒 (メタノール) の添加量

メタノールの添加量と INT ホルマザンの抽出量との関係を調べた。メタノール添加量 (4 mL, 8 mL, 12 mL) と INT ホルマザン量の関係を図 3.3-5 に示す。4 mL に比べ、8 mL 添加時で抽出量がより多くなったが 8 mL と 12 mL 添加時では、有意な差は見られなかった。そのため、抽出は 8 mL で行うこととした。

##### b) 抽出時間

メタノール添加後の抽出時間（攪拌時間；0.5分，1分，2分）とINTホルマザン抽出量の関係を調べた。結果を図3.3-6に示す。抽出時間変化に伴った抽出量の変化は認められなかったため，攪拌時間は1分とした。この時間はTrevors et al. (1982)と同様である。

#### 6) INTホルマザンの単位質量

式3.3-1から求めたINTホルマザン濃度を用いて，土壌試料毎のINTホルマザンの単位重量を式3.3-2より求める：

$$T = y \times V/W \quad (\text{式 3.3-2})$$

ここで， $T$ は土壌試料1g中のINTホルマザン総量( $\mu\text{g/g}$ )， $y$ は式3.3-1同様濾液中のINTホルマザン濃度( $\mu\text{g mL}^{-1}$ )， $V$ はメタノール添加後の総液量(mL)， $W$ は湛水土壌試料中の土壌質量(g)を意味する。本調査の方法では $V$ と $W$ はそれぞれ9 mLと0.5 gである。

#### 3.3.2.4. まとめ

開発した土壌微生物呼吸活性測定法は以下の通りである：

風乾土壌0.5gおよび超純水5.0mL（固液比1:10）を50mL容の遠沈管（ポリプロピレン容器）に加え密閉し，7日間25°Cの暗条件で140rpmで振とう培養（プレインキュベーション）する。ネガティブコントロール用の湛水土壌試料は，プレインキュベーション前にオートクレーブ滅菌を施す。振とう後の湛水土壌試料に遠心分離（2,110×g，18分）をかけ上清4mL除去し，0.05%INT水溶液を4mL添加する。3時間25°Cの暗条件での振とうし，再度遠心分離（2,110×g，18分）をかけ上清4mLを除去後，8mLメタノールを添加し1分間ボルテックスミキサーで攪拌して，生成したINTホルマザンを抽出する。溶液を回収および0.2 $\mu\text{m}$ 孔径のセルロースアセテイトメンブランフィルターで濾過し，分光光度計で波長480nmにおける濾液の吸光度を測定する。図3.3-7に概略図を示す。

### 3.3.3. 微生物呼吸活性測定実験

#### 3.3.3.1. はじめに

種類の異なる土壌を用いた場合においても，INTホルマザンが測定可能か確認のため，開発した土壌微生物酵素活性測定法を，ガス化率実験で用いられた複数の土壌タイプを含む試料を用いて試験した。測定法の実用を確認した後，ガス化率との関係を調査するため，放医研において保存してある水田土壌の全試料を用いてデータ収集を行った。

#### 3.3.3.2. 微生物呼吸活性と土壌タイプ

##### 1) 試料と実験手順

放医研においてプラスチック容器にて保存（室温）してあり，ガス化率測定実験にも用いられた水田土壌 63 試料（平成 14 から平成 18 年度に行われた「放射性核種生物圏移行パラメータ調査」において日本全国で収集された水田から採取したもの）の中から，土壌の種類を複数包含し，測定されたそれぞれのガス化率の数値も散在するように選出した 8 試料を用いた。試料は風乾し 2 mm メッシュのふるいにかけて粒径を揃えている。表 3.3-1 に土壌コード，土壌分類名（和名および FAO/UNESCO），採取地（都道府県），[1,2-<sup>14</sup>C]酢酸ナトリウム由来の <sup>14</sup>C のガス化率（%）を示した。

実験には，開発した土壌呼吸活性測定法を実施し，測定は試料ごとに独立して 3 回行った。

## 2) 結果と考察

INT ホルマザン抽出前の湛水土壌試料を遠心分離にかけた後，固相表面の中心部付近に拡散しやすい赤い物質の集まりが認められた（図 3.3-8）。その赤い塊が中心部に集まっている試料と，中心を囲うように小さな輪状（ドーナツ型）に集まっている試料が観察された。輪状になる場合として，土壌色素が薄く見かけ上の粒子が細かい試料である場合が多かった。この赤い物質が，生成された INT ホルマザンであり，その量は吸光度測定値に正比例する。

試料毎の INT ホルマザン測定結果を図 3.3-9 に示す。INT ホルマザン生成量は土壌によって異なり，同じ土壌タイプ（例：灰色低地土）であっても，測定値は一樣ではなかった。これは土壌毎に呼吸活性が異なることを意味している。繰り返し測定によるばらつきは小さかったため，開発した測定法から起きる誤差は小さいと考えられる。今回の実験で，微生物の呼吸活性は，土壌タイプに依存しないことが分かった。

### 3.3.3.3. 国内水田土壌試料における微生物呼吸活性と <sup>14</sup>C ガス化率

#### 1) 試料と実験・評価手順

平成 14 年度から平成 18 年度に行われた調査において日本全国各地で収集され，風乾し 2 mm 以下で粒径を均一化し，放医研で保存している水田土壌全 63 試料を用いた。そして，ガス化率との関係性をみるために，平成 19 年度に，同上の水田土壌 63 試料を用いて測定された[1,2-<sup>14</sup>C]酢酸ナトリウム由来の <sup>14</sup>C のガス化率についてのデータを用いた（放射線医学総合研究所，2008，2009）。土壌微生物の呼吸活性は試料ごとに独立して 3 回行った。

#### 2) 結果と考察

図 3.3-10 に，水田土壌全 63 試料の INT ホルマザン量（ $\mu\text{g/g}$ -土壌）に対する[1,2-<sup>14</sup>C]酢酸ナトリウム由来の <sup>14</sup>C のガス化率を示す。得られた結果から，INT ホルマザンとガス化率に明確な関係は認められなかった。これは，半数近くの試料において INT ホルマザンが

生成されなかったことに大きく起因していると考えられる。INTホルマザンが生成されなかった試料の多くに共通した点は、土壌が薄黄土色系で、見かけ上の粒子が細かく、INTホルマザン抽出し遠心分離処理（3分）後の濾過時にフィルターが目詰まりが多くあることであった。つまり、短時間の遠心分離では沈殿しきらない比重の小さい粒子が上清に多く浮遊していたことが示唆されている。粒径分布との関係を見ると、Clayの割合が多い試料で低い活性がみられたが、相関はなかった（図 3.3-11）。したがって、色素の比較的薄い試料や粒子が細かい試料において、必ずしもINTホルマザンが生成されないというわけでは無いため、測定以前に生成の不可は予測できないと思われる。また、活性鉄量、炭素量、pHとの関連を検討した結果、唯一pHと低い比例の関係が認められた。呼吸活性が高い試料は上清のpHが5.5以上であることが多かった（図 3.3-14）。

INTホルマザンが生成しなかった原因のひとつとして、測定時期が適当でない可能性がある。そこで、ガス化率および微生物活性の測定時期について考察した。平成19-20年度に収集された[1,2-<sup>14</sup>C]酢酸ナトリウム由来の<sup>14</sup>Cのガス化率のデータは、7日間振とう培養を行った後、初期の<sup>14</sup>C添加濃度からの気相への分配率を積算で表している。ガス化率の場合、気相への総分配率を以て<sup>14</sup>Cの環境移行およびプロセスの評価をするため、各相への分配が十分に平衡に達するまで測定期間に余裕をもつことは妥当である。しかしながら、培養期間中、気相への分配率（ガス化率）は、一定の割合で増加しているわけではなく、サンプルによって差異はあるものの、どれも培養開始後3日目以内にガス化率のピークがあり、4日目までには各層への分配は平衡状態に達して分配率は決定していた（放射線医学総合研究所, 2009）。すなわち、7日目には活性が培養初期に比べ、大いに落ち込んでいる可能性がある。それゆえ、INTホルマザンが生成されなかった可能性がある。そのため、改めてプレインキュベーション期間を検討し、ガス化率を評価する上で最適な時期はいつかなどの調査をする必要がある。次の項目において、それについて検討を行った。

#### 3.3.4. プレインキュベーション期間の検討

##### 1) 材料と実験手順

##### a) 材料

平成14年度から平成18年度に行われた調査において日本全国各地で収集され、風乾し2mm以下で粒径を均一化し、放医研で保存している水田土壌63試料(前述のものと同じ)の中から4試料を用いた。試験試料は、全試料中に最も多くある灰色低地土から2試料、残りは異なる土壌タイプから2試料、それぞれのガス化率の数値が散在するようふまえて選出した。土壌コードはEP-SD-02, EP-SD-32, EP-SD-34, EP-SD-39である(以下、EP-SD-をP-に省略する)。表3.3-2に土壌コード、土壌分類名(和名およびFAO/UNESCO)、採取地(都道府県)、[1,2-<sup>14</sup>C]酢酸ナトリウム由来の<sup>14</sup>Cガス化率(%)を示した。

## b) 実験手順

INT ホルマザン測定方法は、今調査で開発した手順をそのまま適用し、プレインキュベーションの振とう期間を改めて検討した。振とう日数は7日間行い、各日のINTホルマザン生成量を測定した。そして、振とう日数毎の微生物呼吸活性とガス化率の関係を調査し、最も適当な振とう日数を選定した。実験はそれぞれ独立で3回行った。

## 2) 結果と考察

### a) 微生物呼吸活性の経時変化

4 試料それぞれのINTホルマザン生成量の経時変化を図3.3-13に示す。実験の結果、総合的なINTホルマザン生成量および活性がピークに到達する振とう日数は試料により大きく異なることがわかった。

P-02 (土壌タイプ: 多湿黒ボク土) の場合、振とう1~2日目までINTホルマザンはおよそ一定に増加し、3日目に著しく低下、4日目から緩やかな低下を示した。INTホルマザンの最高値(2日目)は88 µgであった。P-32 (土壌タイプ: 灰色低地土) は、1日目に約5 µgとわずかにINTホルマザンの生成があったが、それ以後の活性は認められなかった。P-34 (土壌タイプ: グライ低地土) は、1日目に91 µgのINTホルマザンを生成し、それが最高値となった。2日目も高い活性(81 µg)が見られたが、P-02同様に3日目に著しい低下を示し、4日目以降緩やかに減少していった。P-39 (土壌タイプ: 灰色低地土) の場合、1~7日目までほぼ一定して活性は見られなかった。また、振とう培養後培養後に、溶液面に気泡がみられるものがあった(図3.3-14)。さらに、遠心分離後、上清面に白いフィルム状のものがあるものも確認された(図3.3-15)。これらは、1日培養後にINTホルマザンが生成された試料P-02およびP-34全て(3サンプルおよびネガティブコントロール含む)において確認された。

### b) 振とう日数ごとの微生物呼吸活性とガス化率の関係

図3.3-16に振とう日数1~7日間それぞれのINTホルマザン生成量とガス化率の関係を示す。振とう1日の場合、3点(群)がおおよそ均等に広がり、ガス化率との緩やかな正の関係( $y = 0.270x + 47.9$ )が見られた。それ以外の結果は、おおよそ2点(群)で回帰直線を引いている形で、振とう日数が延びると微生物呼吸活性の最高値が下がるため、ガス化率との関係は正の方向に増加した。 $R^2$ 値は1~7日間全体的に0.5~0.7と近い値になった。今回の実験において、2日目以降の活性は、グラフ上で2点に分かれ回帰直線を引っ張っているが、1日目の活性は、他と比較すると活性測定値にばらつきが見られた。そのため、今回試料数が4種のみという制限はあるが、培養1日間で最も妥当であるとし、当面の調査対照とした。なお、気相への総分配率についても、培養初期の活性が積算で求めたガス化率に最も大きく寄与しているため、今回検討した培養期間の中で振とう1日間で

より適当であると思われる。

#### c) 考察

この実験で、微生物呼吸活性のピーク値および時期、また培養7日間を通しての経時変化も土壌試料によって顕著な違いが確認された。経時的な観察を行っても測定値の上昇がみられない試料について、その原因のひとつとして、試料中に存在する微生物が利用し易い形態で基質が存在していない可能性がある。本来、土壌中には栄養基質が残存しており、土壌試料に超純水を加えて振とう培養することによって、液相に溶出し、微生物が活用し易くなると考えられる。しかしながら、土壌微生物は、試料により多種多様であるため、例えば残存する栄養基質の条件が類似しているとしても、その試料間で同様な活性の増加がみられるとは限らない。これらの要因が測定結果に起因している可能性がある。

活性が認められた試料において確認された気泡とフィルム状物質の生成については、それらがネガティブコントロール用のサンプルでもみられたことから、単に微生物活動によって生成されたものとは結論づけられない。そのため、INTホルマザン生成との関連については、サンプル数を増やし調査する必要がある。

平成19年度から平成24年度の調査(放射線医学総合研究所, 2008, 2009, 2010, 2011, 2012, 2013a)でガス化率測定の対象となった<sup>14</sup>C-有機物、つまり、酢酸、ホルムアルデヒド、メタノール、ギ酸と培養1日目の土壌試料の呼吸活性の関係を調べた結果、酢酸とメタノールにおいて、ガス化率と正比例の関係を示し、ホルムアルデヒドおよびギ酸のガス化率とは負の関係を示した。図3.3-17にそれぞれの結果を示す。R<sup>2</sup>値は添加された<sup>14</sup>C-有機物によって異なったが、中でもメタノールについては比較的高い相関(R<sup>2</sup>=0.85)が認められた。添加された有機物それぞれのガス化率が異なる結果を示しているため、土壌微生物呼吸活性もまた、それぞれの基質添加により、異なる結果を示す可能性がある。例えば、人工的に基質を加えて、同量の基質添加に対する土壌試料それぞれの呼吸活性を調査することも重要であると考えられる。基質の添加により、土壌試料ごとの呼吸活性に変化がみられれば、基質ごとのガス化率測定結果との関係をより正確に明らかにできる可能性がある。

#### 3.3.5. まとめ

今年度は、<sup>14</sup>Cガス化率の指標として土壌微生物呼吸活性を活用するため、INTホルマザン測定法を開発した。開発した測定法により、土壌試料中の微生物呼吸活性の測定が可能となった。但し問題点として、ガス化率の測定が可能であったにも関わらず、呼吸活性の増加が見られない土壌試料が複数あったことが挙げられる。この問題を解決するために、活性を高める基質の添加などを検討することが必要である。今回さらに、<sup>14</sup>Cガス化率との関係を示すための、試料の培養条件および培養期間を検討した。今後は、ガス化率測定の検討対象である基質それぞれ、または全てのガス化率総括的な評価により適した条件を

調査し、最終的な実験系を確立する。また、呼吸活性とガス化率の関係を明らかにするため、全国から収集した全水田土壌 63 試料と畑土壌 79 試料を用いて微生物呼吸活性のデータを収集する必要がある。

### 3. 4. 微生物活動を反映した $^{14}\text{C}$ の水田環境移行モデルの検討

#### 3.4.1. はじめに

放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) は TRU 廃棄物処分及び余裕深度処分において天然バリアへの収着性が低いことから、処分場から地下水を介して生物圏に到達することが予想される (核燃料サイクル開発機構, 電気事業連合会, 2000)。そこで、本事業では、廃棄物から放出される有機態  $^{14}\text{C}$  を対象に、生物圏、特に農耕地土壌中での形態変化や農作物への移行に関するパラメータ調査を行っている。これまでの調査から、有機態  $^{14}\text{C}$  は、多くが炭酸ガスとして近傍大気へ放出され、光合成により農作物に取り込まれることが示唆されている (放射線医学総合研究所, 2013b)。 $^{14}\text{C}$ -炭酸ガスの発生は、土壌微生物による有機物分解に依存するため、微生物活動を理解することにより、 $^{14}\text{C}$  のガス化率が推定できる可能性があり、さらにガス化率から近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度、 $^{14}\text{C}$  濃度と光合成活性から農作物による  $^{14}\text{C}$  の取り込みが推定できるかもしれない。つまり、水田生態系における  $^{14}\text{C}$  水稻移行モデルにおいて、微生物活性をパラメータとして取り込むことにより、ガス化率、近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度、さらに、光合成活性から農作物による  $^{14}\text{C}$  の取り込み等を予測できることが期待される。

本年度は、「水稻の光合成活性と炭酸ガスの取り込み量の関係」および「取り込み量に対する温度の効果」についての文献調査と、水田における微生物活動を反映した  $^{14}\text{C}$  動態モデルの試作を行った。文献調査ではモデルに使用できるパラメータや相関式を整理し、動態モデルに反映した。モデルの試作であるが、平成 19 年度から平成 24 年度にかけて構築した  $^{14}\text{C}$  水稻移行モデル (放射線医学総合研究所, 2013b) をベースに文献調査から得られたパラメータを組み込んだ解析用トレースモデルを試作した。

#### 3.4.2. 文献調査

水稻の生産量や光合成活性には、大気  $\text{CO}_2$  濃度等の環境因子が影響する。そこでイネやその他の作物に対して、環境因子の影響を検討した論文等を収集し、収集した文献について調査を行った。また、文献ごとに得られた知見から水稻全体モデルへの適用性について検討した。

##### 3.4.2.1. つくばみらい FACE 実験によるイネの高 $\text{CO}_2$ 応答の検証 (長谷川ら, 2013)

###### (1) 実験概要

開放系大気  $\text{CO}_2$  増加 (Free air  $\text{CO}_2$  enrichment ; FACE) 実験は、1989 年に米国で畑作を

対象として始まり、その後、様々な植物種に適用されるようになった。FACE 実験システムは、円形に近い試験区（リング）内の CO<sub>2</sub> 濃度を外気より高めるものである。リングサイズは試験区によって様々であるが、直径 8 m 以上で、圃場単位で反復を設けたものが大規模 FACE と呼ばれる。

つくばみらい FACE 実験拠点は、1998 年に開始した雫石 FACE（2008 年に終了）、2001 年に開始した中国江蘇省 FACE に続く 3 点目の水田 FACE として 2009 年 12 月に設置された。つくばみらい FACE 実験では、0.5 ha 前後の水田（長辺 100 m）4 筆を、それぞれに高 CO<sub>2</sub> 処理区と外気 CO<sub>2</sub> 区が設けられた。リングの大きさは、直径 17 m、面積は約 240 m<sup>2</sup> であった。試験区の外周に CO<sub>2</sub> を放出できるチューブを設置し、風向きに応じて風上側から CO<sub>2</sub> を放出するしくみにより、屋外での高 CO<sub>2</sub> 濃度を実現している。なお、実験は 2010 年の栽培シーズンから開始し、現在（2013 年）継続中である。

## （2）結果及び考察

FACE 実験が行われた雫石（7 年）とつくばみらい（2 年）を合わせて 9 年の成果をまとめて報告している。これらの試験では、高 CO<sub>2</sub> 試験区において玄米の収量の増加が確認された。ただし、冷害の年だけは高 CO<sub>2</sub> 試験区で玄米の収量が低下した。対照区と高 CO<sub>2</sub> 区の平均収量は、それぞれ 578 g/m<sup>2</sup> と 654 g/m<sup>2</sup> で、収量の増加は 13% であった。しかし、収量の増加は一定でなく、平均気温が高くなるにつれ増収効果は低下した。つまり、玄米の収量は生育期間中の平均気温に影響されることが分かった。一方、地上部全重と気温には有意な関係が見られず、収穫指数（収量／地上部全重）は高温条件でマイナスとなった。高温条件における収穫量の低下は、CO<sub>2</sub> 濃度の上昇により気孔コンダクタンス（気孔からのガスの通り易さの指標）が低下し、そのため試験区で群落温度が高まり、収穫に影響したと考えられている。

気温が最も高かった 2010 年において（つくばみらい）、出穂・開花期頃の最高気温は、不稔発生の閾値とされる 34~35°C であった。これらのことは、気象が温暖化した場合、高 CO<sub>2</sub> による増収効果が期待できず、予測よりも低くなる可能性が示唆された。

## （3）モデルへの適用性

無処理区のイネに対して高 CO<sub>2</sub> 区でのイネの収穫が増加した理由は、高 CO<sub>2</sub> によってイネの光合成は盛んになる可能性があるものの、気孔コンダクタンスの低下によって、局所的（群落）な温度上昇を招いているおそれがあり、高温条件下では収穫に対して負の要因となったからと考えられている。したがって、必ずしも高 CO<sub>2</sub> がイネの収穫量に直接結びつかない可能性がある。このことから、玄米の収穫量はモデルにおいて穂部または茎葉部の成長曲線に反映することになるが、CO<sub>2</sub> 濃度と温度の影響が複雑であり、単純なモデル式にできないことが予想される。そのため、他の文献の知見と併せて活用できる場合に参

考とする。

#### 3.4.2.2. 大気 CO<sub>2</sub> 増加，温暖化で水稲の生育，収量はどうなる（長谷川, 2006）

本文献は，FACE 実験と関連するチャンバー実験から得られる知見について総括的にまとめたものであった。以下に，文献に記載されている主な知見について整理した。

##### （1）大気 CO<sub>2</sub> 濃度増加の影響

これまで世界各国で行われた FACE 実験結果をまとめた結果，大気 CO<sub>2</sub> 濃度の上昇は，圃場条件でも作物の子実収量を増加させることが確認されたが，種によっては収量の増加率に大きな差があった。

作物の生育期間中において，高 CO<sub>2</sub> による影響を確認したところ，分けつ期，幼穂形成期，および出穂期には群落純光合成速度が増加したのに対し，登熟期では対照区との違いが見られなくなった。この要因は，高 CO<sub>2</sub> 濃度による窒素濃度の低下，老化の加速などが要因と考えられている。高 CO<sub>2</sub> 濃度環境における収量等を予測するためには，生育期間中の各生育フェーズにおける作物応答を考慮することが重要であることが分かった。

##### （2）温度の影響

温度は作物の成長や収量形成に重要かつ大きな影響を及ぼす要因である。イネの場合，開花前約 2 週間から開花時期における異常温度は，稔実障害によって収量が激減する。しかし，圃場条件における高温不稔には種々の要因が関与するため，単純に気温のみから不稔歩合を推定することはできない。圃場の水稲群落の微気象環境は，水稲群落の蒸散特性に加えて日射，湿度，および風速といった環境要因の違いに影響を受けるためである。FACE 実験の結果から，高 CO<sub>2</sub> 濃度環境の場合，群落の蒸散が約 8% 程度低下すると推定されており，これによって高 CO<sub>2</sub> 濃度環境では群落温度が上昇し，その結果，高温不稔が発生すると考えられている。また，高 CO<sub>2</sub> 濃度による影響は，開花時期だけでなく登熟期間にも及ぶと考えられるので，コメの品質にも影響を及ぼす可能性がある。

##### （3）モデルへの適用性

イネの成長や収穫量に対する CO<sub>2</sub> 濃度及び温度の影響については，本文献では定量的情報が不十分でありモデル式に反映するのは困難である。しかし，CO<sub>2</sub> 濃度や温度の影響は，生育期間別に作物応答を検討する必要があることを示唆しており，他の文献から定量的な情報が得られればその際に参考にする。

#### 3.4.2.3. 異なる温度と光条件下におけるスプレーギクの光合成速度の比較（小山ら, 2001）

##### （1）実験概要

夏秋型スプレーギクと秋型スプレーギクの光合成速度を、異なる温度と光条件下で比較した試験である。

## (2) 結果と考察

夏秋型スプレーギクは秋型スプレーギクよりも発育が早く、6/7 時点における両者の SPAD 値（葉緑素含量）は、夏秋型で 54~65、秋型で 39~45 であった。6/7 で測定した際の葉面温度は 37.2~39.9°C で、光合成有効放射が 1072~1223  $\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 、光合成速度は夏秋型で 12.4~16.0  $\text{mgCO}_2/\text{dm}^2\cdot\text{hr}$ 、秋型で 5.9~7.8  $\text{mgCO}_2/\text{dm}^2\cdot\text{hr}$  であり、夏秋型が高くなった。この要因は、SPAD 値と光合成速度が正の相関関係にあることから、葉緑素含量の差によるものと考察している。

6/8 に測定した際の葉面温度は 30.5~31.2°C で、光合成有効放射が 61~91  $\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$ 、光合成速度は 3.6~4.4  $\text{mgCO}_2/\text{dm}^2\cdot\text{hr}$  になり、夏秋型と秋型で同程度であった。これらの結果は、高温、高日射条件下において、夏秋型が秋型に比べて光合成速度が高いことを示している。この要因は、葉緑素含量の差によるものと推察されるが、葉緑素含量は発育ステージによって異なることが報告されており、夏秋型と秋型で発育ステージが異なったことが原因なのか、夏秋型が高温、高日射条件下で高い光合成能力を有していることが原因なのかは、同じ発育ステージで比較する必要があるとしている。

## (3) モデルへの適用性

異なる品種の植物において、発育ステージの違いによって葉緑素含量が異なり、またその光合成能力に差が生じることが示唆されている。この文献だけでモデルに反映できる知見としては十分ではなく、他の文献の知見と併せて活用できると思われる場合に参考とすることとする。

### 3.4.2.4. 水稻・小麦の二毛作における熱収支・CO<sub>2</sub>濃度の季節変化（篠崎, 2005）

#### (1) 実験概要

小麦、水稻の二毛作畑において、作物の生育期間を通じた微気象・熱収支及び CO<sub>2</sub>濃度の季節的変化と日変化について検討している。実験場所は埼玉県熊谷市近郊で、観測は小麦 3 月中旬~6 月中旬、水稻は 6 月下旬~10 月中旬において月 1 回ペースで測定された。測定項目は表 3.4-1 にまとめた。顕熱フラックス、潜熱フラックス、地中フラックス、水体貯熱量を、これらの観測データ等に基づき算出している。

#### (2) 結果と考察

##### i) 微気象の変化及び水温、地温の変化

植被が繁茂し植物の葉面積指数（LAI）が増加すると、1.5m 気温と群落内温度の差は大

きくなった。小麦では 4/22、水稻では 9/19 に最も温度差が大きくなった。地温、水温については、植物の LAI が増加すると水稻期の 8/21、9/19 において深さ 10 cm の地温が 1 cm 地温よりも高くなり表面地温の低下が見られた。小麦期においては観測回数不足とされる。小麦期と水稻期の比較では、地表面の水の有無及び土壌水分の違いによって、小麦期の方が地温の日較差が大きくなった。

#### ii) 植被の成長による高度別風速の影響

植被が繁茂する小麦期（4/22）および水稻期（8/7、8/21）において、群落内風速の急激な低下が見られた。一方、植被が未発達な時期においても群落内の風速は 1.5 m 風速の影響は受けず風速は 0.4 m/s 前後であった。水稻期においても風速 2.6 m/s 以上になると植被層による摩擦の影響により、風速差が指数関数的に増加した。

#### iii) 蒸散量と CO<sub>2</sub> 濃度との関係

小麦期では群落内と 1.5m の CO<sub>2</sub> 濃度にあまり差はないが、水稻期では群落内の CO<sub>2</sub> 濃度は 1.5 m CO<sub>2</sub> 濃度よりも高く推移した。これは土壌（水面）からの CO<sub>2</sub> の放出が活発であることを示している。

水田状態であった 8/7 において、午前 9 時以降、蒸発散量が増加するのに伴い植被層の CO<sub>2</sub> 濃度が減少する傾向が見られた。しかし、同じく水田状態であった 7/3 では日中において植被層の CO<sub>2</sub> 濃度に大きな変化は見られなかった。植物による蒸散量が植物の気孔開度や気孔抵抗と直接関係していることを踏まえると、植被が未発達である 7/3 時点では、蒸発散量は水面からの蒸発が主であり、植被が繁茂している 8/7 時点では、蒸発散量は植物からの蒸散の寄与が大きいと考えられた。

### （3）モデル化への適用性

本論文は水稻環境の微気象や CO<sub>2</sub> 濃度等に関する基礎的な情報を与えている。特に植被が繁茂している時期には、群落内の温度や CO<sub>2</sub> 濃度が 1.5 m 高さの環境とは異なることが示されている。平成 24 年度まで事業で構築された水稻全体モデルでは（放射線医学総合研究所, 2013b）、水稻の生育ステージごとに近傍大気と環境大気の CO<sub>2</sub> 交換状態（交換半減期）が考慮されていない。本論文の知見は有用であり、必要に応じてモデル化する余地があると考えられる。

#### 3.4.2.5. 大気－植生間における CO<sub>2</sub> 等の交換と流れ（原菌, 2001）

##### （1）実験概要

本論文は、大気と植生の相互関係について著者らの研究成果をまとめたものである。植生における CO<sub>2</sub> 等の交換と流れについて、モデルを用いたシミュレーションによる解析結果との比較を試みており、それによる現象的な理解を立証しようとしている。

## (2) 結果と考察

### i) 群落境界層におけるフラックス

植生内外の風速、気温、CO<sub>2</sub>濃度等の鉛直分布から、日中と夜間では環境因子の鉛直分布は逆の傾向があることが示された。日射強度が高いと光合成によるCO<sub>2</sub>吸収量が増え、群落上の風速が高いほどCO<sub>2</sub>交換量が増大した。これは、群落上部の植生が密集すると群落下層が日射不足となり光合成が妨げられるのだが、風速が大きくなることにより下層にも日射が当たり、その結果、光合成量が増えたことによる。

### ii) 植生と大気とのCO<sub>2</sub>交換による気象条件の影響

同じ日射条件において気温と湿度の違いによって環境因子のフラックスに与える影響を調べたところ、植生内のCO<sub>2</sub>フラックスは低温で風速が高い場合に大きくなり（光合成量が大）、高温で低湿度の場合に低くなる（光合成量が小）ことが分かった。これは、日中の高温乾燥条件下では蒸散の負荷が増大し、水ストレスによって気孔が閉鎖し、光合成が減少することを示している。

### iii) ダイズ、イネ群落におけるCO<sub>2</sub>フラックス

神田・日野のSPAMモデル(neo-Soil-Plant-Atmosphere-Model)を改良し、ダイズ群落とイネ群落に対して光合成速度やCO<sub>2</sub>フラックス等について解析を行った。その結果、ダイズの場合、同じ日射量でも風速が大きいと群落光合成速度が増大した。風速の増大により群落上層から下層まで全ての部位で光利用効率が増大したことが理由である。

群落内外における気温とCO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布の調査から、イネの場合、根の呼吸や土壌中の有機物分解によりCO<sub>2</sub>が放出されるため水面付近のCO<sub>2</sub>濃度が高くなるが、日中は光合成によって濃度が下がり、逆に夜間は外気より高濃度になった。モデルによる解析結果と観測値は良く一致しており、イネのような背の低い植物においても、群落内部で濃度分布があることが窺える。

## (3) モデル化への適用性

本論文は、植生環境における微気象やCO<sub>2</sub>濃度等に関する基礎的な情報を与えている。風速、気温、湿度によって植物の蒸散が異なり、それが光合成量にも影響を与えていることが観測データ及び解析結果と併せて示されている。水稻全体モデルでは、日変動の短い時間スパンを想定していないが、基本的な知見として有用であり、必要に応じてモデル化する余地があると考えられる。

### 3.4.2.6. The Effect of temperature on the rates of photosynthesis, respiration and the activity of RuDP carboxylase in Barley, Rice and Maize leaves (Ishii et al., 1977)

#### (1) 実験概要

イネ、とうもろこし、オオムギを対象に、環境温度と光合成の関係について調べた。各

作物は10月に種を播き、イネとオオムギは日中25°C、夜間20°Cに制御された自然光の屋内で栽培し、とうもろこしは温室で栽培した。12月にイネの6葉、オオムギととうもろこしの8葉を用いて光合成を測定した。また、RuDPカルボキシラーゼ活性（炭素固定の酵素活性）も測定した。

## （2）結果及び考察

CO<sub>2</sub>濃度と光合成量の関係はいずれの作物もほぼ比例関係であった。ただし、光合成量は温度にも依存し、オオムギで25°C、イネで25°C~35°C、とうもろこしで35°Cのとき光合成が最大値となった。酸素濃度は光合成量に影響しなかった。

CO<sub>2</sub>濃度を0ppmに外挿した場合の光合成量（負の値となる）を算出したところ、とうもろこしでは非常に低い値となった。ここで算出された値は光呼吸に相当する値であり、C4植物のとうもろこしは光呼吸しないとされており、そのため低い値が得られた。

O<sub>2</sub>濃度が低いと光呼吸は阻害され、暗呼吸だけが行われているとされる。高温になると暗呼吸が急激に上昇するため、高温(35°C)下においてオオムギのみかけの光合成量が減少したのは、このような暗呼吸（明状態下）が促進されたためと考えられる。

RuDPカルボキシラーゼ活性については、イネの方がオオムギよりも温度に対して敏感であった。即ち、炭素固定能はイネの方が高いと思われることから、温度影響に対する暗呼吸等を測定する必要がある。

## （3）モデルへの適用性

本論文は光呼吸と暗呼吸について、温度、O<sub>2</sub>濃度およびCO<sub>2</sub>濃度による影響を調べたものである。現在のモデルでは、呼吸に対しては今までに調査した論文等から設定したものであるが、温度影響を考慮したモデル化はしていない。また、本論文は、葉のみかけの光合成量について測定されたものであり、みかけの光合成量とRuDP活性（炭素固定）に明確な相関が見られないとされていることから作物成長（重量）に対する影響は不明である。他の文献の知見と併せて活用できると思われる場合に参考とすることとする。

### 3.4.2.7. 高温条件における水稻の生育予測、生育診断および品質向上に関する研究（田中，2011）

#### （1）概要

当該報告書は、福岡県農業試験場で実施された水稻に対する研究をまとめたものである。報告書は6章から成り、前半3章は高温が与える正の影響（成長速度が早い等）についてまとめ、後半3章は高温が与える負の影響（温度ストレスによる収量低下、品質低下等）についてまとめている。

1章は、出穂期と成熟期の予測モデル（日長と気温をパラメータとするDVR法

(Development Rate)を用いて観測結果との比較を行っている。

2章は、麦類との二毛作栽培を行い、作期幅を拡大することを目的として熟期の異なる水稲3品種について、湛水直播栽培の時期を検討している。3品種に対してDVR法を用いて出穂期と成熟期の予測を行い、最適な直播時期を解析している。また、2品種についてはコメの収量と玄米の検査等級及び食味について、湛水直播栽培と移植栽培の比較を行っている。

3章は、ヒノヒカリの水稲品種について品質向上のための窒素吸収量と玄米の窒素含有率、さらに炊飯米の食味との関係について調べている。試験は面積当たりの窒素量の異なる施肥(3水準と無窒素区の計4区)を与え、移植後35日、幼穂形成期、穂揃期、成熟期における水稲地上部の窒素含有率を測定している。穂揃期までは、窒素吸収量と玄米の窒素含有率には正の相関が見られるが、それ以降は相関が見られなかった。窒素含有率が増加すると食味が低下することが示されている。

4章は、高温耐性水稲品種を対象に登熟期の気温による影響を調べている。出穂してから成熟期まで20°C、25°Cおよび30°Cのファイトトロンに入れて処理を行い、NMRにより水分、玄米品質を分析した。その結果、高温耐性ではない品種(ヒノヒカリ)において、25°C、30°C処理の粳の含水率は、登熟期初期には著しく低下した。また、20°Cの子実は25°C区や30°C区の子実よりも長く自由水を保有していることが示された。しかし、高温耐性のある品種(にこまる)では高温でも玄米品質に影響を与えないことも示された。

5章では、4章に続き登熟期における高温による影響を、高温耐性の異なる3品種に対して子実内部の形態を観察し、コメの品質等について調べている。その結果、高温感受性の高いヒノヒカリで、高温条件下では、乳熟期から糊熟期において変化が急で、子実中の水分含有率や同化産物蓄積の減少を招いており、高温ストレスによる熱ショックタンパク質の機能の解明が必要と結論している。熱ショックタンパク質とは、高温ストレス下において細胞活動の保護に働く一連のタンパク質の代謝経路に誘導され、高温ストレス等に応答するような高度に保存されたタンパク質のことを指す。

6章では、4章、5章とは別の水稲品種(初星、ふさおとめ)に高温ストレスの影響について調べている。高温ストレス等に応答する熱ショックタンパク質(HSP)と高温条件下におけるイネの品質変動との関係を調べるために、HSP遺伝子発現について調べている。高温耐性品種(ふさおとめ)では、熱ショック応答因子(HSF)によりHSP遺伝子の発現が、登熟期において高いレベルに維持されていることが示された。

## (2) モデルへの適用性

高温ストレスに対するイネの品種について検討されている報告書であるが、気温の影響を水稲全体モデルの成長曲線に反映するには情報が不足している。しかし、イネの登熟期における気温が玄米の収穫等に大きな影響を与えることを理解しておくことは重要である。

特に、当該報告書では、登熟期や乳熟期において適度な気温状態が必要で、低い気温では成長が進まず、高い気温では不稔の発生や収量減少を引き起こすことが記載されており、単純な温度関数ではモデル化できないことを示している。

#### 3.4.2.8. 新農業気象・環境学（長野，大政，2005）

##### （１）概要

当該文献は、農業に関連する微気象及び植物に対する環境因子について記述したものである。記述内容の多くは、植物を取り囲む環境（土壌や雰囲気等）の測定方法やその推定方法に関するものである。時間スパンは日変化に関するものが多い。その中で、「5章 環境と植物反応」が水稻全体モデルに有効な記載があり、その内容を以下でまとめた。

見かけの光合成速度（純光合成速度）は、植物体内の体温，含水率及び植物内  $\text{CO}_2$  濃度に左右され，外的要因としては光強度，気流の乱れ，葉の揺れ等によって左右される。光合成に影響を与えるこれらの要因は，葉肉，気孔，大気中拡散等の抵抗によって表現され，各部位の抵抗値は相互に影響しあう。根からの吸水速度と葉での蒸散速度によって葉内含水率が決定される。葉での蒸散速度は，気孔抵抗，葉面境界層の抵抗，葉温と大気湿度によって影響を受ける。したがって，光合成に及ぼす個々の影響を分離して定量化することは困難である。以下では，中でも主要因子である光環境，温度環境， $\text{CO}_2$  環境及び湿度の影響について記述する。

##### i) 光環境

一般的な植物葉の  $\text{CO}_2$  交換速度と光強度の関係において，純光合成速度は光飽和点まで光強度の増加に伴い上昇する。純光合成速度と暗呼吸速度の和を総光合成速度と呼ぶ。高等植物種の大多数を占める C3 植物は光呼吸を行うが，実測により  $\text{CO}_2$  交換速度から光呼吸速度を分離することは困難である。純光合成速度と暗呼吸速度が等しくなる光強度を光補償点と呼ぶ。光呼吸を行わない C4 植物（トウモロコシ等）の光飽和点は C3 植物より高い。

##### ii) 温度環境

植物の光合成や呼吸に及ぼす温度の影響を論じる場合には，気温を用いる場合が多いが，植物体内での生化学反応等に直接関与するのは，植物体温（葉温）である。葉温は葉で吸収する放射フラックス（日射）によって上昇し，葉から外気へ放出される顕熱フラックス及び潜熱フラックスの増加により低下する。

##### iii) $\text{CO}_2$ 環境

一般に  $\text{CO}_2$  濃度が上昇すると純光合成速度は増加する。 $\text{CO}_2$  飽和点を超えると純光合成速度は増加しなくなる。植物の光合成に対する  $\text{CO}_2$  濃度の影響は，光強度や温度などの環境要因により異なる。 $\text{CO}_2$  飽和点は，光強度の増加に伴い上昇する， $\text{CO}_2$  補償点（純光合成速度が 0 になる時の  $\text{CO}_2$  濃度）は，光強度の増加に伴い低下する。 $\text{CO}_2$  濃度の上昇に伴

い、純光合成速度に対する葉温の影響は著しくなり、純光合成速度を最大にする葉温は高温側に移行する。低 CO<sub>2</sub> 濃度では、葉温を上げてても（酵素活性を高めても）CO<sub>2</sub> 濃度が制限因子となるので葉温の影響は小さい。しかし、CO<sub>2</sub> 濃度を高めると酵素活性が制限因子となるので、葉温の影響が大きくなる。

キュウリ等で 2000 μmol/mol の高 CO<sub>2</sub> 濃度の雰囲気中に長時間置くと、純光合成速度が低下する。これは気孔抵抗及び葉肉抵抗が増加することが原因である。しかし、光合成産物の貯蔵組織の容量が大きく、同化産物が速やかに葉から貯蔵組織に転流するハツカダイコンなどの根菜類では、高 CO<sub>2</sub> 濃度下における純光合成速度の経時的な低下は比較的少ない。

#### iv) 湿度環境

全体的な傾向として、湿度が低く、光量が高く、風速が大きい場合、純光合成速度が低下する。これは一時的に葉からの蒸散速度が上昇し、そのため葉内含水率が低下すると、今度は気孔が閉鎖する（気孔抵抗が増大する）ために光合成速度が低下することが原因である。

### (2) モデルへの適用性

本文献の 5 章では、光合成に影響を及ぼす環境因子について整理されている。また、文献に記載されているように、個々の因子を分離して相関式等にするのは困難であることが理解できる。しかし、CO<sub>2</sub> 濃度の影響や葉温の影響についての図が示されており、水稻全体モデルに反映するためのモデル式を検討するのに有用と思われる。

#### 3.4.2.9. 新・生命科学シリーズ 植物の生態—生理機能を中心に—（寺島, 2013）

本文献は、植物生態学を教科書的にまとめたものである。全 12 章からなり、根本的なメカニズムを図表や数式を用いて深くまとめている。植物の進化や植物の特徴といった歴史から、植物の光合成、成長、転流を細胞レベルや炭素のエネルギー変換回路などによる微視的なメカニズム、そして世界の陸域生態系に伴う地球環境変化といった巨視的なメカニズムの詳細まで幅広くまとめられている。

本文献では、9 章 呼吸と転流及び 11 章 成長と分配の章が、水稻全体モデルに有用な情報と思われる。9 章では構成呼吸（水稻全体モデルでは成長呼吸と呼んでいる）と維持呼吸について、数式と今までに報告された実験結果の図表を紹介している。しかし、これらの数式等は水稻全体モデルで既に反映している。11 章で紹介している成長曲線についても水稻全体モデルが用いているものと同様である。また、11 章では窒素固定についても述べているが、これは水稻全体モデルでは対象外である。

本文献は、植物内部の反応メカニズムや細胞レベルの役割に詳細であり、非常に有効な参考書と思われるが、微視的なメカニズムの紹介が多く、併せてイネに関する研究結果の

紹介が少ないことから現状の水稲全体モデルには直接活用するのは困難である。他の文献と併せて、必要に応じて参考書的に使用するのが有用と考える。

#### 3.4.2.10. 陸域生態系の炭素動態－地球環境へのシステムアプローチ（及川，山本, 2013）

本文献は、地球全体の植物生態系における炭素動態についてまとめたものであり、地球規模の巨視的な影響についての研究内容をまとめている。

文献は5章からなり、1章では地球全体の陸域生態系の歴史（なりたち）を、2章でシステムアプローチ手法として地球規模又は非常に広範囲の植生域を対象とした炭素や気象の解析モデルについて紹介している。ここでは、土壌の炭素フラックスと温度の関係を数式として紹介しているが、これは既に水稲全体モデルで考慮している。また、解析モデルについては巨視的過ぎるため、水稲全体モデルには現状では活用できない。

3章は熱帯林、温帯林、亜寒帯針葉樹林等の異なる陸域生態系の炭素動態について紹介し、炭素の流れ（純一次生産量；NPPなどを指標）の違い等を示している。4章も3章の観測結果を受けて、広域の炭素動態について、モデル解析結果と観測結果との比較を行っている。

5章はアジアに着目した陸域生態系の特性をまとめている。3章と4章を併せて、アジア地域に絞ったものである。

このように、水稲全体モデルには巨視的過ぎるため、現状では活用可能な知見としては乏しく、他の文献と併せて必要に応じて参考書的に使用するのが有用と考える。

#### 3.4.3. 微生物活動を反映した<sup>14</sup>Cの水田における動態モデルの試作

水稲全体モデルに対して、水稲の光合成活性と炭酸ガスの取り込み量の関係、さらにはその取り込み量に対する温度の効果について考慮することができるよう改良を行った。

実施した作業は、まず関連する文献調査を行い、CO<sub>2</sub>濃度と気温の影響、およびイネ周辺の大気（近傍大気）と環境大気のCO<sub>2</sub>交換速度に関する知見が収集できた。これらの知見を水稲全体モデルに反映し、モデルの検証解析を行った。また、モデル化したパラメータを変動させることによりモデルの応答を確認した。

##### 3.4.3.1. モデルへ組み込むためのモデル式の検討

植物の成長に対するCO<sub>2</sub>濃度および気温（または葉温）の影響をモデル式で表すため、Ishii et al. (1977) のデータを利用した。Ishii et al. (1977) が報告している光合成速度と、本事業でこれまでに構築した水稲全体モデル（放射線医学総合研究所, 2013b）におけるイネの成長（収量や成長速度）との関係については不明なので、ここでは光合成速度がイネの重量に比例すると仮定した。

モデル式の作成のために、CO<sub>2</sub>濃度と気温を対象に回帰式を作成した。環境要因パラメ

ータによる回帰式の作成方法を図 3.4-1 に示す。まず、Ishii et al. (1977) による光合成速度や光合成量の絶対値は、水稻全体モデルの成長曲線にそのまま適用できないことから、ある環境因子の状態を基準点として、その時の光合成速度を 1 とし、異なる環境因子の状態における光合成速度を、基準点に対する比として表わした。次に、CO<sub>2</sub> 濃度に対して光合成増加割合について回帰式を作成した。この時、気温別に複数の回帰式を作成した。なお、気温別での CO<sub>2</sub> 濃度に対する回帰式は、同じ形式の回帰式にすることが重要である。得られた複数の回帰式の係数項と定数項の値を、気温に対する回帰式として表した。図 3.4-2 に上記の各段階における回帰式の作成結果を示す。

CO<sub>2</sub> 濃度に対する回帰式に対して、気温で回帰式を作成した係数項と定数項を併せると、2つのパラメータによる回帰式が作成できる。得られた回帰式を式 3.4-1 に示す。

$$C_{adj} = (0.0147 \cdot \ln(T_{air}) - 0.0342) \times C_{CO_2} - 2.2127 \cdot \ln(T_{air}) + 6.7963 \quad (\text{式 3.4-1})$$

ここで、

- $C_{adj}$  ; イネ重量に対する補正係数 (—)
- $T_{air}$  ; イネ生育周辺の気温 (近傍大気の気温 : °C)
- $C_{CO_2}$  ; イネ生育周辺の CO<sub>2</sub> 濃度 (近傍大気の CO<sub>2</sub> 濃度, ppm)

昨年度までに構築した水稻全体モデルの成長曲線は、ある CO<sub>2</sub> 濃度、ある気温条件下で作成されたものであるため、その条件を基準として解析で与える CO<sub>2</sub> 濃度、気温の条件における  $C_{adj}$  を下記のように再度補正して用いている。

$$C_{re\_adj\_i} = C_{adj\_i} / C_{adj\_base} \quad (\text{式 3.4-2})$$

ここで、

- $C_{re\_adj\_i}$  ; 最終的なイネ重量の補正係数
- $C_{adj\_base}$  ; 基準条件下での  $C_{adj}$
- $C_{adj\_i}$  ; 解析条件下での  $C_{adj}$

現在の成長曲線が作成されたイネの生育環境条件が不明なので、基準 CO<sub>2</sub> 濃度、基準気温を以下のように仮定した。

基準 CO<sub>2</sub> 濃度 ; 370 ppm

気象庁による 2000 年データに基づく (気象庁, 2014)。

基準気温 ; 20°C (生育期間中の平均気温として設定する)

成長曲線を作成した際に対象としたイネは、2000 年頃の国内北

側地域である。1991年から2000年における北海道から大阪までの主要都市におけるイネの生育期間に相当する5月～9月の平均気温は21.5°Cであった。

式3.4-1と式3.4-2から求めた最終的なイネ重量の補正係数  $C_{re\_adj\_i}$  を、気温10°C-30°CおよびCO<sub>2</sub>濃度350 ppm-500 ppmの範囲で計算し、表3.4-2に整理した。

Ishii et al. (1977) は、イネの繁茂状態によって近傍大気と環境大気のCO<sub>2</sub>交換速度が異なる可能性があることを述べている。水稻全体モデルにおいても、イネが繁茂する前の時期と繁茂した後の時期で、近傍大気と環境大気のCO<sub>2</sub>交換半減期を変える必要がある。そこで、出穂前と出穂後で、その交換半減期を変更できるようにモデルを改良した。改良したパラメータは以下の通りである：

出穂前の交換半減期； $T_{AE\_half1}$ （現在0.1 dayに設定）

出穂後の交換半減期； $T_{AE\_half2}$ （感度解析により値を変更する）

#### 3.4.3.2. 環境因子を考慮した水稻全体モデルの改良及び試解析

前節では、気温とCO<sub>2</sub>濃度変化によるイネ重量の変化を考慮したモデルを組み込んだ。これに関連する移行パスは、近傍大気および土壌1から無機炭素への移行、無機炭素から茎葉部および穂部への移行、茎葉部から穂部への移行、茎葉部および穂部から近傍大気への移行の7つである。これらに加え、近傍大気から環境大気への移行について、出穂前後で移行半減期を変更できるようにモデルを変更した。

##### (1) 基本解析（検証解析）

基本解析の環境因子の条件は以下のように設定した。

- － 大気中CO<sub>2</sub>濃度=370ppm
- － イネの生育期間中の気温=20°C

また、曝露条件と解析期間は以下の条件とした。

- － 曝露条件；灌漑水曝露。灌漑水が存在する時に3000 Bq/dayで曝露。  
10日間の中干し期有り（80 day～90 day）
- － 解析期間；単年のイネの生育期間（0 day～150 day）

基本条件により単年のイネ生育期間解析を実施し、従来モデルによる結果を再現できることを確認し、さらに、本作業でモデル化した部分が機能していることを確認するため、環境因子を以下の条件で実施した。

- i) 検証ケース1 ; 気温25°C（CO<sub>2</sub>濃度は基本条件と同じ）
- ii) 検証ケース2 ; CO<sub>2</sub>濃度470 ppm（気温は基本条件と同じ）

### 1) 検証ケース 1 (気温 25°C) の解析結果

検証ケース 1 の解析結果として、気温 25°C におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  量の経時変化を図 3.4-3 に、同じくイネ周辺のコンパートメントにおける  $^{14}\text{C}$  濃度の経時変化を図 3.4-4 示す。これらは基本解析ケースの結果および基本解析結果との比と合わせて示した。

表 3.4-2 に示した重量補正係数から、気温 25°C、大気中  $\text{CO}_2$  濃度 370 ppm の条件では基本条件 (20°C, 370 ppm) より重量が 19% 増加となる。図 3.4-3 のイネ内の  $^{14}\text{C}$  量比は約 1.2 であり、気温が 25°C に上昇することで  $^{14}\text{C}$  の存在量が約 20% 増加することを示している。 $^{14}\text{C}$  濃度 (比放射能) は、大気中  $\text{CO}_2$  濃度および灌漑水からの  $^{14}\text{C}$  曝露源の量も基本条件と同じなので、基本解析と同じ結果となることが期待され、図 3.4-4 におけるイネの  $^{14}\text{C}$  濃度の比も 1.0 であることが確認できた。以上の結果から、気温に対する重量増加のモデル化が適切であることが検証できた。

### 2) 検証ケース 2 ( $\text{CO}_2$ 濃度 470ppm) の解析結果

検証ケース 2 の解析結果として、大気中  $\text{CO}_2$  濃度 470 ppm におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  量の経時変化を図 3.4-5 に、同じくイネ周辺のコンパートメントにおける  $^{14}\text{C}$  濃度の経時変化を図 3.4-6 示す。これらは基本解析ケースの結果および基本解析結果との比と合わせて示した。

表 3.4-1 に示した重量補正係数から、大気中  $\text{CO}_2$  濃度 470ppm、気温 20°C の条件では、基本条件 (20°C, 370 ppm) より重量が 26% 重量増加となる。しかしながら、モデルによる解析では大気中  $\text{CO}_2$  濃度が 470 ppm に上昇した場合も 370 ppm の時と同じ  $^{14}\text{C}$  量となった (図 3.4-5)。モデルによる結果の理由として、以下が考えられる。イネの  $^{14}\text{C}$  量は、種々のパラメータに時間変化が無いとすると下式のように簡略化できる。

$$W_{C14} = C_{c14} \times (C_w \times W_C) \quad (\text{式 3.4-3})$$

ここで、

- $W_{C14}$  ; イネ内の C14 量 (Bq)
- $C_{C14}$  ; イネ内の C14 濃度 (Bq/g-C)
- $C_w$  ; イネの重量補正係数 (—)
- $W_C$  ; イネ内の炭素量 (g)

重量補正係数  $C_w$  は、 $C_w = a \times C_{CO_2} + b$  ( $C_{CO_2}$  は大気中  $\text{CO}_2$  濃度) の回帰式で表現される。定数項  $b$  はあるものの、ほぼ  $C_w \propto C_{CO_2}$  の比例関係にある。 $C_{c14}$  は、曝露量が一定であれば  $C_{c14} \propto 1 / C_{CO_2}$  の反比例の関係にある。したがって、大気中  $\text{CO}_2$  濃度の影響は  $C_{C14} \times C_w$

で相殺され、 $W_{c14}$  はほぼ一定となる。つまり、モデルの解析結果となる。このケースでは、イネの重量増加分が  $^{12}\text{C}$  で補われていることになるが、もし、 $\text{CO}_2$  濃度増加分が全て  $^{14}\text{C}$  によるものであれば、イネ内の  $^{14}\text{C}$  量や移行量も重量増加分だけ増加する。それは、曝露源からの流入量を増大させることで可能である。

一方、 $^{14}\text{C}$  濃度の場合、モデルの解析では基本解析の約 80% となった (図 3.4-6)。大気中  $\text{CO}_2$  濃度を 370ppm から 470ppm に変更すると、大気中  $^{14}\text{C}$  濃度は約 80% に減少する。したがって、イネ内部の  $^{14}\text{C}$  濃度 (比放射能) も約 80% に低下する。つまり、 $\text{CO}_2$  濃度の上昇による  $^{14}\text{C}$  の希釈効果と考えられる。

以上の結果から、大気中  $\text{CO}_2$  濃度に対する重量増加のモデル化も適切に為されていることが確認できた。また、気温と  $\text{CO}_2$  濃度の 2 つの環境因子に対するイネ重量の変動をモデル化することによって、以下のことが判った。気温が変化しイネの重量が増減すると、イネの重量増減に従ってイネの  $^{14}\text{C}$  取り込み量が増減する。当然ながら、イネの  $^{14}\text{C}$  取り込み量は曝露源からの  $^{14}\text{C}$  供給量にも依存する。一方、大気中  $\text{CO}_2$  濃度が変動しイネの重量が増減しても、イネの  $^{14}\text{C}$  取り込み量は変化しない。この場合、イネの  $^{14}\text{C}$  取り込み量は、曝露源からの  $^{14}\text{C}$  供給量にのみ依存することになる。

## (2) 感度解析

水田環境では水稻の生長に伴い茎葉部により風が遮られる。そこで大気交換が近傍大気 (群落内) と環境大気 (群落外) の交換半減期に着目し、感度解析を行った。

### 1) 感度解析 No.4

本ケースでは、近傍大気と環境大気の交換半減期を基本解析条件の 0.1 day から 10 day に変更し、イネの生育期間中、その交換半減期は一定として感度解析を行った。

感度解析 No.4 の条件および基本条件 (近傍大気の移行半減期 0.1 day 一定) におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  量の経時変化と両条件ので得られた  $^{14}\text{C}$  量比を図 3.4-7 に、同じく両条件下でのイネ周辺のコンパートメントにおける  $^{14}\text{C}$  濃度の経時変化と  $^{14}\text{C}$  濃度比を図 3.4-8 示す。

交換半減期を 0.1 day から 10 day と 100 倍にすることで、近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度も約 100 倍になる。そのため、イネ内  $^{14}\text{C}$  量およびイネ内  $^{14}\text{C}$  濃度のいずれも、基本解析の約 100 倍となった (図 3.4-7, 図 3.4-8)。交換半減期が大きくなったことで近傍大気から環境大気に  $\text{CO}_2$  が流入しにくいため、本ケースの環境大気の  $^{14}\text{C}$  濃度は、近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度に比べて著しく低くなった。

この感度解析では、収穫前に落水する 120 day 以後の  $^{14}\text{C}$  濃度も基本解析と異なる結果が得られた。基本解析では 120 day 以後、近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度が若干上昇しているが、本感度解析では低下した。120 day 以後は灌漑水が無くなるので、曝露源からの  $^{14}\text{C}$  流入が停止する。その後、近傍大気には土壌 1 に蓄積された  $^{14}\text{C}$  が移行するが、土壌 1 の  $^{14}\text{C}$  濃度

も低下するので、曝露源からの  $^{14}\text{C}$  流入が停止すれば近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度は低くなる。しかし、基本解析では、環境大気との交換半減期が短いため、曝露源から  $^{14}\text{C}$  が流入してもすぐに環境大気に移行し、 $^{14}\text{C}$  濃度の低い状態が継続する。そのため、120 day 後、相対的に  $^{14}\text{C}$  濃度の高い土壌 1 から近傍大気に  $^{14}\text{C}$  が移行することで、近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度が上昇することになる。

## 2) 感度解析 No.6

本ケースでは、近傍大気と環境大気の交換半減期を出穂前と出穂後で変化させ、出穂前は基本解析条件の 0.1 day、出穂後は 10 day として感度解析を行った。

感度解析 No.6 の条件および基本条件（近傍大気移行半減期 0.1 day 一定）におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  量の経時変化と両条件の得られた  $^{14}\text{C}$  量比を図 3.4-9 に、同じく両条件下でのイネ周辺のコンパートメントにおける  $^{14}\text{C}$  濃度の経時変化と  $^{14}\text{C}$  濃度比を図 3.4-10 示す。

どの指標も出穂前（83 day）までは基本解析結果と同じで、出穂後は感度解析 No.4 の結果に類似した。近傍大気の  $^{14}\text{C}$  濃度は、出穂直後では感度解析 No.4 に比べて低く、中干し期が終わる 90 day 以後で同程度となった。したがって、中干し期までに生長する茎葉部では、その  $^{14}\text{C}$  量が感度解析 No.4 よりも少なくなり、中干し期以降に生長し始める穂部の  $^{14}\text{C}$  量は、感度解析 No.4 と同程度となった。

以上のことから、近傍大気の交換半減期を生育期間中に変化させると、各々の交換半減期を一定とした場合の結果を繋ぎ合えた状態に類似する結果が得られる。しかし、イネ内の  $^{14}\text{C}$  存在量は、イネの生長に合わせて交換半減期を変化させる前の  $^{14}\text{C}$  取り込み分が引き継がれることから、交換半減期を変化させる時期によって、イネ内の  $^{14}\text{C}$  量が大きく変動する可能性があることを示している。

### 3.4.4. 水稻全体モデル改良のまとめ

微生物活性によって大気中  $\text{CO}_2$  濃度が高くなった場合、または気温が上昇した場合、水稻の  $\text{CO}_2$  取り込み量に与える影響について文献調査を行ったところ、環境因子による植物応答が、生長期間を通じた長時間の場合と限定的な条件下における短時間の場合で異なることが示唆された。

また、水稻周辺や群落内部の  $\text{CO}_2$  濃度は、植物からやや離れた上部の大気中  $\text{CO}_2$  濃度とは異なり、特に水稻が繁茂した後では、群落内部と群落上部でガス交換が制限されることが報告がされていた。文献調査から得られたデータに基づき、気温と  $\text{CO}_2$  濃度による水稻重量が変動するモデル化を行った。気温と  $\text{CO}_2$  濃度に対するイネ重量変化率の回帰式を作成し、水稻全体モデルに組み込んだ。また、作物の群落内部と群落上部のガス交換の状態を考慮するため、水稻の出穂前と出穂後で、近傍大気と環境大気の  $\text{CO}_2$  交換半減期を変化させることができるようモデルの改良を行った。モデル改良の妥当性を確認するため、灌

漑水曝露の条件で、気温と CO<sub>2</sub> 濃度を変化させて解析を行い、モデル化が適切であることを検証した。

感度解析では、近傍大気の交換半減期についての検討を行い、近傍大気の交換半減期を大きくすると、近傍大気の <sup>14</sup>C 濃度もそのファクター分に応じて上昇し、出穂前後で交換半減期を変化させると、イネの生育期間中で交換半減期を一定として解析した結果を繋ぎ合わせた状態に類似することが分かった。

以上の検討から、気温や CO<sub>2</sub> 濃度の影響は、イネ重量に対してファクター2 を超えることは少ないものの、近傍大気と環境大気の交換半減期による影響は、ファクター100 程度を見積もっておく必要があることから、近傍大気の交換半減期に対しては、その値や切り替え時期について、より現実的な設定が重要であることが確認できた。

### 3. 5. おわりに

本調査では、微生物の代謝活性と <sup>14</sup>C のガス化との関係を検討し、新たな環境移行パラメータを提案することを目的とする。本年度は、農耕地において <sup>14</sup>C の重要な移行経路であるガス化を直接測定する方法の開発、土壌微生物の呼吸活性測定方法の開発、ガス化した <sup>14</sup>C の農作物への移行評価モデルを構築に資する文献調査、および移行パラメータの妥当性を検討する感度解析を行った。

ガス化した <sup>14</sup>C の直接測定では、<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> と <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> 以外のガスに分別して測定することができた。特に、<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> は光合成により農作物に取り込まれる可能性があるため、ヒトの被ばく線量にかかわる重要な分子である。開発した手法を確認するために、湛水水田土壌を用いたバッチ試験を行った。その結果、<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> は初期 <sup>14</sup>C 添加濃度に対して 43.8%で、<sup>14</sup>CO<sub>2</sub> 以外のガスは 0.1%であった。このことから発生したガスの主な化学形態は <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> であることが分かった。本手法における <sup>14</sup>C の回収率は 87.3%であった。したがって、この手法はさらなる改良の余地がある。さらに、日本全国より採取した農耕地土壌を用いて <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> および <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> 以外のガスを定量し、その発生量と土壌酵素活性との関係について解析する必要がある。

土壌酵素活性の指標として、本年度は土壌微生物の呼吸活性に着目し、測定法を開発を行った。脱水素酵素反応による還元で生じる INT フォルマザンを分光光度計で測定することにより、土壌試料中の微生物呼吸活性を定量することが可能となった。この方法により土壌タイプと呼吸活性の関係について調査したが、有意な関係は認められなかった。今後、日本全国より採取した農耕地土壌の土壌呼吸活性を調査するとともに呼吸活性と <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> および <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> 以外のガス発生量との関係を明らかにする必要がある。また、呼吸活性と <sup>14</sup>C 含有ガス発生量との関係を明らかにするため、土壌呼吸活性を支配する要因、たとえば土壌微生物量や土壌微生物の群集構造などの基礎情報を取得する必要がある。

ガス化した <sup>14</sup>C の農作物への移行評価モデルを構築するために行った文献調査では、特

に炭酸ガス濃度と光合成活性の関係について必要な情報の収取に努めた。炭酸ガス濃度の上昇に伴い光合成活性が高くなり、収穫量が増加することが確認できた。一方で、炭酸ガス濃度の上昇による温度障害にも注意する必要があることが分かった。したがって、近傍大気（水稻群落内大気）と環境大気（水稻群落外大気）のガス交換は<sup>14</sup>Cの農作物への取り込みにおいて重要なパラメータとなる可能性があることが分かった。

文献調査から得られた水稻の光合成活性に対する気温とCO<sub>2</sub>濃度の影響に関する知見を基に、本事業において構築された水稻全体モデルの改良を行った。改良したモデルの妥当性を確認するために、気温とCO<sub>2</sub>濃度を変化させて解析を行い、モデル化が適切であることを検証した。近傍大気と環境大気のCO<sub>2</sub>交換半減期に着目した感度解析では、CO<sub>2</sub>濃度や気温よりもこの交換の速度が水稻の<sup>14</sup>C含量および<sup>14</sup>C濃度に強く影響することが分かった。今後、微生物活動と近傍大気（群落内）<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>濃度との関係、そして近傍大気と環境大気（群落外）とのCO<sub>2</sub>交換の関係について精査し、モデルに組み込む必要がある。

## 引用文献

- Castro, H.F., Classen, A.T., Austin, E.E., Norby, R.J., Schadt, C.W. (2010): Soil microbial community responses to multiple experimental climate change drivers, *Appl Environ Microbiol* 76, 999-1007.
- Frölicher, T.L., Winton, M., Sarmiento, J.L. (2014): Continued global warming after CO<sub>2</sub> emissions stoppage, *Nature Climate Change* 4, 40-44.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2004): 金属廃棄物中の放射化物（炭素14）の挙動などに関する国内外の情報調査, RWMC—TRJ-04002-1, 25 pp.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2010): 平成21年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発 報告書 (第3分冊) —放射化金属廃棄物中の C-14 の放出挙動評価—.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2011): 平成22年度 地層処分技術調査等委託費 TRU廃棄物処分技術 ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発 報告書 (第3分冊) —放射化金属廃棄物中の C-14 の放出挙動評価—.
- 原菌芳信 (2001): 大気-植生間におけるCO<sub>2</sub>等の交換と流れ, *ながれ* 20, 384-395.
- 長谷川利拵 (2006): 大気CO<sub>2</sub>増加、温暖化で水稻の生育、収量はどうなる, 農業環境技術研究所 研究成果発表会 2006, 7pp.
- 長谷川利拵, 酒井英光, 常田岳志, 中村浩史, 臼井靖浩, 林健太郎, 吉本真由美, 福岡峰彦 (2013): つくばみらいFACE実験によるイネの高CO<sub>2</sub>応答の検証, *光合成* 23, 18-23.
- 放射線医学総合研究所 (2008): 平成19年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査, 415pp.

- 放射線医学総合研究所 (2009): 平成20年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査, 463pp.
- 放射線医学総合研究所 (2010): 平成21年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査, 487pp.
- 放射線医学総合研究所 (2011): 平成22年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査, 485pp.
- 放射線医学総合研究所 (2012): 平成23年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査, 435pp.
- 放射線医学総合研究所 (2013a): 平成24年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査, 419pp.
- 放射線医学総合研究所 (2013b): 放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査 6年間（平成19年度～平成24年度）のまとめ [詳細版], 197pp.
- Ishii, R., Ohsugi, R., Murata, Y. (1977): The effect of temperature on the rates of photosynthesis, respiration and the activity of RuDP Carboxylase in barley, Rice and Maize leaves, Japan Jour Crop Sci 46, 516-523.
- Jones, G.A., Humphrey, B.A. (1978): Evaluation of a dehydrogenase assay based on tetrazolium reduction for rapid in vitro estimation of fermentation activity in rumen contents, Can. J. Anim. Sci. 58, 501-511.
- 核燃料サイクル開発機構 (1999): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—, JNC TN1400 99-0201-12.
- 核燃料サイクル開発機構, 電気事業連合会 (2000): TRU廃棄物処分概念検討書 -第2次TRU廃棄物処分研究開発取りまとめ-, JNC TY1400 2000-001/FEPC TRU-2000-01.
- Kaneko, S., Tababe, H., Sasho, M., Takahashi, R., Shibano, T., S, T. (2003): A study on the chemical forms and migration behavior of Carbon-14 leached from the simulated hull waste in the underground condition, Mat Res Soc Symp Proc 757, 621-628.
- 気象庁 (2014): "二酸化炭素濃度の測定結果", [http://ds.data.jma.go.jp/ghg/kanshi/obs/co2\\_yearave.html](http://ds.data.jma.go.jp/ghg/kanshi/obs/co2_yearave.html), (2014.2.17.アクセス).
- 小山佳彦, 和田修, 藤野守弘 (2001): 異なる温度と光条件下におけるスプレーギクの光合成速度の比較, 兵庫県農業技術センター研究報告書告 (農業) 49, 21-24.
- Mersi, W., Schinner, F. (1991): An improved and accurate method for determining the dehydrogenase activity of soils with iodonitrotetrazolium chloride, Biol Fert Soils 11, 216-220.
- Mukhopadhyay, S., Maiti, S.K. (2010): Dehydrogenase activity in natural and mine soil- a review, Indian J Environ Prot 30, 921-933.
- Murase, J., Kimura, M. (1994): Methane production and its fate in paddy fields VI. Anaerobic oxidation of methane in plow ayer soil, Soil Sci Plant Nutr 40, 505-514.

- Mwinyihija, M., Meharg, A., Dawson, J., Strachan, N.C., Killham, K. (2006): An ecotoxicological approach to assessing the impact of tanning industry effluent on river health, *Arch Environ Contam Toxicol* 50, 316-324.
- 長野敏英, 大政謙次 (編集) (2005): 新農業気象・環境学, 朝倉書店, 東京, 209pp.
- 奈良県 (2014): "土壌診断基準",  
[http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/hozen\\_type/h\\_sehi\\_kizyun/pdf/nkijun.pdf](http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/hozen_type/h_sehi_kizyun/pdf/nkijun.pdf), (2014.2.17.アクセス).
- 及川武久, 山本晋 (編集) (2013): 陸域生態系の炭素動態 地球環境へのシステムアプローチ, 京都大学学術出版会, 京都, 414pp.
- Panagiotopoulos, C., Sempéré, R., Para, J., Raimbault, P., Rabouille, C., Charrière, B. (2012): The composition and flux of particulate and dissolved carbohydrates from the Rhone River into the Mediterranean Sea, *Biogeosciences* 9, 1827-1844.
- PerkinElmer (2014): "Hionic-Fluor クラシカルシンチレーションカクテル",  
<http://www.perkinelmer.co.jp/ri/tabid/249/Default.aspx>, (2014.2.17.アクセス).
- Peters, V., Conrad, R. (1996): Sequential reduction processes and initiation of CH<sub>4</sub> production upon flooding of oxic upland soils, *Soil Biol Biochem* 28, 371-382.
- Quilchano, C., Marañón, T. (2002): Dehydrogenase activity in Mediterranean forest soils, *Biol Fertil Soils* 35, 102-107.
- Ragusa, S.R., McNevin, D., Qasem, S., Mitchell, C. (2004): Indicators of biofilm development and activity in constructed wetlands microcosms, *Water Res* 38, 2865-2873.
- Rossel, D., Tarradellas, J., Bitton, G., Morel, J.-L. (1996): Use of enzymes in soil ecotoxicology: a case for dehydrogenase and hydrolytic. In *Soil Ecotoxicology*, (eds, Tarradellas, j., Bitton, G., Rossel, D.), CRC press, Boca Raton, 179-206.
- Schindlbacher, A., Rodler, A., Kuffner, M., Kitzler, B., Sessitsch, A., Zechmeister-Boltenstern, S. (2011): Experimental warming effects on the microbial community of a temperate mountain forest soil, *Soil Biol Biochem* 43, 1417-1425.
- 篠崎直樹 (2005): 水稲・小麦の二毛作における熱収支・CO<sub>2</sub>濃度の季節変化, *地球環境研究* 7, 31-42.
- Shukla, G., Varma, A. (2011): *Soil Enzymology*, 22, Springer, New York, 400pp.
- 田中浩平 (2011): 高温条件における水稲の生育予測, 生育診断よび品質の向上に関する研究, 福岡県農業総合試験場特別報告 2011, 第32号, 68pp.
- 寺島一郎 (2013): 植物の生態 -生理機能を中心に-, 裳華房, 東京, 268 pp.
- Trevors, J.T. (1984): Effect of substrate concentration, inorganic nitrogen, O<sub>2</sub> concentration, temperature and pH on dehydrogenase activity in soil, *Plant Soil* 77, 285-293.
- Trevors, J.T., Mayfield, C.I., Inniss, W.E. (1982): Measurement of Electron Transport System (ETS) activity in soil, *Microb Ecol* 8, 163-168.

Welp, G. (1999): Inhibitory effects of the total and water-soluble concentrations of nine different metals on the dehydrogenase activity of a loess soil, *Biol Fert Soils* 30, 132-139.



表 3.2-1 用語とその説明

用語	説明
土壌試料	奈良県の水田より採取した土壌で、風乾の後礫を除いた土壌試料
湛水土壌試料	土壌試料と $^{14}\text{C}$ 標識酢酸溶液を 1:10 の重量比で混合した試料
ろ液試料	液相を得るために培養後の湛水土壌試料をろ過し得られたろ液試料
捕集土壌試料	固相を得るために培養後の湛水土壌試料をろ過し、フィルター上に捕集された土壌試料
含水率測定試料	含水率を求めるために捕集土壌試料の一部を採取した土壌試料

表 3.2-2 土壌試料の土壌分類と物理化学特性

項目	土壌分類と測定値	
	FAO-UNESCO 農耕地土壌分類	Fluvisol 灰色低地土
土壌分類	FAO-UNESCO 農耕地土壌分類	Fluvisol 灰色低地土
粒径分布(%)	粗粒砂 (2-0.2 mm)	27.4
	細粒砂 (0.2-0.02 mm)	44.4
	シルト (0.02-0.002 mm)	14.4
	粘土 (<0.002 mm)	13.8
物理化学パラメータ	pH(H <sub>2</sub> O)	6.2
	塩基置換容量 (cmol(+)/kg 乾土)	11.3
	炭素含量(g/kg)	18.9
	窒素含量(g/kg)	2.1

表 3.2-3 第 3 章 2 節で用いた記号とその概要

記号	単位	概要
<i>Liq</i>	Bq vial <sup>-1</sup>	液相の <sup>14</sup> C 濃度
<i>Liq<sub>s_d</sub></i>	Bq	ろ液測定試料の <sup>14</sup> C 放射能測定値
<i>Liq<sub>tw</sub></i>	g vial <sup>-1</sup>	湛水土壌試料の <sup>14</sup> C 標識酢酸溶液重量
<i>Liq<sub>s_w</sub></i>	g	液体シンチレーションカクテルと混合したろ液試料の重量
<i>Sol</i>	Bq vial <sup>-1</sup>	固相の <sup>14</sup> C 濃度
<i>Sol<sub>s_d</sub></i>	Bq	燃焼した捕集土壌試料サブサンプルの <sup>14</sup> C 放射能測定値
<i>Sol<sub>s_dw</sub></i>	g	燃焼した捕集土壌試料サブサンプルの水分量
<i>Sol<sub>tw</sub></i>	g vial <sup>-1</sup>	湛水土壌試料の土壌乾燥重量
<i>Sol<sub>s_dw</sub></i>	g	燃焼した捕集土壌試料サブサンプルの乾燥重量
<i>u</i>		含水率測定試料の含水率
<i>S<sub>ww</sub></i>	g	含水率測定試料の湿重量
<i>S<sub>dw</sub></i>	g	含水率測定試料の乾燥重量
<i>Sol<sub>s_ww</sub></i>	g	燃焼した捕集土壌試料サブサンプルの湿重量
<i>Gas</i>	Bq vial <sup>-1</sup>	気相の <sup>14</sup> C 濃度
<i>Gas<sub>si_d</sub></i>	g	i 番目の炭酸ガス吸収剤の <sup>14</sup> C 放射能測定値
<i>Gas<sub>twi</sub></i>	g vial <sup>-1</sup>	i 番目の炭酸ガス吸収剤の重量
<i>Gas<sub>si_w</sub></i>	g	液体シンチレーションカクテルと混合した i 番目の炭酸ガス吸収剤の重量

表 3.2-4 NaOH と Hionic-Fluor の混合割合試験

試料番 号	体積 (mL)			dpm	
	<sup>14</sup> C 溶液*	1M NaOH	Hionic-Fluor	mean	± sd
1	0.1	0.9	17	14,181	± 31
2	0.1	1.9	16	14,195	± 46
3	0.1	3.9	14	14,151	± 49
4	0.1	5.9	12	14,029	± 28
5	0.1	7.9	10	14,167	± 27

\*<sup>14</sup>C 溶液として [1,2-<sup>14</sup>C] 酢酸ナトリウム溶液を使用した。

表 3.2-5 装置 1 における各測定値

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
$^{14}\text{C}$ 標識酢酸溶液の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq g}^{-1}$ )*	1,661	1,661	1,661	1,661	0
湛水土壌試料-土壌重量 ( $\text{Sol}_{\text{tw}}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	0.4999	0.5002	0.5000	5.0.E-01	1.5.E-04
湛水土壌試料-溶液重量 ( $\text{Liq}_{\text{tw}}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	5.0189	5.0064	5.0168	5.0.E+00	6.7.E-03
ろ液測定試料重 ( $\text{Liq}_{\text{s}_w}$ , $\text{g}$ )	1.0226	1.0038	1.0042	1.0.E+00	1.1.E-02
ろ液測定試料放射能 ( $\text{Liq}_{\text{s}_d}$ , $\text{Bq}$ )	107	102	97	1.0.E+02	4.8.E+00
捕集土壌含水率 ( $u$ )	0.29	0.31	0.30	3.0.E-01	9.3.E-03
捕集土壌乾重 ( $\text{Sol}_{\text{s}_d}$ , $\text{g}$ )	0.0141	0.0139	0.0138	1.4.E-02	1.6.E-04
捕集土壌水含量 ( $\text{Sol}_{\text{s}_w}$ , $\text{g}$ )	0.0057	0.0062	0.0060	6.0.E-03	2.1.E-04
捕集土壌試料放射能 ( $\text{Sol}_{\text{s}_d}$ , $\text{Bq}$ )	81.4	77.8	78.3	7.9.E+01	1.9.E+00
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 重量 ( $\text{Gas}_{\text{tw}1}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.3	16.3	16.3	1.6.E+01	1.8.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{\text{s}1_w}$ , $\text{g}$ )	6.3	6.3	6.3	6.3.E+00	3.1.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 放射能 ( $\text{Gas}_{\text{s}1_d}$ , $\text{Bq}$ )	1,575	1,444	1,514	1.5.E+03	6.6.E+01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 重量 ( $\text{Gas}_{\text{tw}2}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.4	16.3	16.3	1.6.E+01	4.8.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{\text{s}2_w}$ , $\text{g}$ )	6.3	6.3	6.3	6.3.E+00	2.2.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 放射能 ( $\text{Gas}_{\text{s}2_d}$ , $\text{Bq}$ )	27.2	3.0	4.1	1.1.E+01	1.4.E+01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 重量 ( $\text{Gas}_{\text{tw}3}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.5	16.3	16.3	1.6.E+01	8.6.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{\text{s}3_w}$ , $\text{g}$ )	6.3	6.3	6.3	6.3.E+00	2.5.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 放射能 ( $\text{Gas}_{\text{s}3_d}$ , $\text{Bq}$ )	0.84	0.52	0.43	6.0.E-01	2.2.E-01

\*Run1 から Run3 まで、全て同じ[1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウム溶液を使用した。

表 3.2-6 装置 1 の測定値より求めた各  $^{14}\text{C}$  濃度と回収率

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
培養開始時の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	8,337	8,316	8,333	8.3.E+03	1.1.E+01
液相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	525	510	487	5.1.E+02	1.9.E+01
固相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	2,854	2,770	2,809	2.8.E+03	4.2.E+01
気相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	4,165	3,759	3,904	3.9.E+03	2.1.E+02
回収率 (%)	90.5	84.6	86.4	87.2	3.0

表 3.2-7 装置 2 における各測定値

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
$^{14}\text{C}$ 標識酢酸溶液の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq g}^{-1}$ )*	1,689	1,689	1,689	1,689	0
湛水土壌試料-土壌重量 ( $\text{Sol}_{\text{tw}}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	0.4997	0.5000	0.5003	5.0.E-01	3.0.E-04
湛水土壌試料-溶液重量 ( $\text{Liq}_{\text{tw}}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	5.0235	4.9955	4.9740	5.0.E+00	2.5.E-02
ろ液測定試料重 ( $\text{Liq}_{\text{s}_w}$ , $\text{g}$ )	1.0026	1.0037	1.003	1.0.E+00	5.6.E-04
ろ液測定試料放射能 ( $\text{Liq}_{\text{s}_d}$ , $\text{Bq}$ )	98	98	93	9.6.E+01	2.5.E+00
捕集土壌含水率 ( $u$ )	0.29	0.32	0.30	3.0.E-01	1.1.E-02
捕集土壌乾重 ( $\text{Sol}_{\text{s}_dw}$ , $\text{g}$ )	0.0138	0.0134	0.0138	1.4.E-02	2.1.E-04
捕集土壌水含量 ( $\text{Sol}_{\text{s}_fw}$ , $\text{g}$ )	0.0058	0.0062	0.0059	6.0.E-03	2.3.E-04
捕集土壌試料放射能 ( $\text{Sol}_{\text{s}_d}$ , $\text{Bq}$ )	81.3	65.1	97.0	8.1.E+01	1.6.E+01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 重量 ( $\text{Gas}_{\text{tw}1}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.4	16.4	16.5	1.6.E+01	8.9.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{\text{s}1_w}$ , $\text{g}$ )	6.2	6.2	6.2	6.2.E+00	2.0.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 放射能 ( $\text{Gas}_{\text{s}1_d}$ , $\text{Bq}$ )	1,460	1,524	1,487	1.5.E+03	3.2.E+01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 重量 ( $\text{Gas}_{\text{tw}2}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.5	16.4	16.5	1.6.E+01	8.7.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{\text{s}2_w}$ , $\text{g}$ )	6.2	6.2	6.2	6.2.E+00	1.7.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 放射能 ( $\text{Gas}_{\text{s}2_d}$ , $\text{Bq}$ )	17.4	29.2	5.0	1.7.E+01	1.2.E+01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 重量 ( $\text{Gas}_{\text{tw}3}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.7	16.4	16.4	1.6.E+01	1.6.E-01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{\text{s}3_w}$ , $\text{g}$ )	6.2	6.3	6.3	6.2.E+00	1.4.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 放射能 ( $\text{Gas}_{\text{s}3_d}$ , $\text{Bq}$ )	0.66	0.80	0.43	6.3.E-01	1.9.E-01

\*Run1 から Run3 まで、全て同じ[1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウム溶液を使用した。

表 3.2-8 装置 2 の測定値より求めた各  $^{14}\text{C}$  濃度と回収率

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
培養開始時の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	8,486	8,439	8,403	8.4.E+03	4.2.E+01
液相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	491	486	463	4.8.E+02	1.5.E+01
固相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	2,919	2,400	3,508	2.9.E+03	5.5.E+02
気相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	3,910	4,082	3,948	4.0.E+03	9.0.E+01
回収率 (%)	86.3	82.6	94.2	87.7	6.0

表 3.2-9 装置 3 における各測定値

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
$^{14}\text{C}$ 標識酢酸溶液の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq g}^{-1}$ )*	1,681	1,681	1,681	1,681	0
湛水土壤試料-土壤重量 ( $\text{Sol}_{tw}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	0.4997	0.5000	0.5003	5.0.E-01	3.0.E-04
湛水土壤試料-溶液重量 ( $\text{Liq}_{tw}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	5.0187	5.0138	5.0051	5.0.E+00	6.9.E-03
ろ液測定試料重 ( $\text{Liq}_{s_w}$ , $\text{g}$ )	0.9981	1	1.0041	1.0.E+00	3.1.E-03
ろ液測定試料放射能 ( $\text{Liq}_{s_d}$ , $\text{Bq}$ )	101	120	99	1.1.E+02	1.2.E+01
捕集土壤含水率 ( $u$ )	0.31	0.33	0.32	3.2.E-01	7.1.E-03
捕集土壤乾重 ( $\text{Sol}_{s_{dw}}$ , $\text{g}$ )	0.0103	0.0104	0.0108	1.0.E-02	2.6.E-04
捕集土壤水含量 ( $\text{Sol}_{s_{fw}}$ , $\text{g}$ )	0.0047	0.0051	0.0050	4.9.E-03	1.8.E-04
捕集土壤試料放射能 ( $\text{Sol}_{s_d}$ , $\text{Bq}$ )	52.9	57.8	57.1	5.6.E+01	2.7.E+00
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 重量 ( $\text{Gas}_{tw1}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.5	16.5	16.5	1.7.E+01	2.2.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s1_w}$ , $\text{g}$ )	4.2	4.2	3.9	4.1.E+00	1.7.E-01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 放射能 ( $\text{Gas}_{s1_d}$ , $\text{Bq}$ )	785	825	866	8.3.E+02	4.0.E+01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 重量 ( $\text{Gas}_{tw2}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.6	16.5	16.5	1.7.E+01	4.4.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s2_w}$ , $\text{g}$ )	4.2	4.2	4.2	4.2.E+00	1.5.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 放射能 ( $\text{Gas}_{s2_d}$ , $\text{Bq}$ )	6.0	8.6	3.7	6.1.E+00	2.4.E+00
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 重量 ( $\text{Gas}_{tw3}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.6	16.5	16.5	1.7.E+01	6.3.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s3_w}$ , $\text{g}$ )	4.2	4.2	4.2	4.2.E+00	2.2.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 放射能 ( $\text{Gas}_{s3_d}$ , $\text{Bq}$ )	0.59	0.55	0.51	5.5.E-01	4.2.E-02

\*Run1 から Run3 まで、全て同じ[1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウム溶液を使用した。

表 3.2-10 装置 3 の測定値より求めた各  $^{14}\text{C}$  濃度と回収率

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
培養開始時の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	8,439	8,430	8,416	8.4.E+03	1.2.E+01
液相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	508	604	494	5.4.E+02	6.0.E+01
固相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	2,538	2,756	2,627	2.6.E+03	1.1.E+02
気相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	3,130	3,269	3,676	3.4.E+03	2.8.E+02
回収率 (%)	73.2	78.6	80.8	77.5	3.9

表 3.2-11 装置 4 における各測定値

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
$^{14}\text{C}$ 標識酢酸溶液の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq g}^{-1}$ )*	1,688	1,688	1,688	1,688	0
湛水土壌試料-土壌重量 ( $\text{Sol}_{tw}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	0.4999	0.5000	0.4999	5.0.E-01	5.8.E-05
湛水土壌試料-溶液重量 ( $\text{Liq}_{tw}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	5.0031	5.0180	5.0094	5.0.E+00	7.5.E-03
ろ液測定試料重 ( $\text{Liq}_{s_w}$ , $\text{g}$ )	1.0026	1.0037	1.003	1.0.E+00	5.6.E-04
ろ液測定試料放射能 ( $\text{Liq}_{s_d}$ , $\text{Bq}$ )	92	86	94	9.1.E+01	4.3.E+00
捕集土壌含水率 ( $u$ )	0.29	0.32	0.30	3.0.E-01	1.1.E-02
捕集土壌乾重 ( $\text{Sol}_{s_{dw}}$ , $\text{g}$ )	0.0138	0.0134	0.0138	1.4.E-02	2.1.E-04
捕集土壌水含量 ( $\text{Sol}_{s_{lw}}$ , $\text{g}$ )	0.0058	0.0062	0.0059	6.0.E-03	2.3.E-04
捕集土壌試料放射能 ( $\text{Sol}_{s_d}$ , $\text{Bq}$ )	93.9	76.5	77.1	8.2.E+01	9.9.E+00
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 重量 ( $\text{Gas}_{nw1}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.3	16.2	16.3	1.6.E+01	5.7.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s1_w}$ , $\text{g}$ )	4.1	4.2	4.2	4.2.E+00	1.0.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 放射能 ( $\text{Gas}_{s1_d}$ , $\text{Bq}$ )	780	927	985	9.0.E+02	1.1.E+02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 重量 ( $\text{Gas}_{nw2}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.1	16.0	16.3	1.6.E+01	1.5.E-01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s2_w}$ , $\text{g}$ )	4.1	4.2	4.2	4.2.E+00	2.4.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 放射能 ( $\text{Gas}_{s2_d}$ , $\text{Bq}$ )	10.8	9.2	3.5	7.8.E+00	3.8.E+00
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 重量 ( $\text{Gas}_{nw3}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.2	16.2	16.2	1.6.E+01	5.3.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s3_w}$ , $\text{g}$ )	4.1	4.2	4.5	4.3.E+00	2.0.E-01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 放射能 ( $\text{Gas}_{s3_d}$ , $\text{Bq}$ )	0.54	0.47	0.42	4.8.E-01	6.2.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 4 重量 ( $\text{Gas}_{nw4}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.4	16.1	15.9	1.6.E+01	3.0.E-01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 4 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s4_w}$ , $\text{g}$ )	4.2	4.2	4.0	4.1.E+00	9.6.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 4 放射能 ( $\text{Gas}_{s4_d}$ , $\text{Bq}$ )	0.43	0.44	0.44	4.4.E-01	5.5.E-03

\*Run1 から Run3 まで、全て同じ[1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウム溶液を使用した。

表 3.2-12 装置 4 の測定値より求めた各  $^{14}\text{C}$  濃度と回収率

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
培養開始時の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	8,446	8,471	8,457	8.5.E+03	1.3.E+01
液相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	461	429	469	4.5.E+02	2.1.E+01
固相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	3,376	2,829	2,780	3.0.E+03	3.3.E+02
気相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	3,109	3,642	3,874	3.5.E+03	3.9.E+02
回収率 (%)	82.2	81.5	84.2	82.6	1.4

表 3.2-13 装置 2 における各測定値 (キャリア効果の検討)

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
$^{14}\text{C}$ 標識酢酸溶液の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq g}^{-1}$ )*	1,676	1,676	1,676	1,676	0
湛水土壌試料-土壌重量 ( $\text{Sol}_{tw}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	0.5000	0.5003	0.5001	5.0.E-01	1.5.E-04
湛水土壌試料-溶液重量 ( $\text{Liq}_{tw}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	4.9992	5.0169	5.0134	5.0.E+00	9.4.E-03
ろ液測定試料重 ( $\text{Liq}_{s_w}$ , $\text{g}$ )	1.0002	1.0024	1.0043	1.0.E+00	2.1.E-03
ろ液測定試料放射能 ( $\text{Liq}_{s_d}$ , $\text{Bq}$ )	107	89	90	9.5.E+01	1.0.E+01
捕集土壌含水率 ( $u$ )	0.28	0.27	0.32	2.9.E-01	2.6.E-02
捕集土壌乾重 ( $\text{Sol}_{s_{dw}}$ , $\text{g}$ )	0.0110	0.0111	0.0101	1.1.E-02	5.2.E-04
捕集土壌水含量 ( $\text{Sol}_{s_{lw}}$ , $\text{g}$ )	0.0043	0.0041	0.0048	4.4.E-03	3.4.E-04
捕集土壌試料放射能 ( $\text{Sol}_{s_d}$ , $\text{Bq}$ )	63.2	52.9	59.9	5.9.E+01	5.2.E+00
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 重量 ( $\text{Gas}_{nw1}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.7	16.7	16.7	1.7.E+01	1.8.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s1_w}$ , $\text{g}$ )	4.2	4.2	4.1	4.2.E+00	4.8.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 1 放射能 ( $\text{Gas}_{s1_d}$ , $\text{Bq}$ )	1,001	1,027	992	1.0.E+03	1.8.E+01
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 重量 ( $\text{Gas}_{nw2}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.7	16.7	16.7	1.7.E+01	2.7.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s2_w}$ , $\text{g}$ )	4.2	4.2	4.1	4.2.E+00	4.7.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 2 放射能 ( $\text{Gas}_{s2_d}$ , $\text{Bq}$ )	6.6	2.8	1.2	3.5.E+00	2.8.E+00
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 重量 ( $\text{Gas}_{nw3}$ , $\text{g vial}^{-1}$ )	16.7	16.7	16.7	1.7.E+01	2.7.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 測定試料重量 ( $\text{Gas}_{s3_w}$ , $\text{g}$ )	4.2	4.2	4.1	4.2.E+00	5.4.E-02
$\text{CO}_2$ 吸収剤 3 放射能 ( $\text{Gas}_{s3_d}$ , $\text{Bq}$ )	0.50	0.42	0.36	4.3.E-01	6.7.E-02

\*Run1 から Run3 まで、全て同じ[1,2- $^{14}\text{C}$ ]酢酸ナトリウム溶液を使用した。

表 3.2-14 装置 2 の測定値より求めた各  $^{14}\text{C}$  濃度と回収率 (キャリア効果の検討)

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
培養開始時の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	8,379	8,409	8,403	8.4.E+03	1.6.E+01
液相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	534	446	450	4.8.E+02	5.0.E+01
固相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	2,847	2,379	2,932	2.7.E+03	3.0.E+02
気相の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq vial}^{-1}$ )	3,975	4,067	3,991	4.0.E+03	4.9.E+01
回収率 (%)	87.8	82.0	87.7	85.8	3.4

表 3.2-15 装置 1 における各測定値 (CO<sub>2</sub> 吸収剤の効果)

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
<sup>14</sup> C 標識酢酸溶液の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq g <sup>-1</sup> )*	1,670	1,670	1,670	1,670	0
湛水土壌試料-土壌重量 (Sol <sub>tw</sub> , g vial <sup>-1</sup> )	0.4997	0.5000	0.5003	5.0.E-01	3.0.E-04
湛水土壌試料-溶液重量 (Liq <sub>tw</sub> , g vial <sup>-1</sup> )	5.0187	5.0138	5.0051	5.0.E+00	6.9.E-03
ろ液測定試料重 (Liq <sub>s_w</sub> , g)	1.0068	1.0007	1.0033	1.0.E+00	3.1.E-03
ろ液測定試料放射能 (Liq <sub>s_d</sub> , Bq)	145	108	108	1.2.E+02	2.1.E+01
捕集土壌含水率 (u)	0.33	0.30	0.33	3.2.E-01	1.5.E-02
捕集土壌乾重 (Sol <sub>s_dw</sub> , g)	0.0103	0.0104	0.0103	1.0.E-02	6.5.E-05
捕集土壌水含量 (Sol <sub>s_lw</sub> , g)	0.0051	0.0045	0.0050	4.8.E-03	3.2.E-04
捕集土壌試料放射能 (Sol <sub>s_d</sub> , Bq)	61.6	51.6	54.4	5.6.E+01	5.1.E+00
CO <sub>2</sub> 吸収剤 1 重量 (Gas <sub>tw1</sub> , g vial <sup>-1</sup> )	14.3	14.2	14.2	1.4.E+01	6.9.E-02
CO <sub>2</sub> 吸収剤 1 測定試料重量 (Gas <sub>s1_w</sub> , g)	3.6	3.6	3.6	3.6.E+00	9.9.E-03
CO <sub>2</sub> 吸収剤 1 放射能 (Gas <sub>s1_d</sub> , Bq)	1,051	1,055	1,016	1.0.E+03	2.1.E+01
CO <sub>2</sub> 吸収剤 2 重量 (Gas <sub>tw2</sub> , g vial <sup>-1</sup> )	14.2	14.2	14.2	1.4.E+01	1.6.E-02
CO <sub>2</sub> 吸収剤 2 測定試料重量 (Gas <sub>s2_w</sub> , g)	3.6	3.6	3.6	3.6.E+00	2.6.E-02
CO <sub>2</sub> 吸収剤 2 放射能 (Gas <sub>s2_d</sub> , Bq)	0.3	0.3	0.3	3.2.E-01	4.1.E-02
CO <sub>2</sub> 吸収剤 3 重量 (Gas <sub>tw3</sub> , g vial <sup>-1</sup> )	14.4	14.2	14.2	1.4.E+01	1.3.E-01
CO <sub>2</sub> 吸収剤 3 測定試料重量 (Gas <sub>s3_w</sub> , g)	3.6	3.6	3.6	3.6.E+00	7.1.E-03
CO <sub>2</sub> 吸収剤 3 放射能 (Gas <sub>s3_d</sub> , Bq)	0.30	0.31	0.32	3.1.E-01	7.9.E-03

\*Run1 から Run3 まで、全て同じ[1,2-<sup>14</sup>C]酢酸ナトリウム溶液を使用した。

表 3.2-16 装置 1 の測定値より求めた各 <sup>14</sup>C 濃度と回収率 (CO<sub>2</sub> 吸収剤の効果)

項目	Run1	Run2	Run3	平均値	標準偏差
培養開始時の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq vial <sup>-1</sup> )	8,380	8,372	8,358	8.4.E+03	1.2.E+01
液相の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq vial <sup>-1</sup> )	723	542	538	6.0.E+02	1.1.E+02
固相の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq vial <sup>-1</sup> )	2,937	2,451	2,622	2.7.E+03	2.5.E+02
気相の <sup>14</sup> C 濃度 (Bq vial <sup>-1</sup> )	4,187	4,180	4,008	4.1.E+03	1.0.E+02
回収率 (%)	93.6	85.7	85.8	88.4	4.6

表 3.3-1 土壌試料とその土壌タイプ・採取地・酢酸添加時のガス化率

土壌 ID	土壌分類名 (和名)	土壌分類名 FAO/UNESCO	都道府県	気相 (%)	
				平均	標準偏差
EP-SD-02	多湿黒ボク土	Andosol	岩手	63.9	1.4
EP-SD-09	灰色低地土	Fluvisol	三重	63.9	1.0
EP-SD-11	灰色低地土	Fluvisol	福岡	63.0	1.0
EP-SD-21	灰色低地土	Fluvisol	滋賀	75.3	1.4
EP-SD-29	灰色低地土	Fluvisol	新潟	67.6	1.1
EP-SD-32	灰色低地土	Fluvisol	京都	38.3	1.4
EP-SD-48	褐色低地土	Cambisol	徳島	62.6	0.7
EP-SD-60	低地水田土	Fluvisol	愛媛	58.3	2.9

表 3.3-2 土壌試料とその土壌タイプ・採取地・酢酸添加時のガス化率

土壌 ID	土壌分類名 (和名)	土壌分類名 FAO/UNESCO	都道府県	気相 (%)	
				平均	標準偏差
EP-SD-02	多湿黒ボク土	Andosol	岩手	63.9	1.4
EP-SD-32	灰色低地土	Fluvisol	京都	38.3	1.4
EP-SD-34	グライ低地土	Fluvisol	島根	71.3	1.3
EP-SD-39	灰色低地土	Fluvisol	宮城	57.0	1.4

表 3.4-1 水稲・小麦の二毛作における熱収支・CO<sub>2</sub>濃度の季節変化（篠崎, 2005）において測定された項目

測定項目	内容
気温, 水蒸気圧, 湿度 水温	地表面より 1.5m, 植被層面, 群落内
地温	作土層の深さ 1, 5, 10, 20, 30, 40, 50 cm
全天日射量 反射率	地表面より 1.5 m, 群落内
風速・風向	地表面より 1.5 m, 植被層面, 群落内
正味放射量	地表面より 1.5 m
地中熱流量	作土層の 5, 10 cm
太陽高度・雲量	
葉面積指数	LAI
CO <sub>2</sub> 濃度	地表面より 1.5m, 植被層面, 群落内
土壌水分	深さ 10 cm

表 3.4-2 式 3.4-1 および式 3.4-2 より求めたイネの重量補正值

CO <sub>2</sub> 濃度 (ppm)	気温 (°C)				
	10	15	20	25	30
350	0.41	2.77	0.95	1.12	1.26
360	0.41	0.74	0.97	1.15	1.30
370	0.41	0.76	<b>1.00</b>	<b>1.19</b>	1.34
380	0.41	0.77	1.03	1.22	1.39
390	0.41	0.79	1.05	1.26	1.43
400	0.41	0.80	1.08	1.29	1.47
410	0.41	0.82	1.10	1.33	1.51
420	0.41	0.83	1.13	1.36	1.55
430	0.41	0.84	1.16	1.40	1.59
440	0.41	0.86	1.18	1.43	1.63
450	0.41	0.87	1.21	1.46	1.68
460	0.40	0.89	1.23	1.50	1.72
470	0.40	0.90	<b>1.26</b>	1.53	1.76
480	0.40	0.92	1.28	1.57	1.80
490	0.40	0.93	1.31	1.60	1.84
500	0.40	0.95	1.34	1.64	1.88



図 3.2-1 乾燥後ふるいにかけて礫を除いた土壌試料



図 3.2-2 湛水土壌試料の褐色ガラスバイアル瓶



図 3.2-3 GF/F ガラスフィルター上に捕集した土壌試料



図 3.2-4 遠心分離後に生じた沈殿物



図 3.2-5 ろ液測定試料



図 3.2-6 コンバストコーン上に採取した土壤試料  
コーンの縁に土壤試料を塗るようにして採取した



図 3.2-7 サンプルオキシダイザ（上）とオキシダイザによる土壌の燃焼（下）

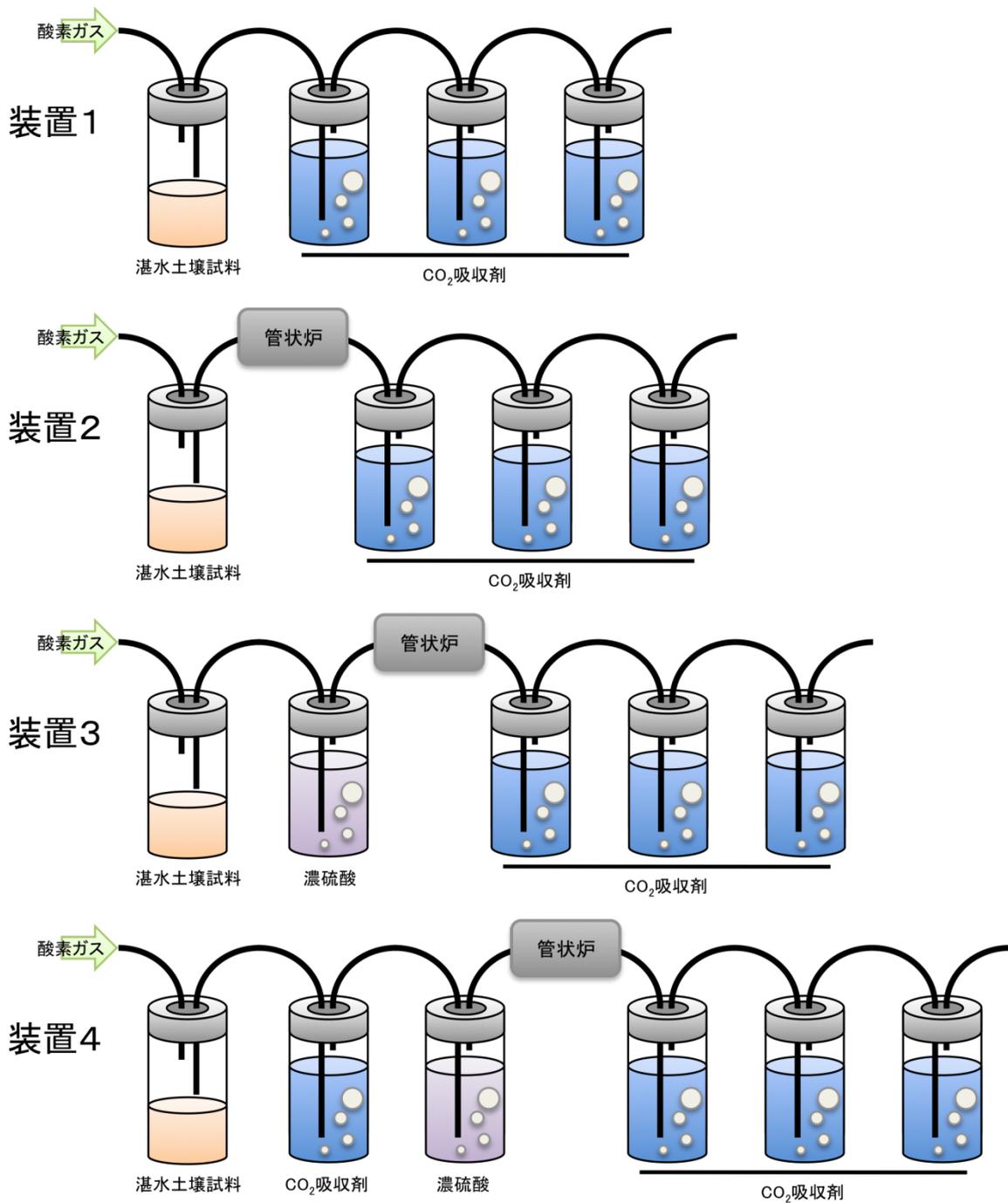


図 3.2-8 ガス化した <sup>14</sup>C の回収装置



図 3.2-9 管状炉と石英管の触媒  
触媒間は石英ウールで仕切った



図 3.2-10  $^{14}\text{C}$  ガス直接測定装置概略図

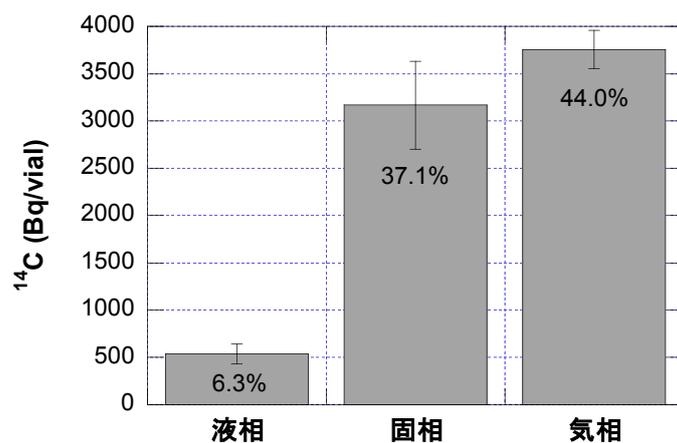


図 3.2-11 最適化した装置における  $^{14}\text{C}$  の液相率，固相率，気相率  
バー内の数値は初期  $^{14}\text{C}$  量に対するパーセント割合

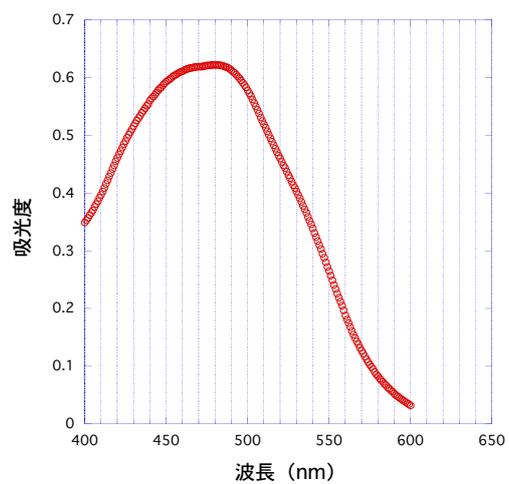


図 3.3-1 INT ホルマザンの吸光スペクトル

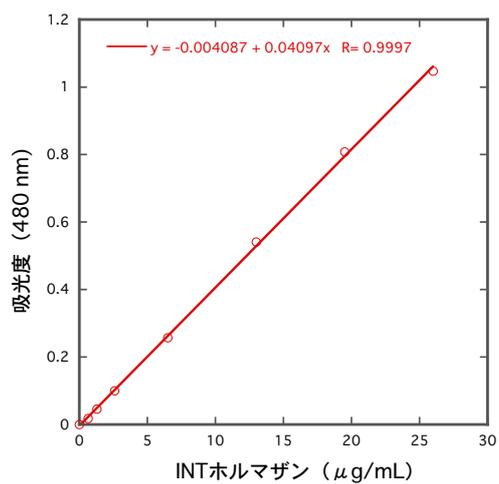


図 3.3-2 INT ホルマザンの検量線



図 3.3-3 振とう培養時の試料配置様子

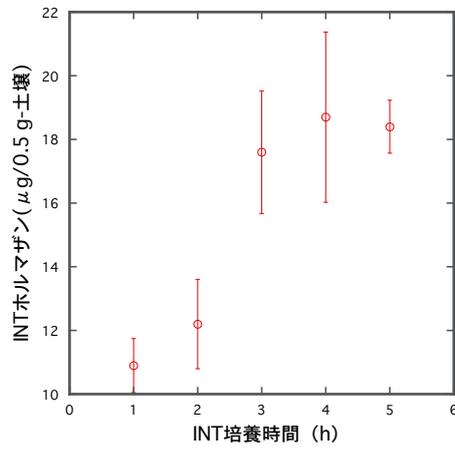


図 3.3-4 INT ホルマザン生成量と INT 振とう時間

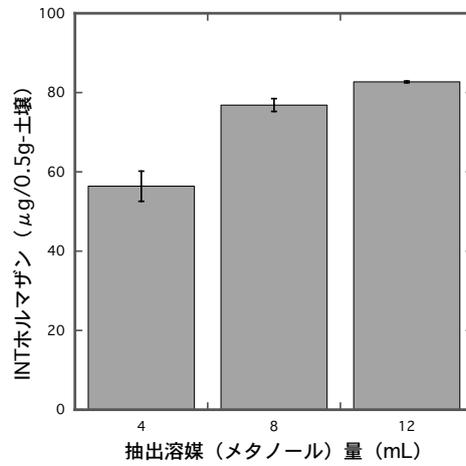


図 3.3-5 INT ホルマザン抽出量と抽出溶媒 (メタノール) 量

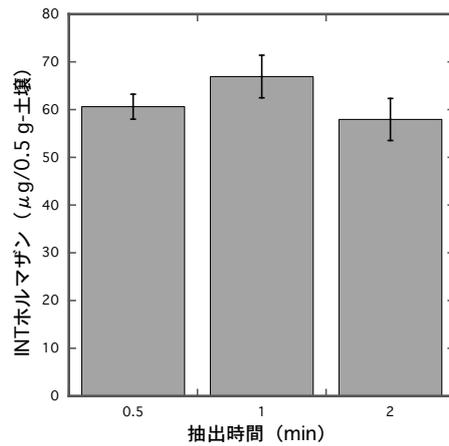


図 3.3-6 INT ホルマザン抽出量と抽出時間

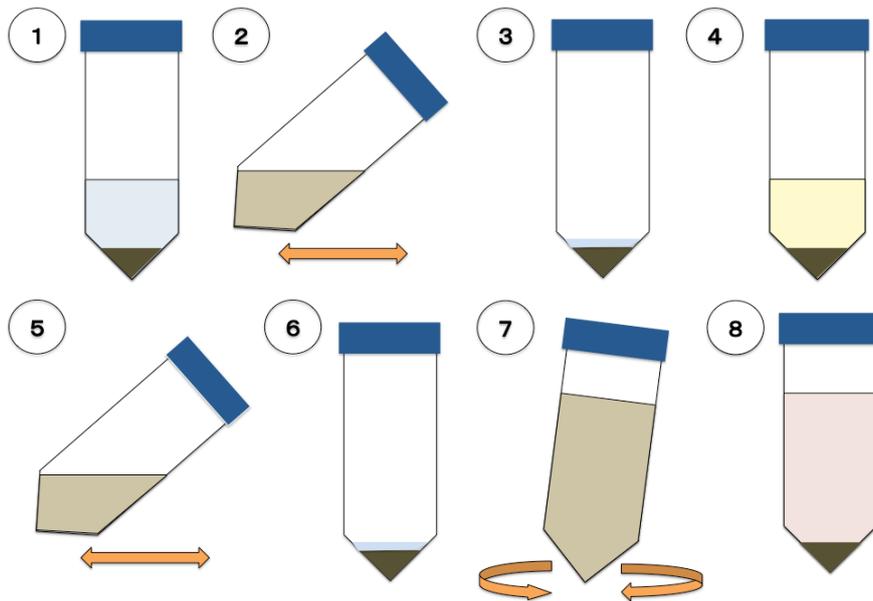


図 3.3-7 測定方法の概略図

①風乾土壌 0.5 g および超純水 5.0 mL (固液比 1:10) を 50 mL 容の遠沈管 (ポリプロピレン容器) に加え密閉 ②7 日間 25°C の暗条件で 140 rpm で振とう培養 ③遠心分離 (2110 × g, 18 分) をかけ上清 4 mL 除去 ④0.05%INT 水溶液を 4 mL 添加 ⑤3 時間 25°C の暗条件での振とう ⑥遠心分離 (2110 × g, 18 分) をかけ上清 4 mL を除去 ⑦8 mL メタノールを添加し 1 分間ボルテックスミキサーで攪拌 ⑧遠心分離 (2110 × g, 3 分) をかけ生成した INT ホルマザンを抽出しする。(その後上清をろ過し分光光度計で測定)

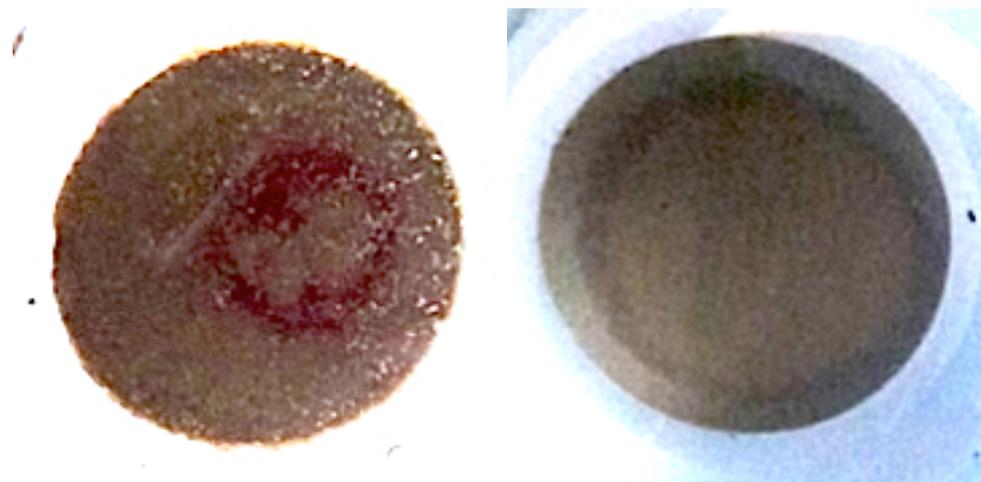


図 3.3-8 INT 振とうおよび遠心分離後の様子

(左) 赤色 INT ホルマザン生成が視覚的に確認できる試料 (右) 視覚的に確認できない試料 (抽出作業後に再度 INT ホルマザン生成が無いことを確認)

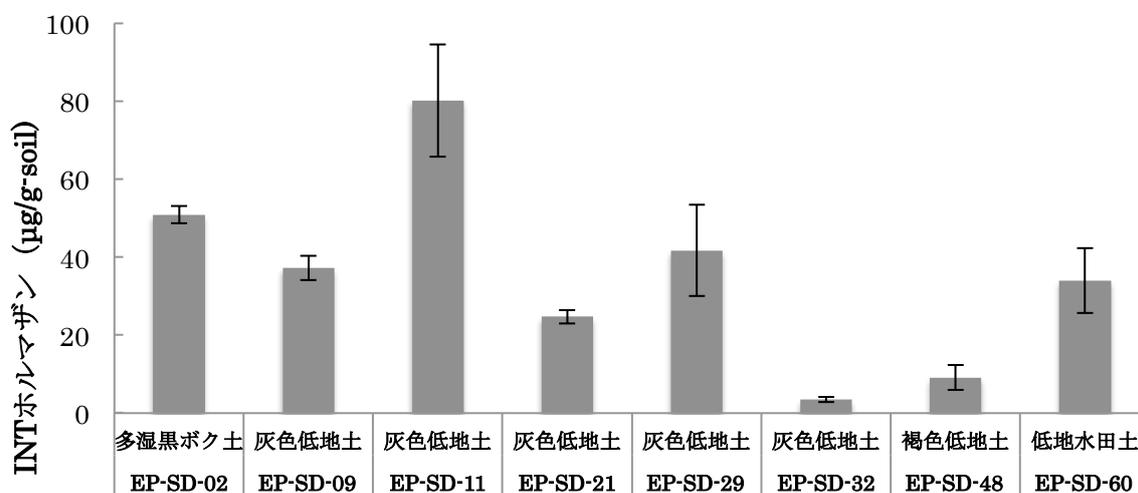


図 3.3-9 INT ホルマザン生成量と土壌タイプ

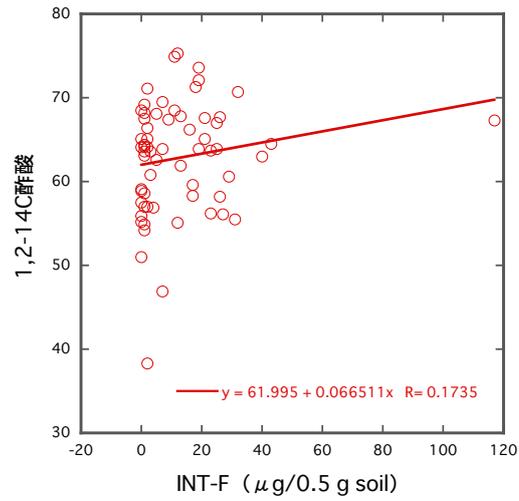


図 3.3-10 63 水田土壌試料の INT ホルマザン生成量と酢酸由来の 1,2-<sup>14</sup>C ガス化率

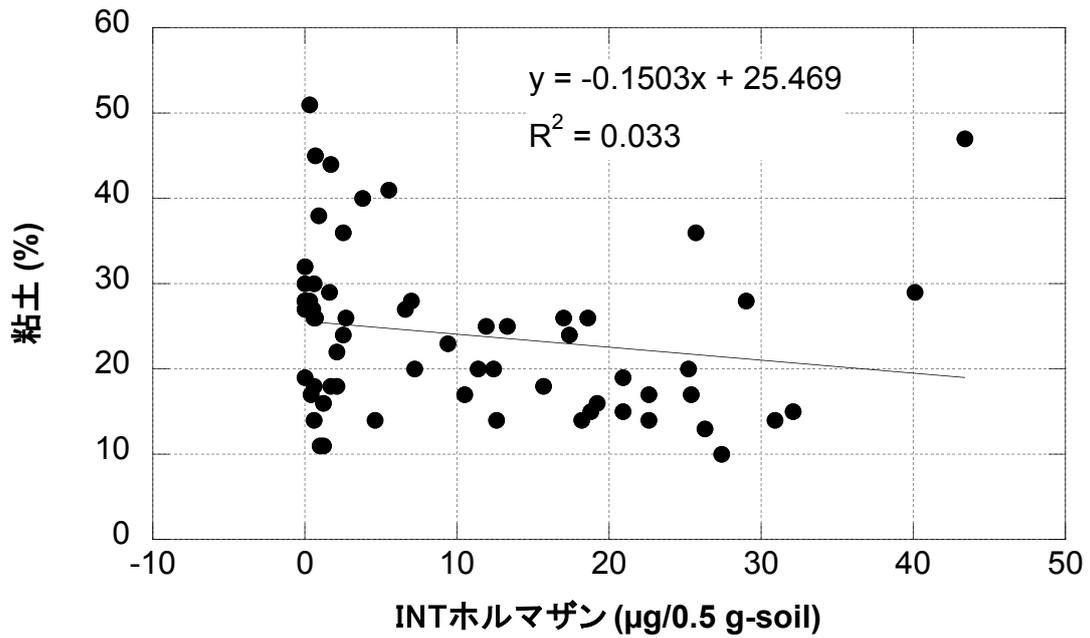


図 3.3-11 粘土質の割合と INT ホルマザン生成量

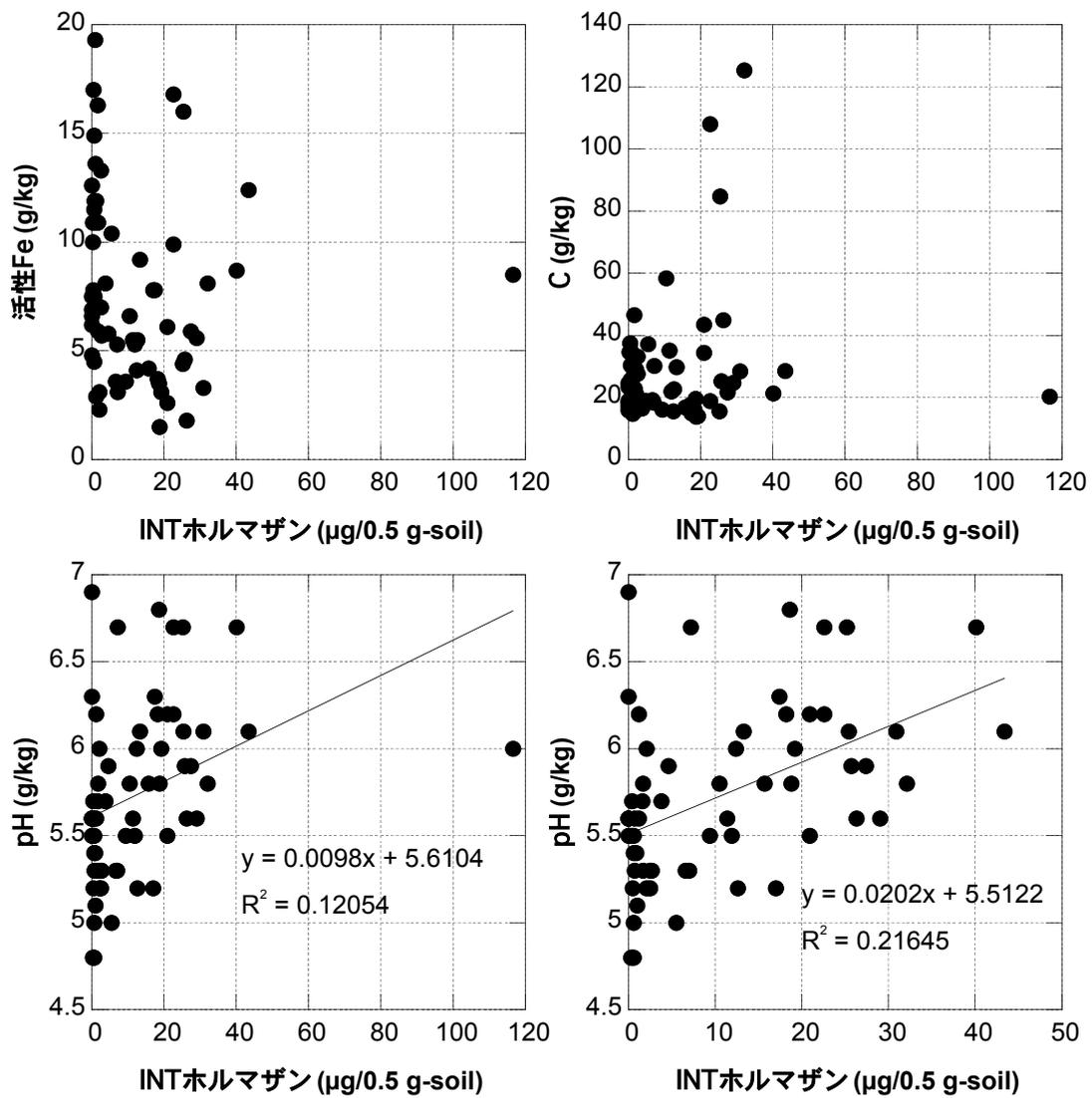


図 3.3-12 活性鉄・炭素量・pH と INT ホルマザン生成量の関係-Y 軸をそれぞれの要素、X 軸に INT ホルマザン生成量とした。pH と INT ホルマザン (左下) に関係が見られたため、異常値 1 点を除外し、再度相関を調べた。

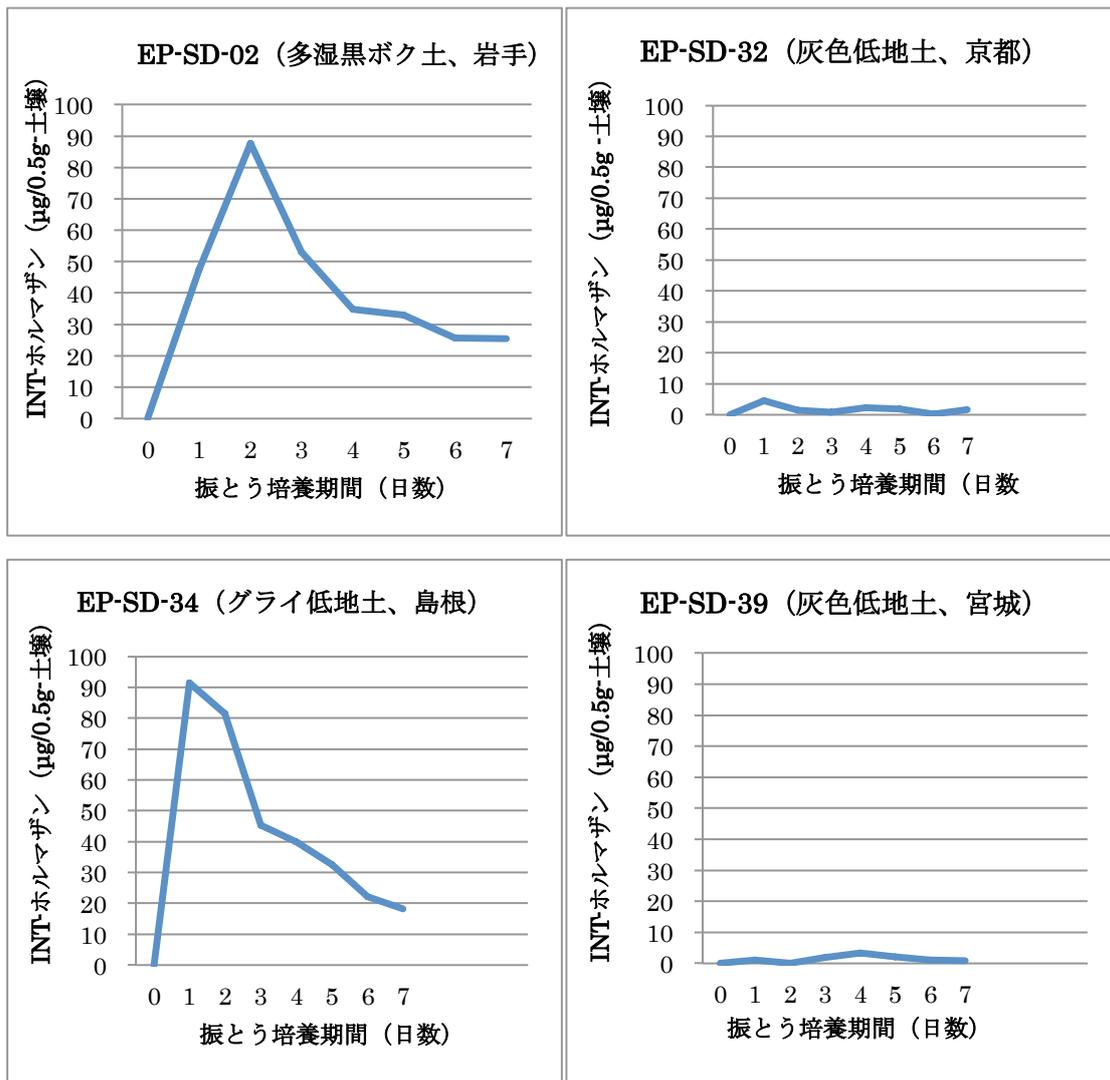


図 3.3-13 INT ホルマザン生成量の経時変化

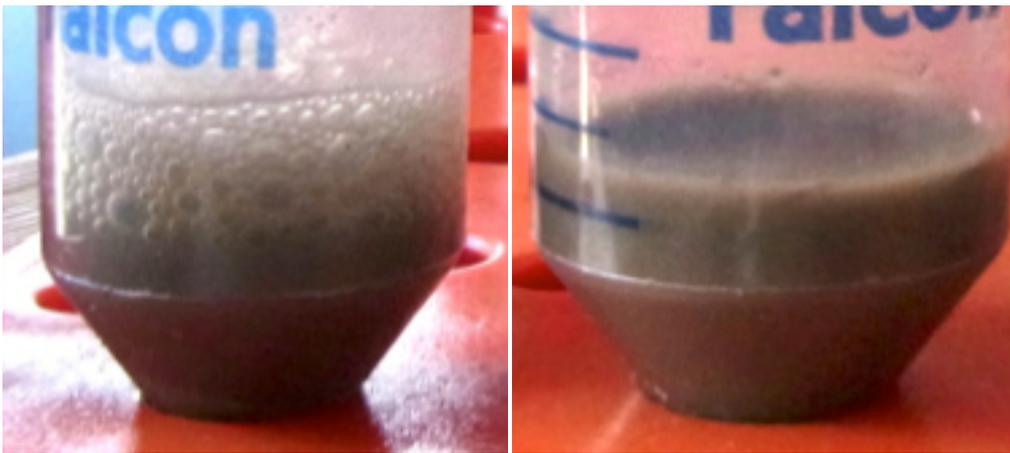


図 3.3-14 振とう培養後にみられた気泡：(左上) あり (右上) なし



図 3.3-15 INT 添加し振とうした後の遠心分離後に確認された白色のフィルム状の物質

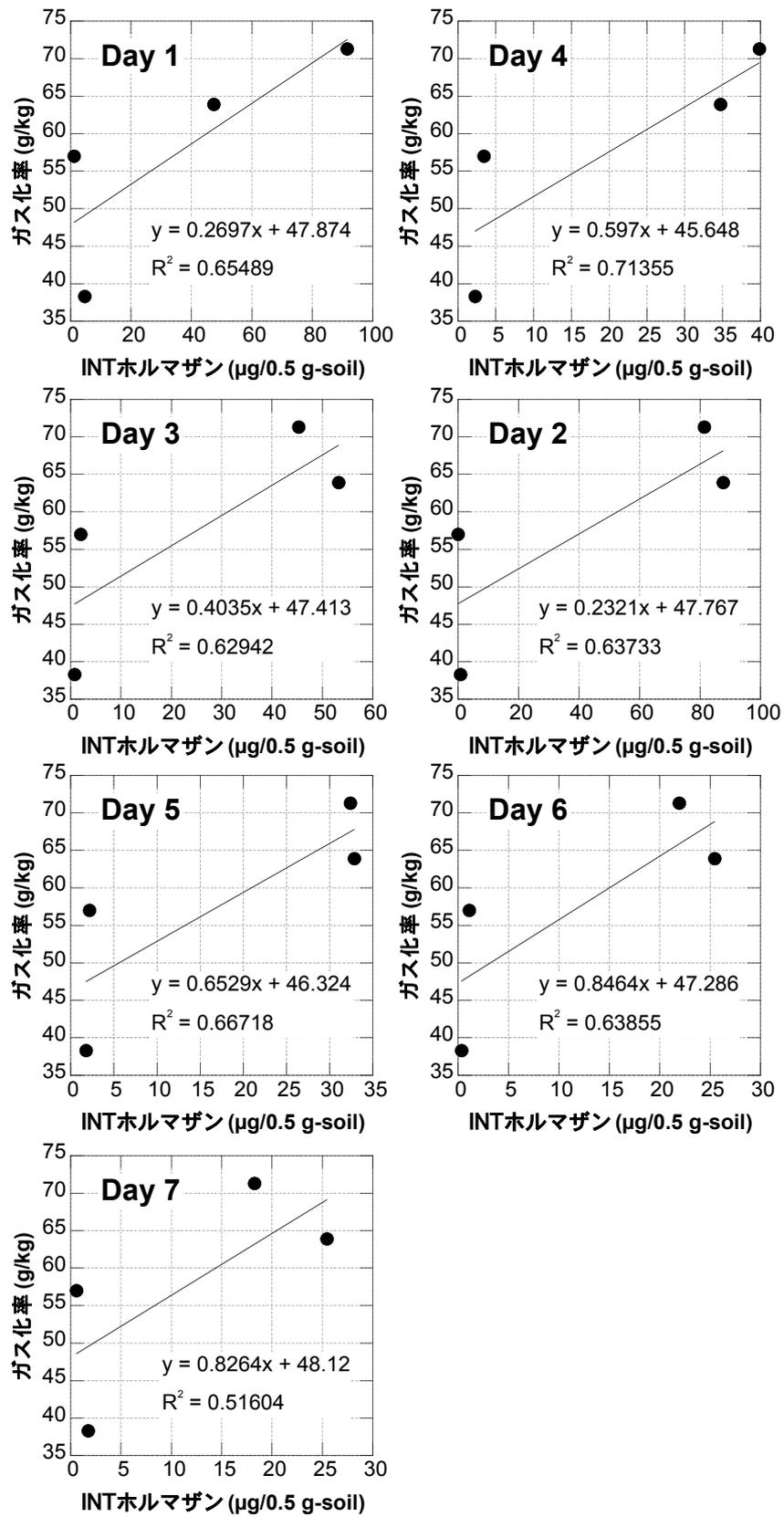


図 3.3-16 INT ホルマザン生成量と振とう培養日数

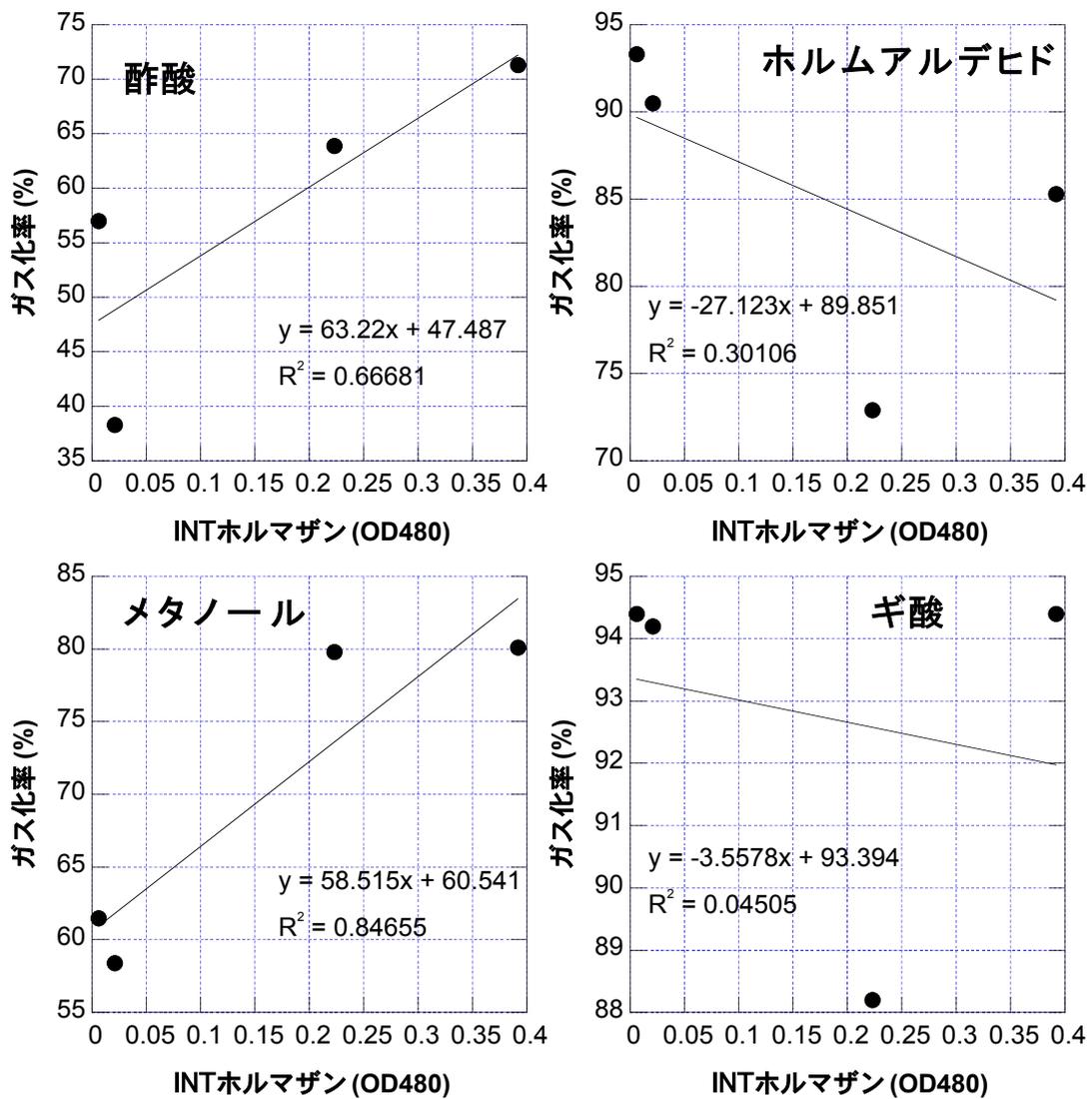


図 3.3-17 添加する有機物を変化させた時の培養 1 日目の土壌試料の呼吸活性に対するガス化率の関係

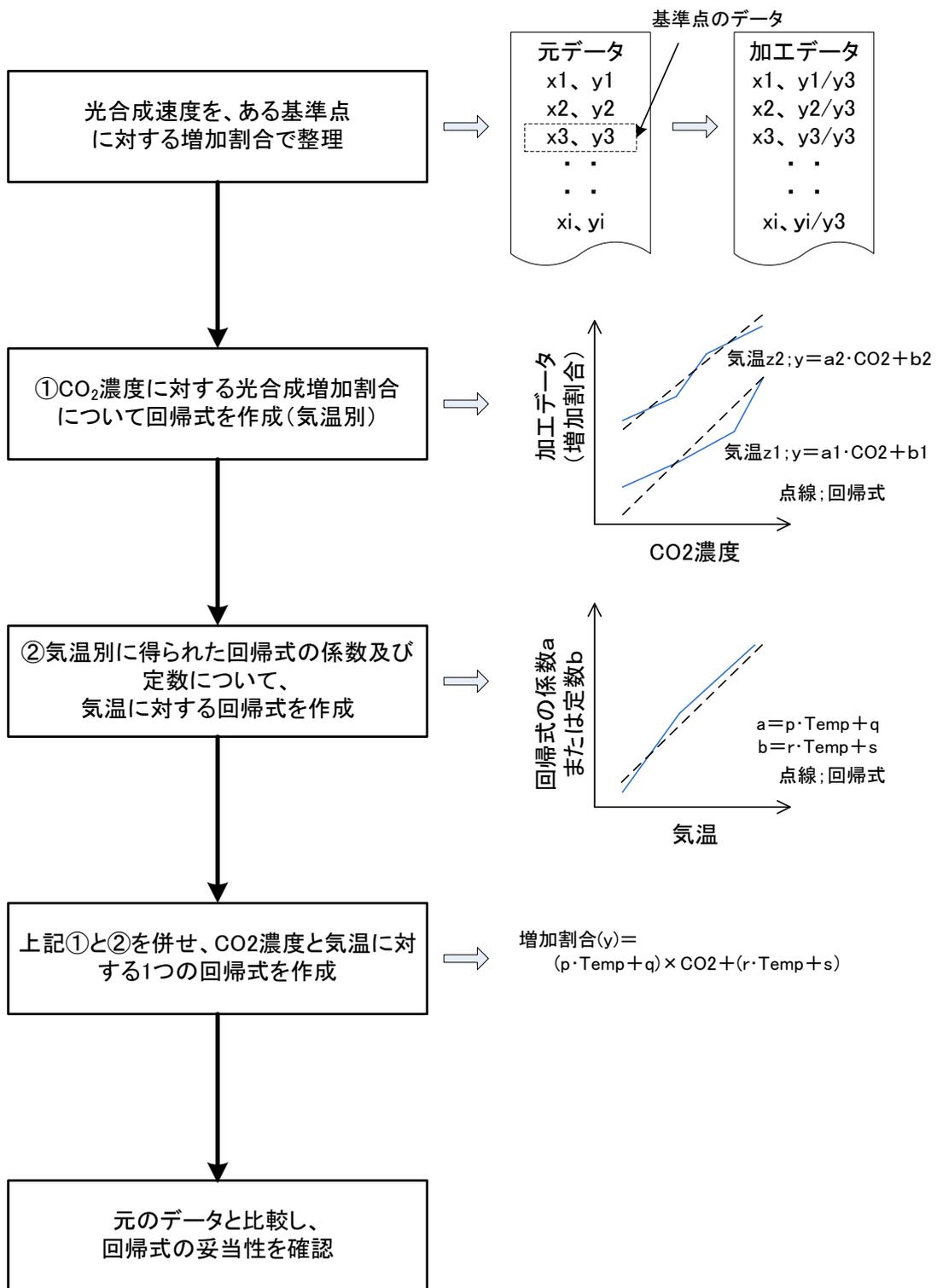


図 3.4-1 イネの成長曲線に対する CO<sub>2</sub> 濃度および気温の影響の考慮

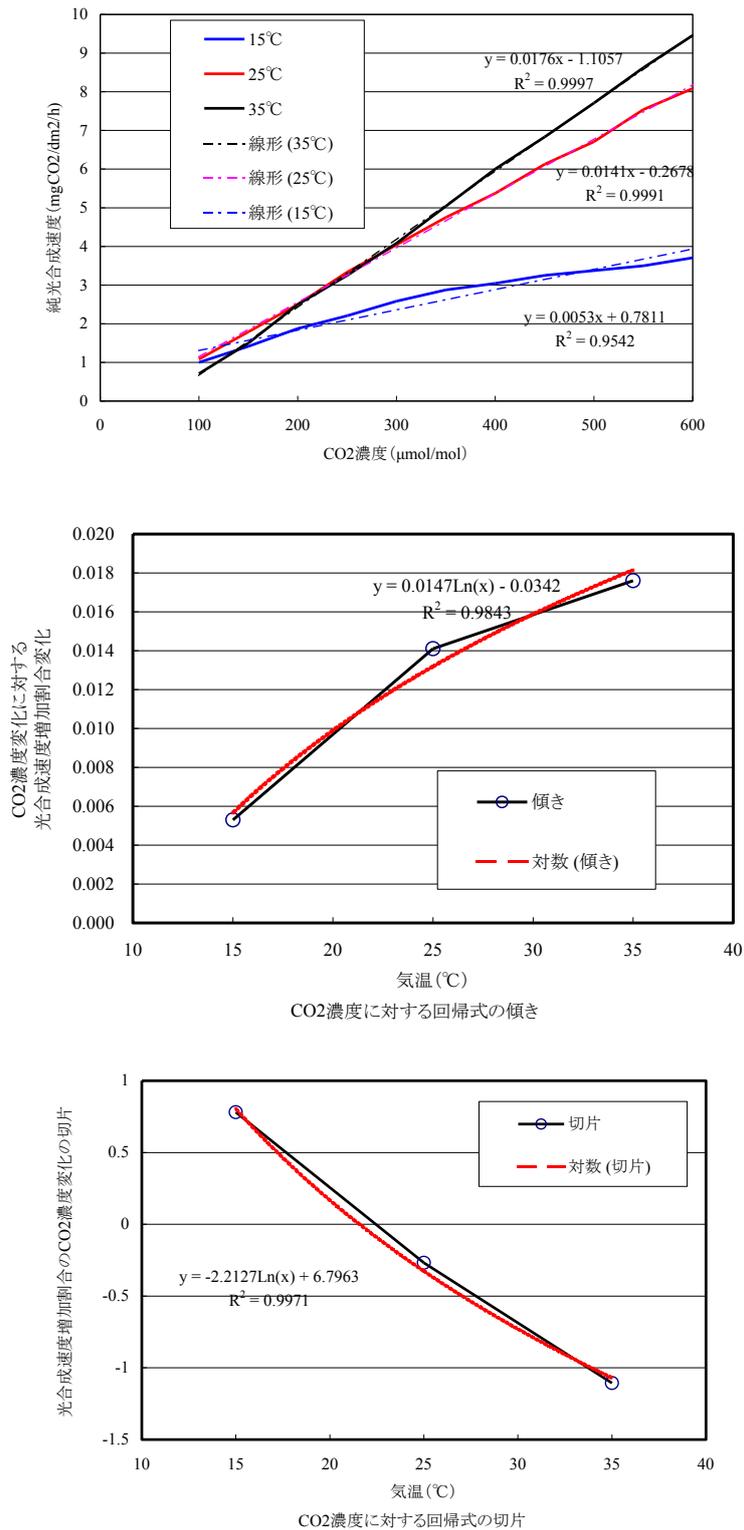


図 3.4-2 CO<sub>2</sub> 濃度と気温を変数とした時の光合成速度に対する回帰式  
 文献データによる CO<sub>2</sub> 濃度と光合成速度の気温別回帰式 (上) ; 上図回帰式の係数項を対象とした, 気温に対する回帰式 (中) ; 上図回帰式の定数項を対象にした, 気温に対する回帰式

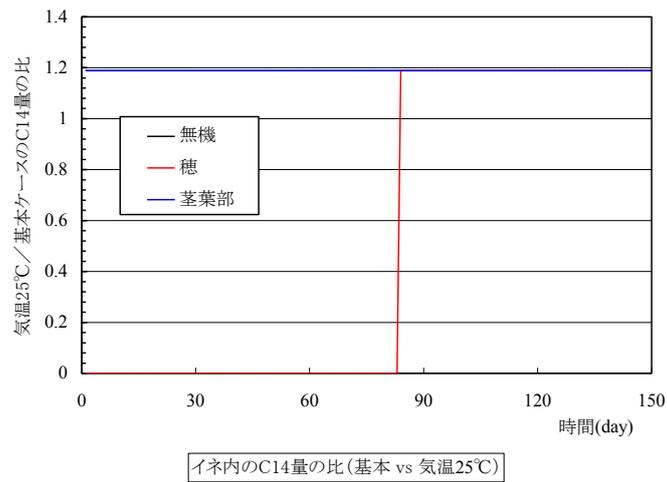
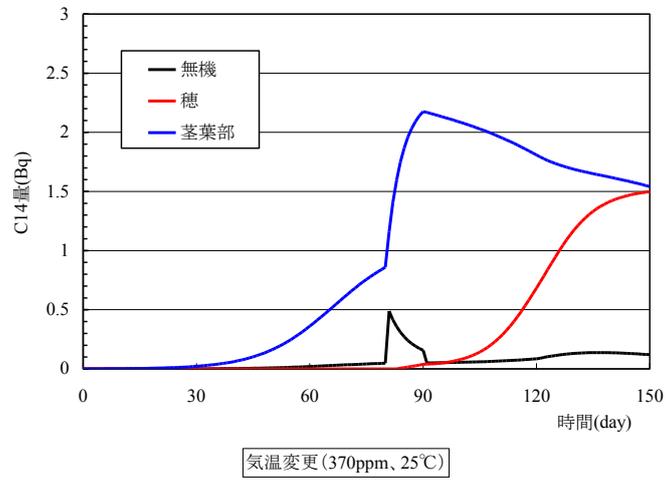
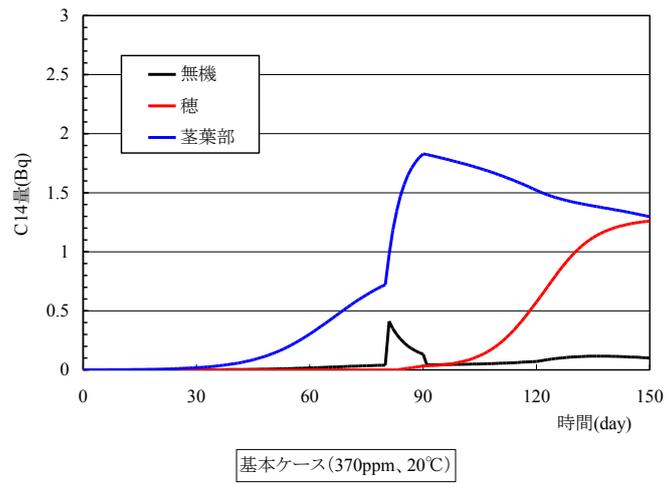
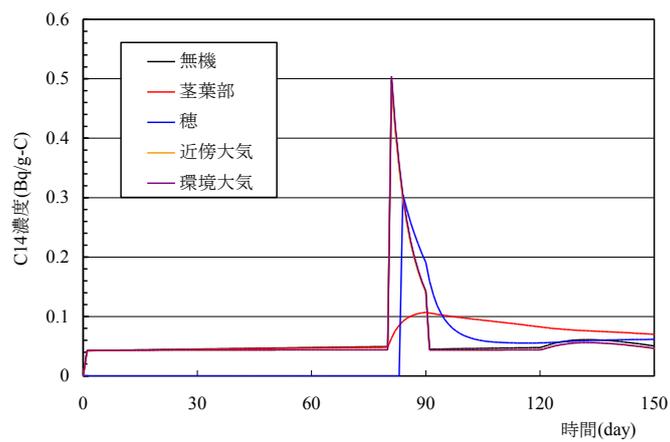
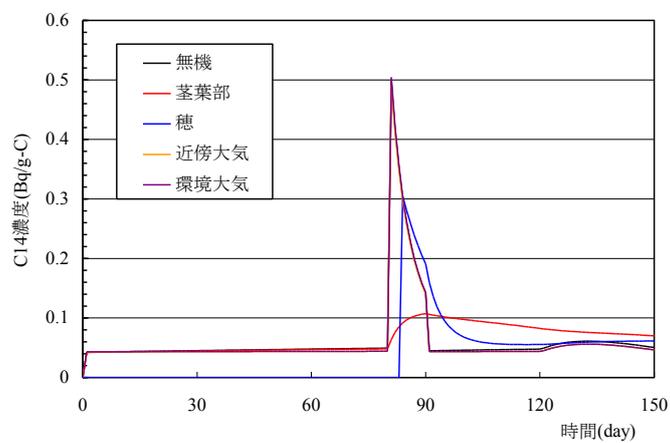


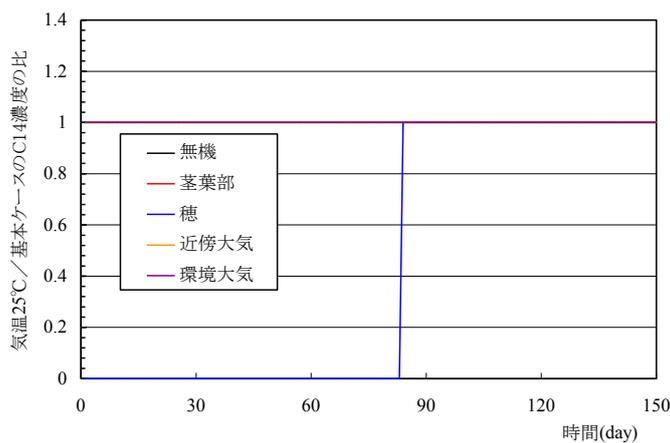
図 3.4-3 検証ケース 1 (気温 25°C) におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  量 (Bq) 経時変化



基本ケース(370ppm、20°C)



気温変更(370ppm、25°C)



イネの<sup>14</sup>C濃度の比(基本 vs 気温25°C)

図 3.4-4 検証ケース 1 (気温 25°C) におけるイネ周辺コンパートメントの<sup>14</sup>C 濃度 (Bq/g-C) 経時変化

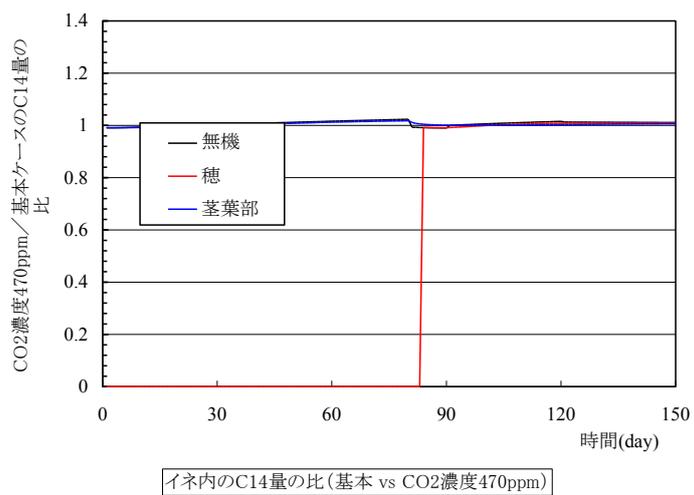
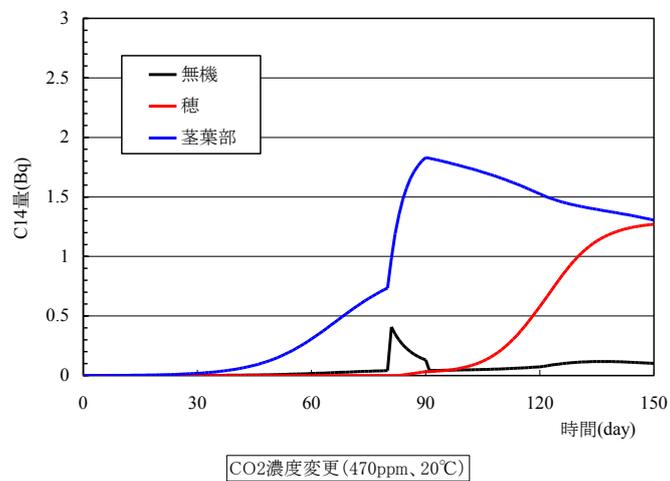
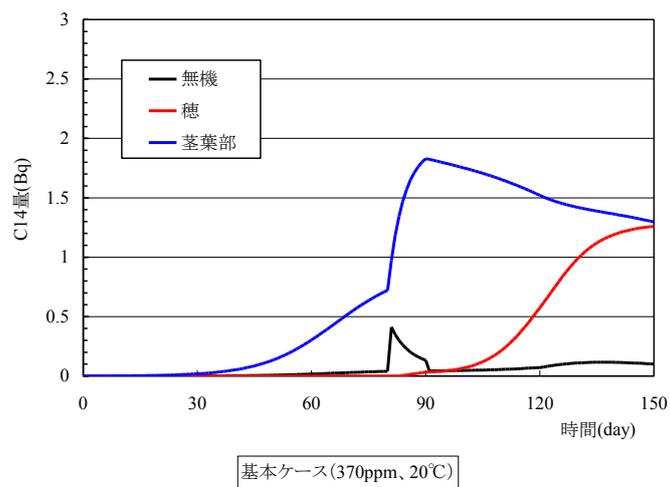
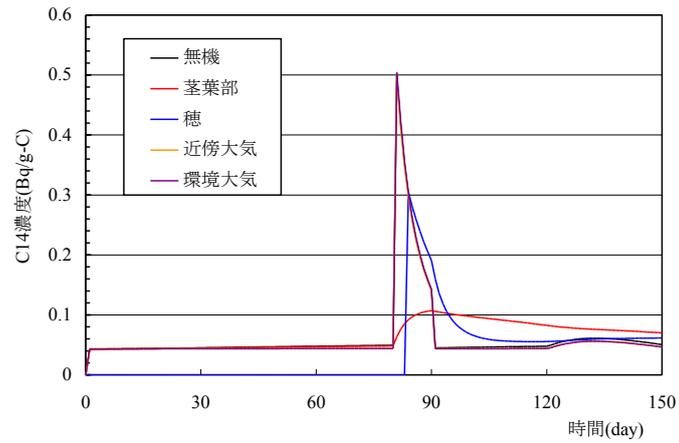
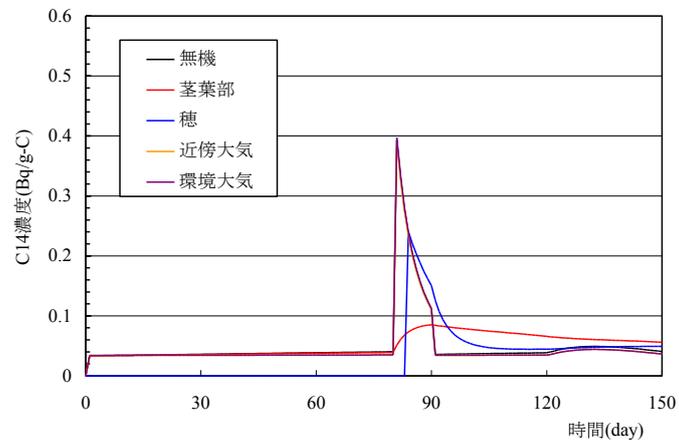


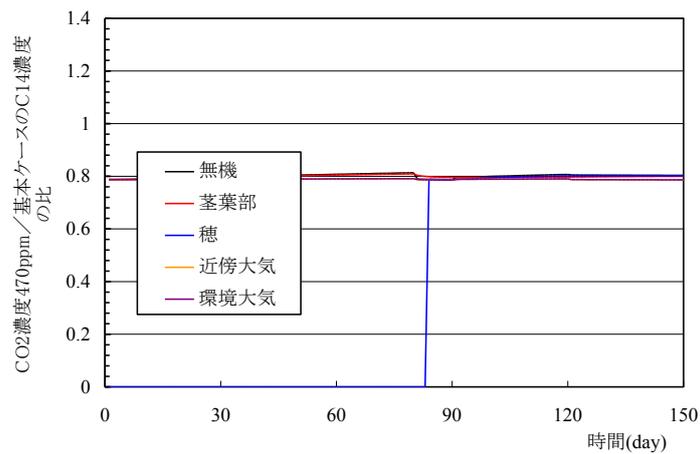
図 3.4-5 検証ケース 2 (CO<sub>2</sub> 濃度 470 ppm) におけるイネ各部の <sup>14</sup>C 量 (Bq) 経時変化



基本ケース (370ppm, 20°C)

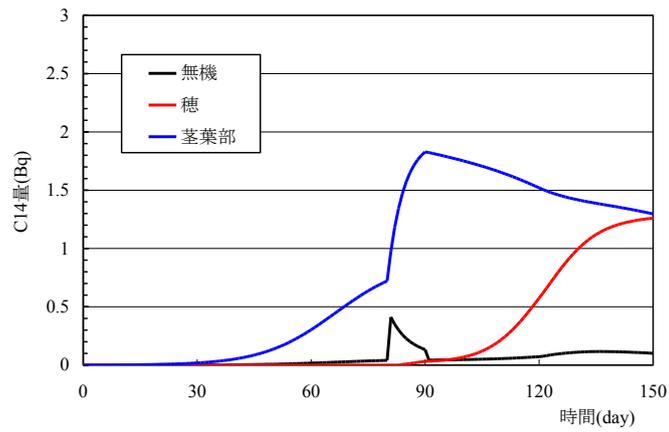


CO2濃度変更 (470ppm, 20°C)

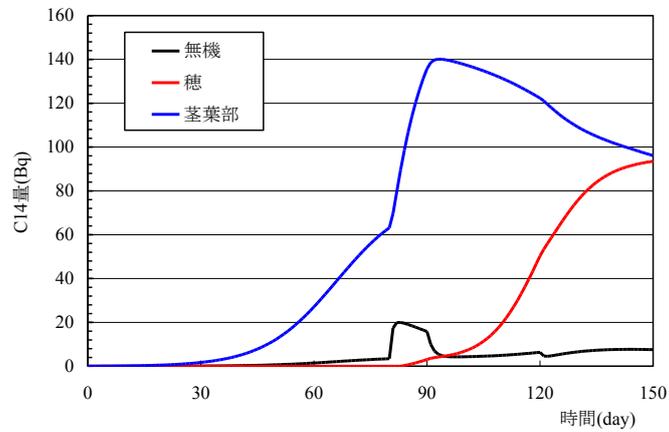


イネの<sup>14</sup>C濃度の比 (基本 vs CO2濃度470ppm)

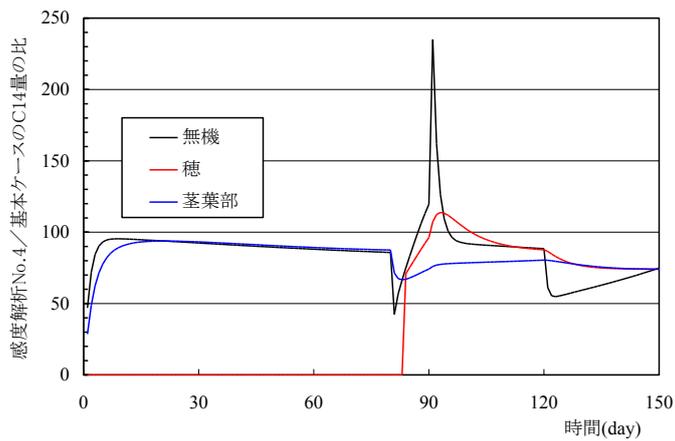
図 3.4-6 検証ケース 2 (CO<sub>2</sub> 濃度 470 ppm) におけるイネ各部の<sup>14</sup>C 濃度 (Bq/g-C) 経時変化



基本ケース(近傍大気の移行半減期Th=0.1day一定)

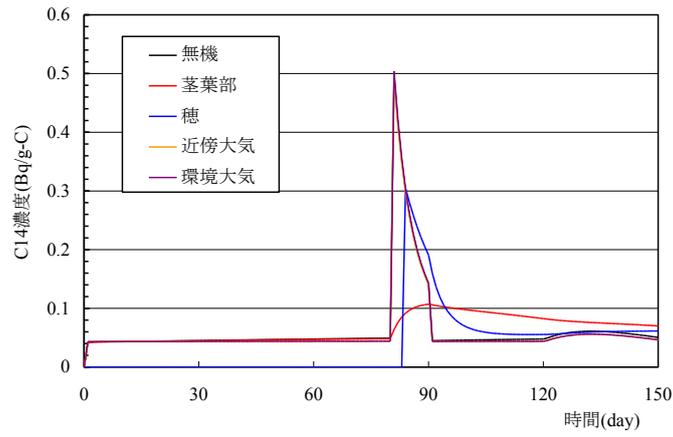


近傍大気(環境大気への)移行半減期Th変更(10day一定)

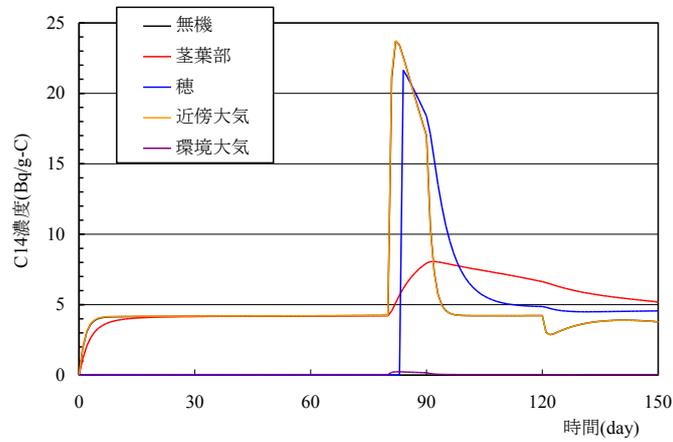


イネ内の $^{14}\text{C}$ 量の比(基本 vs 近傍大気Th=10day)

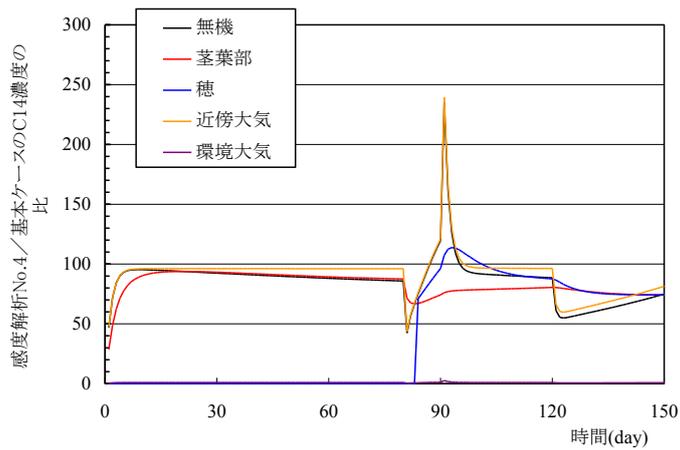
図 3.4-7 感度解析 No.4 (近傍大気 of 交換半減期 10 day 一定) におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  量 (Bq) 経時変化



基本ケース(近傍大気の移行半減期Th=0.1day一定)

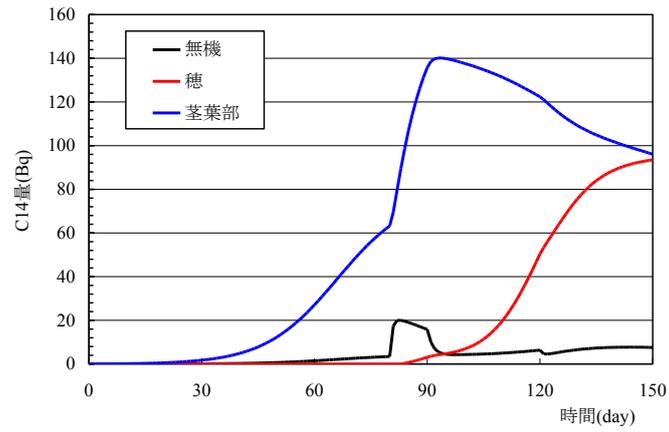


近傍大気(環境大気への)移行半減期Th変更(10day一定)

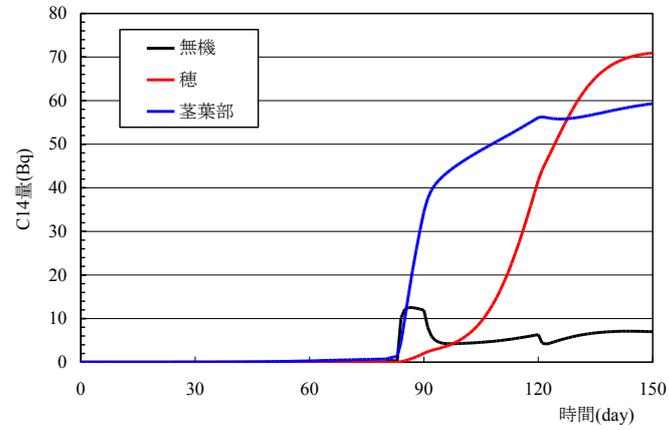


イネの<sup>14</sup>C濃度の比(基本 vs 近傍大気Th=10day)

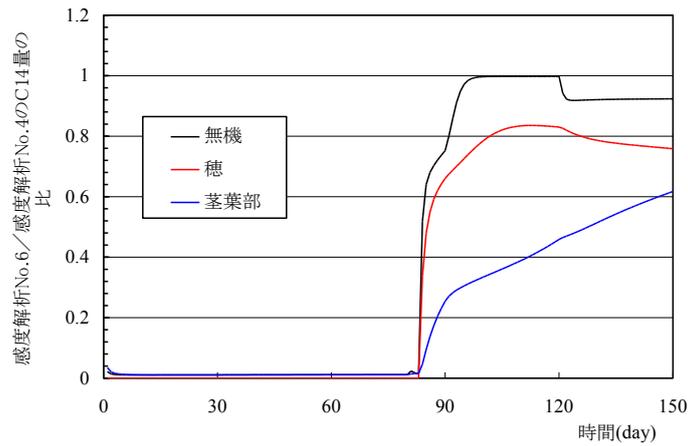
図 3.4-8 感度解析 No.4 (近傍大気 of 交換半減期 10 day 一定) におけるイネ各部の <sup>14</sup>C 濃度 (Bq/g-C) 経時変化



近傍大気(環境大気への移行半減期Th変更(10day一定))

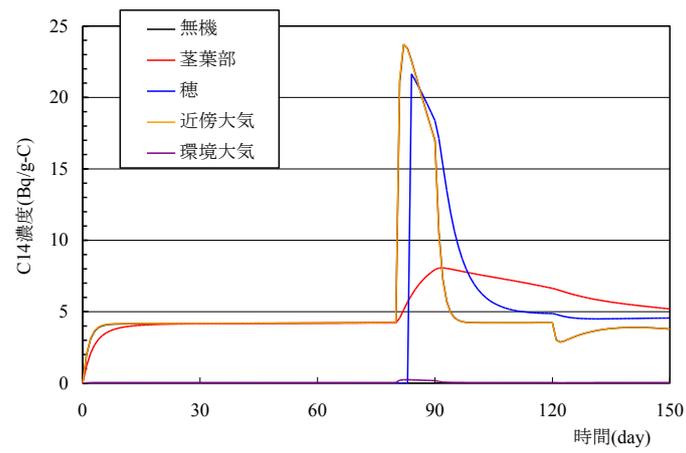


近傍大気(環境大気への移行半減期Th変更(0.1day→10day))

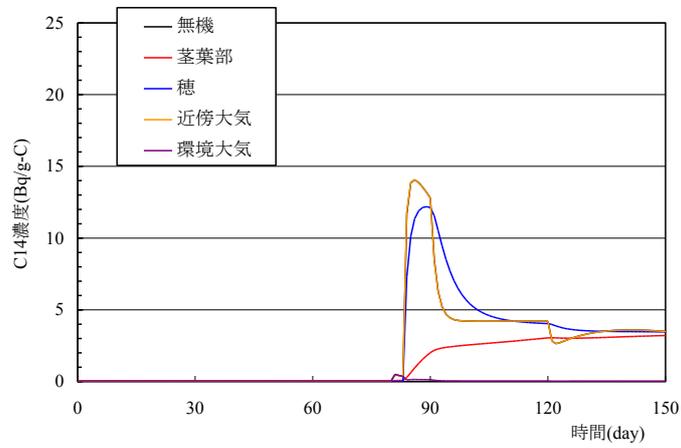


イネ内のC14量の比(Th;10day一定 vs 0.1day→10day)

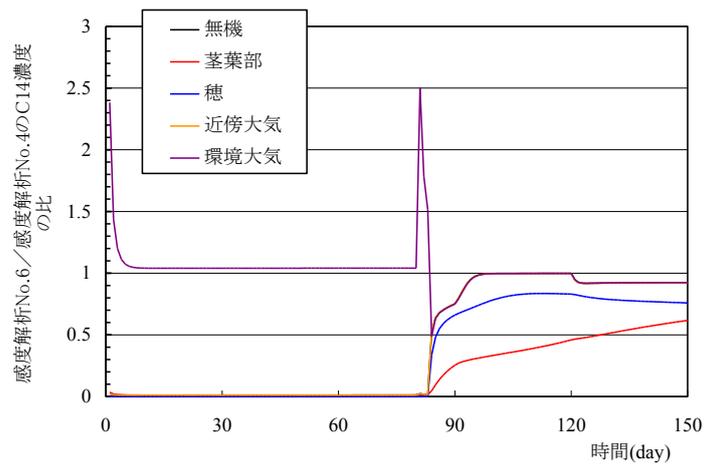
図 3.4-9 感度解析 No.6 (近傍大気の交換半減期を出穂前 0.1day, 出穂後 10day) におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  量 (Bq) 経時変化



近傍大気(環境大気への移行半減期Th変更(10day一定))



近傍大気(環境大気への移行半減期Th変更(0.1day→10day))



イネのC14濃度の比(Th;10day一定 vs 0.1day→10day)

図 3.4-10 感度解析 No.6 (近傍大気の交換半減期を出穂前 0.1day, 出穂後 10day) におけるイネ各部の  $^{14}\text{C}$  濃度 (Bq/g-C) 経時変化



## 第4章 重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

### 4. 1. はじめに

放射性廃棄物の地層処分場から環境中へ放出された放射性核種は環境の違いによってその動態が大きく異なると考えられる。従って、我が国独自の環境移行パラメータを収集・整備する必要がある。平成14年度から18年度までに本事業において、環境媒体中元素濃度データを蓄積し、TF や Kd の環境移行パラメータの導出並びにデータベース構築を行った。Pu, Am, Th 及び塩素(Cl)等は、放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価上重要核種であるがデータが少ない。その重要核種の測定は極めて高度の分析技術が要求され、核種移行モデルに使用される環境移行パラメータは十分蓄積されていない。

本調査では、データが少なくかつ重要核種元素、すなわち、Pu, Am, Th 及び塩素等について、超高精度分析を開発し、実際の環境試料を分析して、特に土壌-植物間移行係数を求めることを目的の一つとしている。今年度はPu と塩素の超高精度分析法について、文献調査を行ない、また、高分解能 ICP-MS を用いて土壌中 Pu 同位体の実用的な超高精度質量分析法を確立するため、化学分離法の調査・研究を実施した。さらに、開発した Pu 超高精度分析法を用いて、1969年から1977年にかけて放射線医学総合研究所が福島県と関東地域で採取した土壌中の微量 Pu 同位体の分析を行った。これらの結果を解析し、福島事故前のバックグラウンド値を明らかにした。これらのデータは、福島原発事故により環境中に放出された放射性核種の挙動予測や除染に役立つだけでなく、放射性廃棄物の地層処分に関する安全評価の高度化に資するものである。

### 4. 2. 重要核種 Pu および Cl の超高精度分析

#### 4.2.1. 文献調査

プルトニウム同位体は主に大気圏内核実験により環境中に放出され、世界中に分布している (UNSCEAR, 2000)。Harley (1980)は、約6トンの<sup>239</sup>Pu が20世紀に行われた541回の大気圏内核実験により環境中に放出されたと報告している。日本のグローバルフォールアウトは最も高い値が1963年に観察されているが、これは旧ソ連邦により1961年から1962年に行われた大規模の大気圏内核実験のためである。1964年から1980年にかけては、中華人民共和国が Lop Nor において、22回の大気圏内核実験を行っている。これらの核実験もまた少量の Pu を日本にもたらした (Zhang et al., 2010)。さらに、長崎に降下された原子爆弾に関する一連の Pu 同位体について、工藤ら (1991) により研究が行われてきた。彼らは、投下地を中心とする264 km<sup>2</sup> の範囲に降下した局所的な<sup>239+240</sup>Pu の総量は37.5 g であると報告している。彼らはまた、長崎の原子爆弾により環境中に放出された Pu の北極への地球規模での移動についても言及している。

長崎市西山地区の土壌については多くの研究者が調査しており、連続的な<sup>239+240</sup>Pu 濃度のモニタリング結果から、未攪乱土壌中には現在も高濃度の Pu が存在していることが明らかになっている (Sakanoue et al., 1971; Okajima et al., 1990; Yamamoto et al., 1983; Yoshida et al., 2007; Saito-Kokubu et al., 2007; 2008)。た

だし、西山地区の土壌においても、長崎の原子爆弾に起因する Pu だけではなくグローバルフォールアウト Pu も含まれている。そこで試料中の Pu の総量に対する長崎の原子爆弾の寄与を、土壌や底質土のコアサンプル中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比を ICP-MS を用いて測定することにより評価する研究も行われた (Yoshida et al., 2007; Saito-Kokubu et al., 2007)。また、長崎県東部における原爆由来の Pu の地理的な分布調査が ICP-MS による  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比から行われた。その結果、原爆により降下した Pu は爆心地から 100km 東の地点まで認められた (Saito-Kokubu et al., 2007)。

長期間における Pu の環境移行パラメータを求める際には、環境中に存在しているグローバルまたは局所フォールアウト Pu をアナログとして使える。例えば土壌-植物間移行係数を求めるためには、必然的に土壌および植物中の Pu 濃度の情報が必要となる。しかし、環境試料中の Pu 分析は、濃度が極低レベルであるために一般に困難であり、日本の土壌中の Pu 濃度に関する情報は非常に限られている。Yamamoto ら (1983) は、主に 1963 年から 1976 年の間に日本の 15 地点で採取された水田の表層土壌 30 サンプル、およびこの 15 地点の中から 2 地点を選択し、1957 年から 1980 年にかけて定期的に採取した土壌試料 15 点について  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度を測定した。この調査結果から、水田土壌中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は 0.078~1.03 mBq/g であることが明らかになった。さらに、平面的な分布に関しては、本州の日本海側に降下した Pu の総量は太平洋側に比べて 2.5 から 3 倍高いことが分かった。この傾向は  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{90}\text{Sr}$  と同様の傾向であり、偏西風と降雨量が影響していると考えられる。なお同程度の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度 (0.07 - 0.7 mBq/g) は青森県六ヶ所村の畑地土壌でも観察されている (Ohtsuka et al., 2004)。さらに、九州における表層土壌 (0-5 cm) 中の  $^{239+240}\text{Pu}$  が 1995 年において 0.50 - 0.65 mBq/g の範囲であったことも報告されている (Momoshima et al., 1997)。Muramatsu ら (2003) による最近の研究では、農耕地 (野菜、小麦そして稲) や日本の幾つかの森林から採取した土壌中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度が報告されている。その結果、 $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の範囲は、0.15 - 4.31 mBq/g であり、最も高い濃度は青森県の森林で採取された表層土壌 (0-2 cm) で検出されており、森林の表層土壌中の Pu 濃度は一般的に農耕地土壌よりも高いことが分かった。これは、森林の樹冠効果 (いわゆるフィルター効果) によると思われる。すなわち、大気中のフォールアウト Pu は膨大な表面積を有する木の樹冠に速やかに捕捉され、その後、森林の表層土壌へ移行する。これらの研究結果から、0.07 - 4.3 mBq/g の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度範囲は、日本の土壌のベースラインと考えられる。

土壌中の Pu 濃度の精度良い測定は、Pu の土壌-植物移行の研究において必須条件である。すなわち、日本の土壌中  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度が 0.07 - 4.3 mBq/g の範囲であり、非常に低いということを考えると、高感度分析技術が必要とされる。今までは一般に、放射能分析、すなわち、 $^{238}\text{Pu}$  と  $^{239,240}\text{Pu}$  についてはアルファ線測定や  $^{241}\text{Pu}$  については液体シンチレーション計測法が Pu 分析法として一般的に用いられてきた。しかし、これらの分析法を用いた場合、複雑で、かつ時間のかかる前処理と長時間の計測が必要となる。さらに、アルファ分析法では、Pu 同位体 ( $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$ ) を区別できないという欠点を持っている。上述したグローバルおよび局所フォールアウトの分別は Pu 同位体比を用いて行われているが、これが不明であると由来を特定できない。一般にグローバルフォールアウトと局所フォールアウトでは地表に降下してきた物理化学的形態が異なると考えられるため、由来を特定することは、移行係数を考える上で重要である。例えば、チェルノブイリ事故においては、原子炉燃料に由来する不溶性のホットパーティクル

が近傍に沈着していることから、このような形状の場合には、グローバルフォールアウトとは移行係数が異なることが考えられる。

最近の研究では、長半減期核種の分析のための手段として、質量分析法が良く用いられるようになってきた (Zheng et al., 2013)。Pu 測定に利用される様々な質量分析法の中で ICP-MS は試料前処理が簡単であり、測定時間も短く、高感度であるという点において、定量分析にも同位体比測定においても非常に利点がある (Kim et al., 2007)。しかし、ウランの水素化物  $^{238}\text{UH}^+$  と  $^{238}\text{UH}_2^+$  の形成により  $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$  のバックグラウンド・カウントが高くなってしまふこと、そして、 $^{238}\text{U}^+$  ピークのテーリング (カウントが高すぎるために、他の質量数にまでカウントが尾を引く) 現象は、特にウランの濃度が高く Pu 濃度が低い試料においては、 $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$  の精度良い測定の大きな妨げとなる。質量分析において Pu の同位体測定を妨害するウラン以外の原子としては、 $^{207}\text{Pb}^{16}\text{O}_2^+$ 、 $^{208}\text{Pb}^{16}\text{O}_2^+$ 、 $^{202}\text{Hg}^{37}\text{Cl}^+$  等がある。

ウランは、地球上に存在する元素の中で最も大きい質量数の元素である。日本の土壤中のウラン濃度は比較的高く、0.1 mg/kg から 10 mg/kg の範囲であり、その平均値は約 2 mg/kg である。そして、この高濃度のウラン、特に同位体存在比が最も高い  $^{238}\text{U}$  が大きな妨害となり、ICP-MS による Pu 分析を困難にしている (Yamazaki, et al., 2001)。ICP-MS による Pu 分析におけるウランとその水素化物除去のために、幾つかの解決策が Zoriy ら (2004) により提案されている。Zoriy らは、ウランの水素化物形成を減少させるため試料の溶媒として重水を使用している。Tanner ら (2004) および Vais ら (2004) は、ウランに起因する干渉イオンを減少させるため、DRC-ICP-MS のリアクションセルに  $\text{CO}_2$  と  $\text{NH}_3$  を導入した。高分解能 ICP-MS (Sector Field ICP-MS, SF-ICP-MS) は高感度と低サンプル導入量という特徴を有するが、その SF-ICP-MS にリアクションセルを結合したものは近年ではあまり利用されなくなっている。特に SF-ICP-MS においては、ウランの水素化物の形成を下げるために様々な試料導入システムを用いることで低減化を実現している (Zheng and Yamada, 2006a; Becker, 2002; Kim et al., 2000)。いくつかの試料導入システムを用いて調査した結果、SF-ICP-MS における  $^{238}\text{UH}^+/^{238}\text{U}^+$  の強度比は、 $1 \times 10^{-5} \sim 5 \times 10^{-4}$  の範囲である (Zheng and Yamada, 2006a)。日本の土壤中のウラン濃度が Pu よりも 6-9 桁高いこと、および  $^{238}\text{UH}^+$  と  $^{238}\text{UH}_2^+$  のウラン水素化物形成によるカウント妨害と  $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$  のピークを分離することが、例え SF-ICP-MS の高分解能モード (HR mode;  $m/\Delta m=10000$ ) を用いてもできないことを考えると SF-ICP-MS による質量分析の前に Pu の化学分離により U を最大限減らすことが絶対に必要である。

そこで本研究は、SF-ICP-MS による土壤中の Pu 同位体 ( $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$ ) 測定のために Pu の化学分離において U を効率よく除去する手法を確立することで、超高感度分析法を開発することを目的とした。

## 4.2.2. 土壤中 Pu 同位体の超高精度分析法開発

### 4.2.2.1. 装置

#### (1) APEX-Q/SF-ICP-MS (Element 2)

土壤中の Pu 分析のために、SF-ICP-MS (Element 2, Thermo Finnigan, Bremen, Germany) を用いたが、高分解能 ICP-MS の特徴として、分解能を上げると検出器に入射するイオン数が減少するため、感度が下がることが指摘されている。プルトニウム測定において、感度低下はすなわち定量下限値が高くなることに

なるため、極微量の定量ができなくなってしまう可能性がある。そこで機器の感度を最大限にするため低分解能モード( $m/\Delta m=300$ )で使用した。高効率試料導入装置 (APEX-Q : Elemental Scientific Inc., Omaha, NE, USA) をメンブレン脱溶媒装置 (ACM) および円錐形同軸ネブライザーと共に用いた。使用した機器の概要を図 4.2-1 に示す。測定においては、ペリスタポンプによる汚染のリスクを減少するために自己吸引モードを用いた。測定対象のアイソトープ ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ) は、ピークポッピングモードで測定し、それぞれの mass のピーク (peak top) はそれぞれのピーク幅の 10% で測定を行った。Pu 分析における本解析システムで使用した設定条件とそのパラメータを表 4.2-1 にまとめた。試料を毎回測定する前に、濃度が 0.1 ng/mL のウラン標準溶液 (Merck standard) を用いて、SF-ICP-MS の最適化を行った。本測定システムにおける U-238 ( $^{238}\text{U}^+$ ) の感度は、 $(1.1\sim 1.5) \times 10^7$  cps/ppb であった。Pu の検出下限値は約 0.14 fg/mL である。

## (2) ウラン水素化物 ( $\text{UH}^+$ ) の影響

上述したように試料中に U が存在すれば、Pu の正確な測定を妨害する。特に、ウラン水素化物 ( $^{238}\text{UH}^+$ ) が形成される事、および  $^{238}\text{U}^+$  のテーリング効果により  $^{239}\text{Pu}$  分析の妨害となる。試料導入装置は、他の要因、例えば、ガス流入速度やコーンからトーチまでの距離、等に比べて、プラズマ内におけるウラン水素化物の形成に大きな影響を与えるものと考えられている。1 ng/ml のウラン標準溶液を用いて、ACM メンブレン脱溶媒モジュールを連結した円錐形ネブライザーを用いた APEX-Q システムにおけるウラン水素化物の生成率を求めた。その結果、 $^{238}\text{UH}^+$  イオンの生成率は  $2 \times 10^{-5}$  以下である事が分かった。m/z が 239 におけるバックグラウンドシグナルに対するウラン濃度の総合的な影響を図 4.2-2 に示す。m/z が 239 におけるバックグラウンドシグナルは、ウラン濃度が 10 pg/ml 以下であれば、1-2 cps 以下であった。

## (3) Element 2 と Element XR の比較

現在、アクチノイド元素の土壌-米間移行係数 (TF) は日本では得られていない。中国やフランスにおける米の TF に関する文献調査 (詳しくは、4.3.1 参照) 結果から、 $^{239+240}\text{Pu}$  の TF 値の最大値は  $2 \times 10^{-3}$  であった。もし、この TF 値が日本におけるグローバルフォールアウト Pu の米の TF に適用できると仮定すれば、土壌中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度範囲 (0.07 - 4.31 mBq/g) (4.2.1 参照) を用いて、日本における米中の  $^{239+240}\text{Pu}$  の濃度は最も高い移行係数を用いると  $1.5 \times 10^{-4}$  -  $8.6 \times 10^{-3}$  mBq/g の範囲であると計算する事ができる。日本における Pu 同位体の主なソースはグローバルフォールアウトであり、その  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  比が 0.18 であるため、日本の米中における  $^{239}\text{Pu}$  および  $^{240}\text{Pu}$  濃度は、それぞれ、0.04 - 1.9 fg/g および 0.01 - 0.5 fg/g であると推定できる。現在、APEX-Q/SF-ICP-MS (Element 2) における Pu 分析の検出限界は土壌に対して 0.14 fg/g である。この値は米中の Pu 同位体濃度よりも約 1 桁大きい。したがって、米中の Pu 同位体濃度を精度良く測定するためには検出限界を下げる必要があり、分析法の更なる改良が求められる。

本調査において、今年度は新しい SF-ICP-MS (Element XR) を導入した。導入した Element XR は、これまで使用していた Element 2 と比べると重要な改善点が二つある (表 4.2-2)。ひとつは検出器に Faraday 検出器を加え、12 桁のダイナミックレンジを実現したことである。これにより、濃度レベルが ppq レベ

ルから ppm レベル以上まで同時に測定することが可能になるだけでなく、同位体比が大きいサンプルの分析については、高精度、高正確度の分析値が得られることになる。しかし、もっと重要な点は、大型ドライポンプとインターフェイスコーンにジェットインターフェイス (図 4.2-3) を組み合わせて、分析の感度を Element 2 より 10 倍以上向上出来たことである。さらに、SF-ICP-MS (Element 2 and Element XR) に脱溶媒試料導入装置 Aridus II を組み合わせて、プルトニウムと同じイオン化効率を有するウラン (1 ppb 溶液) を用いて感度の比較を行った。その結果、Aridus II/Element XR は、100 M cps/ppb 以上の感度を達成することが出来た (図 4.2-4)。これらの結果から、今年導入した新 SF-ICP-MS (Element XR) は、米中の超微量プルトニウムの分析ために必要な超高感度を提供出来ると考えられる。

#### 4.2.2.2. 測定試料

土壌標準物質 (IAEA-soil-6) と海底堆積物の標準物質 (NIST-4357 and IAEA-368) を分析法の確認のために用いた。実際の土壌試料としては、1969-1977 年に福島県、茨城県、宮城県、岩手県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県および東京都において採取した土壌を用いた。これらの土壌を用いて、 $^{239+240}\text{Pu}$  濃度および  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  比の測定を行った。

#### 4.2.2.3. 試薬

実験に使用したすべての試薬 (HCl, HNO<sub>3</sub>, NaNO<sub>2</sub>, NH<sub>4</sub>I, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, HBr) は、分析用レベルであり、それ以上の純度を上げる操作をせずに用いた。イオン交換樹脂は、Bio-Rad 社製の 2 種類のイオン交換樹脂 [AG 1X8 (100-200 mesh, Cl<sup>-</sup> form) と AG MP-1M (100-200 mesh, Cl<sup>-</sup> form)] を用いた。2 つのイオン交換樹脂 (AG 1X8 and AG MP-1M resin) はムロマックのミニカラム (M type, 6.5-8.5 mm x 58 mm i.d.) に充填し Pu 分離に使用した。試料には  $^{242}\text{Pu}$  (CRM 130, plutonium spike assay and isotopic standard, New Brunswick Laboratory, USA) を適量スパイクし、回収率測定のために用いた。また、ミリポアの純水製造装置 (Milli-Q-Plus) で作成した超純水 (>18 MΩ cm<sup>-1</sup>) をすべての実験に使用した。

#### 4.2.2.4. 化学分離法の検討

前述したように、ウランを大量に含んでいる土壌試料中の Pu を ICP-MS で測定する際に U が妨害となる。したがって、試料から Pu を分離する際に出来るだけ効率的に U を除去することが望ましい。本研究では、ウランを大量に含んでいる土壌試料から Pu を分離するために、2 段階の陰イオン交換クロマトグラフィー分離システムを開発した。このシステムは、AG 1X8 樹脂を充填したカラムと AG MP-1M 樹脂を充填したカラムから構成されている。最初に、土壌構成物から Pu を分離するために AG 1X8 樹脂カラムを使用した。AG 1X8 イオン交換カラム 1 つで土壌の構成物中の Pu 測定における妨害元素、例えば鉛、水銀などは十分取り除くことができるが、ウラン濃度が高い環境試料においては、少量ながらのウランが Pu の分離フラクションに残ってしまうことが報告されている (Muramatsu et al., 1999; Nygren et al., 2003; Donard et al., 2007)。したがって、SF-ICP-MS 分析の前にさらに Pu と U を分離するためにもう一つの AG MP-1M 樹脂を充填したカラムを用いることにした。

AG MP-1M 樹脂は、マクロな多孔質の AG 1-gel タイプの樹脂と同じであり、空隙率は20%、実効比表面積は約  $23 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  である。AG MP-1M 樹脂は、AG 1X8 TRU 樹脂と比較すると4倍以上Puの親和性が大きいと報告されている (Epov et al., 2005)。Pu、UおよびThのAG MP-1M 樹脂への吸着および溶離挙動を調べるために、海底堆積物の標準物質 (NIST-4357) を1.5g用いて実験を行った。サンプル溶液ドレイン、洗浄液、および溶離液を2 mL毎に採取し、SF-ICP-MSによる $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{U}$  および $^{232}\text{Th}$ の分析に供した。AG MP-1M による $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{U}$  および $^{232}\text{Th}$ の吸着および溶離曲線を図4.2-5に示す。

図から、ほとんどの $^{238}\text{U}$ は20 mLの8 M HNO<sub>3</sub>による洗浄において溶出していることが分かる。しかし、10 MのHCl溶液の洗浄により、まだかなりの量の $^{238}\text{U}$ が最初の4 mLの溶出液中に存在している。AG MP-1Mのビーズは、多孔性であり、多重の溝構造である (Qiao et al., 2011)。10 MのHCl溶液ではAG MP-1M 樹脂から $^{238}\text{U}$ を溶出出来ない。したがって、最初の4 mLのHCl溶出液中にある高濃度の $^{238}\text{U}$ は、AG MP-1M ビーズの空隙に残っている8 MのHNO<sub>3</sub>溶液の影響であると考えられる。すなわち、この空隙に存在する8 MのHNO<sub>3</sub>溶液には多量の $^{238}\text{U}$ が含まれている。そこで、残っている8 MのHNO<sub>3</sub>溶液中のUの除去と $^{232}\text{Th}$ の洗浄を一緒に行うために、10 M HCl溶液8 mLを導入することとした。さらにPu溶出のため、16 mLの濃HBr液を導入した。その結果、最終のPu溶出液中に含まれる $^{238}\text{U}$ および $^{232}\text{Th}$ の濃度は $1 \text{ pg mL}^{-1}$ 以下となり、非常に低かった。図4.2-5に示したように、試料の処理過程におけるPuの損失は、8 M HNO<sub>3</sub> および10 M HClによる洗浄処理においてほとんど無く、ほとんどのPuはAG MP-1M から溶出した16 mLの濃縮HBr液に含まれていた。

#### 4.2.2.5. 分析法の確立

##### (1) 操作手順

本調査で確立した実験手順、すなわち、試料の分解・Puの抽出、分離、精製の手順を図4.2-6に示す。土壌試料は最初に105°Cで24時間乾燥した後、約80メッシュの篩にかけて礫などを取り除き粉碎した。粉碎土壌試料1-3gを秤量し、約1 pgの $^{242}\text{Pu}$ を回収率モニターとして各試料に添加した。次に、その後の化学分離において妨害となる有機物を分解するため、磁性の坩堝に移しマッフル炉で450°Cの温度で5時間灰化した。抽出における酸の損失を避け、かつ抽出効果を向上させるために、Puの酸抽出はガラスビーカーと時計皿ではなく、しっかりと蓋ができる120 mLのテフロン容器 (Saville Corporation, Minnesota, USA) を使用した。このテフロン容器に、20-40 mLの濃硝酸を加え、ホットプレート上で160°Cで少なくとも4時間以上加熱した。冷却後、上澄み液をフィルター (Advantec filter) で濾過してビーカー (100 mL) に移した。テフロン容器とフィルターは10-20 mLの濃硝酸で洗浄し、その洗浄液もビーカーに移した。超純水を濾液に添加してそのHNO<sub>3</sub>濃度を8 Mにした。そして、AG 1X8 樹脂カラム (2.5 mL, 6.5-8.5×58 mm) に通水する前に、Puの化学形を四価の安定な状態にするために、NaNO<sub>2</sub>を添加しその濃度を0.2 Mに調整して、40°Cで30分間加熱した。

AG 1X8 樹脂カラムは使用前に20 mLの8 M HNO<sub>3</sub>-0.2 M NaNO<sub>2</sub>溶液で事前調整を行った。試料を導入後、50 mLの8 M HNO<sub>3</sub>溶液でU、PbおよびFeをカラムから洗い流した (Zheng & Yamada, 2006b)。そ

の後、30 mL の 10 M HCl 溶液で Th を洗い出し、樹脂の化学形を Cl に変えた。8 M の HNO<sub>3</sub> と 10 M の HCl 溶液を流入後、Pu を 40 mL の 0.1 M NH<sub>4</sub>I-8.5 M HCl 溶液で溶出させた。溶離液は 100 mL のテフロンビーカーで採取し、ほぼ乾燥するまで蒸発を行った。そして、1 mL の王水を溶出試料に添加し、再びホットプレート上で乾燥するまで蒸発を行った。この操作を 2 回繰り返す、有機物を分解し残っているヨウ素を除去した。そして、2 mL の濃塩酸を添加し、その溶液を蒸発乾固させた。約 4 mL の新しく準備した HCl-H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 溶液 (10 mL concentrated HCl with 0.01 mL 30% H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) を添加し、40°C で約 30 分加熱した後、この試料溶液を二番目の樹脂カラム AG MP-1M (カラムサイズは AG 1X8 樹脂カラムと同じ: 2.5 mL, 6.5-8.5×58 mm) に流入した。

AG MP-1M 樹脂カラムは試料溶液を流入する前に 8 mL の HCl-H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 溶液で事前調整を行った。そして、試料溶液を流入した後、20 mL の HNO<sub>3</sub> で、最初に U を洗い出した。その後、AG MP-1M 樹脂カラムに残っている HNO<sub>3</sub> を洗い出し、さらに Th の溶出のために 8 mL の 10 M HCl 溶液を流入した。Pu は AG MP-1M 樹脂カラムから 16 mL の HBr 溶液により溶出させ、その溶出液は 30 mL のテフロンチューブに採取した。ほぼ乾燥状態となるまで加熱した後、HBr をすべて除去するために 1 mL の濃硝酸をテフロンチューブに添加し、加熱した。ほぼ乾燥状態にしてから最終の残渣を 0.8 mL の 4% HNO<sub>3</sub> 溶液で溶解し、SF-ICP-MS 測定用の試料とした。図 4.2-7 に土壤中の Pu 分析における主な段階の写真を示す。

## (2) U の除去係数, Pu の回収率, そして Pu の検出下限値測定

ICP-MS による環境試料中の Pu 分析において、U-238 はその試料中に含まれている構成元素の中で最も重要な妨害元素である。ICP-MS によって検出された <sup>239</sup>Pu の信号に対する次の校正式が、通常 ICP-MS による分析の最終試料溶液中の正確な U 濃度に対して用いられる。(Ketterer et al., 2004) :

$$^{239}\text{Pu}^+ \text{ signal} = \text{detected signal at } m/z \text{ 239} - \frac{^{238}\text{UH}^+}{^{238}\text{U}^+} \cdot (^{238}\text{U}^+ \text{ signal})$$

<sup>239</sup>Pu のスペクトルにおける <sup>238</sup>UH<sup>+</sup> の妨害は部分的に上の式で排除できるが、様々な誤差が生じるため測定結果の精度を減少させることになる (Ketterer, et al., 2002; 2004; Pointurier et al., 2011a; 2011b)。Pointurier らは、SF-ICP-MS による Pu の分析精度に影響を与える様々な要因を調査した。その結果、彼らはピークテーリングと <sup>238</sup>U の水素化物が fg レベルの <sup>239</sup>Pu と <sup>240</sup>Pu に対してそれぞれ 15% および 20% の誤差を与えること、および、試料溶液中の 0.5 ng/mL の <sup>238</sup>U 濃度は <sup>239</sup>Pu の検出限界を約 0.1 fg/mL 上昇させることを見出した。さらに、SF-ICP-MS により測定された <sup>238</sup>UH<sup>+</sup>/<sup>238</sup>U<sup>+</sup> 比は、試料溶液中の <sup>238</sup>U 濃度が上昇すれば一定では無いことも分かった (Zheng & Yamada, 2006b)。もし、最終試料溶液中の <sup>238</sup>U 濃度が 0.3 ng/mL を越えれば、極微量の Pu 分析に対して <sup>238</sup>U の妨害を質量補正により修正することは困難である。

Pu 分離において、陰イオンクロマトグラフィーと抽出クロマトグラフィー法は最も一般的に用いられているものである。表 4.2-3 は環境試料中の Pu 分析における様々な分離法の U 除去能力をまとめたものである。報告されている U 除去係数は  $1.8 \times 10^3$  から  $2 \times 10^5$  の範囲であり、ICP-MS に導入する前の最終試料溶液中の U 濃度は 10 から 200 pg/mL と計算することができる。Muramatsu ら (1999) は、様々な

土壌および堆積物の標準試料中の Pu 分離について、陰イオンクロマトグラフィー (Dowex 1X8) と抽出クロマトグラフィー (TEVA) 法を比較した。彼らは、彼らの研究で用いた両方の方法で U の除去染係数と最終試料溶液中の U 濃度を求め、U の除去係数は  $10^4 \sim 10^5$  の範囲であり、U 濃度は 40 ~ 200 pg/mL であったことを報告している。ICP-MS 分析システムにおいて、最終試料溶液中の U 濃度が 1 ppb である場合には Pu の検出において 0.03 pg/mL の誤差になる。Nygren ら (2003) は、TEVA と UTEVA および TRU を組み合わせた抽出クロマトグラフィーで土壌および堆積物中の Pu 分析を行った。その結果、化学分離で得られた U の除去 ( $DF = 0.18 - 5.9 \times 10^4$ ) にもかかわらず、 $m/z = 239$  における  $^{238}\text{U}$  に起因するカウントとネットカウントの比は 0.1% から 33% の範囲であった。これらの結果は  $10^5$  よりも小さい U の除去係数は、U 濃度が高い土壌試料中の Pu 分析に対して、もし干渉イオン補正計算を行ったとしても十分でないことを示している。

本調査において開発した分離・濃縮法を用いて、土壌と海底堆積物の標準試料 (IAEA-soil-6, NIST-4357 および IAEA-368) 中の Pu 分析を行った結果、最終試料溶液中の  $^{238}\text{U}$  濃度は 1 から 4 pg/mL の範囲であった。計算で求めた U の除去係数は  $2 \times 10^6$  でありこれまでに報告されている方法よりも 1 桁以上高くすることができた。図 4.2-8 は今回開発した分析法で分析した土壌試料とブランク (operation blank) の典型的なスペクトルである。検出された  $^{238}\text{U}$  のカウントは  $10^5$  cps よりも小さい。これは、ブランクのカウントと同程度である。この分析システムにおける  $^{238}\text{UH}^+ / ^{238}\text{U}^+$  比は約  $2 \times 10^{-5}$  であり、 $^{239}\text{Pu}^+$  のシグナルに対する  $^{238}\text{UH}^+$  の寄与は約 1-2 cps である。検出された  $^{239}\text{Pu}$  のカウントが 100 から数千の範囲であることを考慮すると、確立された Pu 分析法に対しては  $^{238}\text{U}^+$  の影響を減算する必要はないと結論づける事が出来る。

標準試料に対する本調査で確立された方法の Pu の回収率は 44-75% であり、その平均値は 64% であった。この値は、環境試料中の Pu 分析で報告されている文献値と同程度である (Zheng and Yamada, 2006a; Ketterer et al., 2002; Nygren et al., 2003; Donard et al., 2007)。Pu の化学収率 64% という数値を基に、ブランク値の標準偏差の 3 倍と定義した機器の検出限界は 1g の土壌試料に対して、 $^{239}\text{Pu}$  は 0.0005 mBq/g,  $^{240}\text{Pu}$  は 0.002 mBq/g であった。

### (3) 分析方法の妥当性

Pu の測定を SF-ICP-MS で行うために開発した本分析方法の妥当性を、保証値がある標準物質 (海洋堆積物標準物質 : NIST-4357 と IAEA-368, 土壌試料 : IAEA-soil-6) で確認した。保証値や以前に報告された値と本分析法による値を比較した結果を表 4.2-4 に示す。NIST-4357 ( $n = 3$ ) と IAEA-368 ( $n = 3$ ) の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の平均値は、それぞれ  $9.80 \pm 0.13$  と  $32.5 \pm 0.4$  mBq/g であった。この結果は、保証値と十分に一致していた。この分析において、NIST-4357 と IAEA-368 の  $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  原子数比は、それぞれ  $0.230 \pm 0.005$  と  $0.032 \pm 0.001$  が得られ、文献値とほぼ同じであることがわかった。土壌標準試料 IAEA-soil-6 について、 $^{239+240}\text{Pu}$  は  $1.00 \pm 0.02$  mBq/g,  $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  原子数比は  $0.192 \pm 0.008$  であった。得られた値は、保証値およびこれまでの報告値と一致した。この結果は、土壌試料における Pu 同位対比測定のために開発した分析法が適応可能であることを示している。

#### 4.2.3. 土壌中 Pu 同位体の分析結果と考察

放医研では、日本全国の自然空間放射線レベルを把握するために、1967年から1994年まで、日本全国各地において自然放射線測定を実施した。その際、測定地点の表層土壌を採取して、「全国表層土壌試料データベース」を作成した。本調査では、この「全国表層土壌試料データベース」から、1969年から1977年まで福島県と関東地域において採取された土壌試料80点を選別し、開発したPu超高精度分析法を用いて微量Puの測定およびPu同位体の分析を行った。これらの土壌試料中に含まれるPuはすべて1970年代までに降下したグローバルフォールアウト起源の微量Puである。図4.2-9に土壌試料の採取場所を示す。福島県から22点、茨城から5点、宮城県から13点、岩手県から9点、栃木県から5点、群馬県から4点、埼玉県から6点、千葉県から10点、東京都から6点、計80試料である。

福島第一発電所事故から少量のプルトニウムが放出されている事は既に報告されている (Zheng et al., 2012; Yamamoto et al., 2012)。福島第一発電所事故のプルトニウム環境汚染の評価においては、事故前のバックグラウンドをより正確に評価する必要がある。地上に降下してきたプルトニウムの挙動は土壌の特性により大きく異なると予想される。農地や森林に関してはグローバルフォールアウトPuの測定データがあるが (Muramatsu et al., 2003; Yamamoto et al., 1983)、それ以外の土壌ではデータはほとんどない。今回調査した80点土壌試料のうち、77点は小学校の校庭から、1点は公園グラウンド、2点は宅地から採取されたものである。土壌試料採取の時期は大気圏内核実験の影響を受けた後、かつ、原子力発電所の操業前であるため、1970年代の学校の校庭土壌のプルトニウム汚染のバックグラウンド値、すなわち、グローバルフォールアウトの寄与が得られると考えられる。

$^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の測定結果を表4.2-5に示す。学校校庭の土壌中 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は非常に低く、0.004から0.412 mBq/gの範囲であった。福島県の大熊と双葉町の居住地区で採取された2つの土壌の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、それぞれ0.294および0.695 mBq/gであった。本研究における $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の最高値は1.456 mBq/gであり、それは宮城県仙台市の公園で採取した土壌であった。土壌試料(校庭、居住地および公園)中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度分布を図4.2-10に示す。本研究で測定を行った80試料中、48.8%が0.05 mBq/g以下であり、77.5%が0.15 mBq/g以下であった。農耕土および森林土で観測されたグローバルフォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、0.15から4.31 mBq/gであり、これは、本研究で得られた $^{239+240}\text{Pu}$ は、農耕土や森林土の典型的なグローバルフォールアウトの値 (Muramatsu et al., 2003) よりも約1桁低い事を示している。

すべての土壌試料の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度に対する $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比を図4.2-11に示す。調査した学校校庭土の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.148から0.235の範囲であった。居住地で採取した2つの土壌試料と公園の試料では、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は0.182から0.188であった。すべての土壌試料の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の分布を図4.2-12に示す。典型的なガウス分布を示していることがわかる。80の土壌試料の中で、30試料の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.18 - 0.19であり、58試料の比は0.17 - 0.20であった。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の平均値と標準偏差は、 $0.186 \pm 0.015$ であり、それはグローバルフォールアウトの比と同じである (Kelley et al., 1999)。すなわち、これら土壌試料のPuの主なソースはグローバルフォールアウトであることを示唆している。

大気圏内核実験由来のフォールアウトのピークから 50 年経過しており、校庭土壌の $^{241}\text{Pu}$  ( $t_{1/2} = 14.4 \text{ y}$ ) 濃度は検出下限値よりも低く、本研究では検出できなかった。この土壌分析法による $^{241}\text{Pu}$  濃度のバックグラウンドデータを確立するために、Zhang ら (2010) によって報告されているグローバルフォールアウト標準試料の $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比 ( $^{241}\text{Pu}$  を 2000 年 1 月 1 日に減衰補正した値:  $0.00261 \pm 0.00026$ ) を用いた。この標準試料は 1963-1979 年に全国の 14 の観測地で採取された降下物試料から作成されたものである。(図 4.2-13) (Otsuji-Hatori et al., 1996) フォールアウト標準試料と我々が本研究において調査した土壌試料は、大規模な大気圏内核実験の後で、かつ日本における原子力発電所の稼働前において採取したものであるから、それらは、同じ Pu 同位体、すなわちグローバルフォールアウトが主な要因であると考えられる。したがって、今回我々が分析した土壌試料中の $^{241}\text{Pu}$  濃度を再構築するために、フォールアウト標準物質中の $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比を用いた。土壌試料中の $^{241}\text{Pu}$  濃度の最も高かった時期に合わせるために、 $^{241}\text{Pu}$  の減衰をグローバルフォールアウトのピークがあった 1964 年の 1 月 1 日に補正した。推定した $^{241}\text{Pu}$  濃度を表 4.2-5 に纏めた。また、分析した土壌試料の濃度分布を図 4.2-14 に示す。77 の校庭土壌の $^{241}\text{Pu}$  濃度範囲は、0.06 mBq/g から 6.07 mBq/g であった。居住地の 2 サンプルと公園の土壌試料は、それよりも高い濃度であり、4.28 mBq/g から 21.25 mBq/g の範囲であった。測定された $^{239+240}\text{Pu}$  濃度と計算された $^{241}\text{Pu}$  濃度の分布はよく似ていた。 $^{241}\text{Pu}$  濃度に対して、調査した土壌試料中の 89.6% は 0.3 mBq/g であった。図 4.2-15 に $^{241}\text{Pu}$  濃度と $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の相間を示す。図から分かるように、 $^{241}\text{Pu}$  濃度は $^{239+240}\text{Pu}$  濃度と非常に高い相関がある。そして、 $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  濃度比は 14.8 であった。 $^{239}\text{Pu}$  と $^{240}\text{Pu}$  の物理学的半減期は非常に長く (それぞれ、 $2.41 \times 10^4 \text{ y}$  および  $6.56 \times 10^3 \text{ y}$ )、数十年のタイムスケールにおいては、 $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は変化しないと考えられるので、本研究で得られた $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  濃度比 14.8 は日本における他の地域で採取された土壌で $^{239+240}\text{Pu}$  濃度を測定すれば、その $^{241}\text{Pu}$  のグローバルフォールアウト由来量を推定するのに使用できると考えられる。

#### 4.2.4. 塩素の化学分離法の調査・研究

塩素-36 ( $^{36}\text{Cl}$ ) は長半減期核種 ( $T_{1/2} = 3.01 \times 10^5 \text{ y}$ ) であり、安定 $^{35}\text{Cl}$  (存在度: 75.78%) の放射化 ( $n, \gamma$ ) 反応によって生成する。純ベータ線放出核種のため、低レベルの測定は難しい。安定塩素は原子炉冷却材に不純物として含まれるため、 $^{36}\text{Cl}$  は原子炉内で蓄積していく。現在環境中に見られる $^{36}\text{Cl}$  は、宇宙線起源の中性子による放射化、および、洋上で行われた大気圏内核実験により大量に発生 (海水中の塩素を放射化)、また、一部は原子力の平和利用に伴って環境中に放出されたものである。環境中において塩素は主に塩化物イオンとして存在し、水溶液中においては可溶性の高い陰イオンであるため土壌に収着されにくく動き易い。したがって、放射性廃棄物の埋設処分において重要核種である。金属元素と異なり、 $^{36}\text{Cl}$  は環境中に放出されると、安定塩素と早く平衡に達すると考えられる。したがって、 $^{36}\text{Cl}$  の挙動の知見を蓄積するためには、安定塩素をアナログとして測定することが有効である。

安定塩素の測定法を表 4.2-6 にまとめた。これまでに固体試料中の安定塩素の測定については、中性子放射化分析法 (Neutron Activation Analysis, NAA) が多く用いられている (結田, 1978; Tsukada and Nakamura, 1998)。この方法は検出感度が高く、かつ、定量性が高い。しかしながら、原子炉を利用する本法は、施

設や設備に限られる現状においては使用しにくくなってきている。一方、試料が水溶液の場合には、河川水や湖沼水など、ろ過後イオンクロマトグラフィー (Ion Chromatography, IC) に直接、または電気伝導度が高い場合には希釈後に、導入することで測定が可能である。陰イオンカラムを使って他の陰イオンと分離し、電気伝導度計で測定する方法が一般的である。この方法で植物や土壌などの固形成分を測定するためには、一度、水に溶解させなければならない。固形試料について無機酸を使って湿式法による全分解を行う場合には、一般的に良く用いられる塩酸など、塩化物イオンを含む試薬は分解に使えない。また、分解した後も、総イオン濃度が高かったり、pH が低い場合にはそれぞれ希釈/中和するなどの操作を行わないと、陰イオンカラムが正常に働かず、イオンクロマトグラフィーに導入することはできない。アルカリ溶解でも、総イオン濃度や共存陰イオン濃度が高くなり、定量ができなくなる。そのため、塩素を IC で測定する場合には、土壌や植物から高温条件で酸化剤存在下において揮散させ、その後純水を入れたトラップに捕集し、導入する方法が考えられる。

塩素分析装置は、固体や液体試料から塩素を揮散させ、溶液に回収し、イオンクロマトを用いて自動的に定量する装置であり、上述した方法が自動装置化されたものであり、塩素の感度は NAA 並みに高い。試料を 1100°C において加熱することで塩素を揮散させるが、土壌や岩石などのように、結晶格子中に取り込まれた塩素は揮散しにくいいため、有機態塩素を測定する手法として用いられている。塩素総量を測定することができず、したがって、定量結果は不確実性が高くなる。

塩素のようにイオン化エネルギーの高い元素の場合、一般的に無機元素分析に用いられる原子吸光度分析、ICP-発光分光分析 (OES)、また ICP-質量分析 (MS) 等の方法はほとんど用いられていない。もっとも検出感度が高いとされる ICP-MS でも、塩素のイオン化効率が悪くバックグラウンドも高いため、高感度測定が困難である。同族のハロゲン元素のうち、臭素やヨウ素は ICP-MS でのバックグラウンドが低いことから、イオン化エネルギーが高くても測定が行える (Tagami et al., 2006)。近年、橋本等 (2010) は ICP-OES を用いた塩素の高感度分析について報告を行っている。ICP-OES は塩素の原子線 (134.724 nm) を測定できる機種を用いている。イオン化効率の低さをカバーするために、酸化剤を試料溶液に添加することで塩素ガスを発生させ、アルゴンプラズマへの導入効率を向上させる方法を確立した。この方法で、5 µg/L を達成している。一般的な試料導入方法では、もっとも感度が良い場合で 20 µg/L である。この場合でも、ICP-MS よりも高感度に ICP-OES で測定できる可能性が示唆された。また、IC と同等の感度が得られることから、アルカリを使った溶解によって得られた溶液を測定できる可能性がある。我が国の植物中の塩素濃度や土壌中の塩素濃度は、Yuita (1982a, 1982b, 1983) の測定結果によればそれぞれ 73 - 24150 mg/kg-dry, 23 - 410 mg/kg-dry である。したがって、NAA では測定可能である。ICP-OES を使用する場合、通常溶液化した後、500 - 1000 倍に希釈して測定する。そのため、土壌、植物とも数 ppm 程度が検出下限値になると予想される。

分析方法としては、一般に土壌よりも植物中の塩素濃度の方が高いことから植物試料は硝酸のみを用いて加熱・抽出し、そのまま ICP-OES で測定する方法、または、水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) を用いて比較的低温で抽出し、希釈後測定する方法の 2 つが考えられる。同様の手法を土壌でも用いることができるかもしれない。ただし、土壌中の塩素は主に溶解性が高い陰イオンで存在すると考えられ

ていることから、水抽出後 IC で測定する方法も考えられる。そこで、今回は比較的塩素の損失が少ないと考えられる TMAH 法により Cl 抽出した溶液を ICP-MS で測定する方法 (Tagami et al., 2006) と、水抽出 (1:5) で抽出した溶液を IC で測定する方法について、土壌を用いて検討を行った。結果を図 4.2-16 に示す。土壌中の塩素濃度が高い場合には、多くの塩素が塩化物イオンとして存在していると考えられ、したがって、TMAH 法と同じ値を得ることができた。しかしながら、土壌中濃度が低くなるにつれて IC と TMAH 法の値は一致しなくなった。これは、ICP-MS の検出下限値が高いことが原因であるのか、それとも、水抽出で溶出することのできる塩素は 100%ではないことが原因であるのかは、はっきりしなかった。したがって、TMAH 法を用いる場合でも、より感度の良い方法を導入し、水抽出の結果と一致するのかどうかについて、さらなる検証が必要である。

#### 4. 3. 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

##### 4.3.1. Pu の土壌-米間移行係数 (TF) の文献調査

プルトニウム, Am, Th 及び塩素等は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価として、重要核種である。しかし、土壌-農作物の環境移行パラメータのデータが非常に少ない。表 4.3-1 に示す通り、IAEA Technical Report Series-No.472 「Handbook of Parameter Values for the Prediction of radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments」(IAEA 472)には、塩素について、各作物群に対して数点のデータしかない。例えば、穀類で 7 点、葉菜類でも 6 点しかない。プルトニウムについては、穀類、葉菜類と芋類で 105, 13, と 87 点ずつあるが、その大半は砂のデータである。砂は一般の土壌と異なり、収着能が低いいため、砂の TF を一般の土壌へ適用するのは困難である。また、米は日本人の主食として、土壌-米の TF は重要である。しかし、IAEA Technical Report Series-No.472 には、塩素及びプルトニウムについては、米の TF データはひとつもない。

日本国内には、米中の塩素とプルトニウムの分析法は確立されていないため、現状として、土壌-米の環境移行パラメータのデータについては報告がない(RWMC-88-P-11)。日本以外の国のデータについて、情報収集するために文献調査を行った。その結果を表 4.3-2 に示す。Adriano ら (1981) は、Pu で汚染された土壌 ( $2.07 \pm 0.33$  mBq/g) を用いて、温室において稲の栽培実験を行った。彼らの実験において、 $1.63 \times 10^{-2} - 3.15 \times 10^{-2}$  mBq/g という高い濃度が玄米中に観測された。この結果から、 $7.9 \times 10^{-3} - 1.5 \times 10^{-2}$  という土壌-米移行係数が得られている。また、実フィールドにおける Pu の米への移行係数もフランス及び中国の研究者により報告されている。フランスでは、Marcoule 再処理施設から超ウラン元素が Rhone 川に流出しているが、フランスの主要な米の生産地である Camargue 地区の水田灌漑水としてその河川水が用いられている。洪水により Rhone 川から水田に流入した Pu の安全評価を行うため、3 つの異なった水田から米粒、茎、根および土壌を採取した。この調査の結果、土壌中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は  $0.125 - 0.197$  mBq/g 範囲であり、米粒中の濃度は  $0.6 \times 10^{-4} - 1.8 \times 10^{-4}$  mBq/g , そして、米粒への経根吸収 (移行係数) が  $1.4 \times 10^{-3} \pm 0.7 \times 10^{-3}$  であることが報告されている (Duffa et al., 2002)。一方、中国においては、Han ら (ARI, 1993) が中国における主要食物の Pu 同位体を調査した。彼らは、Zhejiang と Ningxia 県の米中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度がそれぞれ、 $1.58 \times 10^{-4}$  and  $4.82 \times 10^{-4}$  mBq/g であることを見いだした。さらに、Liaoning の米中の濃度は

$5.9 \times 10^{-4} \pm 0.7 \times 10^{-4}$  mBq/g でやや高いことが Ma ら (1987) により報告されている。Zhang ら (1989) は、中国の核実験サイト周辺の 9 エリアおよび 3 つのコントロールエリアにおいて米を採取し、Pu 濃度を測定した。それらの結果、米中の  $^{239+240}\text{Pu}$  は、調査エリア ( $7.1 \times 10^{-4} \pm 0.9 \times 10^{-4}$  mBq/g) とコントロールエリア ( $6.8 \times 10^{-4} \pm 0.8 \times 10^{-4}$  mBq/g) で顕著な差は無かった。土壌-米間移行係数は  $2 \times 10^{-3}$  と報告されている。この TF 値は前述したフランスで報告されている値とほぼ同じであった。

これまでに報告されている文献調査の結果、温室において Pu 汚染土壌を用いて行った実験を除いて、フランスや中国の実フィールド調査から米の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は非常に低く  $1.0 \times 10^{-4}$  から  $7.9 \times 10^{-4}$  mBq/g の範囲であったことが分かった。フランスや中国における限定的な調査ではあるが、土壌-米間移行係数は  $2 \times 10^{-3}$  または、それ以下である事が示唆された。

#### 4.3.2. 塩素の土壌-植物間移行係数 (TF) の文献調査

塩素のデータは IAEA TRS-472 (2010) および Tecdoc-1616 (2009) に記載されており、すべて  $^{36}\text{Cl}$  の結果である。Tecdoc-1616 によれば塩素に関する TF のエントリーは 200 近い数とされており、文献は 3 つである。その文献は、明確にされていないが、論文タイトルから Kashparov ら (2005, 2007a) の 2 件は確実であろう。データ数について、最終的に 41 データしか TRS-472 の表にまとめられておらず、なぜその差が生じたのかについては不明である。ただし、Kashparov らの 2005 年のデータは fresh weight basis なので、dry weight basis に変換するのかわからないのか、また、土壌中において Cl が動き易いことから、TF を求める時の土壌中の濃度として、植物を植えた時にするのか、植物を収穫時にするのか、また、適用全量という意味で土壌添加直後の値を用いるのか、という議論がなされており、最終的に TRS で採用された値は明記されていない。

本報告書では、Kashparov らの 2 つの文献よりデータを抽出し、表 4.3-3 にとりまとめた。土壌の分類が明確ではないため、各グループ・部位の全てのデータについての比較のみとする。なお、Kashparov の 2005 年のデータは、TRS-472 を用いて fresh weight basis の TF から dry weight basis へ変換し、土壌中濃度については収穫時とし、また、TF については平衡に達することを考慮して、添加後 200 日以上 TF を採用することとした。Cereals, grain と stems&shoots では、TRS-472 とほぼ同様のデータ数が得られたが、stems&shoots では GM および範囲も異なっている。Leafy vegetables, Leguminous vegetables, Root crop とも、n が Tecdoc よりも大きくなっているが、GM は同程度の値であった。なお、Tubers や Fodder についてもデータが得られているので、本報告では同じ表に記載した。このデータからも分かるように、子実部分よりも茎葉部分の方の TF が高い。

さらに、安定 Cl を用いた分析結果についても、外国で得られたデータ (Sheppard et al., 1993, 1999; Kashparov 2007b) をとりまとめて同表に記した。塩素の TF は、 $^{36}\text{Cl}$  と安定 Cl を比較すると、 $^{36}\text{Cl}$  の TF が低い作物群では安定 Cl の TF も低く、 $^{36}\text{Cl}$  の TF が高い作物群では安定 Cl の TF も高くなる傾向があった。Kashparov ら (2007b) も安定 Cl のデータを用いることで、 $^{36}\text{Cl}$  の TF を推定できると結論している。したがって、今後は国内の文献データについて、安定 Cl データを蓄積して TF を求め、国外データと比較するとともに、今後、土壌-作物を分析することによって得られる安定 Cl のデータを追加して、塩素

の TF を充実させていくことができると考えられる。

#### 4. 4. まとめ

##### 4.4.1 重要核種 Pu および Cl の超高精度分析

本年度、我々は土壌中の Pu 同位体および Cl を測定するための高精度分析法の開発に焦点を絞って調査・研究を進めてきた。Pu 分析においては、2つの sector-field ICP-MS、すなわち、Element 2 と新しく導入した Element XR の分析精度を比較検討した。Element XR に新しく開発された Jet インターフェース (Jet-interface) を用いることにより、Element 2 と比較すれば感度が約 10 倍の高くなる事が分かった。さらに、高効率試料導入システム(Aridus II)と一緒に用いることで、U および Pu は 1ppb 当たり 100M cps という高感度が得られた。これは、米試料中の Pu 同位体分析のために必要とされる感度を提供するものである。

土壌中における Pu 同位体測定のために、2段階の陰イオン交換クロマトグラフの分離法を開発した。この分析法により Pu 分析において妨害となる  $\text{UH}^+$  をほぼ取り除くことが出来ることが分かった。U の除去係数は  $2 \times 10^6$  でありこれまでに報告されている方法よりも 1 桁以上大きかった。そして、日本の土壌のグローバルフォールアウト Pu のバックグラウンドデータを得るため、1970 年代に放射線医学総合研究所が採取した土壌に着目し、それら土壌試料中の  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  濃度測定に本調査で開発した分析法を適応した。 $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の最高値は宮城県仙台市の公園で採取した土壌の 1.456 mBq/g であったが、学校校庭の土壌に着目してみると  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は非常に低く、0.004 から 0.412 mBq/g の範囲であった。福島県の大熊と双葉町の居住地区で採取した 2 つの土壌の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は、それぞれ 0.294 および 0.695 mBq/g であった。本研究で測定を行った 80 試料中、48.8% が 0.05 mBq/g 以下であり、77.5% が 0.15 mBq/g 以下であった。農耕土および森林土で観測れたグローバルフォールアウトの  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は、0.15 から 4.31 mBq/g (Muramatsu et al., 2003) であり、これは、本研究で得られた  $^{239+240}\text{Pu}$  は、農耕土や森林土の典型的なグローバルフォールアウトの値よりも約 1 桁低い事を示している。分析を行った 80 の土壌試料の中で、30 試料の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比は、0.18 - 0.19 であり、58 試料の比は 0.17 - 0.20 であった。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比の平均値と標準偏差は、 $0.186 \pm 0.015$  であり、それはグローバルフォールアウトの比と同じである。すなわち、これら土壌試料の Pu の主なソースはグローバルフォールアウトであることを示唆している。

土壌中の Cl 分析において、2つの方法、水抽出-イオンクロマト分析と TMAH 抽出-ICP-MS 分析、を評価した。得られた結果は、塩素濃度が 100 mg/kg 以上の試料については、2つの分析法は良く一致していた。一方、塩素濃度が 100 mg/kg 以下の場合、TMAH-ICP-MS 法で得られた値は水抽出-イオンクロマト分析で得られた値よりも高いものとなった。今後、最終的な高感度塩素分析法の確立を行うため、さらに調査が必要である。

##### 4.4.2 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

本年度においては、文献調査により土壌-農作物の環境移行データの収集を行った。

Pu 同位体の土壌-植物間移行係数に関して、アメリカの研究者は温室で米への移行実験を行い、TF と

して  $7.9 \times 10^{-3}$  から  $1.5 \times 10^{-2}$  という広い範囲の値を報告している。一方、実際のフィールド調査による研究では、TF として約  $2 \times 10^{-3}$  の値をフランスと中国で報告されている。今年度は、土壌中のプルトニウム高精度質量分析法を確立した。今後、さらに、米中の超微量プルトニウム高精度質量分析法を開発し、得られた分析法を用いて実環境試料中の濃度データを収集し、日本における土壌-米の環境移行係数を蓄積する必要がある。

文献調査により、安定 Cl のデータを用いることで  $^{36}\text{Cl}$  の TF を推定できることが分かった。したがって、今後は国内の文献データについて、安定 Cl データを蓄積して TF を求め、国外データと比較するとともに、今後、土壌-作物を分析することによって得られる安定 Cl のデータを追加して、塩素の TF を充実させていくことができると考えられる。

## 引用文献

- Adriano, D. C., McLeod K. W., and Ciravolo, T. G. (1981): Plutonium, curium and other radionuclide uptake by the rice plant for a naturally weathered contaminated soil. *Soil Sci.*, 132, 83-88.
- Becker, J. S. (2002): State-of-the-art and progress in precise and accurate isotope ratio measurements by ICP-MS and LA-ICP-MS. *J. Anal. At. Spectrom.*, 17, 1172-1185.
- Boulyga, S. F., Testa, C., Desideri, D., and Becker, J. S. (2001): Optimisation and application of ICP-MS and alpha-spectrometry for determination of isotopic ratios of depleted uranium and plutonium in samples collected in Kosovo. *J. Anal. At. Spectrom.* 16, 1283-1289.
- Donard, O. F. X., Bruneau, F., Moldovan, M., Garraud, H., Epov, V. N., and Boust, D. (2007): Multi-isotopic Determination of Plutonium ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  and  $^{242}\text{Pu}$ ) in Marine Sediments Using Sector-field Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry. *Anal. Chim. Acta*, 587, 170-179.
- Duffa, C., Renaud, P., and Goutelard, F. (2002): Activities and transfers of Pu and Am in rice samples from Camargue, France. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 252, 247-248.
- Epov, V. N., Benkhedda, K., and Evans, R. D. (2005): Determination of Pu Isotopes in Vegetation Using a New On-line FI-ICP-DRC-MS Protocol after Microwave Digestion. *J. Anal. At. Spectrom.*, 990-992.
- 原子力環境整備センター (1994): 環境パラメータ・シリーズ 1. 土壌から農作物への放射性物質の移行係数, RWMC-88-P-11.
- Han, S. L., Ma, J. J., Zhan, Q. C., Zhou, S. X., Li, B. T., and Li, X. Z. (1993): Survey of  $^{237}\text{Np}$  and plutonium isotopes in principal foodstuffs in China. *Appl. Radiat. Isot.*, 44, 1490-1490.
- Harley, J. H. (1980): Plutonium in the environment-A review. *J. Radiat. Res.*, 21, 83-104, 1980.
- 橋本文寿, 大道寺英弘, 内原博 (2010): 酸化気化試料導入法を用いた誘導結合プラズマ発光分光法による塩素の高感度定量. *Bunseki Kagaku* 59, 627-631.
- IAEA (2009): Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. *Tecdoc-1616*.
- IAEA (2010): Technical Report Series-No.472. Handbook of Parameter Values for the Prediction of radionuclide

- Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Vienna, Austria, IAEA.
- Kashparov, V., Colle, C., Zvarich, S., Yoschenko, V., Levchuk, S., and Lundin, S. (2005): Soil-to-plant halogens transfer studies 2. Root uptake of radiochlorine by plants. *J. Environ, Radioact.* 79, 233-253.
- Kashparov, V., Colle, C., Levchuk, S., Yoschenko, V., and Zvarich, S. (2007a): Radiochlorine concentration ratios for agricultural plants in various soil conditions. *J. Environ, Radioact.* 95, 10-22.
- Kashparov, V., Colle, C., Levchuk, S., Yoschenko, V., and Svydynuk, N. (2007b): Transfer of chlorine from the environment to agricultural foodstuffs. *J. Environ, Radioact.* 94, 1-15.
- Kelley, J. M., Bond, L. A., and Beasley, T. M. (1999): Global distribution of Pu isotopes and  $^{237}\text{Np}$ , *Sci. Total Environ.*, 237/238, 483-500.
- Ketterer, M. E., Watson, B. R., Matisoff, G., and Wilson, C. G. (2002): Rapid Dating of Recent Aquatic Sediments Using Pu activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  as Determined by Quadrupole Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry. *Environ. Sci. Technol.*, 36, 1307-1311.
- Ketterer, M. E., Hafer, K. M., Jones, V. J., and Appleby, P. G. (2004): Rapid Dating of Recent Sediments in Loch Ness: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometric Measurements of Global Fallout Plutonium. *Sci. Total Environ.*, 322, 221-229.
- Kim, C. S., Kim, C. K., Lee, J. I., and Lee, K. J. (2000): Rapid determination of Pu isotopes and atom ratios in small amounts of environmental samples by an on-line sample pre-treatment system and isotope dilution high resolution inductively coupled plasma mass spectrometry. *J. Anal. At. Spectrom.*, 15, 247-255.
- Kim, C. S., Kim, C. K., Martin, P., Sansone, U. (2007): Determination of Pu isotope concentrations and isotope ratio by inductively coupled plasma mass spectrometry: A review of analytical methodology. *J. Anal. At. Spectrom.*, 22, 827-841.
- Kudo, A., Mahara, Y., Santry, D. C., Miyahara, S., and Garrec, J. P. (1971): Geographic distribution of fractionated local fallout from the Nagasaki A-bomb. *J. Environ. Radioact.*, 14, 305-316.
- Liao, H. Q., Zheng, J., Wu, F. C., Yamada, M., Tan, M. G., and Chen, J. M. (2008): Determination of plutonium isotopes in freshwater lake sediments by sector-field ICP-MS after separation using ion-exchange chromatography. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 1138-1145.
- 馬俊傑 et al. (1987): 遼寧省主要食品放射性水平調查。中華放射医学与防護, 7, 56-58.
- Miura, T., Oikawa, S., Kishimoto, T., Banba, S., and Morimoto T. (2001) Rapid separation of plutonium in environmental samples using an anion exchange resin disk. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 250, 449-452.
- Momoshima, N., Kakiuchi, H., Maeda, Y., Hirai, E., and Ono, T. (1997): Identification of the contamination source of plutonium in environmental samples with isotopic ratios determined by inductive coupled plasma mass spectrometry and alpha-spectrometry. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 221, 213-217.
- Muramatsu, Y., Uchida, S., Tagami, K., Yoshida, S., and Fujikawa, T. (1999): Determination of Plutonium Concentration and Its Isotopic Ratio in Environmental Materials by ICP-MS after Separation Using Ion-exchange and Extraction Chromatography. *J. Anal. At. Spectrom.* 14, 859-865.
- Muramatsu, Y., Yoshida, S., and Tanaka, A. (2003): Determination of Pu concentration and its isotope ratio in

- Japanese soils by HR-ICP-MS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 255, 477-480.
- Nygren, U., Rodushkin, I., Nilsson, C., and Baxter, D. C. (2003): Separation of Plutonium from Soil and Sediment prior to Determination by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry. *J. Anal. At. Spectrom.*, 18, 1426-1434.
- Ohtsuka, Y., Iyogi, T., Kakiuchi, H., Takaku, Y., Hisamatsu, S., Inaba, J. (2004): J. Evaluation of  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and natural  $^{210}\text{Pb}$  fallout in agricultural upland fields in Rokkasho, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261, 625-630.
- Okajima, S., Shimasaki, T., and Kubo, T. (1990): Measurement of  $^{239}\text{Pu}$  in soil and plants in the Nishiyama district of Nagasaki. *Health Phys.*, 58, 591-596.
- Otsuji-Hatori, M., Igarashi, Y., and Hirose, K. (1996): Preparation of a reference fallout material for activity measurements. *J. Environ. Radioact.* 31, 143-155.
- Pointurier, F., Pottin, A., Hemet, P., and Hubert, A. (2011): Combined Use of Medium Mass Resolution and Desolvation Introduction System for Accurate Plutonium Determination in the Femtogram Range by Inductively Coupled Plasma-sector-field Mass Spectrometry. *Spectrochim. Acta B*, 66, 261-267.
- Pointurier, F., Hubert, A., Faure, A. L., Hemet, P., and Pottin, A. C. (2011): Polyatomic Interferences in Plutonium Determination in the Femtogram Range by Double-focusing Sector-field ICP-MS. *J. Anal. At. Spectrom.*, 26, 1474-1480.
- Qiao, J., Hou, X., Roos, P., and Miro, M. (2011): High Through Sequential Injection Method for Simultaneous Determination of Pu and Np in Environmental Solids Using Microporous Anion Exchange Chromatography Followed by ICP-MS Detection. *Anal. Chem.*, 83, 374-381.
- Saito-Kokubu, Y., Yasuda, K., Magara, M., Miyamoto, Y., Sakurai, S., Usuda, S., Yamazaki, H., and Yoshikawa, S. (2007): Geographical distribution of plutonium derived from the atomic bomb in the eastern area of Nagasaki. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 273, 183-186.
- Saito-Kokubu, Y., Yasuda, K., Magara, M., Miyamoto, Y., Sakurai, S., Usuda, S., Yamazaki, H., Yoshikawa, S., Nagaoka, S., Mitamura, M., Inoue, J., and Murakami, A. (2008): Depositional records of plutonium and  $^{137}\text{Cs}$  released from Nagasaki atomic bomb in sediment of Nishiyama reservoir at Nagasaki. *J. Environ. Radioact.*, 99, 211-217.
- Sakanoue, M., and Tsuji, T. (1971): Plutonium content of soil at Nagasaki. *Nature*, 234, 92-93.
- Sheppard, S.C., Evenden, W.G., and Amiro, B.D. (1993): Investigation of the soil-to-plant pathway for I, Br, Cl and F. *J. Environ. Radioact.* 21, 9-32.
- Sheppard, S.C., Evenden, W.G., and Macdonald, C.R. (1999): Variation among chlorine concentration ratios for native and agronomic plants. *J. Environ. Radioact.* 43, 65-76.
- Tagami, K., Uchida, S., Hirai, I., Tsukada, H., and Takeda, H. (2006): Determination of chlorine, bromine and iodine in plant samples by inductively coupled plasma-mass spectrometry after leaching with tetramethyl ammonium hydroxide under a mild temperature condition. *Anal. Chim. Acta* 570, 88-92.
- Tanner, S. D., Li, C., Vais, V., Baranov, V. I., and Bandura, D. R. (2004): Chemical resolution of  $\text{Pu}^+$  from  $\text{U}^+$  and  $\text{Am}^+$  using a band-pass reaction cell inductively coupled plasma mass spectrometer. *Anal. Chem.* 76, 3042-3048.

- Tsukada, H., and Nakamura, Y. (1998): Transfer factors of 31 elements in several agricultural plants collected from 150 farm fields in Aomori, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 236, 123-131.
- UNSCEAR (2000): Sources and Effects of Ionizing Radiation, Vol. 1, Source, Scientific Annexes C, United Nations Publication, New York, p. 158, 2000.
- Vais, V., Li, C., and Cornett, J. (2004): Separation of plutonium from uranium using reaction chemistry in a band pass reaction cell of an inductively coupled plasma mass spectrometer. *Anal. Bioanal. Chem.*, 380, 235-239.
- Yamamoto, M., Komura, K., and Sakanoue, M. J. (1983): Discrimination of the plutonium due to atomic explosion in 1945 from global fallout plutonium in Nagasaki Soil. *J. Radiat. Res.*, 24, 250-258.
- Yamamoto, M., Takada, T., Nagao, S., Koike, T., Shimada, K., Hoshi, M., Zhumadilov, K., Shima, T., Fukuoka, M., Imanaka, T., Endo, S., Sakaguchi, A., and Kimura, S. (2012): An early survey of the radioactive contamination of soil due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, with emphasis on plutonium analysis, *Geochem. J.* 46, 341-353.
- Yamazaki, S., Takeda, A., Nanzyo, M., Taniyama, I., and Nakai, M. (2001): Background levels of trace and ultra-trace elements in soils of Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 47, 755-765.
- Yoshida, S., Muramatsu, Y., Yamazaki, S., and Ban-nai, T. (2007): Distribution of nuclear bomb Pu in Nishiyama area, Nagasaki, estimated by accurate and precise determination of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ratio in soils. *J. Environ. Radioact.*, 96, 85-93.
- 結田康一 (1978): 農・生物試料の実用放射化分析技術(V) (4) 土壌試料の放射化分析(2)ハロゲン元素. *Radioisotopes* 27, 613-623.
- Yuita, K. (1982b): Iodine bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. II Iodine, bromine and chlorine contents in the soils and in plants of the basin of the Nagara River. *Soil Sci. Plant Nutr.* 28, 499-515.
- Yuita, K. (1982a): Iodine bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. II Iodine, bromine and chlorine contents in the soils and in plants of the basin of the Miomote River. *Soil Sci. Plant Nutr.* 28, 315-336.
- Yuita, K. (1983): Iodine bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. III Iodine, bromine and chlorine contents in the andosols and in plants of central Honshu. *Soil Sci. Plant Nutr.* 29, 403-428.
- Zhang, J., Wei, J., Xu, H., and Zou, W. (1989): the plutonium radiation level in food in the residential areas around the nuclear testing site in Xinjiang. *Res. Environ. Sci. (in Chinese)*, 2, 27-31.
- Zhang, Y. S., Zheng, J., Yamada, M., Wu, F. C., Igarashi, Y., Hirose, K. (2010): Characterization of Pu concentration and its isotopic composition in a reference fallout material. *Sci. Total Environ.*, 408, 1139-1144.
- Zheng, J., Yamada, M., Wang, Z., Aono, T., and Kusakabe, M. (2004): Determination of plutonium and its isotopic ratio in marine sediment samples using quadrupole ICP-MS with the shield torch system under normal plasma conditions. *Anal. Bioanal. Chem.*, 379, 532-539.
- Zheng, J., and Yamada, M. (2006a): Inductively coupled plasma-sector field mass spectrometry with a high-efficiency sample introduction system for the determination of Pu isotopes in settling particles at femtogram levels. *Talanta*, 69, 1246-1253.
- Zheng, J., and Yamada, M. (2006b): Determination of U Isotope Ratios in Sediments Using ICP-QMS after Sample

Cleanup with Anion-exchange and Extraction Chromatography. *Talanta*, 68, 932-939.

Zheng, J., Tagami, K., Watanabe, Y., Uchida, S., Aono, T., Ishii, N., Yoshida, S., Kubota, Y., Fuma, S., and Ihara, S. (2012): Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP plant. *Sci. Rep.* 2:304, doi:10.1038/srep00304.

Zoriy, M. V., Halicz, L., Ketterer, M. E., Pickhardt, C., Ostapczuk, P., and Becker, J. S. (2004): Reduction of  $\text{UH}^+$  formation for  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  isotope ratio measurement at ultratrace level in double focusing sector field ICP-MS using  $\text{D}_2\text{O}$  as solvent. *J. Anal. At. Spectrom.* 19, 362-367.



表 4.2-1. SF-ICP-MS (Element 2) と APEX-Q システムにおける機器セッティングおよびデータ取得条件

<b>SF-ICP-MS</b>	
<b>機器セッティング条件</b>	
Forward power	1200 W
Nebulizer	Conical concentric
Sample cone	Nickel, 1.1 mm orifice diameter
Skimmer cone	Nickel, 0.8 mm orifice diameter or X-cone
Torch	Fassel
Cool gas	16 l min <sup>-1</sup>
Auxiliary gas	0.8 l min <sup>-1</sup>
Sample gas (nebulizer gas)	0.97-0.99 l min <sup>-1</sup> (optimized daily to highest intensity of <sup>238</sup> U <sup>+</sup> and lowest possible oxide formation rate)
<b>データ取得条件</b>	
<i>Low resolution (m/Δm = 300):</i>	
Acquisition mode	E-scan (peak jumping)
Monitored isotopes	<sup>238</sup> U <sup>+</sup> , <sup>239</sup> Pu <sup>+</sup> , <sup>240</sup> Pu <sup>+</sup> , <sup>242</sup> Pu <sup>+</sup>
No. of scans (runs x passes)	17 x 3
Mass window	10 %
Samples per peak	80
Sample time	10 ms for <sup>238</sup> U <sup>+</sup> ; 30 ms for <sup>242</sup> Pu <sup>+</sup> ; 100 ms for <sup>239</sup> Pu <sup>+</sup> and <sup>240</sup> Pu <sup>+</sup>
Integration type	Average
Total time of analysis	150 s
<i>Medium resolution (m/Δm = 4000):</i>	
Acquisition mode	E-scan (peak jumping)
Monitored isotopes	<sup>238</sup> U <sup>+</sup> , <sup>239</sup> Pu <sup>+</sup> , <sup>240</sup> Pu <sup>+</sup> , <sup>242</sup> Pu <sup>+</sup>
No. of scans (runs x passes)	17 x 3
Mass window	80 %
Samples per peak	10
Sample time	10 ms for <sup>238</sup> U <sup>+</sup> ; 30 ms for <sup>242</sup> Pu <sup>+</sup> ; 100 ms for <sup>239</sup> Pu <sup>+</sup> and <sup>240</sup> Pu <sup>+</sup>
Integration type	Average
Total time of analysis	150 s
<b>APEX-Q セッティング</b>	
Sample uptake rate	0.2 ml min <sup>-1</sup> (with conical nebulizer)
Spray chamber temperature	140 °C
Condenser temperature	2 °C
Sweep gas (Ar)	3 l min <sup>-1</sup>
Additional gas (Ar)	0.1 l min <sup>-1</sup>
N <sub>2</sub> gas	~ 10 ml min <sup>-1</sup>

表 4.2-2. Element 2 と Element XR の比較

	ELEMENT 2	ELEMNT XR
光学系	<p>逆 Nier-Johnson 配置 (磁場—電場)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* 従来型の Nier-Johnson 配置より透過率向上</li> <li>* 電場スキャン範囲を広め、四重極型と同様な迅速分析</li> <li>* 設置面積 1.4 平方メートル</li> </ul>	<p>逆 Nier-Johnson 配置 (磁場—電場)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* 従来型の Nier-Johnson 配置より透過率向上</li> <li>* 電場スキャン範囲を広め、四重極型と同様な迅速分析</li> <li>* 設置面積 1.4 平方メートル</li> </ul>
スリット	<p>三段階固定スリット</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* 切替迅速</li> <li>* 安定性高い</li> <li>* ルーチン分析に適応</li> </ul>	<p>三段階固定スリット</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* 切替迅速</li> <li>* 安定性高い</li> <li>ルーチン分析に適応</li> </ul>
検出器	<p>SEM</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* ダイナミックレンジ 9 桁</li> <li>* 高精度自動 gain calibration</li> </ul>	<p>SEM &amp; ファラデー</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* ダイナミックレンジ 12 桁</li> <li>* 高精度自動 gain calibration</li> </ul>
マス軸安定性	<p>8 時間 25ppm</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* analyzer housing は温度制御された恒温カプセル</li> <li>* コンパクトなラミネート式磁石</li> </ul>	<p>8 時間 25ppm</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* analyzer housing は温度制御された恒温カプセル</li> <li>* コンパクトなラミネート式磁石</li> </ul>
電場スキャン範囲	<p>-5%—30%</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* 磁場固定して全希土類元素を電場スキャンで高速分析できる</li> <li>* レーザアブレーション、HPLC などによる過渡信号分析に適応</li> </ul>	<p>-5%—30%</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>* 磁場固定して全希土類元素を電場スキャンで高速分析できる</li> <li>* レーザアブレーション、HPLC などによる過渡信号分析に適応</li> </ul>
感度	<ul style="list-style-type: none"> <li>* 分解能 300 において、インジウム 1 ppb 溶液で <math>1 \times 10^6</math> cps/ppb 以上</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>* 分解能 300 において、インジウム 1 ppb 溶液で <math>2 \times 10^7</math> cps/ppb 以上</li> </ul>

表 4.2-3. 環境固体試料中の Pu 分離法におけるウラン除去係数\*

分離方法	樹脂タイプ	試料	試料量 (g)	除去係数	最終溶液中の $^{238}\text{U}$ 濃度 ( $\text{pg mL}^{-1}$ )	文献
陰イオン交換	AG 1X8	海洋沈降物	0.03-0.5	$(1-10)\times 10^4$	10-20	Zheng & Yamada, 2006
陰イオン交換	SR resin disk	堆積物	0.5-10	$6.6\times 10^3$		Miura et al., 2001
陰イオン交換	AG 1X8+ AG 1X8	堆積物	10	$1.4\times 10^4$	< 200	Zheng et al., 2004
陰イオン交換	AG 1X8+AG MP-1M	淡水湖堆積物	0.5-2	$1\times 10^5$		Liao et al., 2008
陰イオン交換抽出クロマトグラフィー	Dowex 1X8/TEVA	堆積物, 土壌	1-25	$(1-10)\times 10^4$	40-200	Muramatsu et al., 1999
抽出クロマトグラフィー	TNOA	土壌	1	$(1.7-2)\times 10^5$		Boulyga et al., 2001
抽出クロマトグラフィー	TEVA	堆積物	20	$(1-10)\times 10^4$	10-50	Ketterer et al., 2002
抽出クロマトグラフィー	TEVA/UTEVA +TRU	堆積物, 土壌	0.2-2	$(0.18-5.9)\times 10^4$		Nygren et al., 2003
抽出クロマトグラフィー	TEVA+Sr	堆積物, 土壌	0.5-1	$5.4\times 10^4$	33-84	Kim et al., 2000
陰イオン交換	AG 1X8+AG MP-1M	海底堆積物, 土壌	0.1-30	$2\times 10^6$	1-4	This study

\*除去係数：試料中に含まれるウラン総量/最終溶液中のウラン総量

表 4.2-4. 標準物質中の  $^{239+240}\text{Pu}$  放射能濃度および  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比

標準物質	$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq/g-dry)			$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ , atom ratio	
	Measured	Certified	Literature	Measured	Information or Literature
NIST-4357	$9.80\pm 0.13$ (n=3)	9.2-13.3	9.3-10.1	$0.230\pm 0.005$ (n=3)	0.233-0.244
IAEA-368	$32.5\pm 0.4$ (n=3)	29.0-34.0	29.7-33.3	$0.032\pm 0.001$ (n=3)	0.030-0.043
IAEA-Soil-6	$1.00\pm 0.02$ (n=1)	$1.00\pm 0.04$	$1.00\pm 0.04$	$0.192\pm 0.008$ (n=1)	$0.191\pm 0.005$

表 4.2-5. 1969-1977 年に採取した土壤中 Pu 分析結果

Soil ID	Prefecture	City or village	Site	Sampling date	<sup>239+240</sup> Pu activity (Bq kg <sup>-1</sup> )	<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu atom ratio	<sup>241</sup> Pu activity (Bq kg <sup>-1</sup> ) <sup>a</sup>
182	Fukushima	Fukushima	School	12/9/1969	0.050±0.003	0.183±0.023	0.74±0.04
183	Fukushima	Fukushima	School	12/9/1969	0.022±0.004	ND	0.31±0.03
184	Fukushima	Aizuwakamatsu	School	10/20/1970	0.079±0.003	0.166±0.016	1.20±0.06
185	Fukushima	Koriyama	School	12/10/1969	0.048±0.002	0.175±0.019	0.72±0.03
186	Fukushima	Koriyama	School	12/10/1969	0.038±0.002	0.189±0.024	0.55±0.03
187	Fukushima	Koriyama	School	12/10/1969	0.110±0.003	0.175±0.011	1.65±0.05
189	Fukushima	Iwaki	School	12/8/1969	0.057±0.002	0.189±0.016	0.82±0.04
191	Fukushima	Iwaki	School	12/8/1969	0.033±0.002	0.191±0.020	0.48±0.03
192	Fukushima	Iwaki	School	12/8/1969	0.006±0.001	ND	0.09±0.01
193	Fukushima	Shirakawa	School	12/10/1969	0.090±0.003	0.195±0.014	1.29±0.03
194	Fukushima	Haramachi	School	12/9/1969	0.196±0.005	0.188±0.012	2.85±0.07
196	Fukushima	Kitakata	School	10/20/1970	0.368±0.008	0.176±0.008	5.50±0.12
197	Fukushima	Soma	School	12/9/1969	0.054±0.003	0.180±0.023	0.80±0.05
198	Fukushima	Nihonmatsu	School	12/10/1969	0.182±0.004	0.192±0.009	2.63±0.06
199	Fukushima	Nishiaizu	School	10/20/1970	0.172±0.004	0.176±0.010	2.57±0.05
202	Fukushima	Yamatsuri	School	12/10/1969	0.058±0.003	0.187±0.022	0.84±0.03
203	Fukushima	Miyakoji	School	12/9/1969	0.030±0.002	0.183±0.027	0.45±0.04
204	Fukushima	Hirono	School	12/8/1969	0.039±0.003	0.200±0.030	0.56±0.05
205	Fukushima	Okuma	Residential area	12/8/1969	0.695±0.022	0.182±0.011	10.24±0.44
206	Fukushima	Futaba	Residential area	12/9/1969	0.294±0.007	0.188±0.008	4.28±0.13
207	Fukushima	Namie	School	12/9/1969	0.131±0.004	0.192±0.012	1.89±0.07
208	Fukushima	Odaka	School	12/9/1969	0.051±0.002	0.152±0.012	0.80±0.04
210	Ibaraki	Mito	School	11/30/1976	0.044±0.005	0.180±0.046	0.65±0.10
211	Ibaraki	Hitachi	School	12/10/1969	0.122±0.006	0.193±0.019	1.75±0.11
223	Ibaraki	Hitachiota	School	11/29/1976	ND	ND	
224	Ibaraki	Takahagi	School	12/8/1969	0.227±0.010	0.171±0.016	3.43±0.16
225	Ibaraki	Kitaibaraki	School	12/8/1969	0.142±0.005	0.186±0.013	2.08±0.10
130	Miyagi	Sendai	School	5/6/1970	0.046±0.003	0.182±0.023	0.68±0.04
131	Miyagi	Sendai	School	5/6/1970	0.018±0.001	0.179±0.033	0.28±0.02
132	Miyagi	Sendai	Park ground	5/6/1970	1.456±0.015	0.187±0.004	21.25±0.25

133	Miyagi	Ishinomaki	School	5/7/1970	0.021±0.002	ND	0.32±0.06
134	Miyagi	Shiogama	School	5/7/1970	0.047±0.003	0.186±0.020	0.69±0.05
135	Miyagi	Furukawa	School	5/17/1970	0.171±0.012	0.203±0.023	2.45±0.22
136	Miyagi	Kesenuma	School	5/8/1970	0.318±0.008	0.182±0.010	4.69±0.154
137	Miyagi	Shiroishi	School	12/9/1969	0.212±0.010	0.189±0.019	3.08±0.19
138	Miyagi	Natori	School	5/17/1970	0.130±0.005	0.193±0.014	1.88±0.08
139	Miyagi	Iwanuma	School	12/9/1969	0.029±0.002	0.198±0.028	0.42±0.032
140	Miyagi	Naruko	School	5/17/1970	0.198±0.008	0.184±0.015	2.91±0.14
141	Miyagi	Onagawa	School	5/7/1970	0.008±0.001	0.215±0.050	0.11±0.01
143	Miyagi	Shizugawa	School	5/7/1970	0.040±0.015	0.201±0.057	0.60±0.36
110	Iwata	Morioka	School	5/9/1970	0.230±0.008	0.182±0.014	3.39±0.13
111	Iwata	Morioka	School	5/9/1970	0.412±0.016	0.182±0.015	6.07±0.30
114	Iwata	Ofunato	School	5/8/1970	0.027±0.002	0.171±0.028	0.41±0.03
115	Iwata	Mizusawa	School	5/16/1970	0.018±0.003	0.207±0.041	0.26±0.05
116	Iwata	Hanamaki	School	5/16/1970	0.266±0.006	0.182±0.008	3.92±0.12
117	Iwata	Kitakami	School	5/16/1970	0.047±0.005	0.198±0.041	0.69±0.05
120	Iwata	Tono	School	5/8/1970	0.164±0.006	0.180±0.015	2.43±0.07
121	Iwata	Ichinoseki	School	5/16/1970	0.075±0.002	0.192±0.014	1.08±0.03
122	Iwata	Rikuzen- takata	School	5/8/1970	0.152±0.005	0.217±0.014	2.08±0.09
231	Tochigi	Utsunomiya	School	10/18/1976	0.007±0.001	ND	0.11±0.02
241	Tochigi	Otawara	School	10/19/1976	0.041±0.003	0.190±0.033	0.61±0.06
242	Tochigi	Yaita	School	10/19/1976	0.039±0.003	0.172±0.024	0.59±0.05
243	Tochigi	Tochigi	School	10/19/1976	0.088±0.004	0.180±0.020	1.31±0.06
244	Tochigi	Nasushiobara	School	10/19/1976	0.013±0.002	0.198±0.046	0.20±0.03
246	Gunma	Maebashi	School	12/1/1976	0.083±0.004	0.165±0.005	1.27±0.05
249	Gunma	Kiryu	School	11/30/1976	0.021±0.002	0.185±0.042	0.30±0.03
252	Gunma	Numata	School	10/20/1976	0.103±0.003	0.148±0.011	1.64±0.04
260	Gunma	Katashina	School	10/20/1976	0.014±0.002	ND	0.22±0.03
262	Saitama	Kumagaya	School	12/1/1976	0.055±0.002	0.170±0.017	0.83±0.04
265	Saitama	Urawa	School	3/14/1977	0.114±0.007	0.180±0.023	1.69±0.13
268	Saitama	Chichibu	School	3/16/1977	0.016±0.002	0.186±0.037	0.25±0.03
276	Saitama	Sayama	School	12/2/1976	0.103±0.004	0.149±0.014	1.63±0.06
278	Saitama	Fukaya	School	12/1/1976	0.025±0.002	0.173±0.032	0.38±0.04
281	Saitama	Koshigaya	School	8/31/1973	0.011±0.002	0.225±0.059	0.16±0.02

290	Chiba	Chiba	School	8/27/1973	0.008±0.002	ND	0.12±0.02
291	Chiba	Chiba	School	8/27/1973	ND	ND	
292	Chiba	Choshi	School	8/29/1973	0.075±0.004	0.188±0.024	1.09±0.05
293	Chiba	Choshi	School	8/29/1973	0.010±0.002	ND	0.15±0.02
303	Chiba	Matsudo	School	8/31/1973	0.010±0.001	0.200±0.063	0.15±0.02
304	Chiba	Matsudo	School	8/31/1973	0.047±0.002	0.185±0.020	0.69±0.03
308	Chiba	Narita	School	8/30/1973	0.051±0.003	0.186±0.023	0.75±0.04
311	Chiba	Yokaichiba	School	8/29/1973	0.027±0.002	0.184±0.023	0.41±0.03
315	Chiba	Kashiwa	School	8/31/1973	0.123±0.005	0.201±0.018	1.75±0.08
316	Chiba	Kashiwa	School	8/31/1973	0.077±0.003	0.176±0.016	1.16±0.07
334	Tokyo	Shinjuku	School	3/18/1977	0.212±0.008	0.184±0.015	3.12±0.11
338	Tokyo	Koto	School	3/30/1977	0.004±0.001	ND	0.06±0.01
339	Tokyo	Koto	School	3/30/1977	0.006±0.001	ND	0.10±0.02
343	Tokyo	Ota	School	2/24/1977	0.042±0.003	0.235±0.034	0.56±0.04
358	Tokyo	Adachi	School	3/14/1977	0.011±0.001	0.162±0.046	0.18±0.02
362	Tokyo	Edogawa	School	3/30/1977	0.009±0.001	ND	0.15±0.01

<sup>a</sup><sup>241</sup>Pu 半減期補正日：1964年1月1日。

<sup>241</sup>Pu 放射能濃度は1963-1979年に日本の14箇所で観察された降下物中の<sup>241</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu から算出 (Y.S. Zhang et al., Sci. Total. Environ., 2010, 408, 1139-1144).

表 4.2-6. 塩素分析法の比較

方法	検出下限値	デメリット
中性子放射化分析	ca. 0.4 ppm (100 mg solid sample)	原子炉が必要
イオンクロマトグラフィー	~0.1 ppm	低塩濃度の中性水溶液しか導入できない
塩素分析	0.33 ppm (30 mg solid sample)	有機態 Cl が対象。土壤中無機態 Cl は温度をかけても揮散しないため、測定結果の確からしさが低い。
ICP-MS	1.5 ppm	酸を使った全分解溶液を導入できるが、感度が悪い。
ICP-OES	0.02 ppm	全分解溶液を導入できるが、ほとんど用いられていない。

表 4.3-1. 重要核種の TF データ数一覧 (IAEA-TRS-472 より)

元素	穀類	米	葉菜類	芋類
塩素	7	0	6	0
プルトニウム	105(砂:76)	0	13	87(砂:72)
アメリシウム	83(砂:66)	0	10	78(砂:65)
ネプツニウム	85(砂:79)	0	5	57(砂:56)
トリウム	36	57	24	24
セシウム	470(砂156)	466	290	138(砂:69)

表 4.3-2. 海外の Pu 土壌-米間の移行係数 (TF) データ

Place	<sup>239+240</sup> Pu in rice (mBq/g, dry)	TF	文献
World	No data	No data	IAEA-TRS-472
France	$(1.0-3.1) \times 10^{-4}$	$(1.4 \pm 0.7) \times 10^{-3}$	Duffa et al., 2002
China	$(1.58-4.82) \times 10^{-4}$		Han et al., 1993
China	$(5.6-7.9) \times 10^{-4}$	$2.0 \times 10^{-3}$	Zhang et al., 1989
China	$(5.9 \pm 0.7) \times 10^{-4}$		馬ら、1987
USA	$(1.63-3.15) \times 10^{-2}$	$(7.9-15) \times 10^{-3}$	Adriano et al., 1981

表 4.3-3. 海外の塩素 TF データ

Group	Tecdoc-1616		本報告, <sup>36</sup> Cl		本報告, 安定 Cl	
	N*	幾何平均値	N	幾何平均値	N	幾何平均値
Cereals, grain	7	36 (20-86)	8	36 (21-75)	14	17 (4.3-66)
Leafy vegetables, leaves	6	26 (14-48)	10	19 (6-60)	15	20 (7.4-71)
Leguminous vegetables, seeds & pod	7	11 (7-15)	12	4.7 (1.8-12.6)	4	6.3 (5.2-7.4)
Fruit vegetables	-	-	-	-	8	16 (6.6-120)
Root crops, roots	14	12 (4.8-36)	20	10.5 (5.4-38)	19	43 (4.9-126)
Tubers, tuber	-	-	4	33 (28-36)	5	42 (10-95)
Cereals, stems & shoots	7	340 (210-620)	8	237 (109-510)	14	122 (6.1-255)
Fodder, grass	-	-	7	85 (45-115)	4	265 (211-367)
Fodder, leguminous	-	-	4	142 (100-287)	13	53 (4.4-210)

\*N: データ数

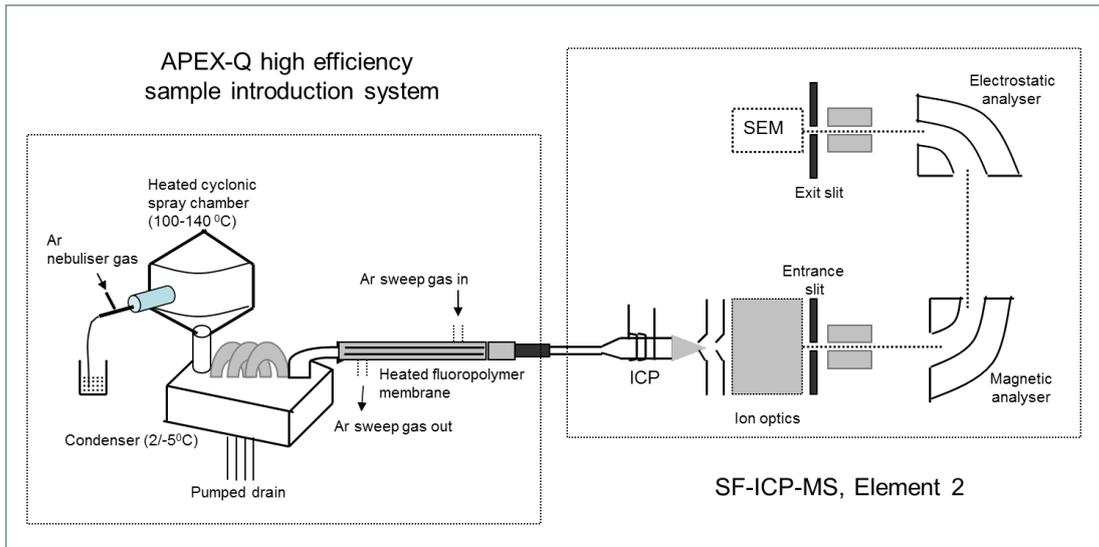


図 4.2-1. 高導入効率システムを用いた SF-ICP-MS (Element 2) の概略図

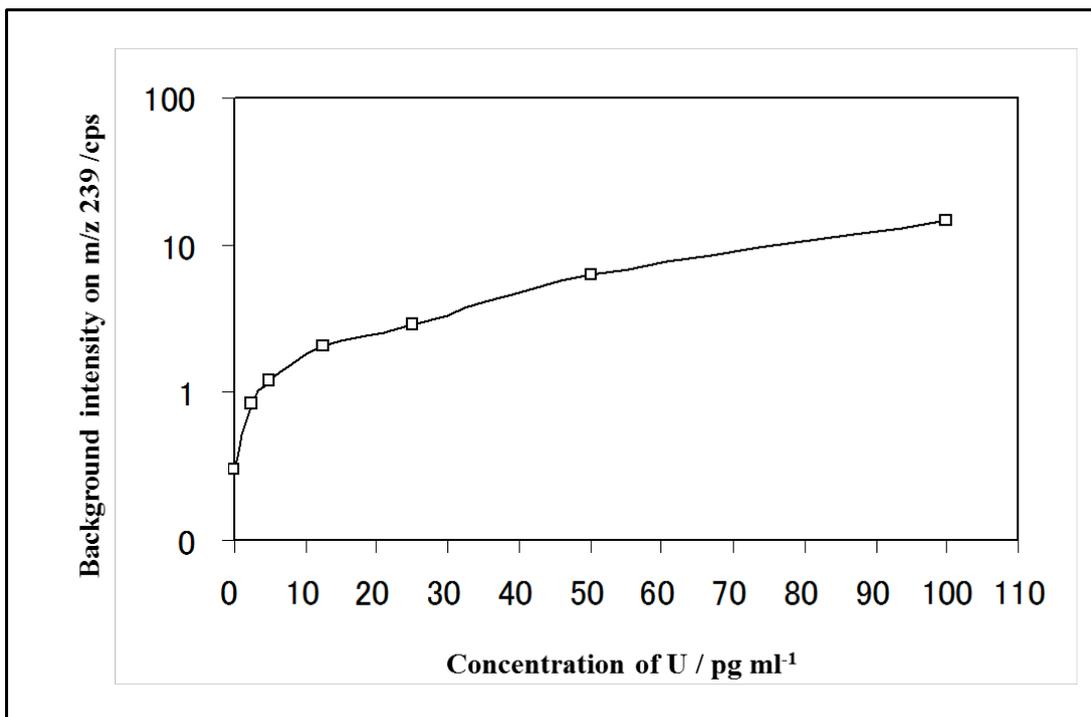
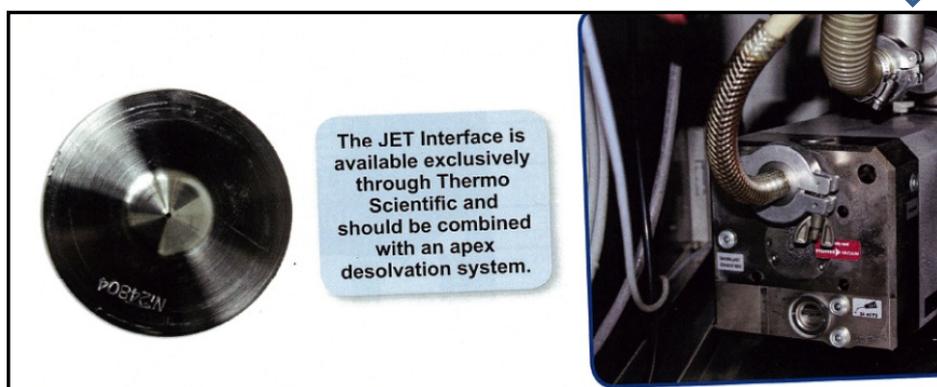


図 4.2-2. SF-ICP-MS (Element 2)と APEX-Q 試料導入システムによる質量数 (m/z) 239 におけるバックグラウンド・シグナルとウラン濃度の関係

---

**ジェットインターフェイス構成**  
大型ドライポンプ  
インターフェイスコーン  
・ジェットサンプルコーン  
・Xスキマーコーン



---

図 4.2-3. ジェットインターフェイス構成

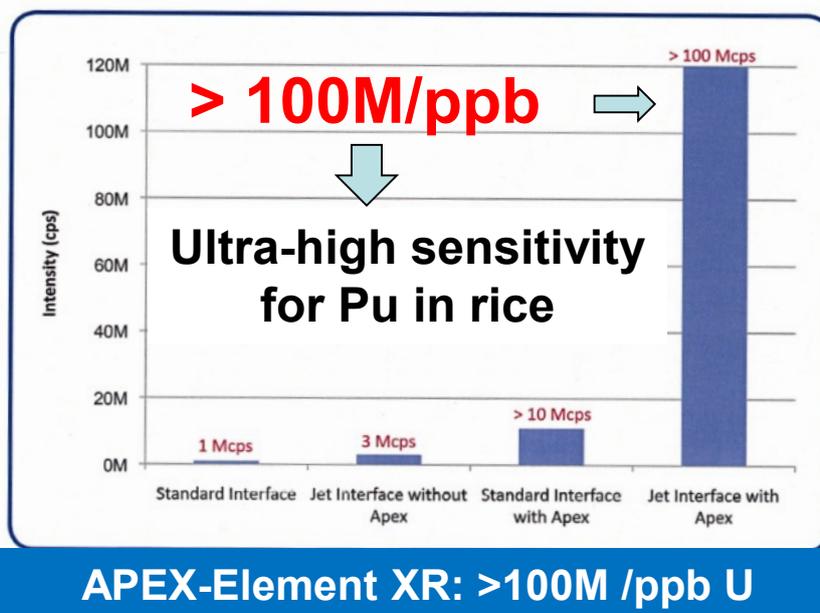
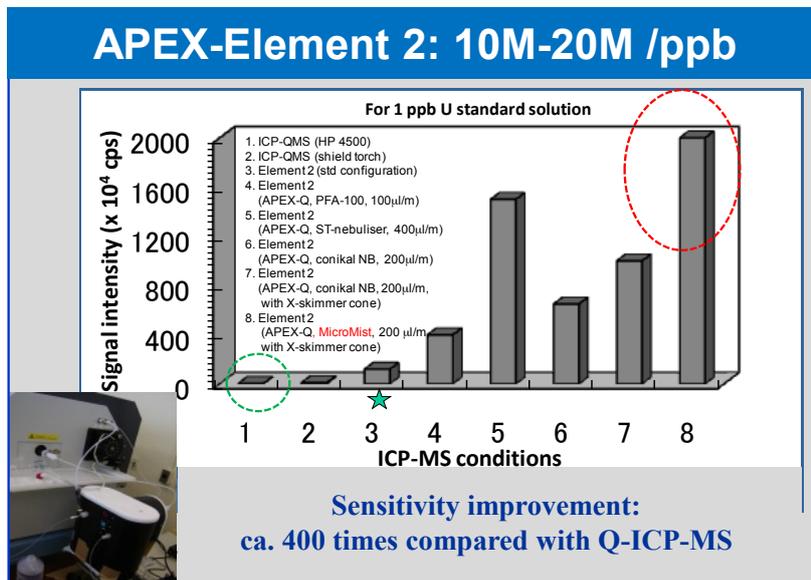


図 4.2.4. ウラン溶液（1 ppb）を用いた感度の比較：Element 2 vs. Element XR  
(脱溶媒試料導入装置 APEX-Q 使用の場合)。

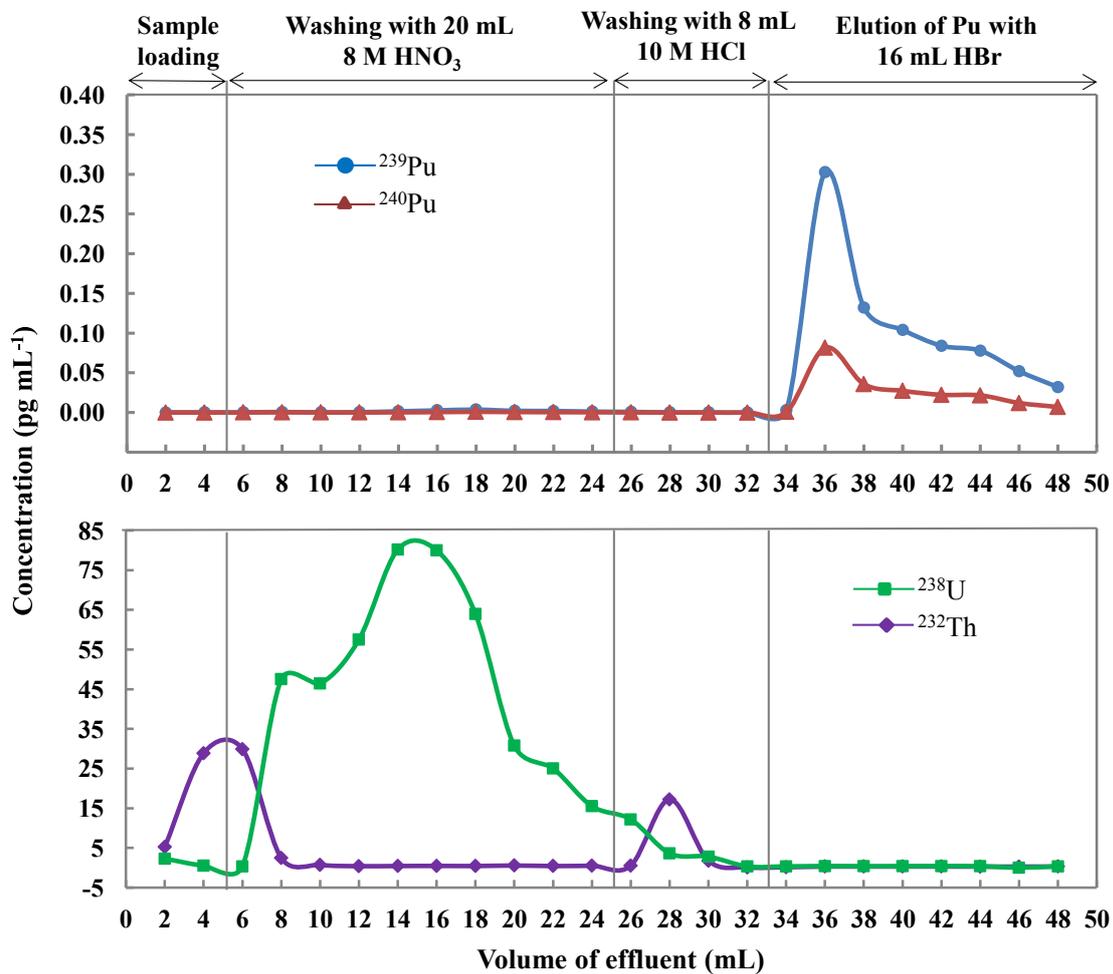


図4.2-5. AG MP-1M (100-200 メッシュ) 樹脂カラムにおける Pu, U および Th の吸着・溶離挙動.  
(試料 = 1.5 g NIST-4357 海底土標準物質)

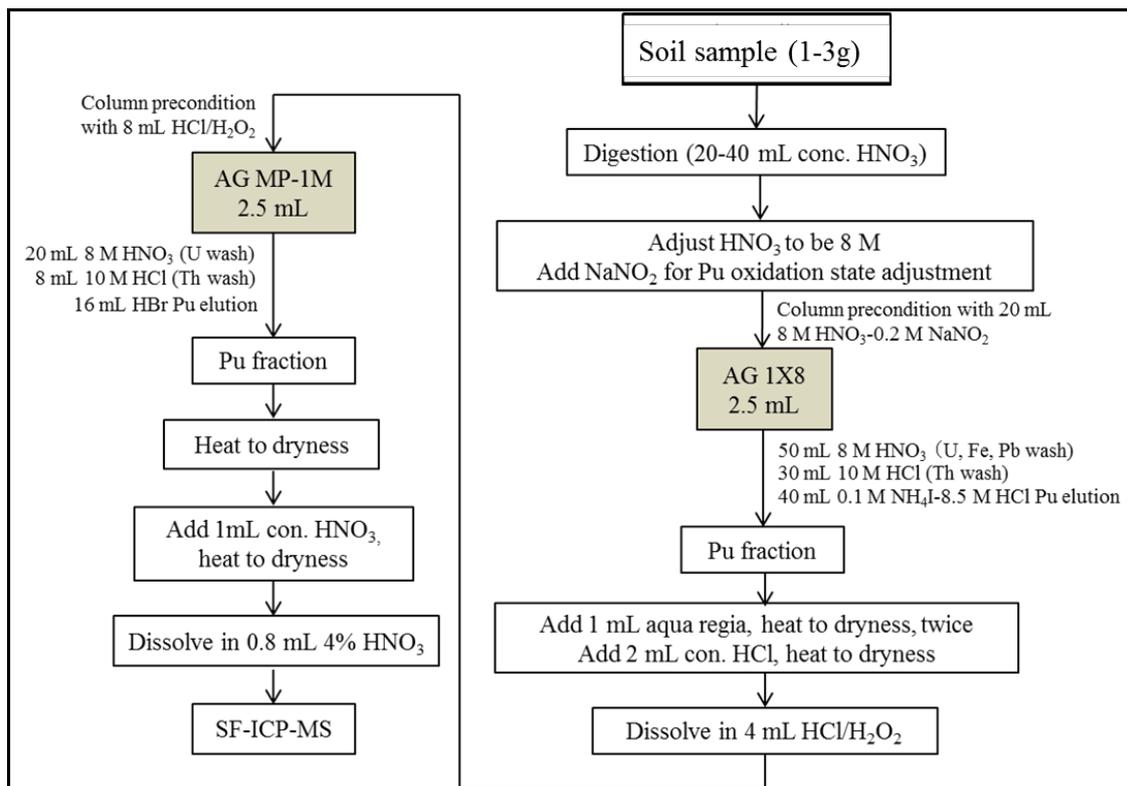


図 4.2-6. SF-ICP-MS による定量のための陰イオン交換樹脂によるクロマト分離を導入した  
土壌中のプルトニウム分析操作



図 4.2-7. 土壌中 Pu 定量のための主な分析操作の様子

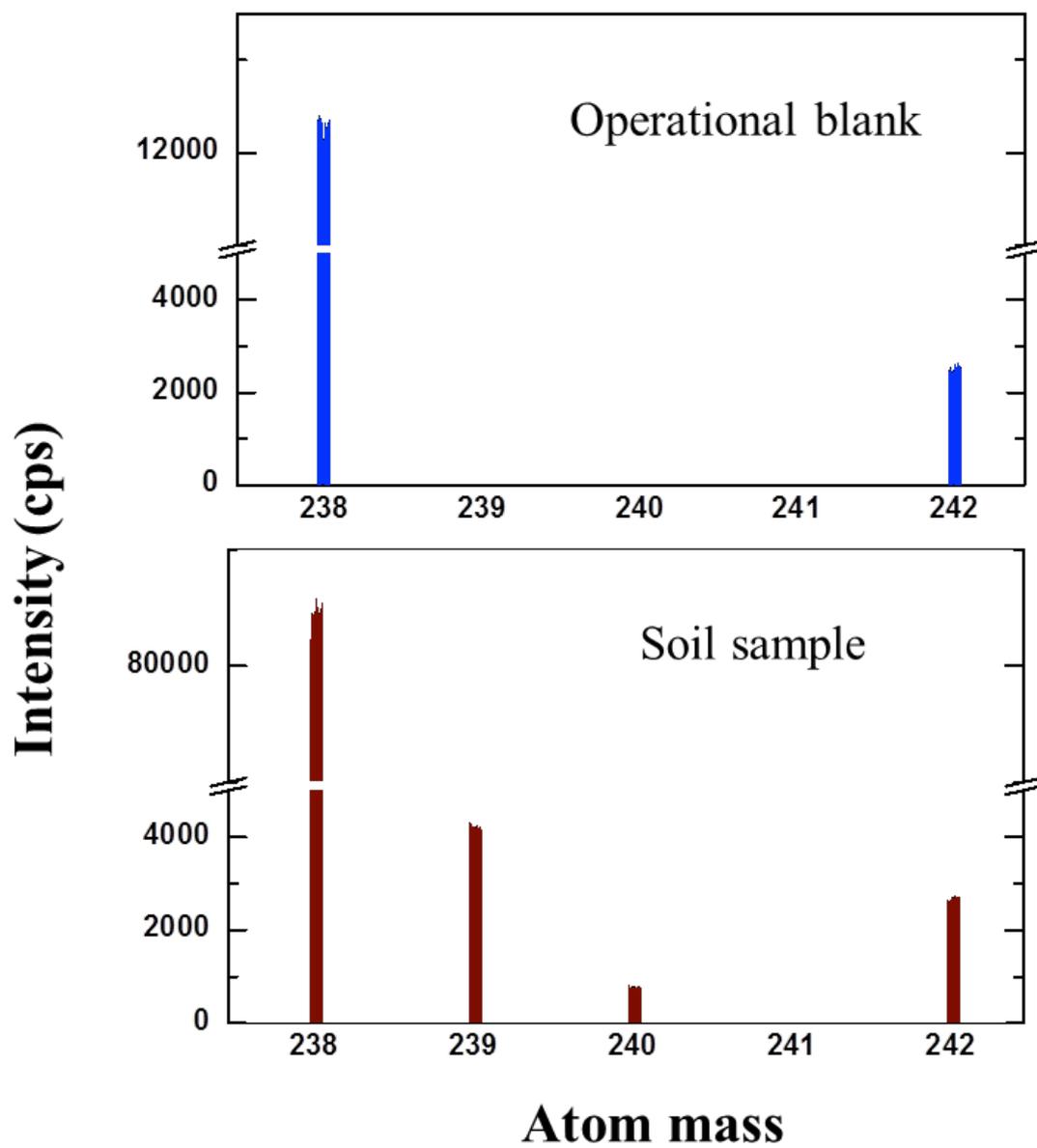


図 4.2-8. 典型的なブランク試料と土壌試料の質量スペクトル

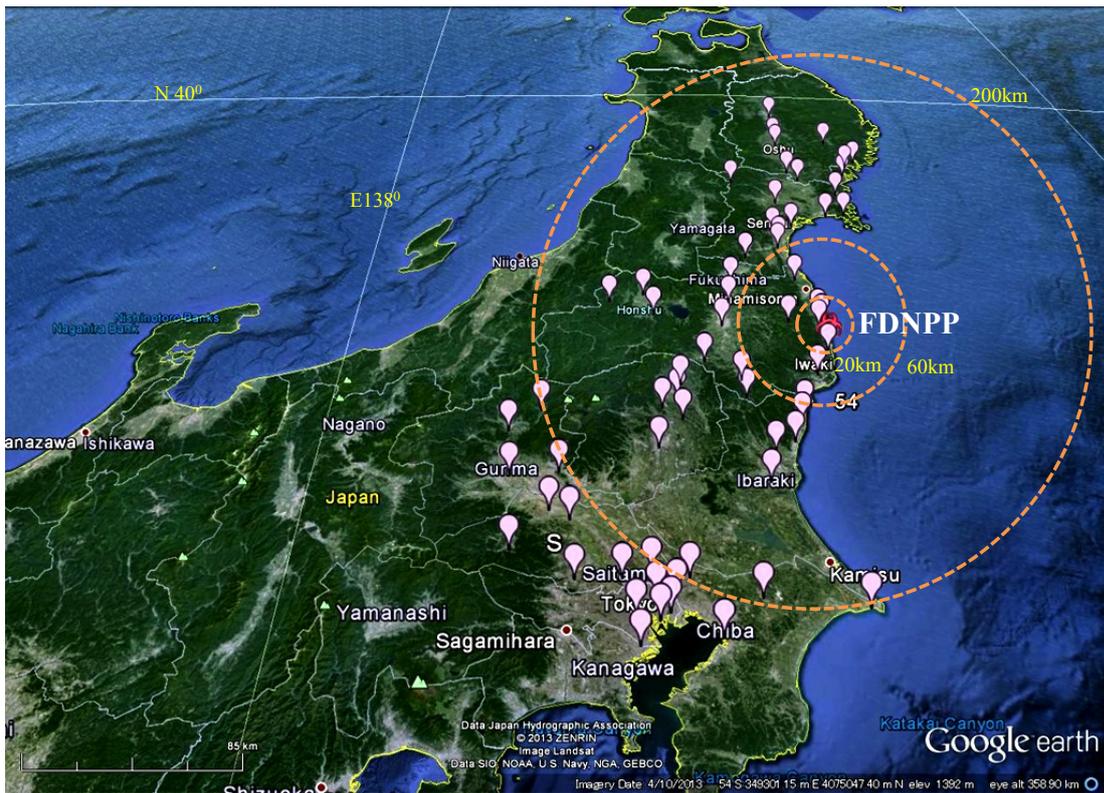


図 4.2-9. 放医研により 1969-1977 年に採取された校庭土壌試料の採取地図

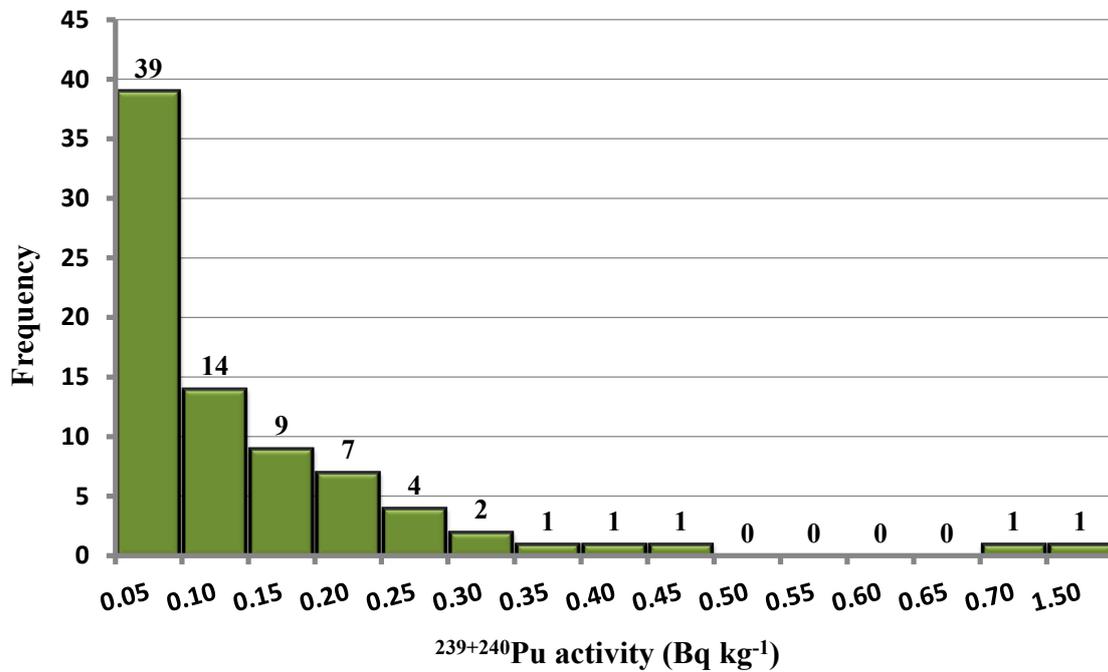


図 4.2-10. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料 (校庭、民家、公園) 中の  $^{239+240}\text{Pu}$  放射能濃度の度数分布

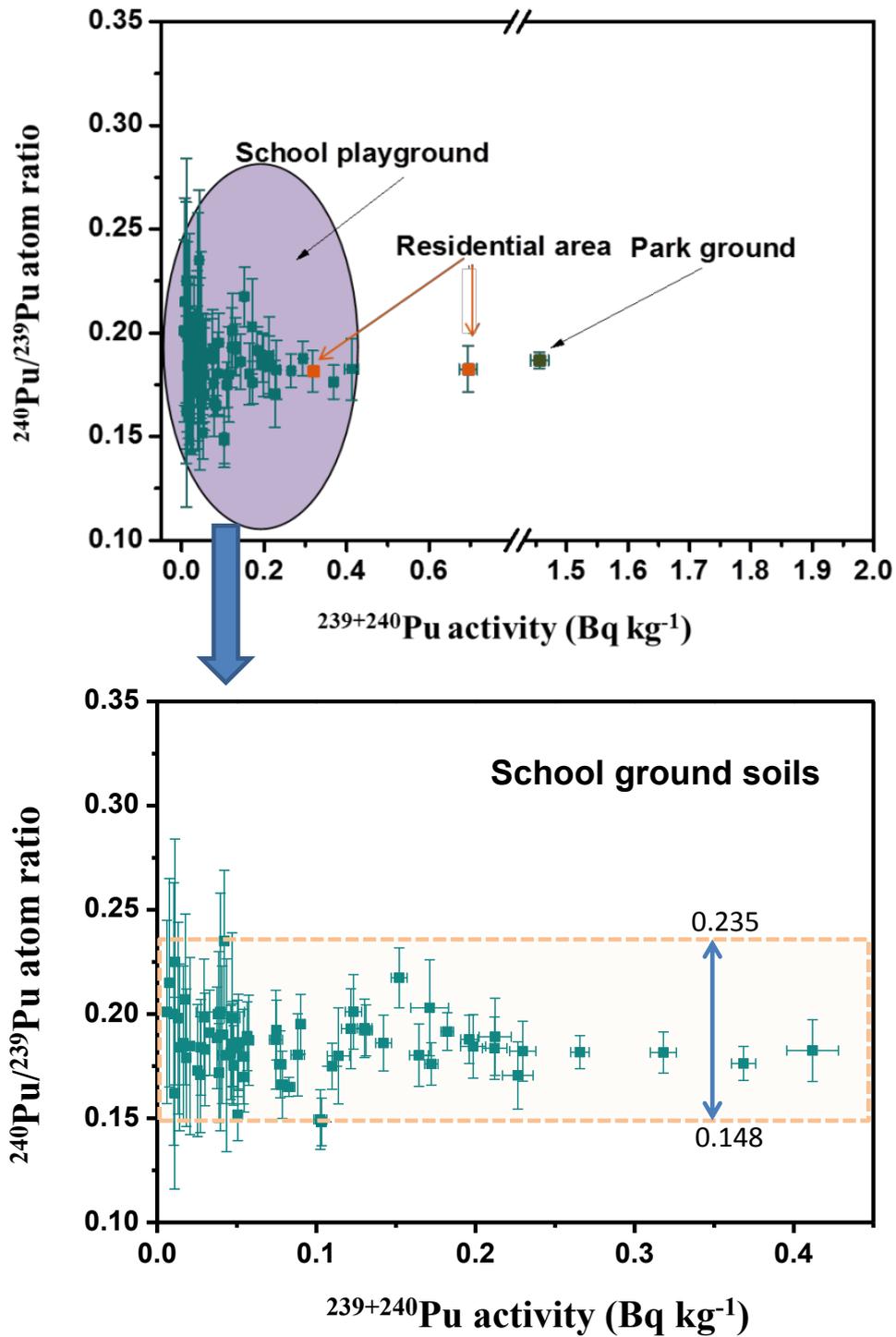


図 4.2-11. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料中の  $^{239+240}\text{Pu}$  放射能濃度と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比

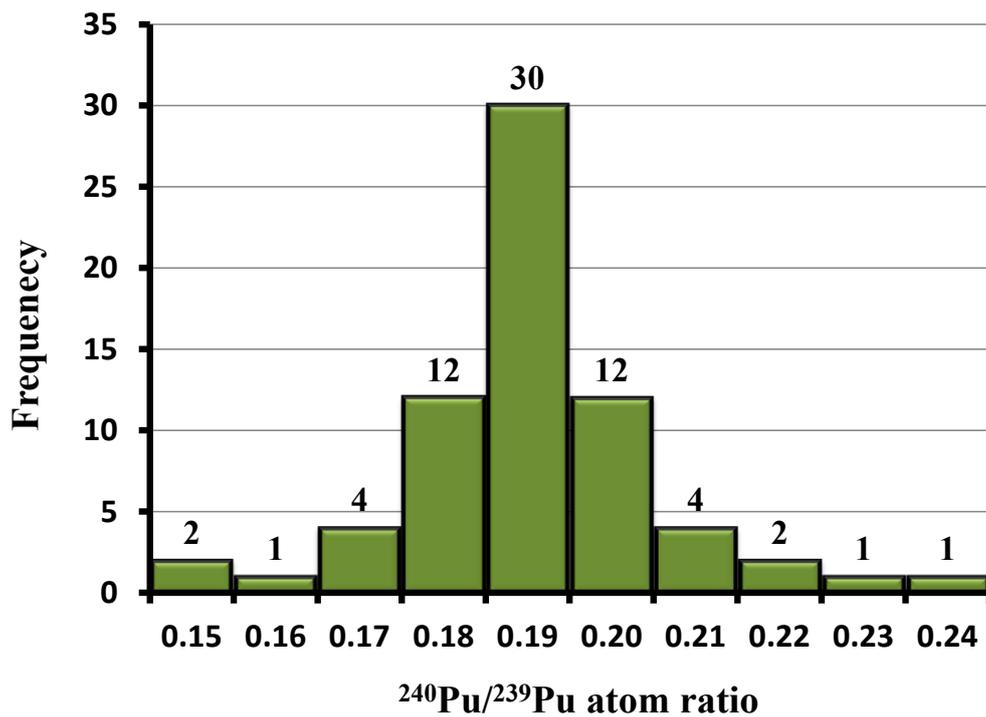


図 4.2-12. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比の度数分布

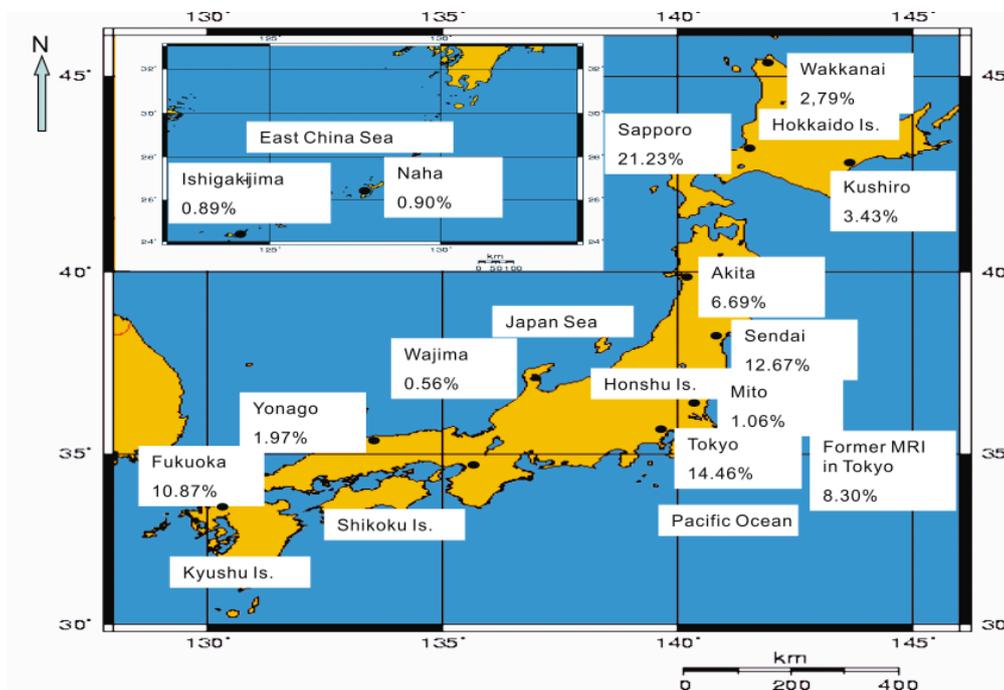


図 4.2-13. 降水物標準物質 (Otsuji-Hatori ら, 1996) に用いられた月間降水物およびその採取地点.

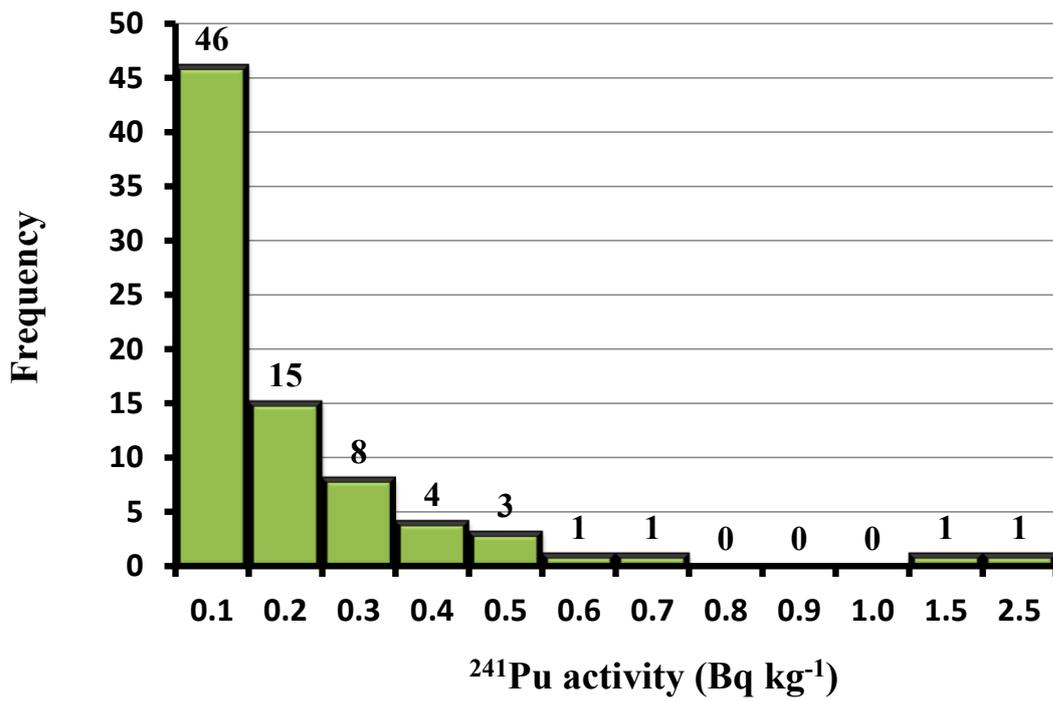


図 4.2-14. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料中の  $^{241}\text{Pu}$  放射能濃度の度数分布

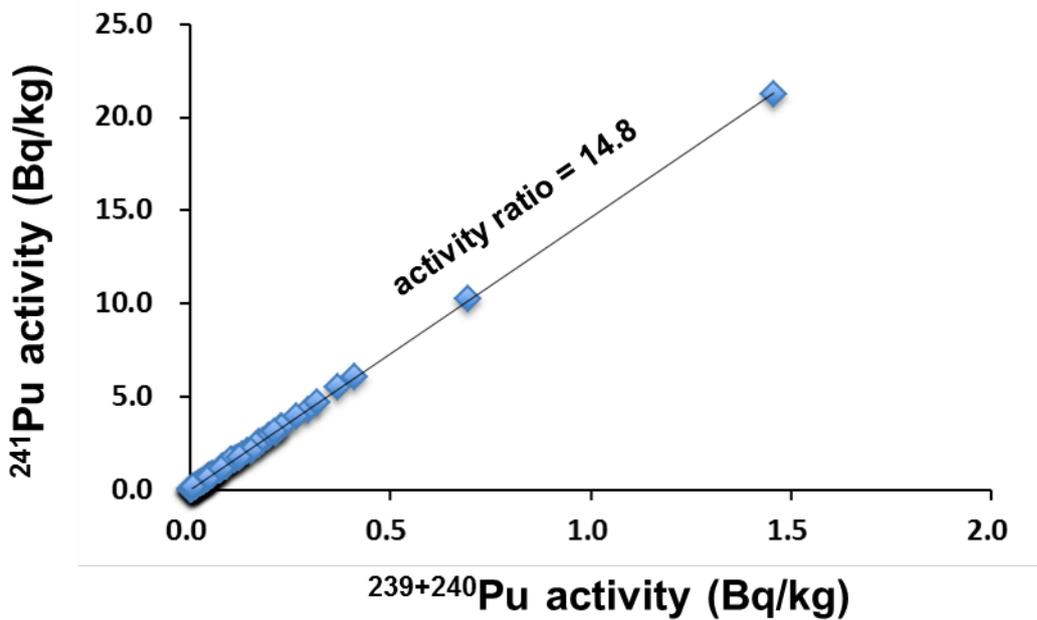


図 4.2-15. 1969-1977 年に東日本で採取した土壌試料における  $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  放射能濃度比

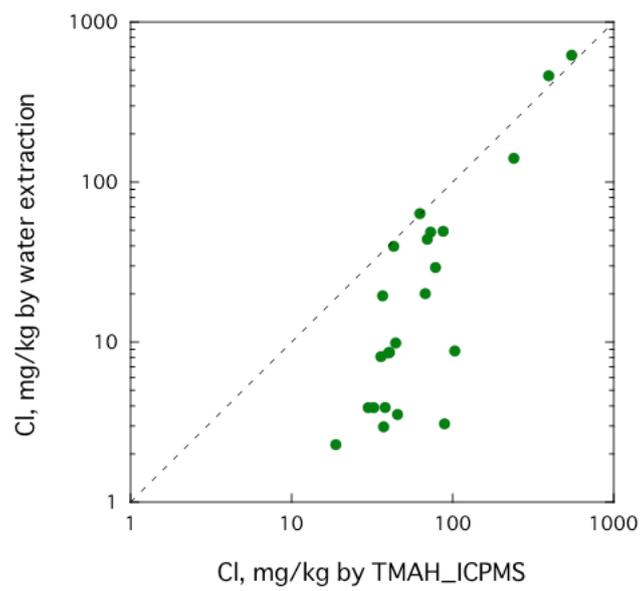


図 4.2-16. TMAH 抽出-ICP-MS 測定と水抽出-IC 測定による塩素定量結果の比較

## 第5章 まとめ

### 5. 1. はじめに

原子力発電によるエネルギー生産に伴って発生する放射性廃棄物の管理、処理および処分対策は重要な課題である。放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価では、地下の処分場から放射性核種が地下水により移動し、最終的に人間の生活環境を含む生物圏に到達する事が予想される。したがって、その生物圏における核種移行プロセスとこれによる被ばく経路についてモデル化を行い人間への影響を評価することが必要である。長期の安全評価を行うためには、生物圏モデルに使用するデータベースも気候変動等を考慮したものを構築することが必要である。また、C-14等の環境移行に関し、微生物の役割は重要であるが、その影響は温度や栄養分など様々な環境要因に左右される。安全評価においては、その影響を統一的に評価する事が必要である。さらに、Pu, Am, Th及び塩素(CI)は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価として、データが少なくかつ重要核種である。しかし、その重要核種の測定は極めて高度の分析技術が要求され、核種移行モデルに使用される環境移行パラメータは十分蓄積されていない。

本調査では、

- (1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築
- (2) 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査
- (3) 重要核種 (Pu, Am, Th および CI) の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

の3つの課題について調査・研究を行い、我が国の環境移行パラメータのデータベースの高度化を行ってきた。さらに、東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性核種の様々なデータも収集した。

本年度における各課題における本年度の成果についてその概要を以下にまとめる。

### 5. 2. 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および Kd) データベースの構築

本研究は、生物圏移行パラメータに及ぼす気温等の影響評価を行うと共に、その変動を考慮したデータベースの構築を目的としている。さらに、長半減期核種である  $^{135}\text{Cs}$  を考慮し、環境移行パラメータに反映させるために、東電福島第一原発の事故により環境中に放出された放射性 Cs のデータを収集し、移行パラメータを導出した。

土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査については、文献調査と実測を行った。文献調査の結果、元素によっては、気温が変動することで TF が変動することがわかった。Cs については、気温が低い地域の方が TF は上昇することが、国際的なデータベ

ースと国内の玄米の TF データから明らかになった。一方、Cu や Sr のように、温暖化により植物の蒸散量が増えるため、その結果として経根吸収量が増える、すなわち植物中の元素濃度が増えると予測される元素もある。今後は元素毎の影響の程度についても検討する必要がある。本調査のような比較をするには、データの質がある程度揃っていることが重要なことから、実環境におけるデータも採取しながら、放射性核種の移行と気温の関係およびその要因について検討する必要がある。そこで、温暖地域の冬期に採取された葉菜類について主要元素の分析を行い、TF をこれまでのデータと比較した。その結果、ほとんどの元素で有意差が認められなかったものの、Ni は有意差がある結果となった。上述したように、土壌濃度にはほとんど差がないことから、栽培する季節や種類の影響があるかもしれない。詳細については、さらにデータを蓄積する必要がある。

土壌-土壌溶液間分配係数 (Kd) については、二種類のヨウ素の化学形 ( $\Gamma$  および  $\text{IO}_3^-$ ) で得た Kd と温度の影響について、77 項目の土壌特性との相関から要因を探索した。単相間により温度に関連する変化が見られた項目を抽出したところ、畑土壌を用いた場合、酸化還元に関連する元素の Mo および I (安定) が選択された。一方、水田土壌では Rb と Ba に対し、どちらの化学形でも  $4^\circ\text{C}$  よりも  $23^\circ\text{C}$  の方が相関は高くなった。今後はこのように温度依存が起こりうる重要核種に着目し、環境移行パラメータ変動要因の解析を進める必要がある。

放射性 Cs をトレーサーとした実環境中での定量測定を行うとともに、これまでに一般に公表されているデータを用いて環境安全評価モデルに用いられる環境移行パラメータへの変換とデータ蓄積、具体的には、樹木等からの実効半減期と野生動物等への濃縮係数を求めた。果樹等の実効半減期については、ほとんどの種類で 200-300 日程度であることがわかった。実効半減期を求めていく際に葉を測定対象とする場合には、サンプリング位置により濃度が異なる可能性が本研究によって明らかになったため、濃度が低い場合には注意が必要である。現在はまだ濃度減少が続いている過渡期であることから、平衡に達することを想定し、土壌-果実間 TF のデータ蓄積が行われることが望まれる。さらに、陸上野生動物や海水魚についても濃縮係数を導出し、既存のチェルノブイリ事故後に得られたデータとの比較を行ったが、樹木と同様に現在も濃度が変動している最中であるため、さらなる測定の継続が必要であることがわかった。

### 5. 3. 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

本事業は、微生物の代謝活性と  $^{14}\text{C}$  のガス化との関係を検討し、新たな環境移行パラメータを提案することを目的としている。本年度は、農耕地において  $^{14}\text{C}$  の重要な移行経路であるガス化を直接測定する方法の開発、土壌微生物の呼吸活性測定方法の開発、ガス化した  $^{14}\text{C}$  の農作物への移行評価モデルを構築に資する文献調査、および移行パラメータの妥当性を検討する感度解析を行った。

ガス化した<sup>14</sup>Cの直接測定では、<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>と<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>以外のガスに分別して測定する方法を検討した。<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>は光合成により農作物に取り込まれる可能性があるため、ヒトの被ばく線量にかかわる重要な化学形である。湛水水田土壌を用いたバッチ試験により開発した手法を確認した。その結果、<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>は初期<sup>14</sup>C添加濃度に対して43.8%で、<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>以外のガスは0.1%であった。このことから発生したガスの主な化学形態は<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>であることが分かった。しかし、本手法における<sup>14</sup>Cの回収率は87.3%であった。したがって、この手法はさらなる改良が必要である。さらに、日本全国より採取した農耕地土壌を用いて<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>および<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>以外のガスを定量し、その発生量と土壌酵素活性との関係について解析する必要がある。

土壌酵素活性の指標として、本年度は土壌微生物の呼吸活性に着目し、測定法の開発を行った。脱水素酵素反応による還元で生じるINTフォルマザンを分光光度計で測定することにより、土壌試料中の微生物呼吸活性を定量することが可能となった。この方法により土壌タイプと呼吸活性の関係について調査したが、有意な関係は認められなかった。今後、日本全国より採取した農耕地土壌の土壌呼吸活性を調査するとともに呼吸活性と<sup>14</sup>C含有ガス発生量との関係を明らかにする必要がある。そのためには、土壌呼吸活性を支配する要因、たとえば土壌微生物量や土壌微生物の群集構造などの基礎情報を取得する必要がある。

ガス化した<sup>14</sup>Cの農作物への移行をより高度に評価するモデルを構築するために行った文献調査では、特に炭酸ガス濃度と光合成活性の関係について必要な情報の収集に努めた。炭酸ガス濃度の上昇に伴い光合成活性が高くなり、収穫量が増加することが確認できた。一方で、炭酸ガス濃度の上昇による温度障害にも注意する必要があることが分かった。したがって、近傍大気（水稻群落内大気）と環境大気（水稻群落外大気）のガス交換は<sup>14</sup>Cの農作物への取り込みにおいて重要なパラメータとなる可能性があることが分かった。

文献調査から得られた水稻の光合成活性に対する気温とCO<sub>2</sub>濃度の影響に関する知見を基に、本事業において構築された水稻全体モデルの改良を行った。改良したモデルの妥当性を確認するために、気温とCO<sub>2</sub>濃度を変化させて解析を行い、モデル化が適切であることを検証した。近傍大気と環境大気のCO<sub>2</sub>交換半減期に着目した感度解析では、CO<sub>2</sub>濃度や気温よりもこの交換速度が水稻の<sup>14</sup>C含量および<sup>14</sup>C濃度に強く影響することが分かった。今後、微生物活動と近傍大気（群落内）<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>濃度との関係、そして近傍大気と環境大気（群落外）とのCO<sub>2</sub>交換の関係について精査し、モデルに組み込む必要がある。

#### 5. 4. 重要核種（Pu, Am, Th および Cl）の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

土壌中のPu同位体およびClを測定するための高精度分析法の開発に焦点を絞って調査・研究を進めた。Pu分析においては、2つのsector-field ICP-MS、すなわち、Element 2

と新しく導入した Element XR の分析精度を比較検討した。Element XR に新しく開発された Jet インターフェース (Jet-interface) を用いることにより、Element 2 と比較すれば感度が約 10 倍高くなる事が分かった。さらに、高効率試料導入システム(Aridus II)と一緒に用いることで、U および Pu は 1ppb 当たり 100M cps という高感度が得られた。

土壌中における高精度 Pu 同位体測定のために、陰イオン交換クロマトグラフの 2 段階分離法を開発した。この分析法により Pu 分析において妨害となる  $\text{UH}^+$  を取り除くことが出来る。開発した本分析法における U の除去係数は  $2 \times 10^6$  でありこれまでに報告されている方法よりも 1 桁以上大きかった。本年度は、日本の土壌のグローバルフォールアウト Pu のバックグラウンドデータを得るため、1970 年代に放射線医学総合研究所が採取した土壌に着目し、それら土壌試料中の  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  濃度測定に開発した分析法を適応した。本研究における  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の最高値は宮城県仙台市の公園で採取した土壌の 1.456 mBq/g であったが、学校校庭の土壌に着目してみると  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は非常に低く、0.004 から 0.412 mBq/g の範囲であった。福島県の大熊と双葉町の居住地区で採取した 2 つの土壌の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は、それぞれ 0.294 および 0.695 mBq/g であった。本研究で測定を行った 80 試料中、48.8% が 0.05 mBq/g 以下であり、77.5% が 0.15 mBq/g 以下であった。一方、農耕土および森林土で観測されたグローバルフォールアウトの  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は、0.15 から 4.31 mBq/g であった。本研究で得られた  $^{239+240}\text{Pu}$  は、農耕土や森林土の典型的なグローバルフォールアウトの値よりも約 1 桁低い事を示している。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比に関しては、分析を行った 80 の土壌試料の中で、30 試料の比は 0.18 - 0.19 であり、58 試料の比は 0.17 - 0.20 であった。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比の平均値と標準偏差は、 $0.186 \pm 0.015$  であり、それはグローバルフォールアウトの比と同じであった。すなわち、これら土壌試料の Pu の主なソースはグローバルフォールアウトであることを示唆している。

土壌中の Cl 分析において、2 つの方法、水抽出-イオンクロマト分析と TMAH 抽出-MS 分析、を評価した。得られた結果は、塩素濃度が 100 mg/kg 以上の試料については、2 つの分析法は良く一致していた。一方、塩素濃度が 100 mg/kg 以下の場合には、TMAH-ICP-MS 法で得られた値は水抽出-イオンクロマト分析で得られた値よりも高いものとなった。今後、最終的な高感度塩素分析法の確立を行うため、さらに調査が必要である。

また、定量分析の指標とするために、文献調査により土壌-農作物間移行係数 (TF) の収集を行った。Pu 同位体の TF に関して、アメリカの研究者は温室で米への移行実験を行い、TF として  $7.9 \times 10^{-3}$  から  $1.5 \times 10^{-2}$  という広い範囲の値を報告している。一方、実際のフィールド調査による研究では、TF として約  $2 \times 10^{-3}$  の値がフランスと中国で報告されている。

今年度は土壌中の Pu 高精度質量分析法を確立したが、今後、米中の超微量 Pu 高精度質量分析法を開発する必要がある。そうすれば、得られた分析法を用いて実環境試料中の濃度データを収集し、日本における米の TF を蓄積することが可能となる。

文献調査により、安定 Cl のデータを用いることで  $^{36}\text{Cl}$  の TF を推定できることが分かっ

た。したがって、今後は国内の文献データについて、安定 CI データを蓄積して TF を求め、国外データと比較するとともに、今後、土壌-作物を分析することによって得られる安定 CI のデータを追加して、塩素の TF を充実させていくことができると考えられる。



平成25年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発検討会委員

天野 光 : 財団法人 日本分析センター 技術参事(常勤)

石川 奈緒 : 岩手大学工学部 助教

颯田 尚哉 : 岩手大学農学部 教授

塚田 祥文 : 公益財団法人 環境科学技術研究所 主任研究員

高橋 知之 : 京都大学原子炉実験所 准教授

百島 則幸 : 九州大学アイソトープ総合センター 教授

平成25年度廃棄物技術開発研究チーム進捗状況報告会 開催日時

第1回：平成25年11月25日～26日

第2回：平成26年2月7日

## 謝 辞

本調査を遂行するにあたり, RI トレーサー実験, 試料前処理および試料調製, 元素分析, データ整理などの作業において, 東京ニュークリアサービス (株) の小磯 寛之氏, 角田 信夫氏, および河野 等氏の協力を得た。

ここに記して謝意を表す。

調査担当者：

放射線医学総合研究所

放射線防護研究センター

廃棄物技術開発研究チーム

内田 滋夫

田上 恵子

石井 伸昌

鄭 建

楊 国勝

岩田佳代子

芦田 能美

京相 祐子

水谷 浩子