

平成26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27年3月

独立行政法人

放射線医学総合研究所

平成 26 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.....	5
2. 1. はじめに	5
2. 2. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査	6
2.2.1. 気温と TF に関する文献調査とデータ解析.....	6
2.2.2. 解析対象データセットの抽出について	7
2.2.3. グローバルフォールアウト ^{137}Cs の土壌および農作物中濃度の経時変化	8
2.2.4. グローバルフォールアウト ^{90}Sr の土壌および農作物中濃度の経時変化	9
2.2.5. 気温と TF に関する文献調査およびデータ解析のまとめ	9
2.2.6. 根圏域温度と気温との関係 (2014 年 11-12 月)	10
引用文献	10
2. 3. 気温が相対的に低い地域と高い地域における土壌-農作物間移行係数 (TF) データの取得.....	11
2.3.1. 玄米およびジャガイモ土壌-植物間移行係数 (TF) データの取得.....	11
2.3.1.1. 採取場所の選択と採取方法.....	11
2.3.1.2. 土壌試料の前処理方法	12
2.3.1.3. 農作物試料の前処理方法	12
2.3.1.4. 土壌の物理化学的特性	12
2.3.1.5. 土壌中の安定元素の分析	15
2.3.1.6. 農作物中の安定元素の分析.....	16
2.3.1.7. その他の元素の定量.....	17
2.3.1.8. 分析結果および考察.....	18
2.3.2. 平成 25 年度に採取した葉菜類の TF データ追加	19
2.3.3. 気温が相対的に低い地域と高い地域における土壌-農作物間移行係数 (TF) データのまとめ	19
引用文献	19
2. 4. 環境移行パラメータ変動要因の解析	20
2.4.1. 炭素-14 の土壌中分配率について	20
2.4.2. 独立変数と炭素 14 の土壌固相分配率の相関	20
2.4.3. まとめ.....	21
引用文献	21
2. 5. 放射性セシウムの環境移行に関わる福島第一原発事故後のデータ	22

2.5.1. 植物中の放射性 Cs の減少率の経時変化	22
2.5.1.1. 材料および測定方法	22
2.5.1.2. 放射性 Cs の経時変化	22
2.5.2. 淡水魚への Cs 濃縮係数の導出について	23
2.5.2.1. 環境水—淡水魚の ^{137}Cs 平衡状態	23
2.5.2.2. ワカサギの濃縮係数と水中 ^{137}Cs 濃度推定	23
2.5.3. まとめ	24
引用文献	25
2. 6. おわりに	26
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	71
3. 1. はじめに	71
引用文献	72
3. 2. 微生物と環境移行パラメータの解析	72
3.2.1. 土壌呼吸活性の多試料同時分析法の開発	73
3.2.1.1. 湛水土壌試料の作成と INT 溶液の調整	73
3.2.1.2. INT 溶液添加後の培養時間	75
3.2.1.3. 抽出回数の検討	76
3.2.1.4. INT-フォルマザン抽出条件	77
3.2.1.5. INT-フォルマザンの吸光度スペクトラム	82
3.2.1.6. 抽出液の添加順序	82
3.2.1.7. 遠心分離による吸光度測定試料の作成	83
3.2.2. 全国各地から採取した水田土壌の呼吸活性	83
3.2.2.1. 実験材料と方法	83
3.2.2.2. 水田土壌における呼吸活性	84
3.2.3. 土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係	85
3.2.3.1. ^{14}C ガス化率を求める実験における実験材料と方法	85
3.2.3.2. $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムの ^{14}C ガス化率	86
3.2.3.3. 土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係	87
3.2.3.4. 連続測定における土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係	87
3.2.3.5. 酢酸キャリアの添加効果	89
3.2.4. ATP を指標とした土壌微生物量の測定方法	90
3.2.4.1. ATP の測定について	90
3.2.4.2. 発光の安定性	90
3.2.4.3. ATP 抽出試薬の検討	91
3.2.5. 全国各地から採取した水田土壌の微生物バイオマスと環境パラメータ との関係	92
3.2.5.1. 実験材料と方法	92
3.2.5.2. 土壌微生物バイオマスと環境パラメータとの関係	92
3.2.6. まとめ	94

引用文献	95
3. 3. 温度変化と微生物活動の関係についての調査	96
3.3.1. 土壌微生物による炭素循環と気候変動の関係	96
3.3.2. 温度変化に対する微生物の反応	97
3.3.3. 微生物反応の地域差	98
3.3.4. まとめ	99
引用文献	99
3. 4. 微生物活動を反映モデルの検討	100
3.4.1. 文献調査	100
3.4.1.1. 近傍大気移行半減期	100
3.4.1.2. 渦相関法について	101
3.4.1.3. 水田における CO ₂ フラックス	103
3.4.1.4. 土壌呼吸の温度感受性	104
3.4.1.5. 水田における CO ₂ 発生温度依存性	105
3.4.1.6. 土壌有機物の分子構造と分解速度との関係	106
3.4.2. 近傍大気と環境大気移行半減期の水稲全体モデルへの反映	107
3.4.2.1. 水稲の生長段階区分	107
3.4.2.2. 近傍大気と環境大気移行半減期の検討	108
3.4.2.3. 各生長区分の移行半減期	110
3.4.3. 土壌から近傍大気への移行半減期の水稲全体モデルへの反映	110
3.4.3.1. 土壌分解速度の温度依存性に関する知見	111
3.4.3.2. Q ₁₀ の水稲全体モデルへの反映	111
3.4.3.3. 土壌から近傍大気および灌漑水への移行半減期	113
3.4.4. 水稲全体モデルの改良	113
3.4.5. 水稲全体モデルによる検証解析	114
3.4.5.1. 基本解析	114
3.4.5.2. 感度解析	115
3.4.5.3. 収穫期における水稲内 ¹⁴ C 量及び解析結果のまとめ	118
3.4.6. まとめ	119
引用文献	119
3. 5. おわりに	120
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	159
4. 1. はじめに	159
4. 2. 重要核種 Pu の超高精度分析法開発	159
4.2.1. 高分解能質量分析装置 (Element XR) の性能調査	159
4.2.1.1 装置概要	159
4.2.1.2 試料導入システム (APEX-Q と Aridus II) の概要	160
4.2.1.3 Pu 分析の感度、精度及び検出限界	162

引用文献	163
4.2.2. 土壌試料中の Pu 分析における土壌灰化温度の影響	164
4.2.2.1 はじめに	164
4.2.2.2 土壌試料測定のための SF-ICP-MS 条件設定	164
4.2.2.3 測定試料	165
4.2.2.4 試薬	165
4.2.2.5 実験手順	165
4.2.2.6 結果と考察	167
引用文献	168
4.2.3. 米中 Pu 同位体の超高精度分析法開発	169
4.2.3.1 APEX-Q-Element XR システムについて	170
4.2.3.2. 測定試料	170
4.2.3.3. 試薬	170
4.2.3.4. 結果と考察	170
4.2.3.5. 分析法の確立	171
4.2.3.6. 土壌-米間移行係数 (TF) の取得	172
引用文献	173
4. 3. 重要核種 Th の超高精度分析法開発	173
4.3.1. はじめに	173
4.3.2. 試料の前処理	174
4.3.3. 結果と考察	175
引用文献	176
4. 4. 土壌中塩素の超高精度分析開発	177
4.4.1. はじめに	177
4.4.2. ICP-発光分光分析装置 (ICP-OES) による塩素分析条件について	177
4.4.3. 土壌試料の溶液化について	178
4.4.4. 土壌中の塩素分析のための分析条件の最適化のまとめ	179
4.4.5. 塩素の土壌の分析と TF データのためのデータベース化	179
引用文献	180
4. 5. 重要核種 Pu, Am, Th および Cl の土壌-農作物の環境移行パラメータ 文献調査	181
4.5.1. はじめに	181
4.5.2. データ収集および統計解析	182
4.5.3. IAEA TRS 472 との比較	182
引用文献	184
4. 6. まとめ	186
4.6.1 重要核種 Pu, Th および Cl の超高精度分析	186
4.6.1.1. Pu の超高精度分析	186
4.6.1.2. Th の超高精度分析	187
4.6.1.3. 塩素の超高精度分析	188

4.6.2 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集.....	188
第5章 まとめ.....	211
5.1. はじめに.....	211
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.....	211
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.....	213
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.....	214
放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会.....	217
平成26年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会開催日.....	220
謝辞.....	221

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	グローバルフォールアウト ^{137}Cs の土壌中環境半減期 (T_{env})	29
表 2.2-2	グローバルフォールアウト ^{137}Cs の農作物中環境半減期 (T_{env})	29
表 2.2-3	グローバルフォールアウト ^{137}Cs および ^{90}Sr の土壌と農作物間の 環境半減期 (T_{env}) の ANOVA テストの結果	30
表 2.2-4	グローバルフォールアウト ^{90}Sr の土壌中環境半減期 (T_{env})	30
表 2.2-5	グローバルフォールアウト ^{90}Sr の農作物中環境半減期 (T_{env})	31
表 2.3-1	採取地点、土壌・作物採取日一覧	32
表 2.3-2	採取土壌の分類および仮比重一覧	33
表 2.3-3	試料コード一覧 (到着順) について	34
表 2.3-4	土壌試料前処理状況	35
表 2.3-5	ジャガイモの廃棄率と可食部および非可食部の水分含量	36
表 2.3-6	玄米の水分含量と精米歩合	36
表 2.3-7	試料到着時の状態 (1) 玄米	37
表 2.3-7	試料到着時の状態 (2) ジャガイモ	39
表 2.3-8	H26 年度採取土壌試料の物理化学的特性および元素濃度	41
表 2.3-9	H26 年度採取農作物試料の元素濃度	43
表 2.3-10	H25 年度採取土壌試料の元素分析 (データ追加)	45
表 2.3-11	H25 年度採取農作物試料の元素分析 (データ追加)	49
表 2.3-12	H25 年度採取試料の土壌-農作物間移行係数 (乾物重ベース) の追加	53
表 2.4-1	炭素-14 の Kd と土壌に関する独立変数の相関	55
図 2.2-1.	グローバルフォールアウト ^{137}Cs の表層土壌中濃度の経時変化	57
図 2.2-2.	グローバルフォールアウト ^{137}Cs の農作物中濃度の経時変化	58
図 2.2-3.	グローバルフォールアウト ^{90}Sr の表層土壌中濃度の経時変化	59
図 2.2-4.	グローバルフォールアウト ^{90}Sr の農作物中濃度の経時変化 (寒冷地)	60
図 2.2-5	グローバルフォールアウト ^{90}Sr の農作物中濃度の経時変化 (温暖地)	61
図 2.2-6	2014 年 11 月から 12 月における大気温度と土壌中 (20 cm) 温度の 5 分間隔 計測の結果	62
図 2.2-7	2014 年 11 月から 12 月における大気温度と土壌中 (20 cm) 温度の 1 日平均 値の関係	62
図 2.3-1	精米作業状況	63
図 2.3-2	凍結乾燥時の水分含量率の経時変化	63
図 2.3-3	寒冷地 (n=15) および温暖地 (n=30) で採取された畑土壌の物理化学 成分の比較	64
図 2.3-4	平成 26 年度に採取した玄米およびジャガイモの移行係数 (幾何平均値) N は寒冷地、S は温暖地	64

図 2.3-5	ジャガイモと土壌の炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) の関係.....	65
図 2.4-1	酢酸態 ^{14}C の土壌固相と気相 (ガス化率) へ分配した割合の関係.....	65
図 2.4-2	炭素-14 の K_d と相関の高い独立変数 (K_d _Sb, pH, 活性 Al および水溶性 P) のプロット.....	66
図 2.5-1	東電福島第一原発事故以降に観察された植物中の ^{137}Cs 濃度の経時変化.....	67
図 2.5-2	阿武隈川水系で採取されたイワナとアユ可食部中の ^{137}Cs 濃度の経時変化.....	68
図 2.5-3	3つの湖沼において採取されたワカサギ中の ^{137}Cs 濃度の経時変化と 2つの指数関数によるフィッティング結果.....	68
図 2.5-4	河川および湖沼水中 ^{137}Cs 濃度 (mBq/L) の経時変化.....	68
図 2.5-5	霞ヶ浦の湖水、堆積物およびワカサギ中の ^{137}Cs 濃度の経時変化.....	68
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 3-1	INT 試薬溶解に必要な DMF 量の検討のための試料.....	123
表 3-2	INT 溶液添加後の培養時間と抽出液の吸光度の関係.....	123
表 3-3	DMF によるプラスチックの溶解試験.....	123
表 3-4	波長 480 nm における吸光度の比較.....	123
表 3-5	抽出液添加量と吸光度の関係.....	123
表 3-6	遠心分離およびフィルターろ過で作成した測定試料の吸光度.....	124
表 3-7	全国より採取した水田土壌の分類と炭素および窒素含量 (その1).....	124
表 3-7	全国より採取した水田土壌の分類と炭素および窒素含量 (その2).....	125
表 3-8	日本各地の水田土壌における培養7日目の土壌呼吸活性 (その1).....	125
表 3-8	日本各地の水田土壌における培養7日目の土壌呼吸活性 (その2).....	126
表 3-9	水田土壌の培養7日目における土壌呼吸活性の基本統計量.....	126
表 3-10	日本各地の水田土壌における培養7日目の $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度と ^{14}C ガス 化率.....	127
表 3-11	水田土壌の培養7日目における ^{14}C ガス化率の基本統計量.....	128
表 3-12	ATP 希釈標準試料の発光量経時変化.....	128
表 3-13	日本各地の水田土壌における培養7日目の ATP 量.....	129
表 3-14	水田土壌の培養7日目における微生物量の基本統計量.....	130
表 3-15	大阪以北の主要都市における 1971 年から 2000 年までの月平均気温.....	130
表 3-16	月平均気温から算出した月別の土壌分解速度と分解半減期.....	130
表 3-17	水稲生育期間と生育期間外の平均分解速度と分解半減期.....	131
表 3-18	感度解析ケースのパラメーター一覧.....	131
図 3-1	INT 試薬の溶解試験結果.....	133
図 3-2	INT-フォルマザン抽出回数と抽出液の吸光度との関係.....	133
図 3-3	INT 溶液添加濃度と抽出液の吸光度との関係.....	134
図 3-4	3種類の抽出溶液による INT-フォルマザン抽出効果の比較.....	134
図 3-5	抽出時間と吸光度の関係.....	134

図 3-6	DMF によるポリスチレンの溶解.....	136
図 3-7	15% DMF in エタノールで溶解した INT-フォルマザンの吸光度スペクトラム ...	135
図 3-8	抽出効率に対する抽出方法の効果	135
図 3-9	INT-フォルマザン濃度と吸光度の関係 (n = 11)	136
図 3-10	C/N 比と土壤呼吸活性の関係 (n = 3)	136
図 3-11	発生した $^{14}\text{CO}_2$ の回収方法	136
図 3-12	^{14}C ガス化率と積算 ^{14}C ガス化率の関係	137
図 3-13	土壤呼吸と ^{14}C ガス化率との関係	137
図 3-14	10 日間の土壤呼吸活性と ^{14}C ガス化率	137
図 3-15	10 日間連続培養における土壤呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係	138
図 3-16	土壤有機物に含まれる炭素の流れの考え方	138
図 3-17	7 日間の土壤呼吸活性と ^{14}C ガス化率	138
図 3-18	酢酸を添加した試料の土壤呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係	139
図 3-19	ルシフェリン・ルシフェラーゼ反応による発光の安定性	139
図 3-20	DMSO と DMF による ATP 抽出効率の比較.....	139
図 3-21	土壤微生物バイオマスと ^{14}C ガス化率, 土壤-土壤溶液分配係数, C/N 比, および土壤呼吸活性との関係	140
図 3-22	土壤微生物による炭素循環と気候変動の関係	141
図 3-23	土壤有機炭素および Q_{10} に対する気候の影響.....	141
図 3-24	土壤有機物量と年平均気温の関係	142
図 3-25	葉面積指数 (LAI) と乾燥重量の変化.....	142
図 3-26	出穂期までの葉面積指数 (LAI) と乾燥重量との関係	143
図 3-27	仮想水稻群落.....	143
図 3-28	精緻化した水稻全体モデル.....	144
図 3-29	基本解析における環境コンパートメント間の移行量変化	145
図 3-30	基本解析におけるコンパートメント内の ^{14}C 存在量	146
図 3-31	感度解析 No. 1 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	147
図 3-32	感度解析 No. 2 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	148
図 3-33	感度解析 No. 3 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	149
図 3-34	感度解析 No. 4 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	150
図 3-35	感度解析 No. 5 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	151
図 3-36	感度解析 No. 6 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	152
図 3-37	感度解析 No. 7 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	153
図 3-38	感度解析 No. 8 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	154
図 3-39	感度解析 No. 9 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	155
図 3-40	感度解析 No. 10 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内の ^{14}C 存在量	156
図 3-41	各解析ケースの水稻収穫時における水稻内の ^{14}C 存在量.....	157

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 XR) と APEX-Q および Aridus II システムにおける測定条件.....	189
表 4.2-2	Aridus II/SF-ICP-MS による 1 回測定 (run × pass : 20 × 4) における超微量 Pu 同位体の測定精度と確度.....	190
表 4.2-3	土壌試料中 Pu 同位体の濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比.....	190
表 4.2-4	Pu の土壌-米間 TF のデータ.....	190
表 4.4-1	標準物質中の塩素濃度の ICP-OES による定量分析.....	191
表 4.4-2	土壌および岩石中の塩素濃度.....	191
表 4.5-1	2008-2014 に発表された文献による Th の土壌-植物間移行係数.....	192
表 4.5-2	2008-2014 に発表された文献による Am の土壌-植物間移行係数.....	192
表 4.5.3	2008-2014 に発表された文献による Pu の土壌-植物間移行係数.....	193
表 4.5.4	2008-2014 に発表された文献による Cl の土壌-植物間移行係数.....	193
図 4.2-1	SF-ICP-MS (Element XR) による分解能と感度.....	195
図 4.2-2	高効率試料導入システム (APEX-Q) と結合した SF-ICP-MS (Element XR) の概略図.....	196
図 4.2-3	高効率試料導入システム (Aridus II) と結合した SF-ICP-MS (Element XR) の概略図.....	196
図 4.2-4	高効率試料導入システム (APEX-Q と Aridus II) を結合した SF-ICP-MS による 4%硝酸を用いたバックグラウンド・カウント.....	197
図 4.2-5	3 種類の試料導入系による Element XR の NBS 947 測定スペクトル.....	198
図 4.2-6	APEX-Q/SF-ICP-MS (Element XR)を用いた NBS-947 (11 ppq ^{239}Pu と 2.7 ppq ^{240}Pu) の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比測定における長期安定性 (April – December 2014).....	199
図 4.2-7	土壌試料のマスマスペクトルの例.....	199
図 4.2-8	土壌試料中 Pu の定量のための HNO_3 -HF 抽出分離法.....	200
図 4.2-9	土壌試料中 Pu の定量のための HNO_3 -HF- HClO_4 全分解法.....	201
図 4.2-10	灰化温度を変化させたときの硝酸抽出法による IAEA-Soil-6 中 Pu 定量結果.....	202
図 4.2-11	IAEA-Soil-6 を無処理、400°C 処理、600°C 処理したときの X 線回折スペクトル.....	202
図 4.2-12	IAEA-soil-6 を 600°C で処理したときに発見された未知ピークの定性 (Mikai ら, 2014 との比較) との比較.....	203
図 4.2-13	3 種類の方法によって抽出または分解した 550°C 灰化 IAEA-soil-6 の Pu 濃度定量結果の比較.....	204
図 4.2-14	玄米供し試料量と Pu 回収率の関係.....	205
図 4.2-15	湿式および乾式分解による玄米灰中の黒色炭化物質の除去.....	144
図 4.2-16	灰化米中の Pu 定量分析のための化学分析法開発.....	206
図 4.3-1	四重極型 ICP-MS と SF-ICP-MS による植物試料中 Th 定量結果の比較 四重極型 ICP-MS では希釈倍率 1000 倍、SF-ICP-MS では 5000 倍で測定.....	207
図 4.3-2	SF-ICP-MS による極低濃度の Th 濃度の植物試料の定量.....	207
図 4.4-1	塩素の感度と RF パワーの関係 (5 秒測定).....	208

図 4.4-2	塩素の感度と測定時間の関係	208
図 4.4-3	塩素の検量線.....	208
図 4.4-4	森林と農耕地土壌中の塩素濃度	208
図 4.5-1	2008-2014 に発表された文献による Th の土壌-植物間移行係数データと TRS-472 データの比較.....	209
図 4.5-2	2008-2014 に発表された文献による Am の土壌-植物間移行係数 データと TRS-472 データの比較.....	210
図 4.5-3	2008-2014 に発表された文献による Pu の土壌-植物間移行係数データと TRS-472 データの比較	210

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は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(Cl)は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価において重要な核種である。しかし、その測定は極めて高度な分析技術が要求されることから、核種移行モデルに使用でき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 Cl 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お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26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 気温が相対的に低い地域と高い地域から、コメそれぞれ5地点、ジャガイモそれぞれ5地点、計20地点より土壌とともにサンプリングを行う。

ウ 上記試料は前処理の後、土壌及び植物試料の元素分析(20元素程度)を行う。

エ TFを導出し、データベースに追加する。平成25年度に採取した試料についても、希土類元素等の定量分析を行い、データベースに追加する。

- ② 変動要因の解析

炭素-14の土壌中分配率に対して統計的手法を用いて相関の高い物理化学項目を抽出し、比較する。

(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26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 全国各地より採取した水田土壌における土壌呼吸量を測定する。

イ 土壌呼吸量と低分子有機態 C-14 のガス化率との関係について調査する。

ウ アデノシン三リン酸 (ATP) を指標とした土壌微生物量の測定法を開発する。

② 温度変化と微生物活動の関係についての調査

ア 温度変化に対する微生物活動の変化について文献調査を行う。

③ 微生物活動を反映したモデルの構築 (統括的指標の検討)

ア 統括的指標のための文献調査を開始する。

イ 統括的指標をモデルに導入するための検討を行う。

(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26年度は、以下の調査・研究を行った。

① 超高精度分析法開発

平成25年度に引き続き、超高精度分析法の開発を行う。

ア Pu と Th については高分解能 ICP-MS を用い、農作物中の実用的な超高精度質量分析法の開発を行う。

イ Cl については ICP-発光分光装置を用い、土壌中の塩素分析のための分析条件の最適化を行う。

② 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

ア Pu と Th の農作物の分析を行い、TF データを蓄積する。

イ Cl の土壌の分析を行い、TF データのためにデータベース化する。

ウ 文献調査を進めるとともに、平成25年度に収集した TF データベースに、本調査で求められたデータを追加する。

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一定の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)。また、近年では IAEA (国際原子力機関) 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 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) が検討されている。直近の IAEA ミーティングでは、評価対象となる地形の変遷に気候に係るシナリオを考慮し、地形に関連する移行モデリングで重要な核種を選定し、系統だった解析を行うストーリーを展開している。気候に関連して土壌温度の変化と季節変動データを蓄積するとしており、これと主要な植物被覆と水の蒸散の経時変化に関連づける作業を行う予定である (IAEA, 2015)。またスウェーデン核燃料・廃棄物管理会社 (SKB) では短寿命の操業放射性廃棄物用の国内処分場 (SFR) の長期安全性の評価に係るテクニカルレポート (TR-14-01: SKB, 2014) を最近報告しており、気候を考慮した評価を行っている。

欧米の食生活は我が国と異なり、家畜の肉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。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引き続き行ったが、特に我が国の比較的温暖な地域と寒冷な地域におけるデータに着目した。文献調査に加え、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。平成 25 年度に採取した土壌-葉菜類の 20 セットについては、アクチノイド元素のアナログとして希土類元素等の微量元素濃度を追加し、比較的温暖な地域と、これまで行われた全国調査での移行係数の比較を試みた。さらには、主食として重要である米と温暖～寒冷地域で生産が可能なジャガイモに着目し、今年度からデータの蓄積を行っており、元素濃度を含む 20 項目程度の分析結果を得た。また、炭素-14 (C-14) については、酢酸態で土壌に添加した場合の土壌固相への分配率とこれまでに収集している約 80 項目の土壌特性との相関から要因を探索した。

なお、長半減期核種である ^{135}Cs (2.3×10^6 y) は長期環境影響評価に重要核種であることから、この環境移行パラメータに反映させるために、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適用についての

可能性と問題点について検討を行った。

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、安定元素を用いる場合には、元素濃度で導出される。通常の食事では生鮮食品を取り扱うため、土壌から農作物への移行を生重量で与える考え方もあるが、生鮮食品は水分を多く含むため、収穫後から徐々に水分が失われていき、TF がそれによって変動してしまう。水分による変動を減らすために、生鮮食品を対象にする場合、生重量ではなく乾燥重量ベースで TF 値を与え、水分含有率を併記することにより、生重での TF への換算が行えるようにしておく方が良い。本調査においては、後述するように水分含有率を測定し、表に示した。

TF に変動を与える要因は、植物が生育する場である土壌中での放射性核種の動き易さ (土壌特性との関係)、植物の種類や部位、生長速度、またこれら土壌-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ており、SKB の TR-14-01 にも生物圏における地形変遷を考慮している。用いられるデータについては、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、それらに対応した 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. 気温とTFに関する文献調査とデータ解析

長期間に渡って放射性物質が観測されている例として、グローバルフォールアウト起源の核種を挙げるができる。全国的に最もよく測定されているのは ^{137}Cs および ^{90}Sr であり、47 都道府県のデータを、環境放射能調査結果を収録したデータベース (原子力規制庁, 2015) から入手可能である。そのため、今回は気温と移行係数に関して本データベースを用いて解析を試みた。なお、 $^{239+240}\text{Pu}$ の測定も原発立地県において継続して測定が行われているが、気温差のある地域においての比較ができなかったため詳細な解析を行わなかった。ただし $^{239+240}\text{Pu}$ の土壌中濃度はほとんど経年変化が見られなかったことを確認している。

グローバルフォールアウト ^{137}Cs の土壌中濃度と農作物濃度の経年変化に気温の影響を確認するために、土壌および農作物それぞれについて環境半減期 (Environmental half-life, T_{env}) を求めて比較することとした。ある環境コンパートメントからそのコンパートメント外へ放射性核種が移動する速度は、指数関数で近似できることが経験的に知られている。 T_{env} を導出するためには、まず実効半減期 (Effective half-life, T_{eff}) を導出しなければならないが、実効半減期を求める前に、指数関数近似を行う必要があり、次式で表される。

$$A_t = A_0 \times \exp(-\lambda_{\text{eff}} \times t) \dots\dots\dots(1)$$

ここで、 A_0 は土壌または農作物の初期濃度、 A_t は時間 t (年) における土壌または農作物中の濃度、 λ_{eff} は係数である。したがって、 ^{137}Cs 濃度の経時変化を指数近似することで A_0 と λ_{eff} を得ることができる。さらに T_{eff} と λ_{eff} には次式が成り立つ。

$$\lambda_{\text{eff}} = \ln(2) / T_{\text{eff}} \dots\dots\dots(2)$$

T_{eff} は T_{env} および対象とする放射性核種の物理学的半減期 (T_{phy}) により、次式で表される。

$$1/T_{\text{eff}} = 1/T_{\text{env}} + 1/T_{\text{phy}} \dots\dots\dots(3)$$

これらの式から、 T_{env} を導出した。

2.2.2. 解析対象データセットの抽出について

比較的寒冷地としてここでは北海道から宮城県までのエリアに、また比較的温暖地として九州地方+高知県のエリアとしてデータ解析を試みた。環境放射能調査結果を収録したデータベース (原子力規制庁, 2015) により畑土と未耕地 (草地含む) を全て対象として抽出を行っている。なお、水田-米に関する解析については昨年度行ったので今年度は対象としなかった。

本解析において、データ収集開始年は 1980 年 1 月 1 日以降とした。その理由として、農作物は大気を経由して直接沈着したグローバルフォールアウトの影響を受けることがあるためである (Ichikawa et al., 1962)。特に 1960-1970 年代には大気圏内核実験が行われており、比較的高い降下量が観察されており、大気寄与汚染経路を無視できない可能性がある。したがって、土壌-農作物間移行の経路について明らかにするための本検討では、その期間のデータの使用は不適切である。また、それに併せて土壌データも 1980 年以降のものとした。一方、データ収集終了年は 2010 年とし、福島第一原子力発電所事故の影響を排除した。なお選択した道県の県庁・道庁所在地における 1980 年から 2010 年における年平均気温は、比較的寒冷地においては 10.7°C (範囲: $8.9-12.3^\circ\text{C}$)、比較的温暖地では 18.2°C (範囲: $16.4-23.0^\circ\text{C}$) であった (気象庁ホームページ, 2015)。

次に、土壌試料については、用いている原子力規制庁のデータベースが独自でつけている位置情報番号 (サンプリング地点) が明記され、同じ場所において 10 年以上継続して行われていることが確認できたものを対象とした。しかしながら、位置情報が同じ番号であっても、短期間に濃度が 1 桁以上変動する場合は本解析に用いなかった。その理由として、今回対象としている ^{137}Cs と ^{90}Sr は土壌に保持され易いこと、また植物への移行係数が ^{137}Cs , ^{90}Sr それぞれ 10^{-2} と 10^{-1} オーダーであり (IAEA, 2010)、そのため植物の地上部が全て取り除かれたとしても土壌に含まれる ^{137}Cs と ^{90}Sr 総量に影響しないことから、通常的环境下において短期間のうちに土壌中の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度が 1 桁以上変動することは考えにくいためである。濃度変動要因が不明瞭なデータを取り込むことで、本調査で対象としている寒冷地と温暖地という環境要因以外の要因が追加されることになり、解析結果

に影響を与えてしまうと考えられることから対象としなかった。一方、位置情報番号が異なる場合でも、市町村合併に伴い位置情報番号が変わっていることが確認でき、データに連続性が確認された場合には解析対象とした。なお、短期間での変動が少ない場合でも、グローバルフォールアウト降下量から考えて、土壌中 ^{137}Cs および ^{90}Sr 濃度が明らかに低い場合（1980年代において 10 Bq/kg-生）の場合は、盛土や切土、さらには別の場所からの土壌の移動等の人為的な影響が考えられるため、解析対象としなかった。

農作物試料については、サンプリングの位置情報番号は付されていないが、採取地の市町村名がわかることから、同じ市町村内で採取された同種の農作物については、連続性があると判断し、本調査における解析対象とした。

2.2.3. グローバルフォールアウト ^{137}Cs の土壌および農作物中濃度の経時変化

土壌中の ^{137}Cs 濃度の経時変化の結果を図 2.2-1 に示す。比較的寒冷地では 6 データセット、温暖地では 7 データセットを得ることができた。各地点における土壌からの ^{137}Cs の実効半減期 (T_{eff}) および環境半減期 (T_{env}) を表 2.2-1 に示す。相関係数 (R^2) は 0.29 - 0.88 であった。なお、山形県の未攪乱土壌では、 $T_{\text{eff}}=45$ 年が得られたが、物理学的半減期 (T_{phy}) より長いことから、見かけ上減少しているが実質は他の地域から対象土壌への ^{137}Cs の移動が考えられ、 T_{env} はマイナスになる。しかしながら、ここでは T_{env} としては T_{phy} に対して十分長い期間として、 T_{phy} の 10 倍として仮に評価した。それにより、比較的寒冷地では T_{env} は 34-302 年、温暖地では 6-74 年と評価された。ANOVA テストでは $p=0.022$ が得られ、温暖地の方が統計的に短いと評価できた。温暖地における年間降水量は解析対象期間において平均 2057 mm、寒冷地においては 1326 mm であった（気象庁ホームページ, 2015）。すなわち、温暖地の方で降雨量が多く、かつ表層土壌中の減少速度が早いことがわかる。 ^{137}Cs は土壌固相へ強く収着することから、気温による影響だけでなく、降雨等によって土壌粒子が移動した可能性も示唆された。しかし、土壌中の放射性核種の鉛直方向移動は浸透水量に左右されるが、実際の浸透水量はその地点の降水量ではない。例えば、蒸（発）散量や降雪などを考慮し、実際の浸透量を求める必要がある。

農作物については、図 2.2-2 に示す。詳細データは表 2.2-2 に示した。 R^2 は土壌に比べて低い。ハクサイ、キャベツ、ダイコンの葉、アスパラガス、ジャガイモ、ダイコン（根）、ニンジン、サツマイモ、ハウレンソウについて解析を行うことができた。 T_{env} は寒冷地では 7-302 年（ダイコンの T_{eff} が T_{phy} とほぼ同値であったため、本来 T_{env} が超長期となるが、 T_{phy} の 10 倍として仮に評価した）であり、温暖地では 4-159 年であった。農作物の T_{env} は幅が広く、気温条件による有意差は見られなかった。

土壌と作物の T_{env} が寒冷地、温暖地それぞれにおいて ANOVA テストにより比較した結果を表 2.2-3 に示す。 ^{137}Cs の環境半減期については、土壌と農作物の T_{env} を寒冷地、温暖地それぞれで比較すると、有意差はなかった。しかしながら、土壌の T_{env} は温暖地と寒冷地とで差が見られたことから、幾何平均値を用いて ^{137}Cs の半減期に相当する期間において試算を試みた。その結果、温暖地では移行係数は 30 年後においてもほとんど変化しないが、寒冷地では作物中の濃度減少が土壌に比べて相対的に早い傾向があるため、移行係数が初期に対して 0.7 に減少することがわかった。したがって長期的には温暖地の方が寒冷地よりも TF が高くなると考えられる。IAEA-TRS-472 のデータでは、亜熱帯における Cs の TF と温帯における TF は差がないが、熱帯では高いことが示唆されている。本解析

により同様の結果が得られたが、著しい違いではない可能性がある。

2.2.4. グローバルフォールアウト ^{90}Sr の土壌および農作物中濃度の経時変化

^{90}Sr についても、 ^{137}Cs のアプローチと同様の方法で解析を試みた。データ抽出により、土壌については、寒冷地で 8 データセット、温暖地で 7 データセットが得られ、その結果を図 2.2-3 および表 2.2-4 に示す。得られた結果は ^{137}Cs よりも当てはまりが良かった ($R^2=0.36-0.91$)。得られた T_{env} について、寒冷地で長い傾向はあるが、ANOVA テストを行ったところ、有意差はなかった。 ^{137}Cs の土壌中 T_{env} の解析では、降雨の影響が示唆されており、 ^{90}Sr でも ^{137}Cs と同様の傾向は見られたが、有意差がないという結果は、元素の化学形の違い等が影響していることを反映している可能性がある。

農作物については、寒冷地で 16 データセット、温暖地で 18 データセットが得られ、 T_{eff} を指数関数で近似したところ ^{137}Cs よりも相関が高かった。その結果を図 2.2-4、図 2.2-5 および表 2.2-5 に示す。これらのデータから、 T_{env} を導出したところ、寒冷地では 6-143 年、温暖地では 7-95 年が得られた。ANOVA テストの結果から両者に差がなかった。しかし、土壌の T_{env} と農作物の T_{env} を比較したところ、寒冷地では農作物で有意に低く、温暖地では差がなかった (表 2.2-3)。そこで、TF の変化について 30 年間について評価したところ、温暖地では ^{137}Cs の場合と同様に、TF に変化は見られないが、寒冷地では移行係数が初期に対して 0.3 にまで低下することがわかった。Sr は長半減期核種を含まないため重要度は低いが、温暖地と寒冷地での移行係数に数倍程度での違いではあるが、差が生じる場合もあることがわかった。Cs と Sr の大きな違いは、土壌中での動きやすさを挙げることができる。土壌中で動きやすい核種である Sr の TF は気温の影響を受けている可能性が示唆されたことから、動きやすい核種について注意深く検討を加える必要があるといえる。

2.2.5. 気温と TF に関する文献調査およびデータ解析のまとめ

文献調査を行い、核種によって、気温が変動することで TF が変動する可能性があることがわかった。昨年度の文献調査では重要核種である ^{135}Cs については、ツンドラ気候下では TF が上昇することを考慮した移行係数を選択しており (Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS), 2008)、実際に国内データでは、玄米の結果ではあるが、 ^{137}Cs の TF が温暖な地域に比べて 3 倍程度高かった。本年度の調査では、野菜類を対象とし、環境半減期を指標として Cs の TF を評価した。その結果、寒冷地で TF が低くなる傾向があった。この傾向については、IAEA TRS-472 (2010) において報告されている温暖地と熱帯の Cs の TF データと同様、すなわち、熱帯の Cs の TFの方が温暖地よりも高い、という結果とは一致している。これらの結果を総合すると、Cs の TF は温暖地で最も低く、より寒冷もしくは温暖にシフトすると高くなる傾向がある可能性があるが、さらに調査が必要である。

また、 ^{90}Sr については、昨年度は、玄米の TF 文献調査の結果、温暖地域で 2 倍高く、差はわずかながら有意差があった。今年度はやはり温暖地域の方が高くなる結果が示唆されたことから、Sr のように土壌中を比較的動きやすい元素については、温暖地域における TF が高くなる可能性が示唆された。実環境におけるデータを採取・蓄積しながら、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しなければならない。

2.2.6. 根圏域温度と気温との関係 (2014年11-12月)

気候帯により植生が変わることはよく知られているが、一方で作物成長には根圏域の温度が重要であり、夏に冷害が発生する地域では、田の水を深水管理することによりイネを冷害から守ったり、また、地下水を利用する地域では地下水温が低すぎることでイネに障害を与えることから、一度ため池に水を引いて、ある程度温度を高めてから灌漑に利用するなどの対策が行われることもある(山崎, 久保, 西尾, 石原監修, 2004)。したがって、根圏域の地温が気温とどのような関係にあるのかを調べることは、気候変動の植物生長への影響を検討する上で重要である。

大和田(1969)は、日本の年平均気温と年平均地温との関係を明らかにした。年平均気温と、0.5 m および 2 m 深における地温との関係は正の直線性が高い。気温を横軸とし、0.5 m 深温度では切片が 2.3°C, 2 m 深では切片が 3.2°C 余りであり、傾きは 0.5 m 深では気温に対し、0.95, 2 m 深では 0.90 とやや傾きが抑えられていることが分かっている。しかしながら、この結果はあくまでも年平均気温と地温の関係であり、季節変動や日変動についてのデータは得られていない。また近年では温暖化の影響を受けて気温が上昇していることから、約 50 年前に作成された式が必ずしも適切であるとは言えないこと、さらには、一般的な農作物の根圏域は 15-20 cm であることを考えると、2 m はもちろんであるが 50 cm データでも深すぎるといえる。

そこで本調査では根圏域(20cm 深)と地上 50 cm または 1.5 m の気温との関係について、2014年11-12月に連続的にモニタリングすることで検討を行った。データは2チャンネル温度ロガー(佐藤計量機器製作所, SK-L210T および T&D, TR-71wf)により5分間隔でデータ収集を行った。TR-71wfでは1.5 m 位置の気温と20 cm 深の地温を採取し、その結果を図2.2-6に示す。約2ヶ月間のモニタリングでは、大気温が先行して変化した後、緩慢に地温が変化する結果が得られた。さらに地上50 cm で得られた気温と20 cm 深の地温をSK-L210Tで測定した結果については、1日毎に気温を平均し、その相関について図2.2-7に示す。ゼロ点を通る式を当てはめると、

$$\text{地中温度 (20 cm, } ^\circ\text{C)} = 0.946 \times (\text{大気温度 } ^\circ\text{C})$$

が得られ、t検定の結果、高い相関($r=0.93$, $p<0.001$)が得られた。この結果から、根圏域の温度は地上50 cmによく対応しており、気温で根圏域温度を代表できる可能性が示唆された。

しかしながら、一般に作物を生産する期間である春から夏期にかけてのデータが取得できていない。引き続き測定を継続することで、年間を通しての変化および季節変動を明らかにして、根圏域温度と気温の関係を求めていく必要がある。

引用文献

- 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.
- 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).
- IAEA (2015). Modelling and Data for Radiological Impact Assessments (MODARIA) project.

<http://www-ns.iaea.org/projects/modaria/default.asp?l=116> (2015.1.15 アクセス)

Ichikawa, R., Eto, M., Abe, M. (1962). Strontium-90 and Cesium-137 absorbed by rice plants in Japan, 1960. Science 135, 1072.

SKB (2014). Safety analysis for SFR Long-term safety. Main report for the safety assessment SR-PSU. Technical Report TR-14-01.

大和田 (1969). 日本における地中温度の分布について. 地理学評論 42-2, 138-144.

気象庁ホームページ (2015). 過去のデータ検索. <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?sess=6ef525a9cdef28cea634ce58ca736e68> (2015.2.4 アクセス)

原子力規制庁 (2015). 環境放射線データベース. (対象期間 : 1970-2010) <http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top> (2015.1.15 アクセス)

山崎, 久保, 西尾, 石原監修 (2004). 農学大事典, 養賢堂.

2.3. 気温が相対的に低い地域と高い地域における土壌-農作物間移行係数 (TF) データの取得

2.3.1. 玄米およびジャガイモ土壌-植物間移行係数 (TF) データの取得

本年度は、我が国の主食として重要である米と、温暖～寒冷地域で生産が可能なジャガイモに着目し、移行係数データの蓄積を行った。

2.3.1.1. 採取場所の選択と採取方法

都道府県における主要都市における年平均気温が 12℃未満の県を気温が相対的に低い地域 (以下, 寒冷地) とし, 16.5℃以上の県を相対的に高い地域 (以下, 温暖地) として選択した。

寒冷地 : 北海道, 青森県, 秋田県, 岩手県

温暖地 : 高知県, 熊本県, 宮崎県, 鹿児島県, 沖縄県

これらの地域において玄米, ジャガイモをそれぞれ5点ずつ, および収穫期における土壌を併せて採取して移行係数を求めることにした。ただし, 本年度はジャガイモおよび玄米の収穫期に沖縄県では悪天候となり, 試料が採取できなかったため, 鹿児島県から採取した。

ア 土壌採取

シャベル, スコップ等を用いて作土層から一試料の総量約 2.5 kg (生重) (5点から約 0.5kg ずつ採取し混合) をポリエチレン袋に採取。別途, 同一スポットから土壌密度測定用試料を, 100cc 容コアで採取し, 仮比重を算出した。作土層の土壌密度を測定するとともに, 採取地点の土壌を「農耕地土壌分類 (第3次改訂版)」に従い, 分類した。

イ 農作物試料の採取

記土壌の採取地点で平均的に生育している水稻の玄米 5 kg 及びジャガイモ 5 kg 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。試料の採取地点と採取日は表 2.3-1、土壌の分類と仮比重については表 2.3-2、土壌および作物試料コード一覧は表 2.3-3、生土壌試料の前処理と試料到着時水分含有量を表 2.3-4 に、ジャガイモの廃棄率と可食部および非可食部の水分含量を表 2.3-5 に、玄米の水分含量と精米歩合を表 2.3-6 に示す。これらの試料到着時の状態については表 2.3-7 に写真で示す。

2.3.1.2. 土壌試料の前処理方法

土壌試料については、よく混合して均一化したのち、生土を 100 g 分取し、これについては 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。この時点で生重量を測定した。室温にて風乾する方法が通常用いられるが、本分析ではプラスチック製トレーに広げた土壌試料を電気乾燥機庫内において 40℃で恒量に達するまで乾燥させた。これにより大気起源のコンタミを避けることとした。恒量時の重量を測定して生土に含まれていた水分含量を求めた。乾燥土壌は孔径 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 50 g 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。

2.3.1.3. 農作物試料の前処理方法

ジャガイモは重量測定の後、汲みおいた水道水に浸漬し、スポンジ等を利用して丁寧に洗浄して土壌を落とし、傷んだ試料の有無を確認した。次に RO 水を用いてリンスを行い、最後に Milli-Q 水（超純水）で洗浄した。水分はペーパータオルで丁寧に拭き取ったのちに重量を測定し、洗浄前後での増減を確認した。そののち、皮をセラミック製の包丁で除去し、可食部はさらに小片に切り分け、可食部重量と廃棄部重量を測定した。廃棄率は洗浄後の重量ベースで算出した。小片に切った可食部を一旦冷凍し、その後凍結乾燥機（EYELA, FD-550）を用いて全て乾燥させ、水分含量を求めた。この一部を採取して粉碎し、元素分析に供した。皮の部分については、80℃で乾燥させ、水分含量を求めた。

玄米試料は、2.5 kg のうち 0.5 kg を糠と白米に分けて精米率を求めるために使用した。精米には山本堅型精米機ライスパル VP-31T（山本製作所）を用いた。作業状況を図 2.3-1 に示す。残りを全て凍結乾燥し水分含量を求めた。この一部を分取して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、安定元素分析に供した。残りの凍結乾燥試料は水分を含まないようにビニール袋に入れて室温にて保管した。

凍結乾燥処理を可食部全量に使用したため、凍結乾燥に要する時間について計測を行った。結果を図 2.3-2 に示す。ジャガイモについては 3 日で恒量に達することがわかったが、玄米については緩やかな減少を示しており、4 日間では十分平衡に達しなかったが、近似曲線より、乾燥をさらに数日間継続しても数%程度の変化しかないと予想されることから、4 日をもって恒量とし、乾燥試料として供した。

2.3.1.4. 土壌の物理化学的特性

(1) pH(H₂O)

土壤養分分析法（土壤養分測定法委員会編，p.29-32）及び土壤環境分析法（日本土壤肥料学会編，p. 195-197）に従って，以下の手順により実施した。

試料 10 g に水 25 ml を加えてかき混ぜ 1 時間放置した。測定前に軽くかき混ぜて懸濁状態とし，ガラス電極の薄膜部を静かに液中に漬し，pH 計の表示が安定したのち pH 値を読みとった

(2) 塩基置換容量（CEC）（セミマイクロ Schollenberger 法）

土壤養分分析法（p. 208-211）及び 土壤環境分析法（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。

洗浄液容器に 1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液を 100 mL 入れた。脱脂綿及びセルロースパウダーを詰めた浸透管に洗浄液容器より 1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液を 2/3 程度入れ，約 8 cm の厚さとなるように採取した試料を浸透管に気泡が入らないように落下沈降させて充てんした。浸透管下端のコックを開け，1 mol/L 酢酸アンモニウム溶液を洗浄液容器から滴下した。12 時間程度で浸透が終了するようにコックで滴下速度を調整した。酢酸アンモニウム溶液滴下終了後，受け器を取り替え少量の 80 %エタノールで浸透管上部内壁及び洗浄液容器内壁を洗浄した。洗浄液容器に 80 %エタノール 50 mL を入れて浸透管に接続し，滴下しながら余剰の酢酸アンモニウムを除去した。再び受け器を取り替えて洗浄容器に 10 %塩化ナトリウム溶液 100 mL を入れ滴下した。滴下終了後，浸透液を 200 mL の全量フラスコに洗い込み定容とした。浸透塩化ナトリウム溶液から正確に一定量を取り，水蒸気蒸留法によりアンモニウムイオンを定量し塩基置換容量を算出した。

(3) 置換性 Ca 及び K

(2) の塩基置換容量の操作で得られた酢酸アンモニウム浸透液を 200 mL の全量フラスコに洗い込み定容とした。この溶液の一定量を取り，塩化ストロンチウム溶液を加え水で定容し，原子吸光光度計によりカルシウムを測定した。また，別途，酢酸アンモニウム浸透液を適宜水で希釈したのち，原子吸光光度計によりカリウムを測定した。

<原子吸光光度計操作条件>

機 種：AAS240FS（アジレント・テクノロジー株式会社）

測定元素：カルシウム

光 源：カルシウム中空陰極ランプ

ランプ電流：5 mA

測定波長：422.7 nm

フレーム：C₂H₂ 2.00 L/min, Air 13.50 L/min

測定元素：カリウム

光 源：カリウム中空陰極ランプ

ランプ電流：5 mA

測定波長：766.5 nm

フレーム：C₂H₂ 2.00 L/min, Air 13.50 L/min

(4) 活性 Al, Fe (酸性シュウ酸塩溶解法)

試料 1.0 g を 250 mL のプラスチック容器に量りとり, 0.2 mol/L 酸性シュウ酸溶液 (pH3.0)100 mL を加えて室温・暗条件で 4 時間往復振とうした。抽出液約 25 mL を 50 mL の遠沈管にとり, Superfloc を 1 滴加えて振り混ぜ毎分 3000 回転, 10 分間遠心分離し上澄み液を得た。上澄み液を適宜希釈し, ICP 発光分析装置によりアルミニウム及び鉄を測定した。

<ICP発光分析装置操作条件>

機種種：ICPE-9000 (株式会社 島津製作所)

高周波出力：1100 W

プラズマガス(アルゴン)：15 L/min

補助ガス(アルゴン)：1.2 L/min

キャリアーガス(アルゴン)：0.80 L/min

測定波長：396.153 nm(アルミニウム), 238.204 nm(鉄)

(5) Al, Fe, Ca, K 総量

試料 0.1 g を分解容器に量りとり, 硝酸 5 mL, 塩酸 1 mL を加え, マイクロ波分解を行った。放冷後, さらに硝酸 1 mL, フッ化水素酸 2 mL を加え, 再びマイクロ波分解を行った。放冷後, テフロン容器に移しかえ, ホットプレート上で蒸発乾固した。少量の水と硝酸 0.725 mL を加え加温した後, 水で 50 mL に定容したものを適宜希釈し試験溶液とした。この試験溶液について ICP 発光分析装置により各元素の測定を行った。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種種：Optima 5300DV (株式会社 パーキンエルマージャパン)

RF パワー：1300 W

プラズマガス(アルゴン)：15 L/min

補助ガス(アルゴン)：0.2 L/min

キャリアーガス(アルゴン)：0.70 L/min

測定波長：396.153 nm(アルミニウム), 238.204 nm(鉄), 317.933 nm(カルシウム), 766.491 nm(カリウム)343.489 nm(ロジウム;内標準元素として)

上記(1)-(5)の測定は 1 試料から 2 サブサンプルを作成して測定した。各データおよびその平均値を表 2.3-8 に示す。

さらに, 交換性 K, 交換性 Ca, 活性 Al および活性 Fe の総 K, Ca, Al および Fe に占める割合を求めた。結果を下表に示す (算術平均値および範囲)。交換性 K の割合は水田土壌と畑土壌とも数%程度であり, 一方交換性 Ca は幅があるものの両土壌とも平均で約 20% を占めていた。Ca イオンは 2 価であることから, アンモニウムイオンとの置換で測

定する CEC への量に換算するときには、2 倍で評価される。したがって、水田土壌および畑土壌とも平均で CEC の 50% を Ca イオンが占める結果となった。このことから CEC は Ca イオンに依存していることを示している。

項目	水田土壌 (n=10)	畑土壌 (n=10)
交換性 K	1.8% (0.6-3.2%)	4.5 % (1.2-8.6%)
交換性 Ca	16% (4-44%)	20 % (2-57%)
活性 Al	6%(2-20%)	25% (2-53%)
活性 Fe	21% (6-56%)	21% (2-37%)

今回得られた畑土壌の結果については、2002-2007 年に収集したデータセットおよび H25 年度に得られたデータセットと併せて、寒冷地で得られたデータ (n=15)、温暖地で得られたデータ (n=30) を用いて土壌の物理化学成分の比較を行った。結果を図 2.3-3 に示す。pH、CEC および活性 Al の総 Al に占める割合は温暖地において寒冷地よりも統計的に高いことがわかった。今回は試験的に畑土壌での比較を行ったが、同じ作物が作付けされている条件を入れることで、気温のみの影響を示すことができるようになる。今後も引き続きデータの蓄積が必要である。

2.3.1.5. 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

試料 0.1~0.2 g を白金皿に量りとり、500 °C で灰化したのち炭酸ナトリウム 5 g を加え 900 °C で 20 分間融解した。放冷後、塩酸(1+1)で中和し、更に塩酸(1+1)を 20 mL 加え水浴上で蒸発乾固させた。次に塩酸(1+1)を 20 mL 加え 10 分間加温したのち、ろ紙 (No.5C[東洋濾紙株式会社])でろ過した。ろ液中に塩化物イオンの反応がなくなるまで内容物を洗浄後、残渣をろ紙ごと白金皿に移して灰化し 900 °C で 20 分間強熱し、放冷後重量(W1)を測定した。内容物を水で湿らして硫酸 2~3 滴及びフッ化水素酸 10 mL を加え、蒸発乾固したのち電気炉へ移し灰化した。放冷後、再び重量(W2)を測定した。2 つの重量差(W1-W2)からケイ素含量を算出した。

(2) ホウ素

試料 0.2 g を白金るつばに量りとり、550 °C で 2 時間灰化した。炭酸ナトリウム 1 g を加え、徐々に温度を上昇させ 900 °C で 20 分間融解した。放冷後、水を加え 175 °C で 2 時間加温したのち、更に 5 % 硝酸を 50 mL 加えて加温した。ろ紙 (No.5C[東洋濾紙株式会社])でろ過し、水で 100 mL に定容したものを試験溶液とし、ICP 発光分析装置によりホウ素を測定した。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種：Optima 5300DV (株式会社 パーキンエルマー ジャパン)

RF パワー：1300 W

プラズマガス(アルゴン) : 15 L/min
補助ガス(アルゴン) : 0.2 L/min
キャリアーガス(アルゴン) : 0.70 L/min
測定波長 : 208.957 nm(ホウ素)
451.131 nm(インジウム;内標準元素として)

(3) 水銀 (湿式分解法)

試料0.1 gをセラミック製サンプルボードに量りとり、加熱気化原子吸光光度計に設置し、加熱分解を行い、吸光度を測定した。

<加熱気化原子吸光光度計操作条件>

機種 : MA-3000[日本インスツルメンツ株式会社]

測定波長 : 253.7 nm

(4) Cr, P, Co, Ni, Cu, Zn 総量

2.3.1.4. (5)の試験溶液を用いて、同様にリン (測定波長 : 214.914 nm) の測定を ICP 発光分析装置により行った。また、クロム, コバルト, ニッケル, 銅及び亜鉛は ICP 質量分析装置により測定を行った。

<ICP 質量分析装置操作条件>

機種 : Agilent 7500ce (アジレント・テクノロジー株式会社)

RF パワー : 1600 W

プラズマガス(アルゴン) : 15 L/min

キャリアーガス(アルゴン) : 0.70 L/min

コリジョンガス(ヘリウム) : 4 mL/min

測定質量数 : 52(クロム), 59(コバルト), 60(ニッケル), 63(銅), 66(亜鉛)

103(ロジウム;内標準元素として)

(5) C, N 総量

試料約 10 mg を元素分析計用のスズ容器に精密天秤を用いて量りとり、空気が入らないように封入して、元素分析計-安定同位体比測定装置 (EA-IRMS, Thermo Fisher Scientific) を用いて測定した。定量用には炭素濃度および炭素安定同位体比既知の標準物質 (L-Alanine, Histidine, Glycine) を用いた。

(1)-(5) の測定は 1 試料から 2 サブサンプルを作成して測定した。各データおよびその平均値について表 2.3-8 に示す。

2.3.1.6. 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

試料 0.2~3 g を白金るつぼに量りとり、500 °C で灰化したのち炭酸ナトリウム 5 g を加

え 900 °C で 20 分間融解した。放冷後、水を加えて加温し、ろ紙(No.5B[東洋濾紙株式会社])でろ過し、水で定容したのち希釈したものを試験溶液とした。

この試験溶液について ICP 発光分析装置によりケイ素を測定した。測定波長：251.611 nm(ケイ素), 417.206 nm(ガリウム;内標準元素として)

(2) P, Fe, Ni, Cu, Zn, Cd 総量

試料0.5~0.6 gを分解容器に量りとり、硝酸5 mLを加えマイクロ波分解を行った。ポリプロピレン製定容容器に移しかえ、水で50 mLに定容したものを試験溶液とした。この試験溶液についてリン、鉄及び亜鉛はICP発光分析装置により測定を行った。ニッケル、銅及びカドミウムはICP質量分析装置により測定を行った。

<ICP発光分析装置操作条件>

機種：Optima 5300DV (株式会社 パーキンエルマージャパン)

RFパワー：1300 W

プラズマガス(アルゴン)：15 L/min

補助ガス(アルゴン)：0.2 L/min

キャリアーガス(アルゴン)：0.70 L/min

測定波長：214.914 nm(リン), 238.204 nm(鉄), 213.857 nm(亜鉛)

371.029 nm(イットリウム;内標準元素として)

<ICP-MS操作条件>

機種：Agilent 8800[アジレント・テクノロジー株式会社]

RFパワー：1550 W

プラズマガス(アルゴン)：15 L/min

キャリアーガス(アルゴン)：1.0 L/min

コリジョンガス(ヘリウム)：5 mL/min

測定質量数：60(ニッケル), 63(銅), 111(カドミウム)

103(ロジウム;内標準元素として)

(3) C, N 総量

試料約 1 mg を元素分析計用のスズ容器に精密天秤を用いて量りとり、空気が入らないように封入して、元素分析計-安定同位体比測定装置 (EA-IRMS, Thermo Fisher Scientific) を用いて測定した。定量用には炭素濃度および炭素安定同位体比既知の標準物質 (L-Alanine, Histidine, Glycine) を用いた。

(1)-(3) の測定は 1 試料から 2 サブサンプルを作成して測定した。各データおよびその平均値について表 2.3-9 に示す。

2.3.1.7. その他の元素の定量

(1) 土壌試料

粉碎試料を約 100 mg 秤量し、テフロン製分解容器に入れて、HNO₃ 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， 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 HNO_3 と 0.5 mL の H_2O_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% HNO_3 を 2.5 mL 加え 50 mL ポリプロピレン製容器に移し，Milli-Q 水（ $>18\text{M}\Omega$ ）を用いて全量を 50mL 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 500mg 秤量し，テフロン製分解容器に入れて， HNO_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_3 と 0.5 mL の H_2O_2 を添加して残さを溶かした後，再度乾固し，最終的に 40% HNO_3 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_3 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試料（SRM-1573a）を使用した。

土壌試料と農作物試料中のこれらの元素分析についても，1 試料から 2 サブサンプルを作成して測定した。測定には ICP 発光分光分析装置（Horiba，Activa-M）を用いた。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。

2.3.1.8. 分析結果および考察

表 2.3-8 に，土壌中の元素濃度総量の結果を示した。得られた元素濃度は 21 元素であり，土壌特性は 6 項目についてデータが得られた。植物中元素濃度についても，20 元素の濃度が得られ，その結果を表 2.3-9 に示す。

これらの濃度データから TF を導出し，寒冷地と温暖地にデータを分け，その幾何平均値をプロットした（図 2.3-4）。点数が少ないことから，統計処理を行うことはできないが，玄米は Si と Mn で TF がジャガイモよりも高く，K はジャガイモで高かった。他の元素については大きな違いは見られなかった。それぞれの作物について，気温差による違いは，本年度測定した主要元素についてはほとんど無い可能性がある。詳細については，データ数を増やして統計処理を行い，また，放射性核種に関連する他の元素濃度を測定し，TF を比較しなければならない。

炭素の移行係数については，C-14 のアナログとして重要であるが，土壌炭素ではなくほとんどが大気中炭素を植物が吸収していることから，他の金属元素と同様に，農作物中の濃度を土壌中の濃度で除して得られる移行係数で表すことは不適切である。以前の報告では，炭素安定同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ ，‰）に着目し，白米-土壌間の相関が見られれば，土壌起源の炭素を吸収している可能性があると考えて，移行係数を導出することが行われてい

る（田上ら，2009）。本調査においても同様の手法で，ジャガイモと土壌中の $\delta^{13}\text{C}$ の間に相関が見られるのかどうかについて検討を行った。ジャガイモのデータは H26 年度に収集した試料の結果に加えて，2002-2007 に行った全国調査からジャガイモ試料の測定結果も加えて解析を試みた。結果を図 2.3-5 に示したが，ばらつきが大きく，t-検定を行ったところ，相関なしとの判定であった。この結果から，土壌からのジャガイモへの炭素の移行は限定的であると考えられるが，今後さらにデータを収集することにより，解析の精度を上げていく必要がある。

2.3.2. 平成 25 年度に採取した葉菜類の TF データ追加

上述の 2.3.1.7 に記載した方法により，平成 25 年度に採取した葉菜類 20 検体について，希土類元素などの TF を追加するための元素濃度データを追加した。測定は 1 試料から 2 サブサンプルを作成し，それぞれについて 2 回ずつ測定を行っている（ $n=4$ ）。土壌分析の結果を表 2.3-10，作物分析の結果を表 2.3-11 に示す。土壌については濃度が十分高いため，4 回の測定すべてでデータが得られた。表 2.3-10 にはその平均値と標準誤差を記載した。一方，作物試料の場合，元素濃度は検出下限値となることもあり， n が少なく，また標準誤差も大きい場合もあった。このような場合には再度測定を行う必要がある。濃度が高い元素では変動が少ないが，例えば，希土類元素では，比較的濃度が高い La や Ce でも n が十分ではないケースも見られたことから，追加測定を行って，より確度の高いデータを得る必要がある。

本年度得られたデータを元に導出した TF を表 2.3-12 に記載した。

2.3.3. 気温が相対的に低い地域と高い地域における土壌-農作物間移行係数（TF）データのまとめ

平成 26 年度は寒冷地および温暖地において玄米 10 点（寒冷地 5 点，温暖地 5 点）とジャガイモ 10 点（寒冷地 5 点，温暖地 5 点）および収穫時期の土壌をサンプリングした。これらの試料の前処理および土壌特性および元素濃度を農作物および土壌それぞれについて 20 元素程度の濃度データを測定した（表 2.3-8 および表 2.3-9）。さらに，得られた濃度データを用いて TF を導出してデータベースに追加し，TF を比較した（図 2.3-4）。玄米とジャガイモでは作物の違いによる TF の差が元素によってはあったが，気温差の影響は明確ではなかった。しかしながら統計処理を行うためにはより数多くのデータを取得する必要がある。また，主要元素だけではなく，放射性核種に関連する微量元素についてもデータも取得し，パラメータを蓄積しなければならない。

今年度はまた，平成 25 年度に比較的温暖な地域で採取した土壌および葉菜類データセットについて，希土類元素等の定量分析を行い，データベースに追加した。得られたデータについては，2002-2007 に行った全国調査で得られた葉菜類の TF データと相違について統計解析を行う必要がある。

引用文献

- 田上，石井，内田（2009）．炭素安定同位体自然存在比を用いた水稻による土壌起源炭素吸収および炭素移行係数の推定．*Radioisotopes* 58, 641-648.
- 土壌養分測定法委員会編「土壌養分分析法」養賢堂(1983).

日本土壌肥料学会編「土壌環境分析法」博友社(1997).

放射線医学総合研究所, 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 (2013).http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-19-1.pdf

2. 4. 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, K_d)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, 土壌中での炭素-14 (^{14}C)の K_d について, その挙動が土壌微生物活性の影響を受けやすいと考えられることから(例えば Hanson et al., 2000; Ishii et al., 2010), 統計的手法を用いて関連の高い物理化学項目を抽出し, 項目の比較検討を行った。土壌微生物活性は温度, 水分含量および活性維持に必要な栄養成分の量に影響を受けやすいことから, 気候変動によって活性が変化すると考えられる。そこで本解析で抽出される項目が微生物活性に関連するものかどうか特に着目して解析を行った。

2.4.1. 炭素-14の土壌中分配率について

炭素-14の土壌中分配率は酢酸を用いて放医研において得られたデータであり, Ishii らがとりまとめて報告している(Ishii et al., 2014)。酢酸態で土壌-土壌溶液混合系に添加された ^{14}C は気化することから, 一般的な土壌-土壌溶液間分配係数を用いず, 添加量に対する固相, 液相, 気相分配率として評価した。なお, ガス化率と固相分配率の関係は図2.4-1に示した。図中に示した直線は固相分配率とガス化率の2相にのみ分配した場合であり, 水田土壌ではほとんど全ての土壌で, また, 畑土壌でも多くのものがこのラインに近い部分にプロットがあることから, 酢酸態 ^{14}C はほとんど液相に分配しないことがわかる。本検討では, ガス化率と固相分配率から液相分配率を算出し, 実験条件の固液比 1:10を用いて炭素 K_d を導出した

2.4.2. 独立変数と炭素-14の K_d の相関

以下の約 80 項目の独立変数と ^{14}C の K_d の単相関を導出した。ただし, pH 以外は log 変換した値を用いて解析を行っている。

【土壌特性】 仮比重, 水分含有率, 電気伝導度(EC), pH, 陽イオン交換容量(CEC), 交換性カルシウム(Exchangeable Ca), 交換性カリウム(Exchangeable K), 活性アルミニウム(Active Al), 交換性Fe(Active Fe), sand, silt, clay, K_d_{Mn} , K_d_{Ni} , K_d_{Se} , K_d_{Sr} , K_d_{Sn} , K_d_{Sb} , $K_d_{\text{I}}(4^\circ\text{C}, 23^\circ\text{C})$, $K_d_{\text{IO}_3}(4^\circ\text{C}, 23^\circ\text{C})$, $K_d_{\text{Cs-137}}$

【水溶性】 Na, NH_4 , K, Mg, Ca, Cl, NO_3 , Sr, Fe, Al, P, Zn, Rb, Cs

【元素濃度】 Li, Be, 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, Hg, Pb, Th, U, Cs-137, Ra-226

結果を表 2.4-1 に示す。全土壌試料を用いた場合、 ^{14}C の K_d との相関係数が 0.5 を超える独立変数は K_d_{Ni} , K_d_{Sb} , $K_d_{\text{IO}_3}$ (4°C , 23°C), pH および水抽出された F と P の 7 項目であり、最も高い相関係数は 0.73 であった。土壌利用形態別で比較検討すると、水田土壌では K_d_{Sb} , 23°C の K_d_{I} と $K_d_{\text{IO}_3}$ および pH の 4 項目であり、最も高い相関係数は 0.70 であった。水田土壌では微生物活性に関連する項目は抽出されなかった。畑土壌では K_d_{Ni} , K_d_{Se} , K_d_{Sn} , K_d_{Sb} , $K_d_{\text{IO}_3}$ (4°C , 23°C) と高い相関が見られ、他にも、仮比重、含水率、pH、Active Al、Active Fe、Si、および水抽出された F と P の 14 項目であり、最も高い相関係数は 0.76 であった。含水率および水溶性 P は微生物活性に影響を及ぼす項目であるが、他の項目については直接的な関連が明確ではない。なお、全ての分類で、 K_d_{Sb} との相関が高かった。図 2.4-2 に K_d_{Sb} , pH, 活性 Al および水溶性 P との関係をプロットしたものを、全土壌試料、水田土壌、畑土壌の 3 種類について示した。pH と相関が高いのは、土壌 pH によって ^{14}C が炭酸としての溶解度が異なるためと考えられる。pH に対し、全土壌の K_d_{Sb} , 水溶性 F および P はそれぞれ相関があるが ($p < 0.001$), 相関係数は 0.5 を超えなかった。総炭素量とは相関が見られなかった。

水田と畑では独立変数によって相関の程度が異なっていることから、 ^{14}C の K_d は土地利用形態によっても影響を受けている可能性が示唆された。例えば、相関係数で 0.5 を超えていないが、Fe, Se, I など酸化還元の影響を受けやすいものと水田土壌の ^{14}C の K_d は相関がない一方で、畑土壌では $p < 0.001$, 相関係数は 0.46-0.48 であった。このような酸化還元条件も、 ^{14}C の土壌収着に関係している可能性が示唆された。

2.4.3 まとめ

土壌中における挙動が微生物活性の影響を受けやすい ^{14}C について、放射線医学総合研究所で得られた酢酸態 ^{14}C の K_d と約 80 項目の土壌に関連する独立変数項目の相関を調べたところ、いくつかの項目で良い相関が得られた。しかしながら、土壌微生物活性に明確に関与する項目は、全土壌を対象にした解析結果からは抽出されなかった。液相中の炭酸飽和量に化学的に影響する pH と相関が見られたが、他の項目については化学的な説明を付すことが困難であった。また、水田土壌と畑土壌では相関が異なる項目があり、土地利用が ^{14}C の土壌中挙動に影響していると考えられる。

引用文献

- Hanson, P.J., Edwards, N.T., Garten, C.T., Andrews, J.A. (2000). Separating root and soil microbial contributions to soil respiration: A review of methods and observations. *Biogeochemistry* 48, 115-146.
- Ishii, N., Koiso, H., Takeda, H., Uchida, S. (2010) Partitioning of ^{14}C into solid, liquid and gas phases in various paddy soils in Japan. *J. Nuclear Science and Technology* 47, 238-243.
- Ishii, N., Tagami, K., Uchida, S. (2015). The ^{14}C partitioning of [1, 2- ^{14}C] sodium acetate in three phases (solid, liquid, and gas) in Japanese agricultural soils. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 303, 1389-1392.

2. 5. 放射性セシウムの環境移行に関わる福島第一原発事故後のデータ

2.5.1. 植物中の放射性 Cs の減少率の経時変化

福島第一原発事故後の大気放出により、放射性 Cs が植物体表面に付着、または地面に降下し、それらが現在環境中を循環している。植物への放射性 Cs の吸収経路は、大気経由で付着した放射性物質の表面吸収または経根吸収が挙げられる。植物が長期に生存する場合、すなわち、木本植物では、どちらの吸収経路においても、一旦植物体内に蓄積し、それらが落葉や落枝などのプロセスにより徐々に蓄積量が減少していく。表面吸収は大気放出直後において重要な移行径路であるが、短時間のものであり、その後は経根吸収によって放射性 Cs が取り込まれる。草本植物の場合には、大気放出後に生育したものは土壌からの経根吸収に依存している。土壌中総量は変化しなくても、土壌中の可給態量は、徐々に減少していく。数年たてば土壌中の可給態量は一定濃度で安定してくると考えられ、本章 2. 2 においても、その性質を利用した移行係数に関する考察を行っている。

昨年度は、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について、1 つの指数関数近似により導出して報告をした。しかし、これまでのチェルノブイリ原発事故後の経験から、早い移行成分と遅い移行成分の 2 つの指数関数で実効半減期が成り立っている (Antonopoulos-Domis et al, 1996; Unlu et al, 1995 ; Smith et al., 2000) ことから考えると、遅い移行成分への移行期が観察され始める時期を知ることは、今後の減少速度を考慮する上で重要である。これにより、環境中においてより平衡状態に近い環境移行パラメータを得ることができる。

本年度も引き続き、木本植物および草本植物のサンプリングを継続しており、その結果から、移行期に到達していると考えられたため、以下に報告する。

2.5.1.1. 材料および測定方法

植物は放医研敷地内に生育しているものである。草本植物として、イタドリ、ヨモギ、マメ科植物 (アカツメクサ、カラスノエンドウ)、落葉樹として、カキ、クリ、イチヨウ、常緑樹として、ベニカナメモチ、クスノキ、ビワである。樹木は展開葉 (新葉を除く)、草本植物は地上部 5cm 以上を適時採取した。

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、重量を測定後、洗浄・無処理の 2 つを作成した (ただし、両者間に濃度差がないため、それぞれサンプルとして取り扱う)。各試料は 80°C にて乾燥、粉碎のち、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 80,000 秒の測定を行った。 ^{134}Cs は減衰により定量困難であったため、 ^{137}Cs の結果を示す。

2.5.1.2. 放射性 Cs の経時変化

図 2.5-1 に草本植物、落葉樹、常緑樹それぞれについて乾物重あたりの ^{137}Cs 濃度を示す。常緑樹では 1 つの指数関数によるフィッティングでも良いが、草本植物では 1 つの指数関数フィッティングでは不适当であることがわかる。2 つの指数関数で表すためには、より長期間のデータが必要であるが、現在はその減少率の変化期に変わりつつあることが示された。今後はこのような経過を観察しつつ、より平衡状態に近い状況において実環境下での TF を得ることができるようになると考えられる。

2.5.2. 淡水魚への Cs 濃縮係数の導出について

放射性核種の安全評価において、河川—淡水魚を介した人への移行経路も考慮する必要がある。河川や湖沼などの淡水系における魚種の放射性 Cs 濃縮係数（筋肉中濃度／水中濃度）については、IAEA TECDOC-1616（IAEA, 2009）には 52 の文献から得られた数値として 14-15000 L/kg（幾何平均 2500 L/kg）が報告されている。また、我が国のデータは環境放射能調査研究成果論文抄録集（文部科学省, 2015）に散見されるほか、我々も国内データを取りまとめて報告しており（Tagami and Uchida, 2011, 2013）、いくつかの魚種に対する筋肉部への濃縮係数は 31-855 L/kg であった。一般に淡水系における濃縮係数は海水魚に比べて大きく、食物連鎖上高次の生物ほど濃度が高くなることが報告されている（Rowan, 1998）。しかしながら、我が国のデータ数が少ないことから、福島第一原発事故後に得られた実環境中でのデータを、今後利用することは重要である。

2.5.2.1. 環境水—淡水魚の ^{137}Cs 平衡状態

濃縮係数を得るためには水中濃度が一定の条件下において魚体中濃度が平衡に達したときに値を得ることが望ましい。原発事故後から収集され続けている食品モニタリングデータ（厚生労働省, 2015）を参照にすると、魚体中の放射性 Cs 濃度は時間の経過とともに減少しているが、最近では徐々に平衡に達しつつある。図 2.5-2 にはイワナとアユの例を示す。このような状況はチェルノブイリ原発事故後にイギリス等でも確認されている（Smith, 2000）。その経時変化は 2 つの指数関数によって表されることが経験的に知られている。そこで、図 2.5-3 には 2 つの指数関数によるフィッティング例を示した。

Fukushima and Arai (2014) は 2013 年 3 月までのデータを用いて、湖沼における魚体中の ^{137}Cs 濃度が指数関数的に減少し、魚体中 ^{137}Cs 濃度は堆積物濃度に比例していたことを報告している。彼らは可食部中濃度を堆積物中濃度で除すことで分配係数を得ており、その値として 1 前後 (0.1-7) を報告している。しかし、魚体と放射性セシウムとの関係を考えた場合、Cs の同族元素であり、生物にとって必須元素である K の影響は無視できない。魚の K 源はエサと水である。最初にエサとなる生物が藻類などの植物であることを考えると、堆積物から経根吸収される経路を考えるよりも、水中に可溶性の成分を吸収する経路の方が主であろう。Cs も同様の経路であろうと推察される。したがって、魚体の Cs 濃度予測のためのパラメーターとしては魚体濃度と水中の Cs 濃度との比として導出するこれまでの方法の方が妥当であろう。

湖沼水中の放射性 Cs 濃度には、河川からの流入も影響すると考えられるが、環境モニタリングの結果では、ほとんどが検出下限値 (1 Bq/L) 未満であり、数値データがない（環境省）。そこで、環境放射線データベース（原子力規制庁, 2015）から、ごく低濃度まで測定しているデータを抽出した。経時的な変化を得ることができたのは茨城県内のデータだけである。その結果を図 2.5-4 に示す。河川（那珂川、新川）の濃度はほぼ 600 日以降ではほぼ平衡に達している。湖沼でも徐々に平衡に達しつつあることが分かる。しかしながら、霞ヶ浦の湖水中 ^{137}Cs 濃度データは十分ではないことから、さらなるデータの蓄積が必要である。

2.5.2.2 ワカサギの濃縮係数と水中 ^{137}Cs 濃度推定

図 2.5-5 には霞ヶ浦の湖水、底質土およびワカサギ中の ^{137}Cs 濃度の経時変化を示す。

底質土は、サンプリング地点によっては徐々に減る傾向もみられているが、全体としてはほとんど減少していないことがわかる。一方、湖水およびワカサギ中の濃度は 600 日過ぎまで減少傾向にある。そこで便宜的にこの減少傾向の中で濃縮係数はほとんど変化がないと仮定し、次式で表す水中濃度変化と魚体中濃度変化から見かけ上の濃縮係数を求めた。

$$A_{\text{water}} = 273 \times \exp(-0.0023 \times t)$$

$$A_{\text{fish}} = 48 \times \exp(-0.0018 \times t)$$

ここで、 A_{water} は湖沼水中の濃度 (mBq/L)、 A_{fish} はワカサギ中の濃度 (Bq/kg)、 t は 2011 年 3 月 11 日からの経過日数 (d) である。これらの式より、100-600 日目における濃縮係数は平均で約 210 (L/kg) となり、これまでの淡水魚の報告値の範囲内であることがわかった。ただし、今後の湖水中濃度データおよびワカサギの濃度データを用いて検証する必要がある。

この値を用いて、800 日目以降の霞ヶ浦湖水中の ^{137}Cs 濃度を、魚体中の濃度結果から求めたところ、湖水中濃度は 0.02-0.14 Bq/L (算術平均 0.08 Bq/L) であると推定された。この濃度は通常の検出下限値である 1 Bq/L を下回っており、したがって、近年の霞ヶ浦湖水中の ^{137}Cs 濃度が通常の測定方法では検出されない程低濃度であることを間接的に示している。

なおワカサギ中の放射性 Cs 濃度は、ほぼ一定の値が検出され続けていることから、前述したように検出下限値以下ではあるがほぼ一定濃度の Cs-137 が水中に存在しつづけていると考えられる。その起源については、河川から一定量流入、および堆積物から一定の割合で溶出している可能性がある。河川からの流入の程度は不明であるが、堆積物と湖沼水の関係は K_d で表すことができる。上記方法によって推定される ^{137}Cs の湖水中平均濃度と実測によって得られた 800 日以降の平均堆積物中濃度から、見かけ上の堆積物-湖水 K_d として 3200 (L/kg) が導出された。これは我々が過去に農耕地土壌を用いて得た Cs の K_d の範囲であった (Ishikawa et al., 2008)。すなわち、堆積物からの放射性 Cs の溶出による水中 Cs 濃度への寄与は否定できないことがわかった。

仮に霞ヶ浦のワカサギの濃縮係数を他の湖沼にあてはめた場合、赤城大沼 (群馬県) では 800 日以降では平均 0.34 Bq/L、秋元湖 (福島県) では 0.12 Bq/L、檜原湖 (福島県) では 0.08 Bq/L となり、通常の検出下限値よりも低くなり、現在、これら地域のワカサギ中の ^{137}Cs が検出されない (検出下限値以下である) 状況と一致している。

今後はほぼ平衡状態における湖沼水および魚体中の ^{137}Cs 濃度が得られることが図 5.2-5 から推測される。湖沼水中濃度について、文献をサーベイするなどして数値情報を得るとともに、また魚種についても増やして、より多くの魚種についての濃縮係数情報を得ること必要であり、それにより淡水魚への移行パラメータを追加することができるようになる。

2.5.3. まとめ

放射性セシウムの環境移行に関わる福島第一原発事故後のデータとして、これまでデータを収集し、植物、野生動物および魚類について濃度の減少速度 (実効半減期) を求めて報告してきた。本年度の調査により、植物や淡水魚では、減少速度が緩やかになってきたことがわかった。このことは、これまでチェルノブイリ原発事故後に観察されてきたよう

に、2つの指数関数で実効半減期を表す必要がある時期にさしかかっていることを示している。

事故後数年間は放射性 Cs の環境中での移動性が高いため、長期予測に必要な平衡状態における環境移行パラメータを実測によって得ることは困難であった。徐々に平衡状態にさしかかりつつあることを実測で確認しつつ、今後は放射性廃棄物に係る重要核種である ^{135}Cs の生物圏における適切な環境移行パラメータを収集するための調査をすることが必要である。

引用文献

- Antonopoulos-Domis, M., Clouvas, A., Gagianas, A. (1996). Long term radiocesium contamination of fruit trees following the Chernobyl accident. *Health Phys.* 71, 910-914.
- Fukushima T., Arai, H. (2014). Radiocesium contamination of lake sediments and fish following the Fukushima nuclear accident and their partition coefficient. *Inland Waters* 4, 204-214.
- IAEA (2009). Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA-TECDOC-1616, 473-545.
- Ishikawa, N.K., Uchida, S., Tagami, K. (2008). Distribution coefficients for ^{85}Sr and ^{137}Cs in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 277, 433-439.
- Rowan, D.J., Chant, L.A., Rasmussen, J.B. (1998). The fate of radiocesium in freshwater communities-why is biomagnification variable both within and between species? *J. Environmental Radioactivity* 40, 15-36.
- Smith, J.T., Comans, R.N.J., Beresford, N.A., Wright, S.M., Howard, B.J., Camplin, W.C. (2000). Chernobyl's legacy in food and water. *Nature* 405, 141.
- Tagami, K., Uchida, S. (2011). Some considerations on water-to-fish transfer data collected in Japan for radionuclides and stable elements. *Proceeding of Waste Management Symposia 2011*, No. 11252.
- Tagami, K., Uchida, S. (2013). Marine and freshwater concentration ratios ($\text{CR}_{\text{wo-water}}$): review of Japanese data. *J. Environmental Radioactivity* 126, 420-426.
- Ünlü, M.Y., Topcuglu, S., Kçükcezzar, R. Varinlioglu, A. Güngör, N., Bulut, A. M., Güngör, E. (1995). Natural effective half-life of ^{137}Cs in tea plants. *Health Phys.* 68, 94-99.
- 環境省 (2015). 東日本大震災の被災地における放射性物質関連の環境モニタリング調査：公共用水域. http://www.env.go.jp/jishin/monitoring/results_r-pw.html (2015.1.15 アクセス)
- 原子力規制庁 (2015). 環境放射線データベース. (対象期間：2011-2014) <http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top> (2015.1.15 アクセス)
- 厚生労働省 (2015). 食品中の放射性物質の検査. (平成 23 年 3 月-平成 26 年 12 月) <http://www.mhlw.go.jp/stf/kinkyu/0000045250.html> (2015.1.15 アクセス)
- 文部科学省 (2015). 環境放射能調査研究成果論文抄録集 vol. 1-53, www.kankyo-hoshano.go.jp/08/08.html. (2015.1.15 アクセス)

2. 6. 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}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、文献調査を行うとともに、実際に玄米およびジャガイモを採取し、データを収集した。文献調査では、環境半減期を減少速度の指標として寒冷地と温暖地におけるグローバルフォールアウトの土壌および作物中濃度変化から TF に係る検討を行った。その結果、土壌中の ^{137}Cs 濃度減少速度は温暖地の方が早く、一方で作物中濃度減少速度は寒冷地、温暖地で差が無かったことから、将来的には TF が寒冷地で低くなると予想された。しかしながら、昨年度の検討結果では、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、国際的なデータと、国内の玄米 TF データから示唆されており、逆の傾向である。ただし本年得られた結果については、IAEA TRS-472 (2010) において報告されている温暖地と熱帯の Cs の TF データと同様、すなわち、熱帯の Cs の TF の方が温暖地よりも高い、という結果とは一致している。これらの結果を総合すると、Cs の TF は温帯で最も低く、より寒冷もしくは温暖になると高くなる傾向がある可能性があるが、さらに調査が必要である。

また、 ^{90}Sr については、昨年度は、玄米の TF 文献調査の結果、温暖地域で2倍高く、差はわずかながら有意差があった。今年度はやはり温暖地域の方が高くなる結果が示唆されたことから、Sr のように土壌中を比較的動きやすい元素については、温暖地域における TF が高くなる可能性が示唆された。実環境におけるデータを採取・蓄積しながら、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しなければならない。

文献調査の結果で得られたことをさらに明らかにするためには、統計処理が可能かつオリエティの揃ったデータセットが必要である。本年度はジャガイモ 10 試料 (寒冷地 5, 温暖地 5), 玄米 10 試料 (寒冷地 5, 温暖地 5) について土壌とともにサンプリングを行い、20 元素程度のデータを収集した。データ数が少ないことから、統計処理は行えないが、幾何平均値玄米は Si と Mn で TF がジャガイモよりも高く、K はジャガイモで高かった。それぞれの作物について、気温差による違いは、本年度測定した主要元素についてはほとんど無い可能性がある。詳細については、データ数を増やして統計処理を行い、また、放射性核種に関連する他の元素濃度を測定し、TF を比較する必要がある。

さらに、本年度は、昨年収集した温暖地の葉菜類とその土壌試料中の希土類元素等の濃度データを追加し、TF をデータベースに追加した。これらのデータについては、過去に行った全国調査で得られた葉菜類の TF データと比較検討することを予定している。

環境移行パラメータ変動要因の解析として、本年度は土壌中における挙動が微生物活性の影響を受けやすい ^{14}C について、放射線医学総合研究所で得られた酢酸態 ^{14}C の Kd と約 80 項目の土壌に関連する独立変数項目の相関を調べた。その結果、全土壌試料を用いた場合、 ^{14}C の Kd との相関係数が 0.5 を超える独立変数は Kd_Ni, Kd_Sb, Kd_IO₃ (4°C, 23°C), pH および水抽出された F と P の 7 項目であり、最も高い相関係数は 0.73 であった。液相中の炭酸飽和量に化学的に影響する pH と相関が見られたが、他の項目については化学的な説明を付すことが困難であった。また、水田土壌と畑土壌では相関が異なる項目があり、土地利用が ^{14}C の土壌中挙動に影響していると考えられた。

さらに、東電福島第一原発事故後に観察される放射性 Cs の環境挙動を調査し、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試みた。本年度の調査結果から、植物や淡水魚では、減少速度が緩やかになってきたことがわかった。このことは、これまでチェルノブイリ原発事故後に観察されてきたように、2つの指数関数で実効半減期を表す必要がある時期にさしかかってきており、徐々に放射性 Cs の環境中での移動性が低下しつつあることを示すものである。この結果は、事故直後の Cs の移行性が高い期間で得られた減少速度で将来の濃度予測をするのは不適切であり、減少速度が緩やかになってきている状況を正しく理解し、その減少速度を用いて将来予測を行う必要がある事を意味している。

事故後数年間は放射性 Cs の環境中での移動性が高いため、長期予測に必要な平衡状態における環境移行パラメータを実測によって得ることは困難であった。徐々に平衡状態にさしかかりつつあることを実測で確認しつつ、今後は放射性廃棄物に係る重要核種である¹³⁵Cs の生物圏における適切な環境移行パラメータを収集するための調査をすることが必要である。

表 2.2-1 グローバルフォールアウト ^{137}Cs の土壌中環境半減期 (T_{env})

都道府県	利用形態	相関係数 (R^2)	λ_{eff}	$T_{\text{eff, y}}$	$T_{\text{env, y}}$
北海道	未攪乱土	0.77	0.0432	16	34
北海道	畑地	0.66	0.0281	25	136
岩手県	未攪乱土	0.48	0.0359	19	54
岩手県	畑地	0.60	0.0278	25	144
秋田県	未攪乱土	0.29	0.0291	24	113
山形県	未攪乱土	0.36	0.0154	45*	(302)
福岡県	未攪乱土	0.42	0.0323	21	74
長崎県	未攪乱土	0.79	0.1036	7	9
熊本県	未攪乱土	0.54	0.0529	13	23
大分県	未攪乱土	0.88	0.0387	18	44
宮崎県	畑地	0.88	0.0376	18	48
鹿児島県	未攪乱土	0.77	0.0567	12	21
沖縄県	未攪乱土	0.64	0.0652	11	16

* T_{eff} が Cs-137 の物理学的半減期よりも長い場合には、物理学的半減期の 10 倍を T_{env} と仮定した。

表 2.2-2 グローバルフォールアウト ^{137}Cs の農作物中環境半減期 (T_{env})

都道府県	農作物	相関係数 (R^2)	λ_{eff}	$T_{\text{eff, y}}$	$T_{\text{env, y}}$
北海道	アスパラガス	0.69	0.1003	7	9
北海道	ハクサイ	0.24	0.1208	6	7
北海道	ジャガイモ	0.18	0.0387	18	44
北海道	ダイコン	0.09	0.0327	21	72
北海道	ニンジン	0.27	0.0568	12	20
青森県	キャベツ	0.22	0.0530	13	23
青森県	ダイコン	0.12	0.0228	30*	302
岩手県	ハクサイ	0.26	0.0334	21	67
宮城県	ダイコン葉	0.24	0.0429	16	35
鹿児島県	サツマイモ	0.51	0.0494	14	26
鹿児島県	ダイコン	0.24	0.0273	25	159
鹿児島県	ホウレンソウ	0.08	0.0285	24	125
高知県	ホウレンソウ	0.13	0.0480	14	28
宮崎県	ホウレンソウ	0.52	0.1904	4	4

* T_{eff} が Cs-137 の物理学的半減期よりも長い場合には、物理学的半減期の 10 倍を T_{env} と仮定した。

表 2.2-3 グローバルフォールアウト ^{137}Cs および ^{90}Sr の土壌と農作物間の
環境半減期 (T_{env}) の ANOVA テストの結果

区分	Cs-137	Sr-90
寒冷地域	有意差なし	$p < 0.01$ (作物の T_{env} が短い)
温暖地域	有意差なし	有意差なし

表 2.2-4 グローバルフォールアウト ^{90}Sr の土壌中環境半減期 (T_{env})

都道府県	利用形態	相関係数 (R^2)	λ_{eff}	$T_{\text{eff, y}}$	$T_{\text{env, y}}$
北海道	畑土	0.51	0.0204	34	287
北海道	未攪乱土	0.90	0.0608	11	19
岩手県	畑土	0.36	0.0232	30	287
岩手県	未攪乱土	0.78	0.0597	12	19
宮城県	畑土	0.69	0.0449	15	33
宮城県	未攪乱土	0.63	0.0278	25	190
秋田県	未攪乱土	0.41	0.0789	9	13
山形県	未攪乱土	0.72	0.0339	20	71
高知県	未攪乱土	0.80	0.0329	21	79
福岡県	未攪乱土	0.87	0.0533	13	24
長崎県	未攪乱土	0.73	0.0884	8	11
熊本県	未攪乱土	0.85	0.0523	13	25
大分県	未攪乱土	0.83	0.0833	8	12
宮崎県	畑土	0.72	0.0434	16	36
沖縄県	未攪乱土	0.91	0.0659	11	17

* T_{eff} が Sr-90 の物理学的半減期よりも長い場合には、物理学的半減期の 10 倍を T_{env} と仮定した。

表 2.2-5 グローバルフォールアウト ^{90}Sr の農作物中環境半減期 (T_{env})

都道府県	農作物	相関係数 (R^2)	λ_{eff}	T_{eff} , y	T_{env} , y
北海道	ダイコン	0.43	0.0951	7	10
北海道	ホウレンソウ	0.39	0.1390	5	6
北海道	アスパラガス	0.26	0.0655	11	17
青森県	ダイコン-1	0.56	0.0672	10	16
青森県	ダイコン-2	0.49	0.1151	6	8
青森県	キャベツ-1	0.82	0.1047	7	9
青森県	キャベツ-2	0.49	0.0778	9	13
青森県	ハクサイ	0.24	0.0923	8	10
青森県	デントコーン	0.68	0.1007	7	9
岩手県	ダイコン	0.22	0.0290	24	143
岩手県	ハクサイ	0.61	0.0368	19	55
宮城県	ホウレンソウ	0.24	0.0888	8	11
秋田県	ダイコン	0.70	0.1072	6	8
秋田県	キャベツ	0.64	0.1128	6	8
山形県	ダイコン	0.19	0.0915	8	10
山形県	ホウレンソウ	0.42	0.0554	13	22
高知県	ダイコン	0.52	0.0771	9	13
高知県	ホウレンソウ	0.63	0.1171	6	7
福岡県	ダイコン	0.53	0.0568	12	21
福岡県	ホウレンソウ	0.81	0.1018	7	9
佐賀県	ダイコン	0.51	0.0352	20	63
佐賀県	ホウレンソウ	0.73	0.0762	9	13
佐賀県	サツマイモ	0.46	0.0391	18	46
長崎県	ダイコン	0.36	0.0681	10	16
長崎県	ホウレンソウ	0.36	0.0330	21	79
大分県	ダイコン	0.62	0.0315	22	95
大分県	ホウレンソウ	0.64	0.0519	13	25
宮崎県	ダイコン	0.52	0.0554	13	22
宮崎県	ホウレンソウ	0.36	0.0602	12	19
鹿児島県	ダイコン	0.66	0.0866	8	11
鹿児島県	ホウレンソウ	0.64	0.0717	10	15
鹿児島県	ハクサイ	0.50	0.0728	10	14
鹿児島県	サツマイモ	0.58	0.0650	11	17
沖縄県	ダイコン	0.19	0.0410	17	41

表2.3-1 採取地点、土壌・作物採取日一覧

	都道府県名	市町村名	土地利用	土壌採取日	作物採取日	作物	品種名
1	北海道	瀬棚郡今金町	水田	10/23	9/18	水稲	ふっくりんこ
2	北海道	江別市	水田	9/24	10/1	水稲	ななつぼし
3	北海道	江別市	畑地	9/24	9/17	ジャガイモ	男爵
4	北海道	瀬棚郡今金町	畑地	7/28	7/28	ジャガイモ	男爵
5	青森県	黒石市	水田	10/2	9/30	水稲	つがるロマン
6	青森県	上北郡六戸町	畑地	8/6	8/6	ジャガイモ	メイクイン
7	秋田県	大仙市	水田	9/30	9/22	水稲	秋田こまち
8	秋田県	大仙市	畑地	7/10	7/10	ジャガイモ	キタアカリ
9	岩手県	北上市	水田	10/3	9/22	水稲	ひとめぼれ
10	岩手県	北上市	畑地	8/19	8/19	ジャガイモ	男爵
11	高知県	南国市	水田	8/26	8/26	水稲	コシヒカリ
12	高知県	吾川郡いの町	畑地	6/10	6/10	ジャガイモ	男爵
13	熊本県	菊池市	水田	10/11	10/11	水稲	ヒノヒカリ
14	熊本県	合志市	畑地	6/16	6/16	ジャガイモ	メイクイン
15	宮崎県	都城市	水田	10/21	9/28	水稲	ヒノヒカリ
16	宮崎県	都城市	畑地	5/27	5/27	ジャガイモ	トヨシロ
17	鹿児島県	鹿児島市	水田	8/19	8/2	水稲	イクヒカリ
18	鹿児島県	南さつま市	水田	8/19	8/7	水稲	コシヒカリ
19	鹿児島県	志布志市	畑地	5/22	5/22	ジャガイモ	トヨシロ
20	鹿児島県	鹿屋市	畑地	5/22	5/22	ジャガイモ	トヨシロ

表2.3-2 採取土壌の分類および仮比重一覧

	都道府県名	土地利用	土壌群	土壌亜群	土壌統群	仮比重
1	北海道	水田	泥炭土	低位泥炭土	典型	0.68
2	北海道	水田	グライ低地土	斑鉄型グライ低地土	細粒質	0.94
3	北海道	畑地	褐色森林土	台地褐色森林土	細粒質	0.85
4	北海道	畑地	泥炭土	低位泥炭土	典型	0.88
5	青森県	水田	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	1.13
6	青森県	畑地	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.67
7	秋田県	水田	グライ低地土	表層灰色グライ低地土	細粒質	0.74
8	秋田県	畑地	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	0.85
9	岩手県	水田	グライ台地土	腐植質グライ台地土	-	0.87
10	岩手県	畑地	多湿黒ボク土	普通多湿黒ボク土	典型	0.90
11	高知県	水田	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	1.17
12	高知県	畑地	赤色土	普通赤色土	礫質	0.97
13	熊本県	水田	灰色低地土	腐植質灰色低地土	細粒質	1.04
14	熊本県	畑地	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	腐植質	0.53
15	宮崎県	水田	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	腐植質	0.72
16	宮崎県	畑地	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.61
17	鹿児島県	水田	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.91
18	鹿児島県	水田	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	1.06
19	鹿児島県	畑地	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.72
20	鹿児島県	畑地	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.65

表2.3-3 試料コード一覧（到着順）について

	都道府県名	土地 利用	40℃乾燥 土壌試料コード	作物	凍結乾燥（Freeze dry） 作物試料コード
1	北海道	水田	EPII-SD-4	玄米	EPII-CF-4
2	北海道	水田	EPII-SD-5	玄米	EPII-CF-5
3	北海道	畑地	EFII-SD-30	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-30
4	北海道	畑地	EFII-SD-27	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-27
5	青森県	水田	EPII-SD-7	玄米	EPII-CF-7
6	青森県	畑地	EFII-SD-28	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-28
7	秋田県	水田	EPII-SD-6	玄米	EPII-CF-6
8	秋田県	畑地	EFII-SD-26	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-26
9	岩手県	水田	EP-II-SD-8	玄米	EPII-CF-8
10	岩手県	畑地	EFII-SD-29	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-29
11	高知県	水田	EPII-SD-3	玄米	EPII-CF-3
12	高知県	畑地	EFII-SD-24	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-24
13	熊本県	水田	EPII-SD-9	玄米	EPII-CF-9
14	熊本県	畑地	EFII-SD-25	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-25
15	宮崎県	水田	EPII-SD-10	玄米	EPII-CF-10
16	宮崎県	畑地	EFII-SD-23	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-23
17	鹿児島県	水田	EPII-SD-2	玄米	EPII-CF-2
18	鹿児島県	水田	EPII-SD-1	玄米	EPII-CF-1
19	鹿児島県	畑地	EFII-SD-21	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-21
20	鹿児島県	畑地	EFII-SD-22	ジャガイモ（皮剥き）	EFII-CF-22

表2.3-4 土壤試料前処理状況

試料コード	都道府県名	土地利用	根および小石 含有率 (湿重ベース)	到着時水分含 有量	篩別 (>2mm) 時 廃棄率
EFII-SD-21	鹿児島県	畑地	1.0%	29%	1.4%
EFII-SD-22	鹿児島県	畑地	0.8%	30%	2.1%
EFII-SD-23	宮崎県	畑地	11.6%	32%	14.0%
EFII-SD-24	高知県	畑地	12.6%	20%	13.9%
EFII-SD-25	熊本県	畑地	1.2%	25%	3.2%
EFII-SD-26	秋田県	畑地	1.2%	28%	12.8%
EFII-SD-27	北海道	畑地	1.6%	16%	6.5%
EFII-SD-28	青森県	畑地	1.4%	31%	3.9%
EFII-SD-29	岩手県	畑地	2.0%	24%	10.2%
EFII-SD-30	北海道	畑地	1.3%	28%	3.2%
EPII-SD-1	鹿児島県	水田	1.4%	35%	4.2%
EPII-SD-2	鹿児島県	水田	1.7%	36%	5.3%
EPII-SD-3	高知県	水田	1.7%	30%	3.9%
EPII-SD-4	北海道	水田	3.5%	47%	0.9%
EPII-SD-5	北海道	水田	1.9%	37%	7.2%
EPII-SD-6	秋田県	水田	4.3%	45%	14.0%
EPII-SD-7	青森県	水田	6.0%	29%	5.2%
EPII-SD-8	岩手県	水田	6.4%	43%	19.4%
EPII-SD-9	熊本県	水田	3.9%	32%	5.0%
EPII-SD-10	宮崎県	水田	16.6%	45%	14.2%

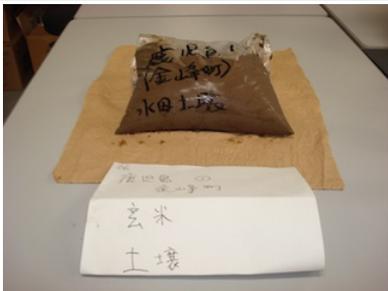
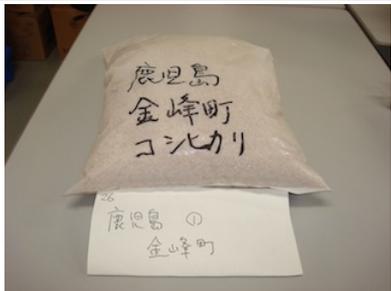
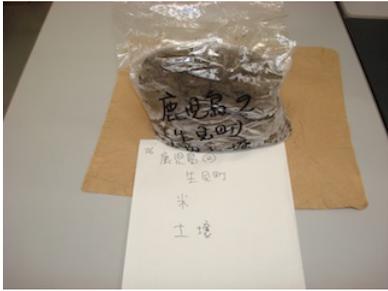
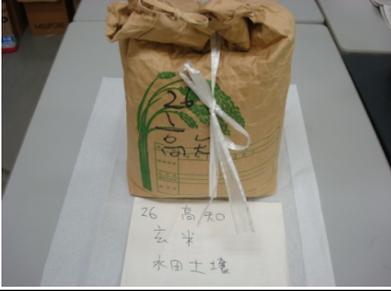
表 2.3-5 ジャガイモの廃棄率と可食部および非可食部の水分含量

試料コード	都道府県名	作物	廃棄率 (湿重ベース)	可食部の水 分含量	非可食部の 水分含量
EFII-CF-21	鹿児島県	ジャガイモ	14.1%	79.8%	83.2%
EFII-CF-22	鹿児島県	ジャガイモ	14.1%	76.7%	83.0%
EFII-CF-23	宮崎県	ジャガイモ	12.0%	77.9%	83.6%
EFII-CF-24	高知県	ジャガイモ	12.1%	78.3%	83.4%
EFII-CF-25	熊本県	ジャガイモ	16.7%	76.1%	77.8%
EFII-CF-26	秋田県	ジャガイモ	12.4%	78.7%	82.4%
EFII-CF-27	北海道	ジャガイモ	18.5%	76.5%	78.7%
EFII-CF-28	青森県	ジャガイモ	17.0%	79.4%	80.6%
EFII-CF-29	岩手県	ジャガイモ	10.1%	82.4%	87.5%
EFII-CF-30	北海道	ジャガイモ	18.7%	75.9%	77.3%

表 2.3-6 玄米の水分含量と精米歩合

試料コード	都道府県名	作物	玄米の水分含量 (凍結乾燥)	精米歩合
EPII-CF-1	鹿児島県	玄米	9.7%	91.6%
EPII-CF-2	鹿児島県	玄米	11.8%	91.5%
EPII-CF-3	高知県	玄米	7.6%	91.2%
EPII-CF-4	北海道	玄米	8.1%	91.3%
EPII-CF-5	北海道	玄米	9.3%	90.2%
EPII-CF-6	秋田県	玄米	7.6%	92.0%
EPII-CF-7	青森県	玄米	9.5%	90.2%
EPII-CF-8	岩手県	玄米	8.1%	91.8%
EPII-CF-9	熊本県	玄米	7.9%	91.6%
EPII-CF-10	宮崎県	玄米	5.6%	91.7%

表 2.3-7 試料到着時の状態 (1) 玄米

番号	採取場所	土壌	作物
1	鹿児島 1 2014.8.21 2014.8.21 (上段：土壌到着日、 下段：作物到着日)	 A brown paper bag containing soil, with handwritten text: 鹿児島 1, 金峰町, 水田土壌. Below it is a white label with handwritten text: 玄米, 土壌.	 A white paper bag containing rice, with handwritten text: 鹿児島, 金峰町, コシカリ. Below it is a white label with handwritten text: 鹿児島の, 金峰町.
2	鹿児島 2 2014.8.21 2014.8.21	 A clear plastic bag containing soil, with handwritten text: 鹿児島 2, 生貝町. Below it is a white label with handwritten text: 鹿児島の, 生貝町, 土, 土壌.	 A brown paper bag with a green logo and text: 株式会社 実取園. Below it is a white label with handwritten text: 鹿児島の, 生貝町, 米, 土壌.
3	高知 2014.8.27 2014.10.29	 A clear plastic bag containing soil, placed on a newspaper. Below it is a white label with handwritten text: 高知, 水田土壌.	 A brown paper bag with a green logo and text: 高知. Below it is a white label with handwritten text: 26 高知, 玄米, 水田土壌.
4	北海道 1 2014.9.25 2014.9.25	 A clear plastic bag containing soil, with handwritten text: 北海道 1, 土壌(今金). Below it is a white label with handwritten text: 26 北海道 1, 土壌(今金), 玄米.	 A white paper bag with a logo and text: 北海道産, 令和元年産. Below it is a white label with handwritten text: 26 北海道 1, 土壌(今金), 玄米.
5	北海道 2 2014.9.26 2014.10.28	 A clear plastic bag containing soil, with handwritten text: 北海道 2, 土壌(江別). Below it is a white label with handwritten text: 26 北海道 2, 土壌(江別), (玄米).	 Two clear plastic bags containing rice, placed on a newspaper. Below them is a white label with handwritten text: 26 北海道 2, (江別), 玄米.

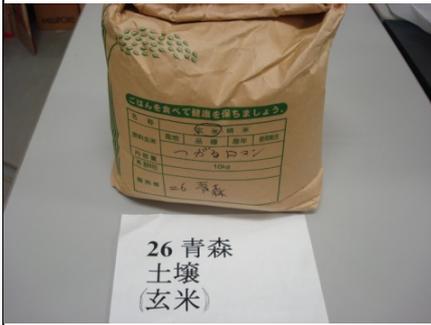
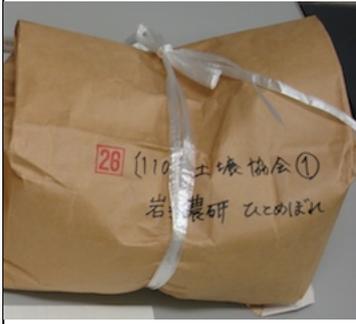
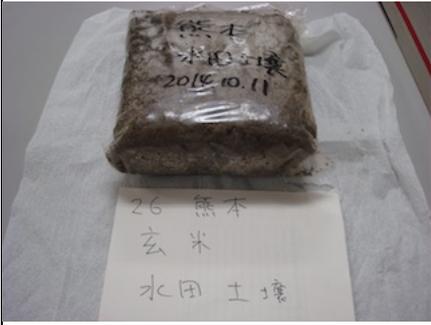
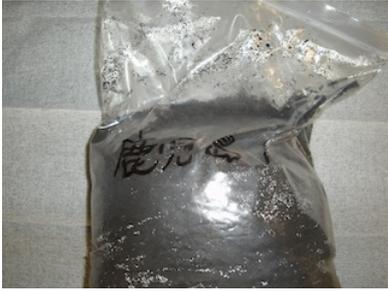
番号		土壌	作物
6	秋田 2014.10.1 2014.10.1	 26 秋田 土壌 玄米	 26 秋田 土壌 玄米
7	青森 2014.10.3 2014.10.23	 26 青森 土壌 (玄米)	 26 青森 土壌 (玄米)
8	岩手 2014.10.6 2014.10.16	 26 岩手 玄米 水田 土壌	 26 (110) 土壌協会① 岩手農研 ひこめぼれ
9	熊本 2014.10.14 2014.10.29	 26 熊本 玄米 水田 土壌	 26 熊本 玄米 水田 土壌
10	宮崎 2014.10.22 2014.10.22	 26 宮崎 土壌 玄米	 26 宮崎 土壌 玄米

表 2.3-7 試料到着時の状態 (2) ジャガイモ

番号		土壌	作物
1	鹿児島 1 2014.5.23 2014.5.23		
2	鹿児島 2 2014.5.23 2014.5.23		
3	宮崎 2014.5.28 2014.5.28		
4	高知 2014.6.11 2014.6.11		
5	熊本 2014.6.18 2014.6.18		

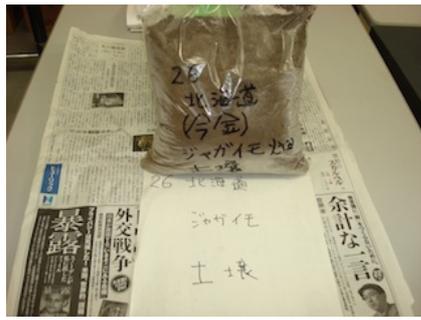
番号		土壌	作物
6	秋田 2014.7.11 2014.7.11		
7	北海道 1 2014.7.30 2014.7.30		
8	青森 2014.8.7 2014.8.7		
9	岩手 2014.8.20 2014.8.20		
10	北海道 2 2014.9.26 2014.10.28		

表 2.3-8 H26 年度採取土壌試料の物理化学的特性および元素濃度 (1/2)

試料コード	pH	塩基置換	置換性	置換性 K	活性 Al	活性 Fe	B	C	N	Al	Na	Mg	Si	P
	(H ₂ O)	容量	Ca											
	meq/100g	mg/100g	mg/100g	g/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry
EFII-SD-21	6.2	33.1	282	17.9	44.2	12.6	14.9	94.6	4.4	84.6	10.9	8.4	180	2.0
	6.2	33.2	289	17.9	45.0	12.8	16.0	94.1	4.6	84.0	11.3	8.7	184	2.0
Avg.	6.2	33.2	286	17.9	44.6	12.7	15.5	94.4	4.5	84.3	11.1	8.6	182	2.0
EFII-SD-22	5.3	22.5	84	10.1	39.0	9.9	18.4	62.5	3.0	89.7	14.2	8.6	203	2.0
	5.3	22.7	88	9.4	39.4	9.9	19.4	64.4	3.5	86.3	14.7	8.7	204	1.8
Avg.	5.3	22.6	86	9.7	39.2	9.9	18.9	63.4	3.2	88.0	14.4	8.7	203	1.9
EFII-SD-23	4.7	13.8	38	29.9	22.7	7.9	26.3	37.3	3.4	84.1	17.3	12.1	235	3.0
	4.8	13.5	39	30.5	21.9	7.8	29.5	37.7	3.8	80.8	17.3	12.0	246	2.9
Avg.	4.8	13.7	39	30.2	22.3	7.9	27.9	37.5	3.6	82.4	17.3	12.0	240	2.9
EFII-SD-24	5.4	22.2	249	14.1	1.5	1.7	3.4	3.4	0.3	93.9	11.8	40.1	214	0.6
	5.4	21.1	263	13.7	1.5	1.7	4.2	3.1	0.6	88.4	12.0	39.6	211	0.6
Avg.	5.4	21.6	256	13.9	1.5	1.7	3.8	3.2	0.4	91.2	11.9	39.8	212	0.6
EFII-SD-25	7.2	38.0	809	54.8	48.4	19.6	24.9	81.3	4.9	97.8	4.3	3.5	156	3.7
	7.1	38.3	801	58.0	48.6	19.6	25.6	81.2	5.2	95.6	4.6	3.5	163	3.5
Avg.	7.1	38.1	805	56.4	48.5	19.6	25.3	81.2	5.1	96.7	4.5	3.5	159	3.6
EFII-SD-26	5.9	33.3	581	60.5	2.9	7.9	21.2	41.7	2.4	57.7	11.1	5.9	287	2.3
	5.8	33.5	588	61.6	3.0	8.0	24.8	43.8	2.7	57.0	11.1	5.6	292	2.2
Avg.	5.9	33.4	585	61.0	3.0	8.0	23.0	42.7	2.6	57.3	11.1	5.7	289	2.3
EFII-SD-27	5.7	15.9	223	26.0	2.3	3.0	25.9	20.8	1.6	77.6	17.5	9.3	276	1.4
	5.8	15.7	229	26.7	2.2	2.8	25.8	20.2	1.9	78.8	17.5	9.3	274	1.3
Avg.	5.7	15.8	226	26.3	2.3	2.9	25.9	20.5	1.7	78.2	17.5	9.3	275	1.3
EFII-SD-28	6.0	21.8	192	28.2	33.0	9.1	16.3	9.9	3.3	90.0	15.6	14.4	194	1.7
	6.1	21.6	195	26.0	32.0	8.7	14.7	47.2	3.4	81.8	16.1	14.5	204	1.8
Avg.	6.0	21.7	193	27.1	32.5	8.9	15.5	48.5	3.4	85.9	15.9	14.4	199	1.8
EFII-SD-29	5.2	22.3	94	65.5	13.3	11.1	37.2	29.5	2.2	97.2	4.8	4.8	223	1.4
	5.1	21.6	95	70.2	13.4	11.3	40.8	29.6	2.5	91.0	4.6	6.5	223	1.4
Avg.	5.1	21.9	94	67.8	13.3	11.2	39.0	29.5	2.4	94.1	4.7	5.6	223	1.4
EFII-SD-30	5.7	25.7	222	40.9	8.1	10.1	38.5	45.2	3.1	83.5	11.0	6.2	238	1.2
	5.7	24.9	215	39.7	8.0	9.9	40.4	45.0	3.4	85.2	11.0	5.8	243	1.2
Avg.	5.7	25.3	219	40.3	8.0	10.0	39.5	45.1	3.2	84.3	11.0	6.0	241	1.2
EPII-SD-1	6.1	8.4	104	33.6	4.5	3.0	19.0	13.9	1.2	81.3	19.1	3.4	269	0.8
	6.1	8.6	105	34.8	4.4	3.1	20.7	12.7	1.5	74.2	19.6	4.2	277	0.7
Avg.	6.1	8.5	104	34.2	4.5	3.1	19.9	13.3	1.3	77.8	19.3	3.8	273	0.8
EPII-SD-2	5.8	7.7	58	25.3	6.0	1.1	22.0	20.5	2.0	78.5	19.3	5.5	282	1.6
	5.8	8.0	60	25.8	5.7	1.1	23.3	20.2	2.3	74.2	20.0	5.2	277	1.7
Avg.	5.8	7.8	59	25.5	5.9	1.1	22.7	20.3	2.2	76.3	19.6	5.4	279	1.7
EPII-SD-3	6.1	15.9	228	20.9	4.0	3.7	50.3	28.0	2.4	74.7	10.7	11.5	285	1.8
	6.1	15.2	230	21.6	4.0	3.7	54.0	27.7	2.7	71.0	10.8	11.8	270	1.8
Avg.	6.1	15.6	229	21.3	4.0	3.7	52.2	27.9	2.5	72.8	10.8	11.6	277	1.8
EPII-SD-4	5.4	20.6	176	28.0	2.9	6.1	16.8	29.0	2.1	80.6	15.4	7.9	245	1.2
	5.4	19.7	172	26.0	2.7	6.0	16.6	29.5	2.5	84.0	15.6	7.6	257	1.2
Avg.	5.4	20.2	174	27.0	2.8	6.0	16.7	29.3	2.3	82.3	15.5	7.8	251	1.2
EPII-SD-5	5.0	16.6	93	22.2	2.2	9.4	28.1	30.7	2.6	77.1	13.8	4.6	272	0.9
	5.0	16.3	95	21.9	2.2	9.4	27.5	30.8	2.8	80.2	14.6	5.6	278	1.0
Avg.	5.0	16.5	94	22.1	2.2	9.4	27.8	30.8	2.7	78.6	14.2	5.1	275	1.0
EPII-SD-6	5.1	26.6	235	15.6	3.5	19.7	20.9	26.4	2.6	66.1	7.7	5.7	282	1.9
	5.1	26.8	237	14.1	3.6	19.7	20.3	26.5	2.9	68.8	8.3	6.3	288	2.0
Avg.	5.1	26.7	236	14.8	3.6	19.7	20.6	26.5	2.8	67.5	8.0	6.0	285	1.9
EPII-SD-7	5.1	15.1	101	9.8	2.0	15.8	14.4	19.2	1.7	85.2	13.8	5.1	256	1.4
	5.1	15.2	102	10.4	2.0	15.8	14.0	19.4	2.0	84.9	14.4	5.0	260	1.4
Avg.	5.1	15.2	102	10.1	2.0	15.8	14.2	19.3	1.8	85.1	14.1	5.1	258	1.4
EPII-SD-8	5.5	23.9	211	14.9	5.9	6.1	21.6	41.8	2.7	90.0	8.8	4.3	256	1.2
	5.5	24.2	216	14.7	5.9	6.1	20.7	42.0	3.0	85.3	9.2	6.8	259	1.3
Avg.	5.5	24.1	213	14.8	5.9	6.1	21.2	41.9	2.8	87.7	9.0	5.6	258	1.2
EPII-SD-9	5.4	17.1	142	25.7	4.9	10.2	11.0	24.5	2.4	113	9.9	11.1	215	17.9
	5.4	17.3	147	25.3	4.8	10.2	12.1	25.2	2.8	106	10.7	8.3	217	17.8
Avg.	5.4	17.2	145	25.5	4.8	10.2	11.6	24.9	2.6	110	10.3	9.7	216	17.9
EPII-SD-10	6.3	13.3	172	6.7	17.7	5.5	31.9	34.8	3.2	85.5	14.7	8.9	243	2.0
	6.2	13.2	172	7.5	17.4	5.9	31.9	36.5	3.6	87.9	16.2	9.2	249	2.1
Avg.	6.3	13.3	172	7.1	17.6	5.7	31.9	35.6	3.4	86.7	15.5	9.0	246	2.0

表 2.3-8 (つづき) (2/2)

検体No.	K	Ca	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Sr	Ba	Hg
	g/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry						
EFII-SD-21	6.4	19.4	204	16.4	1119	49.2	12.9	6.6	18.9	92.7	59	105	0.03
	6.9	18.3	204	13.9	1132	48.7	12.3	5.1	16.4	90.7	64	109	0.03
Avg.	6.7	18.8	204	15.1	1126	48.9	12.6	5.8	17.7	91.7	62	107	0.03
EFII-SD-22	7.9	20.2	192	13.6	1129	48.1	11.1	5.7	17.0	87.4	69	124	0.06
	8.4	20.3	191	13.7	1091	42.1	11.8	4.7	15.4	86.1	80	134	0.05
Avg.	8.2	20.2	192	13.7	1110	45.1	11.4	5.2	16.2	86.8	74	129	0.05
EFII-SD-23	11.8	26.2	209	21.0	1099	41.9	13.9	11.0	36.9	98.1	107	184	0.03
	11.7	25.1	199	20.0	1051	40.5	14.1	10.8	35.7	99.3	119	180	0.03
Avg.	11.8	25.6	204	20.5	1075	41.2	14.0	10.9	36.3	98.7	113	182	0.03
EFII-SD-24	1.6	47.4	476	679	1507	84.1	54.6	187	127.0	83.9	19	27	0.01
	1.6	45.0	442	664	1407	79.2	54.1	188	128.4	83.2	20	23	0.01
Avg.	1.6	46.2	459	672	1457	81.7	54.3	187	127.7	83.6	19	25	0.01
EFII-SD-25	7.0	14.4	212	40.4	1237	54.4	16.9	21.4	56.3	107	30	156	0.13
	7.3	14.3	202	39.1	1165	51.6	16.9	20.4	53.1	110	37	149	0.11
Avg.	7.2	14.3	207	39.8	1201	53.0	16.9	20.9	54.7	108	34	153	0.12
EFII-SD-26	11.6	10.3	105	28.2	1098	24.6	8.2	11.7	30.2	130	60	285	0.18
	11.6	10.3	98	30.1	1081	25.0	8.4	11.9	31.0	124	64	271	0.22
Avg.	11.6	10.3	102	29.2	1089	24.8	8.3	11.8	30.6	127	62	278	0.20
EFII-SD-27	14.9	25.0	163	35.0	824	34.6	11.8	14.5	20.6	77.7	133	377	0.08
	15.3	25.1	153	35.8	817	34.9	11.9	15.0	21.0	80.8	170	366	0.07
Avg.	15.1	25.0	158	35.4	821	34.7	11.8	14.7	20.8	79.3	152	372	0.08
EFII-SD-28	4.9	27.2	202	25.8	1466	48.2	13.2	9.2	13.6	111	154	153	0.10
	5.1	27.6	203	28.2	1447	47.5	13.3	9.6	14.5	110	176	161	0.10
Avg.	5.0	27.4	203	27.0	1456	47.8	13.3	9.4	14.0	110	165	157	0.10
EFII-SD-29	12.0	3.3	196	73.5	1028	47.5	18.7	36.0	30.8	117	25	189	0.18
	12.1	3.6	197	77.9	1032	49.1	19.7	37.4	32.5	124	37	250	0.18
Avg.	12.0	3.5	197	75.7	1030	48.3	19.2	36.7	31.6	120	31	220	0.18
EFII-SD-30	10.2	13.1	162	38.5	1262	39.8	13.1	16.8	30.6	106	74	311	0.11
	10.6	13.2	164	39.8	1241	39.5	13.4	17.6	29.9	106	79	305	0.11
Avg.	10.4	13.2	163	39.2	1251	39.6	13.3	17.2	30.3	106	76	308	0.11
EPII-SD-1	12.5	15.8	87	17.5	575	24.2	6.6	4.7	9.3	76.8	67	250	0.03
	12.0	15.5	95	16.8	629	22.4	6.4	4.6	8.8	72.7	99	335	0.04
Avg.	12.3	15.7	91	17.1	602	23.3	6.5	4.6	9.0	74.7	83	292	0.03
EPII-SD-2	14.9	16.1	103	30.0	495	18.1	5.7	6.5	14.6	78.4	105	327	0.07
	14.0	16.4	95	24.8	473	18.0	6.0	6.2	15.8	78.8	115	351	0.06
Avg.	14.5	16.2	99	27.4	484	18.0	5.8	6.3	15.2	78.6	110	339	0.07
EPII-SD-3	15.7	6.8	159	121	574	31.9	15.1	55.8	38.8	120	70	285	0.51
	15.3	7.1	153	127	562	33.0	16.2	56.0	41.4	121	78	305	0.46
Avg.	15.5	7.0	156	124	568	32.4	15.7	55.9	40.1	121	74	295	0.48
EPII-SD-4	14.2	23.2	172	54.3	781	40.9	15.6	24.7	20.2	94.0	123	262	0.07
	14.0	24.8	173	60.6	788	42.9	16.6	25.1	21.9	102	120	264	0.06
Avg.	14.1	24.0	172	57.4	785	41.9	16.1	24.9	21.0	97.8	122	263	0.07
EPII-SD-5	12.0	11.4	145	83.7	443	30.0	12.8	33.6	19.1	82.2	78	233	0.09
	12.1	12.1	153	78.1	432	32.0	13.9	34.9	20.6	83.2	86	272	0.09
Avg.	12.0	11.8	149	80.9	437	31.0	13.3	34.2	19.8	82.7	82	253	0.09
EPII-SD-6	10.1	5.2	118	60.9	685	34.8	11.2	20.7	24.3	120	53	256	0.25
	10.2	5.5	124	57.4	685	35.1	11.0	22.2	23.6	116	52	252	0.26
Avg.	10.1	5.3	121	59.2	685	34.9	11.1	21.5	23.9	118	53	254	0.26
EPII-SD-7	5.9	18.2	143	23.8	1945	63.4	12.1	8.5	18.6	123	115	222	0.11
	5.7	17.9	148	22.4	1994	62.3	11.5	8.9	17.3	115	113	230	0.11
Avg.	5.8	18.0	146	23.1	1970	62.8	11.8	8.7	17.9	119	114	226	0.11
EPII-SD-8	12.8	5.4	140	54.3	582	30.9	13.7	20.2	33.7	130	30	109	0.12
	14.0	5.7	158	49.3	608	31.6	13.1	18.5	31.7	120	41	180	0.11
Avg.	13.4	5.5	149	51.8	595	31.2	13.4	19.4	32.7	125	36	144	0.12
EPII-SD-9	7.5	17.8	233	103	756	53.2	21.9	37.6	46.2	147	171	362	0.10
	8.3	18.6	225	100	486	55.4	21.1	37.5	45.0	139	142	290	0.11
Avg.	7.9	18.2	229	101	621	54.3	21.5	37.6	45.6	143	157	326	0.10
EPII-SD-10	12.5	26.0	168	104	970	40.0	14.5	15.0	51.8	125	132	281	0.04
	12.7	27.3	181	106	1025	42.0	15.1	14.7	53.6	126	129	281	0.05
Avg.	12.6	26.7	174	105	998	41.0	14.8	14.9	52.7	126	131	281	0.04

表 2.3-9 H26 年度採取農作物試料の元素濃度 (1/2)

試料コード	B	C	N	Na	Mg	Al	Si	P	K	Ca
	mg/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-CF-21	23	396	12.0	158	1.14	2.4	2.3	1770	21.5	147
	23	394	15.0	101	1.11	1.9	2.0	1779	20.8	127
Avg.	23	395	13.5	130	1.12	2.1	2.2	1775	21.2	137
EFII-CF-22	19	402	10.8	167	1.27	2.4	1.7	1603	20.1	148
	17	399	13.1	122	1.32	2.3	2.2	1619	19.2	136
Avg.	18	401	11.9	145	1.29	2.3	2.0	1611	19.6	142
EFII-CF-23	18	393	11.9	124	1.11	2.5	6.3	2250	18.4	131
	16	390	14.1	87	1.14	2.4	5.6	2278	17.7	120
Avg.	17	391	13.0	106	1.12	2.4	6.0	2264	18.1	126
EFII-CF-24	16	405	7.6	123	0.91	2.5	6.5	2202	17.7	240
	14	404	10.3	77	0.90	2.2	6.5	2244	17.0	233
Avg.	15	405	9.0	100	0.90	2.3	6.5	2223	17.3	237
EFII-CF-25	14	413	11.2	121	0.89	2.6	2.0	1708	15.4	266
	12	411	13.7	80	0.88	2.1	0.5	1707	14.9	264
Avg.	13	412	12.4	101	0.88	2.3	1.3	1708	15.1	265
EFII-CF-26	13	412	12.0	158	0.91	3.2	6.4	3183	20.1	394
	12	410	14.9	103	0.97	3.0	6.4	3151	18.8	387
Avg.	13	411	13.4	131	0.94	3.1	6.4	3167	19.4	391
EFII-CF-27	12	411	10.3	160	1.14	3.3	5.4	2600	16.4	261
	11	409	12.6	108	1.16	3.2	5.1	2579	15.4	247
Avg.	11	410	11.4	134	1.15	3.2	5.3	2590	15.9	254
EFII-CF-28	12	413	10.7	161	0.81	3.2	3.7	1895	16.7	203
	10	413	12.8	111	0.84	3.1	3.8	1858	15.8	184
Avg.	11	413	11.7	136	0.83	3.2	3.8	1877	16.2	193
EFII-CF-29	12	409	13.2	132	1.12	3.2	5.4	2085	19.4	285
	11	404	15.5	87	1.18	3.1	6.3	2072	18.2	279
Avg.	12	406	14.4	110	1.15	3.1	5.9	2079	18.8	282
EFII-CF-30	10	420	10.3	146	0.96	3.1	5.3	1825	14.6	261
	9	417	13.1	99	1.04	3.0	5.2	1823	13.6	247
Avg.	10	418	11.7	122	1.00	3.0	5.3	1824	14.1	254
EPII-CF-1	15	420	14.1	108	1.59	2.5	493	3888	3.0	152
	20	427	14.4	111	1.60	2.5	492	3791	2.9	145
Avg.	18	424	14.2	110	1.60	2.5	493	3840	2.9	148
EPII-CF-2	11	420	12.2	115	1.43	2.5	780	3568	3.0	184
	15	422	12.8	113	1.42	2.6	775	3505	3.0	172
Avg.	13	42	12.5	114	1.43	2.6	778	3537	3.0	178
EPII-CF-3	9	429	14.1	83	1.37	2.8	60	2995	2.1	172
	12	424	14.0	81	1.37	2.7	58	3057	2.2	163
Avg.	10	427	14.0	82	1.37	2.7	59	3026	2.1	168
EPII-CF-4	9	418	14.0	91	1.34	2.6	74	3277	2.7	150
	11	414	14.6	89	1.33	2.6	68	3178	2.7	138
Avg.	10	416	14.3	90	1.34	2.6	71	3228	2.7	144
EPII-CF-5	8	421	13.4	78	1.36	2.7	142	3391	2.6	174
	10	419	13.7	79	1.36	2.6	149	3352	2.6	162
Avg.	9	420	13.5	78	1.36	2.7	145	3372	2.6	168
EPII-CF-6	8	414	11.0	77	1.26	2.5	180	3102	2.5	147
	10	413	12.6	73	1.28	2.6	187	3020	2.4	134
Avg.	9	413	11.8	75	1.27	2.5	184	3061	2.4	140
EPII-CF-7	7	416	12.0	80	1.24	2.6	174	3030	2.7	140
	9	416	14.7	75	1.25	2.5	167	2982	2.7	130
Avg.	8	416	13.4	78	1.24	2.6	170	3006	2.7	135
EPII-CF-8	7	417	12.0	73	1.30	2.7	132	2909	2.0	176
	9	416	13.6	72	1.31	2.5	131	2812	2.0	163
Avg.	8	416	12.8	73	1.31	2.6	131	2861	2.0	169
EPII-CF-9	6	416	12.4	68	1.43	2.6	88	3005	2.1	141
	8	418	14.3	66	1.43	2.7	95	3005	2.1	130
Avg.	7	417	13.3	67	1.43	2.6	91	3005	2.1	135
EPII-CF-10	6	415	12.7	73	1.60	2.7	92	3174	2.3	156
	8	414	15.1	68	1.56	2.8	96	3232	2.3	141
Avg.	7	414	13.9	71	1.58	2.7	94	3203	2.3	149

表 2.3-9 (つづき) (2/2)

試料コード	V	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Sr	Cd	Ba
	mg/kg-dry									
EFII-CF-21	4.6	8.7	17.5	0.08	0.12	3.37	14.1	0.42	0.061	0.42
	2.3	8.2	17.3	0.07	0.10	3.58	14.1	0.58	0.061	0.23
Avg.	3.5	8.5	17.4	0.08	0.11	3.48	14.1	0.50	0.061	0.33
EFII-CF-22	4.3	8.0	13.4	0.08	0.05	1.25	10.5	0.50	0.014	0.42
	3.2	8.2	13.1	0.06	0.03	1.33	10.8	0.48	0.015	0.21
Avg.	3.8	8.1	13.2	0.07	0.04	1.29	10.7	0.49	0.015	0.32
EFII-CF-23	3.8	9.4	15.7	0.06	0.51	5.55	17.8	0.34	0.069	0.42
	2.3	9.8	15.3	0.05	0.47	5.63	17.2	0.44	0.070	0.23
Avg.	3.1	9.6	15.5	0.06	0.49	5.59	17.5	0.39	0.070	0.33
EFII-CF-24	3.2	8.5	10.9	0.06	1.42	5.50	9.1	0.52	0.017	0.45
	1.4	8.4	10.7	0.06	1.44	5.43	9.4	0.57	0.017	0.24
Avg.	2.3	8.5	10.8	0.06	1.43	5.46	9.2	0.55	0.017	0.35
EFII-CF-25	3.3	7.1	13.1	0.06	0.04	3.50	14.1	0.33	0.091	0.43
	1.3	6.9	12.5	0.04	0.02	3.78	13.8	0.34	0.095	0.20
Avg.	2.3	7.0	12.8	0.05	0.03	3.64	14.0	0.34	0.093	0.31
EFII-CF-26	3.6	8.0	18.4	0.05	0.21	4.75	17.9	0.39	0.146	0.49
	2.0	8.0	18.4	0.04	0.22	4.87	17.9	0.36	0.142	0.25
Avg.	2.8	8.0	18.4	0.05	0.21	4.81	17.9	0.38	0.144	0.37
EFII-CF-27	3.6	8.6	19.3	0.05	0.36	6.57	11.8	0.68	0.122	0.58
	2.2	8.5	19.2	0.05	0.38	6.73	11.9	0.65	0.124	0.35
Avg.	2.9	8.6	19.2	0.05	0.37	6.65	11.8	0.67	0.123	0.47
EFII-CF-28	2.9	7.3	15.9	0.05	0.12	1.79	14.9	0.48	0.109	0.50
	1.5	7.2	15.6	0.04	0.12	1.82	14.0	0.46	0.108	0.28
Avg.	2.2	7.3	15.7	0.05	0.12	1.81	14.4	0.47	0.109	0.39
EFII-CF-29	3.6	10.4	19.3	0.05	0.16	7.52	16.0	0.81	0.271	0.77
	2.3	10.5	19.2	0.04	0.16	7.60	15.0	0.79	0.269	0.55
Avg.	2.9	10.5	19.3	0.04	0.16	7.56	15.5	0.80	0.270	0.66
EFII-CF-30	3.3	9.6	16.5	0.05	0.42	4.74	12.8	0.53	0.096	0.53
	2.1	9.6	16.5	0.04	0.40	4.43	12.4	0.50	0.090	0.33
Avg.	2.7	9.6	16.5	0.05	0.41	4.58	12.6	0.51	0.093	0.43
EPII-CF-1	3.9	35.6	12.1	0.08	0.05	2.33	31.3	0.95	0.009	0.35
	3.0	32.5	12.4	0.05	0.06	2.39	31.0	1.23	0.009	0.42
Avg.	3.5	34.0	12.3	0.07	0.05	2.36	31.1	1.09	0.009	0.39
EPII-CF-2	3.3	26.0	12.5	0.05	0.21	3.13	29.3	0.94	0.055	0.29
	2.4	23.5	12.1	0.05	0.22	3.12	29.3	0.84	0.057	0.32
Avg.	2.9	24.7	12.3	0.05	0.22	3.12	29.3	0.89	0.056	0.30
EPII-CF-3	2.3	28.2	16.0	0.05	0.58	4.92	22.5	0.39	0.096	0.24
	1.7	25.5	15.7	0.04	0.57	4.84	23.3	0.43	0.096	0.24
Avg.	2.0	26.8	15.9	0.05	0.58	4.88	22.9	0.41	0.096	0.24
EPII-CF-4	2.7	32.0	7.2	0.05	0.17	0.82	19.5	0.52	0.016	0.25
	1.9	29.4	7.0	0.04	0.15	0.81	19.9	0.59	0.015	0.21
Avg.	2.3	30.7	7.1	0.05	0.16	0.82	19.7	0.55	0.016	0.23
EPII-CF-5	2.3	37.2	9.2	0.05	0.26	2.69	22.6	0.26	0.030	0.20
	1.5	33.8	9.4	0.04	0.25	2.62	22.8	0.30	0.031	0.20
Avg.	1.9	35.5	9.3	0.04	0.25	2.66	22.7	0.28	0.031	0.20
EPII-CF-6	2.4	41.6	9.3	0.06	0.40	3.02	24.3	0.44	0.121	0.26
	1.8	38.0	9.1	0.05	0.39	3.01	23.9	0.35	0.124	0.23
Avg.	2.1	39.8	9.2	0.05	0.39	3.02	24.1	0.40	0.123	0.24
EPII-CF-7	2.3	77.0	7.5	0.05	0.17	3.35	20.1	0.33	0.009	0.26
	1.7	69.3	7.6	0.04	0.17	3.24	20.2	0.36	0.008	0.25
Avg.	2.0	73.2	7.5	0.04	0.17	3.29	20.1	0.34	0.009	0.25
EPII-CF-8	2.1	30.2	9.5	0.05	0.08	2.61	19.0	0.25	0.004	0.27
	1.7	27.5	9.6	0.05	0.08	2.49	19.0	0.27	0.004	0.26
Avg.	1.9	28.9	9.5	0.05	0.08	2.55	19.0	0.26	0.004	0.26
EPII-CF-9	2.3	29.8	10.8	0.04	0.13	3.07	24.7	0.40	0.049	0.24
	2.0	27.2	10.6	0.04	0.12	3.03	24.5	0.42	0.049	0.22
Avg.	2.1	28.5	10.7	0.04	0.13	3.05	24.6	0.41	0.049	0.23
EPII-CF-10	2.7	26.0	11.7	0.04	0.10	1.40	24.9	0.20	0.003	0.21
	2.2	23.3	12.6	0.04	0.09	1.39	25.3	0.22	0.002	0.19
Avg.	2.5	24.7	12.2	0.04	0.09	1.40	25.1	0.21	0.003	0.20

表 2.3-10 H25 年度採取土壌試料の元素分析（データ追加）（1/4）

試料コード	7 Li	9 Be	45 Sc	47 Ti	51 V	52 Cr	55 Mn	59 Co	60 Ni	63 Cu	66 Zn	71 Ga
EFII-	mg/kg-dry											
SD-1	37.31	1.09	12.38	4912.58	96.14	81.17	608.83	11.31	42.32	23.27	73.96	13.38
	0.03	0.10	0.41	232.10	0.65	5.89	21.06	0.84	1.43	1.87	2.77	0.61
SD-2	37.00	1.65	15.01	7157.74	141.12	228.05	1422.53	25.94	106.91	67.73	188.94	16.13
	0.39	0.06	0.15	280.69	0.90	12.57	50.00	1.20	1.78	5.29	16.22	0.61
SD-3	31.40	1.90	14.88	6718.21	202.46	54.37	1046.11	18.97	27.21	57.63	111.70	20.85
	0.07	0.06	0.24	245.97	2.77	3.45	17.09	1.12	0.63	4.21	9.98	0.63
SD-4	31.49	1.61	17.41	6712.25	204.14	52.26	1039.25	19.21	25.08	52.99	131.51	20.66
	0.49	0.07	0.90	250.74	1.89	3.19	14.87	1.19	0.55	3.76	6.68	0.31
SD-5	26.74	1.74	12.87	6446.80	187.89	64.80	887.32	17.48	25.84	54.02	84.14	19.11
	0.76	0.01	0.47	290.67	0.63	3.84	5.82	0.91	0.55	3.41	4.89	0.26
SD-6	20.06	1.48	13.85	6106.39	193.75	82.04	952.94	17.13	24.78	53.80	85.15	14.97
	0.61	0.01	2.00	432.06	9.10	11.99	52.50	0.52	3.07	6.82	6.13	0.86
SD-7	11.92	0.93	15.02	4475.84	136.34	13.72	925.76	11.57	5.90	20.63	64.79	15.20
	0.44	0.04	1.69	280.76	5.80	1.62	44.84	0.20	0.46	1.30	4.58	0.83
SD-8	13.03	0.96	15.67	4585.90	146.23	17.45	987.00	12.36	7.00	26.38	80.51	14.71
	0.64	0.00	1.59	252.72	4.63	1.64	34.13	0.07	0.60	2.11	3.62	0.55
SD-9	20.27	1.43	17.27	5011.57	154.76	16.90	1049.70	13.46	6.58	18.07	101.61	18.60
	0.99	0.01	1.51	231.34	3.95	1.29	33.65	0.03	0.38	0.66	4.95	0.63
SD-10	14.36	0.84	19.99	3937.41	166.11	29.19	959.49	16.15	11.49	71.69	165.65	14.77
	0.66	0.05	1.19	123.96	1.67	1.92	18.61	0.08	0.61	3.54	7.01	0.41
SD-11	59.94	2.12	14.23	4999.26	130.77	84.10	594.11	15.99	41.37	24.09	97.70	17.71
	2.06	0.07	1.07	230.03	3.16	5.83	17.23	0.24	2.72	1.52	4.27	0.53
SD-12	61.90	2.33	12.58	5503.46	127.11	88.64	747.66	17.27	41.88	25.01	103.60	18.43
	1.76	0.05	0.67	206.48	1.95	5.03	21.29	0.02	1.60	0.89	4.43	0.59
SD-13	62.57	2.45	12.45	5471.64	135.46	85.27	734.18	16.42	41.94	23.86	103.21	18.16
	1.00	0.05	0.37	134.02	8.16	0.07	10.33	0.65	1.40	0.89	0.83	0.16
SD-14	60.99	2.41	11.68	5481.39	133.80	84.27	763.63	16.49	41.94	24.62	102.59	17.91
	1.53	0.08	0.34	167.79	8.52	0.06	10.17	0.74	1.34	0.63	0.46	0.15
SD-15	19.78	1.26	14.79	4288.48	113.59	20.22	922.26	9.12	7.31	33.09	125.58	15.66
	0.52	0.01	0.08	154.22	7.90	0.39	30.65	0.40	0.12	0.83	1.38	0.03
SD-16	20.38	1.23	16.92	4287.38	122.49	17.25	921.90	9.99	7.29	31.07	140.07	15.52
	0.76	0.05	0.03	142.16	8.46	0.58	8.33	0.43	0.02	1.27	3.32	0.01
SD-17	22.66	1.15	17.77	4323.11	150.59	31.40	870.67	11.61	12.05	34.46	104.48	14.77
	0.73	0.00	0.01	130.05	8.53	0.53	1.38	0.37	0.25	1.37	3.21	0.10
SD-18	32.24	0.71	3.67	2976.31	61.36	72.47	341.16	6.65	28.13	12.95	57.42	8.74
	0.33	0.01	0.13	61.18	3.37	1.06	1.05	0.16	0.80	0.54	1.72	0.02
SD-19	52.02	1.93	10.59	4000.04	100.06	50.46	1062.68	14.62	27.64	44.76	123.70	17.43
	1.36	0.04	0.00	86.93	5.45	1.34	3.51	0.48	0.33	1.45	2.35	0.05
SD-20	21.68	1.65	13.83	4540.48	143.56	19.04	1126.66	11.18	6.44	16.92	88.06	16.14
	0.52	0.06	0.06	65.27	6.81	0.67	8.03	0.56	0.13	1.07	3.28	0.22
JB-3.D	6.63	0.49	31.47	9068.88	378.47	54.11	1155.28	33.80	34.46	177.19	100.68	17.68
	0.18	0.07	0.30	238.06	0.19	1.00	4.73	0.03	0.33	3.28	1.51	0.17
Certified	7.21	0.81	33.80	8600.00	372.00	58.10	1370.00	34.30	36.20	194.00	100.00	19.80
1646A.D	16.21	0.63	4.45	4968.31	42.47	36.26	225.80	4.28	20.30	8.67	44.75	5.23
	0.01	0.07	0.21	214.22	0.39	0.65	5.66	0.01	0.29	0.07	1.18	0.14
Certified	18.00	<1	5.00	4560.00	44.84	40.90	234.50	5.00	23.00	10.01	48.90	5.00

上段：算術平均値、下段：標準誤差。

表 2.3-10 (つづき) (2/4)

試料コード	75 As	78 Se	85 Rb	88 Sr	89 Y	90 Zr	93 Nb	95 Mo	105 Pd	111 Cd	118 Sn	121 Sb
EFIL-	mg/kg-dry											
SD-1	5.19	0.40	57.72	67.03	18.65	133.53	11.61	0.50	4.88	0.17	2.67	0.47
	0.41	0.04	0.54	4.61	1.07	0.77	0.89	0.04	0.27	0.01	0.49	0.01
SD-2	20.00	0.26	49.08	104.19	24.69	150.71	18.30	0.73	6.85	0.64	3.82	0.88
	0.92	0.00	1.16	4.56	1.33	1.64	1.30	0.04	0.17	0.01	0.47	0.01
SD-3	12.44	0.92	24.13	45.93	18.69	209.23	13.92	1.39	3.90	0.35	4.58	1.06
	0.73	0.05	1.33	1.97	0.32	2.75	1.19	0.02	0.01	0.01	1.46	0.01
SD-4	11.61	0.97	40.86	55.26	22.90	195.56	12.85	1.29	5.12	0.30	3.59	0.83
	0.90	0.02	0.88	4.23	1.25	1.82	0.91	0.04	0.11	0.01	0.33	0.01
SD-5	10.11	1.18	24.22	54.94	17.55	190.31	11.51	1.29	3.81	0.50	3.13	0.73
	0.51	0.01	0.14	3.66	0.51	0.80	1.17	0.05	0.17	0.01	0.19	0.01
SD-6	10.25	0.97	4.60	54.20	25.01	171.21	10.03	1.52	4.69	0.57	2.48	0.70
	1.32	0.01	0.86	8.13	1.88	14.02	0.72	0.21	0.39	0.01	0.19	0.02
SD-7	6.14	0.71	7.93	59.93	19.06	117.24	6.13	0.96	4.24	0.23	1.98	0.30
	0.75	0.03	0.55	7.90	1.32	8.35	0.29	0.18	0.30	0.02	0.23	0.00
SD-8	6.91	0.79	4.91	66.36	19.07	109.05	5.86	0.92	3.99	0.27	1.86	0.33
	0.66	0.04	0.70	7.18	1.12	7.10	0.25	0.04	0.11	0.02	0.12	0.00
SD-9	6.67	0.36	4.92	74.84	22.95	157.85	8.02	0.88	5.17	0.25	2.90	0.38
	0.54	0.01	0.51	7.95	1.20	9.12	0.30	0.05	0.87	0.01	0.64	0.01
SD-10	6.42	0.87	27.49	148.94	19.16	99.56	4.88	1.62	6.26	0.34	1.63	0.34
	0.31	0.05	0.05	12.12	0.79	4.34	0.16	0.03	0.53	0.00	0.13	0.01
SD-11	9.35	0.41	106.90	211.02	20.51	124.41	14.73	0.50	8.64	0.20	3.26	0.69
	0.81	0.01	4.72	18.32	1.09	6.64	0.61	0.01	1.43	0.02	0.28	0.00
SD-12	11.71	0.24	43.45	96.87	19.18	146.34	17.00	0.35	5.40	0.20	3.52	0.72
	0.61	0.03	0.35	5.65	0.78	6.61	0.43	0.01	0.97	0.03	0.21	0.01
SD-13	10.89	0.18	51.49	91.26	17.90	149.30	16.44	0.33	5.37	0.19	3.50	0.72
	0.28	0.00	0.52	0.37	0.06	10.93	0.03	0.01	1.12	0.02	0.09	0.02
SD-14	11.23	0.22	30.12	75.82	18.98	161.50	16.50	0.35	5.07	0.24	3.41	0.75
	0.11	0.03	1.38	1.19	0.09	12.58	0.01	0.02	1.13	0.01	0.04	0.03
SD-15	5.73	0.57	13.27	91.83	20.32	140.99	7.00	1.45	5.25	0.32	1.68	0.38
	0.11	0.02	1.12	1.37	0.22	11.82	0.07	0.01	1.04	0.03	0.06	0.03
SD-16	5.40	0.55	20.96	115.88	19.27	131.91	6.57	1.25	6.21	0.28	1.86	0.36
	0.01	0.04	0.37	0.67	0.16	11.19	0.01	0.10	1.43	0.02	0.12	0.04
SD-17	6.31	0.51	11.10	116.69	18.61	120.06	6.11	1.15	6.14	0.35	2.01	0.51
	0.05	0.04	4.04	4.61	0.50	8.97	0.01	0.07	1.20	0.01	0.10	0.03
SD-18	3.21	0.18	12.56	23.52	6.98	112.70	7.89	0.30	1.36	0.19	2.07	0.52
	0.12	0.00	0.06	0.18	0.18	7.57	0.04	0.01	0.01	0.01	0.25	0.03
SD-19	8.63	0.24	81.12	36.21	16.70	143.38	12.37	0.80	3.20	0.16	3.03	0.86
	0.12	0.01	0.44	0.39	0.36	9.85	0.05	0.02	0.21	0.03	0.14	0.04
SD-20	6.14	0.51	11.08	67.64	26.67	127.98	6.37	0.74	5.59	0.29	1.89	0.35
	0.30	0.03	0.34	0.45	0.46	7.40	0.08	0.03	1.01	0.01	0.09	0.04
JB-3.D	1.93	0.10	12.54	387.15	23.03	96.69	2.05	0.84	12.66	0.09	1.29	0.05
	0.00	0.04	0.63	8.93	0.51	2.57	0.14	0.04	1.86	0.02	0.28	0.04
Certified	1.84	0.07	15.10	403.00	26.90	97.80	2.47	1.09	0.00	0.08	0.94	0.12
1646A.D	6.39	0.16	31.21	65.46	9.80	146.27	12.11	1.73	2.96	0.16	1.48	0.24
	0.13	0.01	0.09	2.05	0.50	13.40	0.66	0.09	0.43	0.02	0.14	0.02
Certified	6.23	0.19	38.00	68.00				1.80		0.15	1.00	0.30

上段：算術平均値、下段：標準誤差。

表 2.3-10 (つづき) (3/4)

試料コード	133 Cs	137 Ba	139 La	140 Ce	141 Pr	146 Nd	147 Sm	153 Eu	157 Gd	159 Tb	163 Dy	165 Ho
EFIL-	mg/kg-dry											
SD-1	3.70	294.65	21.79	45.78	4.70	18.64	3.66	0.81	3.61	0.56	3.49	0.69
	0.26	8.33	0.76	1.93	0.04	0.94	0.05	0.01	0.06	0.09	0.21	0.08
SD-2	5.47	336.94	27.96	71.99	6.01	24.07	4.86	1.10	4.88	0.74	4.53	0.89
	0.25	6.64	1.18	3.05	0.04	1.03	0.02	0.01	0.03	0.09	0.23	0.08
SD-3	5.04	176.81	15.56	36.95	3.77	15.79	3.36	0.77	3.46	0.54	3.52	0.72
	0.09	0.13	0.07	0.41	0.14	0.15	0.10	0.03	0.10	0.07	0.10	0.05
SD-4	5.26	225.11	25.60	48.69	6.53	27.15	5.46	1.21	5.25	0.77	4.69	0.93
	0.21	1.83	1.81	3.23	0.01	0.89	0.05	0.01	0.04	0.09	0.24	0.08
SD-5	4.43	196.16	17.48	37.27	4.67	19.83	4.03	0.90	4.00	0.58	3.56	0.71
	0.17	1.22	1.38	2.24	0.09	0.30	0.06	0.02	0.07	0.07	0.10	0.05
SD-6	2.46	146.82	16.81	22.65	4.57	20.07	4.37	1.07	4.57	0.72	4.40	0.91
	0.21	8.07	1.37	1.77	0.17	1.53	0.17	0.02	0.16	0.08	0.35	0.10
SD-7	1.79	107.35	11.44	21.44	3.13	13.66	3.14	0.79	3.39	0.58	3.66	0.76
	0.18	5.90	0.90	1.67	0.12	1.12	0.16	0.00	0.10	0.08	0.30	0.09
SD-8	1.76	106.68	11.42	20.36	3.00	13.14	3.02	0.77	3.28	0.56	3.54	0.74
	0.17	4.90	0.83	1.43	0.08	0.87	0.10	0.01	0.07	0.07	0.25	0.08
SD-9	2.16	105.92	13.96	18.00	3.80	16.05	3.66	0.90	4.01	0.69	4.33	0.90
	0.15	3.21	0.85	1.09	0.08	0.95	0.07	0.00	0.08	0.07	0.27	0.08
SD-10	2.64	202.05	14.44	30.66	3.58	15.30	3.33	0.85	3.55	0.57	3.51	0.73
	0.16	5.19	0.79	1.62	0.06	0.78	0.04	0.02	0.02	0.05	0.20	0.07
SD-11	9.08	388.69	32.43	66.30	7.15	27.71	5.16	1.07	4.74	0.70	4.05	0.80
	0.42	12.61	2.02	4.06	0.21	1.63	0.14	0.01	0.02	0.07	0.29	0.08
SD-12	8.10	260.08	26.88	64.63	6.33	24.88	4.79	0.96	4.44	0.66	3.78	0.74
	0.30	6.59	1.32	3.19	0.12	1.31	0.07	0.02	0.03	0.06	0.21	0.07
SD-13	8.34	257.77	26.31	63.83	6.26	23.78	4.80	0.96	4.39	0.56	3.49	0.64
	0.06	0.73	0.33	1.39	0.01	0.04	0.03	0.03	0.09	0.02	0.00	0.02
SD-14	7.52	214.04	25.43	61.35	6.13	23.27	4.69	0.94	4.36	0.58	3.60	0.68
	0.03	1.03	0.70	1.66	0.00	0.05	0.06	0.02	0.11	0.03	0.04	0.01
SD-15	2.58	158.53	14.75	23.94	3.91	16.07	3.68	0.93	3.82	0.55	3.72	0.74
	0.08	2.99	0.31	0.21	0.04	0.15	0.02	0.04	0.02	0.03	0.04	0.01
SD-16	2.83	201.37	14.11	29.26	3.65	14.98	3.40	0.89	3.63	0.52	3.54	0.70
	0.06	1.52	0.29	0.72	0.05	0.05	0.03	0.04	0.05	0.03	0.04	0.02
SD-17	2.52	200.37	12.99	28.33	3.40	14.02	3.22	0.81	3.46	0.49	3.40	0.67
	0.18	8.42	0.13	0.15	0.14	0.48	0.09	0.05	0.13	0.03	0.07	0.03
SD-18	1.46	108.17	8.87	21.47	1.97	7.31	1.35	0.27	1.30	0.14	1.16	0.20
	0.05	1.29	0.12	0.31	0.05	0.12	0.01	0.03	0.07	0.03	0.03	0.02
SD-19	8.38	300.83	20.00	51.83	4.69	17.69	3.56	0.67	3.49	0.47	3.12	0.60
	0.11	2.83	0.31	0.62	0.06	0.21	0.06	0.04	0.10	0.03	0.04	0.01
SD-20	2.78	164.41	17.94	16.53	4.60	18.28	4.13	0.97	4.58	0.70	4.77	0.97
	0.06	1.70	0.48	0.41	0.03	0.13	0.00	0.03	0.00	0.03	0.06	0.02
JB-3.D	0.87	222.86	8.15	20.41	2.92	14.89	3.92	1.16	4.40	0.73	4.50	0.92
	0.09	2.36	0.34	0.67	0.03	0.49	0.02	0.04	0.04	0.06	0.20	0.06
Certified	0.94	245.00	8.81	21.50	3.26	15.60	4.27	1.32	4.67	0.73	4.54	0.80
1646A.D	1.21	196.24	18.52	38.88	4.36	17.20	3.11	0.49	2.74	0.38	2.08	0.38
	0.11	2.35	1.08	2.01	0.07	0.93	0.07	0.03	0.01	0.06	0.15	0.06
Certified		210.00	17.00	34.00		15.00						

上段：算術平均値、下段：標準誤差。

表 2.3-10 (つづき) (4/4)

試料コード	166 Er	169 Tm	172 Yb	175 Lu	178 Hf	182 W	205 Tl	208 Pb	232 Th	238 U
EFII-	mg/kg-dry									
SD-1	2.10	0.29	2.05	0.30	3.34	2.45	0.37	16.99	7.08	2.46
	0.16	0.06	0.15	0.07	0.08	0.09	0.02	0.69	0.14	0.07
SD-2	2.61	0.36	2.41	0.34	3.74	3.15	0.51	24.22	7.13	4.46
	0.16	0.06	0.14	0.07	0.02	0.04	0.02	0.57	0.05	0.08
SD-3	2.22	0.31	2.22	0.32	5.18	3.37	0.71	24.49	5.48	3.47
	0.08	0.06	0.08	0.05	0.03	0.06	0.01	0.41	0.11	0.03
SD-4	2.75	0.38	2.60	0.37	5.02	2.97	0.77	23.94	8.61	3.41
	0.15	0.06	0.09	0.06	0.07	0.01	0.01	0.15	0.07	0.01
SD-5	2.12	0.29	1.96	0.28	5.07	2.58	0.69	23.61	6.38	3.67
	0.07	0.05	0.05	0.05	0.16	0.02	0.00	0.21	0.08	0.06
SD-6	2.70	0.39	2.55	0.39	4.55	2.32	0.44	20.20	5.50	3.53
	0.22	0.06	0.23	0.06	0.19	0.04	0.03	1.25	0.31	0.19
SD-7	2.32	0.33	2.24	0.34	3.21	1.46	0.32	17.28	4.25	1.62
	0.19	0.06	0.19	0.06	0.11	0.05	0.02	1.31	0.25	0.09
SD-8	2.25	0.33	2.20	0.33	2.95	1.26	0.30	19.24	4.07	1.55
	0.17	0.06	0.16	0.05	0.08	0.01	0.01	1.49	0.19	0.07
SD-9	2.74	0.39	2.67	0.41	4.14	2.01	0.34	18.91	5.46	1.61
	0.19	0.06	0.20	0.05	0.09	0.03	0.02	1.67	0.22	0.07
SD-10	2.20	0.32	2.12	0.32	2.73	1.20	0.39	15.76	4.55	2.14
	0.13	0.05	0.15	0.05	0.06	0.00	0.01	1.49	0.14	0.06
SD-11	2.35	0.33	2.25	0.34	3.44	2.81	0.61	23.47	11.66	2.58
	0.17	0.05	0.15	0.05	0.08	0.14	0.02	2.07	0.48	0.10
SD-12	2.21	0.33	2.21	0.33	4.05	3.32	0.63	29.48	10.61	2.19
	0.15	0.05	0.14	0.05	0.04	0.03	0.01	2.94	0.26	0.05
SD-13	1.99	0.25	2.02	0.26	3.90	3.51	0.62	29.26	10.26	2.18
	0.01	0.01	0.00	0.01	0.01	0.25	0.00	3.57	0.06	0.02
SD-14	2.09	0.27	2.10	0.28	4.18	3.49	0.59	28.94	10.41	2.17
	0.01	0.01	0.03	0.02	0.03	0.21	0.01	3.43	0.08	0.01
SD-15	2.31	0.30	2.26	0.31	3.57	1.78	0.36	17.87	5.12	2.11
	0.03	0.02	0.01	0.02	0.03	0.12	0.00	2.18	0.03	0.00
SD-16	2.24	0.28	2.18	0.29	3.35	1.67	0.37	17.83	5.10	1.86
	0.02	0.02	0.03	0.02	0.04	0.10	0.00	2.33	0.01	0.00
SD-17	2.12	0.27	2.09	0.28	3.12	1.85	0.32	18.26	5.01	2.01
	0.04	0.02	0.05	0.02	0.05	0.07	0.01	1.65	0.11	0.04
SD-18	0.72	0.07	0.77	0.08	2.85	1.58	0.23	15.14	2.63	2.26
	0.02	0.01	0.04	0.02	0.04	0.08	0.00	1.90	0.02	0.00
SD-19	1.93	0.25	1.96	0.26	3.96	3.12	0.65	26.66	9.19	2.46
	0.03	0.02	0.04	0.01	0.04	0.15	0.01	3.35	0.05	0.00
SD-20	3.07	0.41	2.98	0.42	3.36	1.95	0.38	18.81	4.56	1.65
	0.04	0.01	0.03	0.02	0.06	0.10	0.01	2.62	0.00	0.01
JB-3.D	2.65	0.37	2.44	0.36	2.78	2.00	0.04	5.48	1.22	0.46
	0.13	0.05	0.11	0.05	0.00	0.04	0.01	0.60	0.02	0.00
Certified	2.49	0.42	2.55	0.39	2.67	1.38	0.05	5.58	1.27	0.48
1646A.D	1.10	0.15	1.04	0.16	3.80	0.77	0.20	12.61	5.49	1.71
	0.11	0.05	0.09	0.04	0.19	0.01	0.01	1.16	0.30	0.05
Certified							<0.5	11.70	5.80	2.00

上段：算術平均値、下段：標準誤差。

表 2.3-11 H25 年度採取農作物試料の元素分析（データ追加）（1/4）

試料コード	7 Li	45 Sc	47 Ti	52 Cr	55 Mn	59 Co	60 Ni	63 Cu	66 Zn	71 Ga	78 Se													
EFIL-	mg/kg- dry																							
	n	n	n	n	n	n	n	n	n	n	n													
CD-1	0.08	1	0.04	1	2.4	4	0.24	4	13.1	4	0.605	4	3.32	4	1.24	2	23.1	4			0.015	3		
s.d.					0.2		0.08		1.0		0.105		0.31		0.57		4.9					0.009		
CD-2	0.07	1	0.04	1	3.4	4	0.53	4	10.8	4	0.118	2	0.44	4	1.87	1	16.4	4				0.030	3	
s.d.					1.0		0.09		1.1		0.007		0.27				4.7						0.006	
CD-3	0.07	1	0.03	1	1.6	4	1.54	4	11.7	4	0.066	2	1.97	4	0.05	1	18.1	4	0.009	1		0.037	3	
s.d.					0.6		0.15		1.2		0.010		0.26				2.6						0.015	
CD-4	0.06	1	0.02	1	1.7	4	23.89	4	17.3	4	0.248	3	10.73	4	3.21	1	14.5	4					0.041	3
s.d.					0.3		1.29		0.6		0.081		1.07				4.7							0.016
CD-5	0.12	1	0.05	1	12.5	4	0.86	4	68.9	4	3.184	4	18.37	4	3.39	2	65.6	4	0.862	4		0.045	2	
s.d.					0.4		0.13		9.6		0.098		1.72		0.40		7.2		0.085					0.036
CD-6	0.07	1	0.01	1	3.1	4	0.23	4	41.6	4	0.693	4	5.62	4	2.75	2	38.6	4	0.035	1		0.037	2	
s.d.					0.7		0.13		1.2		0.119		0.49		0.76		4.8							0.042
CD-7	0.08	1	0.03	1	1.8	4	0.32	4	19.2	4	0.046	2	0.37	4		0	15.5	4					0.039	2
s.d.					0.2		0.14		0.8		0.003		0.20				3.2							0.003
CD-8a	0.07	1	0.02	1	1.4	4	0.13	3	6.1	3	0.019	2	2.84	4	0.64	2	20.7	4	0.075	3		0.033	3	
s.d.					0.2		0.09		0.2		0.004		0.21		0.61		4.9		0.033					0.021
CD-8b	0.08	1	0.02	1	2.9	4	0.58	4	16.8	4	3.608	4	11.85	4	2.58	2	34.3	4	0.152	4		0.040	3	
s.d.					0.6		0.13		1.0		0.139		0.96		0.45		9.2		0.084					0.019
CD-9	0.07	2	0.09	2	13.6	4	0.79	4	29.6	4	0.421	3	3.38	4	5.64	2	100.6	4	0.521	4		0.015	2	
s.d.					0.6		0.10		0.7		0.088		0.33		1.15		5.6		0.071					0.001
CD-10	0.09	1	0.13	1	8.4	4	0.63	4	26.7	4	0.391	3	2.73	4	7.90	2	157.9	4	0.209	4		0.058	2	
s.d.					0.4		0.11		3.0		0.083		0.30		1.27		9.9		0.066					0.010
CD-11	0.07	2	0.08	1	2.5	4	0.27	2	20.9	3	0.275	3	1.21	4	1.72	2	27.2	4	0.044	1		0.067	2	
s.d.					0.7		0.6		0.29		0.4		0.159		0.20		1.09		3.9					0.003
CD-12	0.12	4	0.09	2	8.9	4	0.41	4	17.5	3	0.290	3	1.01	4	5.27	4	43.6	4	0.211	4		0.038	2	
s.d.					0.11		0.10		0.4		0.17		0.1		0.065		0.27		5.46		18.5		0.086	0.021
CD-13	0.39	4	0.12	2	33.3	4	1.21	4	50.1	4	2.021	4	11.58	4	8.54	2	47.7	4	1.395	4		0.084	2	
s.d.					0.12		0.08		1.4		0.20		0.3		0.177		0.42		1.57		15.6		0.115	0.016
CD-14	0.15	3	0.14	2	17.5	4	0.67	3	38.2	3	0.501	3	1.26	4	4.58	2	40.5	4	0.373	4		0.112	2	
s.d.					0.11		0.09		1.3		0.27		0.7		0.080		0.30		1.34		15.5		0.115	0.064
CD-15	0.01	1	0.15	2	2.5	4	0.22	3	16.6	3	0.078	3	0.39	4	1.52	2	45.7	4	0.010	1		0.023	2	
s.d.					0.11		0.2		0.18		0.8		0.038		0.26		0.04		17.6					0.010
CD-16a			0.13	2	1.4	4	0.24	2	6.6	3	0.015	2	0.80	4	2.15	2	34.2	4	0.042	1		0.013	2	
s.d.			0.11		0.2		0.29		0.5		0.002		0.26		1.44		15.7							0.003
CD-16b			0.12	2	3.7	4	0.32	3	15.9	3	0.044	2	1.55	4	4.02	2	52.8	4	0.074	3		0.026	2	
s.d.			0.05		0.3		0.12		0.8		0.005		0.26		1.28		9.5		0.086					0.005
CD-17			0.08	2	5.7	4	0.28	3	16.4	3	0.270	3	0.99	4	2.06	2	38.4	4	0.082	1		0.048	2	
s.d.			0.07		0.7		0.10		0.4		0.017		0.27		0.85		9.5							0.020
CD-18			0.07	2	2.0	4	0.13	3	9.4	3	0.054	2	0.32	4	0.58	2	12.2	4	0.012	1		0.025	2	
s.d.			0.04		0.6		0.06		0.1		0.001		0.25		0.69		11.3							0.001
CD-19			0.11	2	4.4	4	0.28	3	27.6	3	0.127	3	0.78	4	4.82	2	34.5	4	0.099	2		0.046	2	
s.d.			0.03		0.7		0.03		1.3		0.033		0.26		1.14		8.8		0.089					0.007
CD-20			0.06	2	2.8	4	0.04	2	26.1	3	0.206	3	1.33	4	1.14	2	39.8	4	0.034	1		0.042	2	
s.d.			0.03		0.6		0.01		0.6		0.033		0.23		0.84		11.2							0.016
GBW	2.71	4	0.24	4	117.9	4	1.99	4	69.3	4	0.338	4	1.45	4	5.88	2	63.6	4	4.371	4		0.128	3	
s.d.			0.16		11.9		0.20		6.5		0.132		0.29		1.33		17.2		0.415					0.026
Certified	2.40		0.32		95.0		2.60		61.0		0.410		1.70		6.60		55.0		0.320					0.120
1573a	0.44	4	0.19	3	64.1	4	1.81	4	237.6	4	0.504	4	1.64	4	3.90	2	33.2	4	1.197	4		0.079	3	
s.d.			0.11		6.9		0.22		26.5		0.161		0.35		1.25		13.6		0.204					0.017
Certified			0.10				1.99		246.0		0.570		1.59		4.70		30.9							0.054

上段：n が 2 以上の場合は、算術平均値、n=1 の場合はその値を記述。下段：標準誤差。

表 2.3-11 (つづき) (2/4)

試料コード	85 Rb		88 Sr		89 Y		90 Zr		93 Nb		95 Mo		111 Cd		118 Sn		121 Sb		133 Cs		137 Ba	
	EFII-	mg/kg-dry n																				
CD-1	3.5	3	3.0	4	0.044	1	0.10	3	0.111	1	0.02	2	0.029	4	0.145	2	0.042	1	0.033	2	0.36	1
s.d.	0.6		0.5				0.05				0.03		0.012		0.091			0.036				
CD-2	10.6	3	11.4	4	0.036	1	0.09	3	0.100	1	0.52	3	0.206	4	0.085	2	0.042	1	0.046	2	8.26	3
s.d.	0.2		1.5				0.05				0.10		0.011		0.005			0.037			0.83	
CD-3	33.7	4	12.5	4	0.032	1	0.09	3	0.093	1	0.19	3	0.027	4	0.093	2	0.037	1	0.089	2	12.98	3
s.d.	1.8		2.6				0.05				0.02		0.011		0.031			0.030			1.60	
CD-4	34.9	4	11.1	4	0.030	1	0.09	3	0.105	1	0.40	3	0.011	4	0.145	2	0.038	1	0.125	3	8.45	3
s.d.	0.6		1.1				0.04				0.06		0.010		0.134			0.072			0.72	
CD-5	59.4	4	14.1	4	0.055	3	0.31	4	0.112	1	0.22	3	0.827	4	0.103	2	0.050	1	0.086	2	8.11	3
s.d.	4.7		1.6		0.055		0.12				0.07		0.020		0.013			0.024			0.17	
CD-6	49.3	4	10.3	4	0.041	1	0.20	3	0.087	1			0.153	4	0.055	2	0.036	1	0.101	2	7.37	3
s.d.	1.1		1.0				0.04						0.017		0.062			0.008			0.36	
CD-7	27.8	4	7.6	4	0.052	1	0.09	3	0.086	1	0.30	3	0.005	2	0.052	2	0.041	1	0.274	4	6.44	3
s.d.	1.4		0.6				0.04				0.02		0.004		0.033			0.089			0.53	
CD-8a	11.1	3	4.0	4	0.028	1	0.08	3	0.085	1	0.02	1	0.008	2	0.102	1	0.035	1	0.059	2	1.50	3
s.d.	0.4		0.6				0.04						0.001					0.005			0.84	
CD-8b	19.7	3	4.8	4	0.036	1	0.11	3	0.086	1	0.17	3	0.009	2	0.085	2	0.038	1	0.090	2	1.41	3
s.d.	0.1		0.5				0.04				0.06		0.001		0.083			0.008			0.78	
CD-9	42.8	4	14.0	4	0.121	4	0.46	4	0.073	2	0.75	3	0.372	4	0.101	3	0.039	3	0.093	4	11.91	3
s.d.	1.1		0.9		0.058		0.09		0.046		0.04		0.012		0.077		0.009		0.027		1.10	
CD-10	59.0	4	13.8	4	0.047	3	0.19	4	0.055	2	1.29	3	0.375	4	0.060	3	0.031	3	0.049	4	5.05	3
s.d.	2.0		1.7		0.021		0.08		0.052		0.12		0.016		0.073		0.009		0.030		1.19	
CD-11	6.2	3	35.4	4	0.027	2	0.10	3	0.046	2	0.77	3	0.111	4	0.081	2	0.027	3	0.044	3	1.41	2
s.d.	0.5		2.8		0.002		0.06		0.053		0.19		0.013		0.067		0.009		0.013		0.25	
CD-12	11.1	3	72.5	4	0.062	3	0.25	4	0.070	2	0.45	3	0.035	4	0.063	2	0.033	3	0.045	4	1.85	3
s.d.	0.4		5.4		0.024		0.08		0.045		0.07		0.012		0.057		0.010		0.028		1.07	
CD-13	19.3	3	40.3	4	0.142	4	0.81	4	0.144	2	0.58	3	0.624	4	0.079	3	0.037	3	0.107	4	2.62	3
s.d.	0.8		2.5		0.061		0.09		0.045		0.11		0.019		0.064		0.012		0.026		1.25	
CD-14	18.6	3	131.0	4	0.079	2	0.36	4	0.047	1	1.17	4	0.546	4	0.090	2	0.028	2	0.059	3	2.67	3
s.d.	0.6		4.7		0.031		0.13				0.20		0.051		0.090		0.008		0.031		1.25	
CD-15	25.7	3	7.9	3	0.034	1	0.12	2	0.001	1	0.34	4	0.013	3	0.079	3	0.021	2	0.078	3	5.07	3
s.d.	1.5		1.5				0.03				0.09		0.006		0.077		0.010		0.029		1.05	
CD-16a	9.1	3	6.2	3	0.025	1	0.10	2	0.001	1	0.24	4	0.016	3	0.091	2	0.020	2	0.036	2	4.23	3
s.d.	0.6		0.9				0.05				0.11		0.008		0.068		0.009		0.012		1.14	
CD-16b	14.2	3	8.0	3	0.031	2	0.17	3	0.005	1	0.74	4	0.013	3	0.095	3	0.021	2	0.046	3	4.69	3
s.d.	1.1		1.2		0.025		0.08				0.07		0.007		0.071		0.008		0.031		0.95	
CD-17	37.2	4	21.0	4	0.023	2	0.11	3	0.009	1	1.19	4	0.193	4	0.130	3	0.022	2	0.129	3	16.31	3
s.d.	2.5		4.4		0.027		0.08				0.19		0.025		0.098		0.008		0.026		1.62	
CD-18	8.4	3	7.6	3	0.031	1	0.11	2	0.006	1	0.20	4	0.021	3	0.069	3	0.022	2	0.035	2	4.81	3
s.d.	0.6		1.0				0.03				0.12		0.004		0.062		0.012		0.016		1.03	
CD-19	11.1	3	109.9	4	0.099	3	0.11	3	0.011	1	3.80	4	0.048	4	0.106	3	0.034	2	0.044	2	39.94	4
s.d.	0.9		9.4		0.034		0.08				0.32		0.014		0.086		0.010		0.017		2.47	
CD-20	38.0	4	15.2	4	0.033	2	0.11	2	0.005	1	0.17	4	0.135	4	0.113	3	0.022	2	0.057	3	11.78	3
s.d.	1.7		4.1		0.026		0.05				0.07		0.012		0.087		0.011		0.047		0.96	
GBW	4.4	2	226.7	4	0.620	4	2.86	4	0.339	4	0.27	3	0.814	4	0.395	4	0.113	4	0.248	4	16.93	4
	0.9		9.6		0.065		0.24		0.108		0.05		0.069		0.098		0.052		0.076		3.70	
Certified	4.5		246.0		0.680						0.28		0.380		0.270		0.095		0.270		18.00	
1573a	11.0	4	66.3	4	0.818	4	2.72	4	0.164	4	0.36	3	1.517	4	0.214	3	0.097	3	0.062	3	60.09	4
1573a	5.0		7.7		0.131		0.34		0.101		0.05		0.164		0.245		0.021		0.032		5.33	
Certified	14.9		85.0								0.46		1.520				0.063		0.053		63.00	

上段：n が 2 以上の場合は、算術平均値、n=1 の場合はその値を記述。下段：標準誤差。

表 2.3-11 (つづき) (3/4)

試料コード	139 La		140 Ce		141 Pr		146 Nd		147 Sm		153 Eu		157 Gd		159 Tb		163 Dy		165 Ho	
	EFIL-	mg/kg-dry	n																	
CD-1	0.064	1	0.044	1					0.014	1	0.019	1	0.021	1			0.014	1		
s.d.																				
CD-2	0.064	1	0.037	1					0.011	1	0.020	1	0.018	1			0.012	1		
s.d.																				
CD-3	0.067	1	0.031	1					0.009	1	0.019	1	0.015	1			0.010	1		
s.d.																				
CD-4	0.065	1	0.028	1					0.008	1	0.017	1	0.015	1			0.009	1		
s.d.																				
CD-5	0.080	3	0.112	2			0.051	2	0.023	1	0.021	1	0.031	1			0.021	1		
s.d.	0.083		0.053				0.007													
CD-6	0.066	1	0.031	1					0.009	1	0.017	1	0.015	1			0.010	1		
s.d.																				
CD-7	0.094	1	0.050	1					0.011	1	0.017	1	0.017	1			0.011	1		
s.d.																				
CD-8a	0.054	1	0.026	1					0.008	1	0.015	1	0.014	1			0.009	1		
s.d.																				
CD-8b	0.066	1	0.040	1					0.009	1	0.015	1	0.015	1			0.010	1		
s.d.																				
CD-9	0.219	4	0.134	4	0.078	1	0.090	4	0.047	3	0.044	3	0.047	3	0.07	1	0.059	3	0.063	1
s.d.	0.077		0.074				0.051		0.023		0.020		0.035				0.031			
CD-10	0.077	2	0.065	3	0.048	1	0.029	3	0.031	3	0.038	3	0.029	3	0.06	1	0.045	3	0.055	1
s.d.	0.011		0.030				0.031		0.020		0.020		0.029				0.029			
CD-11	0.045	2	0.026	2	0.040	1	0.021	2	0.027	3	0.037	3	0.023	3	0.06	1	0.041	3	0.054	1
s.d.	0.010		0.003				0.021		0.019		0.020		0.029				0.030			
CD-12	0.076	3	0.135	3	0.057	1	0.056	3	0.037	3	0.039	3	0.032	3	0.06	1	0.049	3	0.059	1
s.d.	0.058		0.036				0.031		0.022		0.021		0.031				0.031			
CD-13	0.220	4	0.456	4	0.100	1	0.181	4	0.065	3	0.046	3	0.060	3	0.07	1	0.070	3	0.064	1
s.d.	0.085		0.097				0.060		0.021		0.022		0.031				0.030			
CD-14	0.095	2	0.121	4	0.064	1	0.103	2	0.053	2	0.051	2	0.042	2	0.06	1	0.068	2	0.056	1
s.d.	0.064		0.106				0.025		0.019		0.008		0.044				0.016			
CD-15	0.068	1	0.041	1	0.044	1	0.025	2	0.035	2	0.047	2	0.057	1	0.06	1	0.056	2	0.054	1
s.d.							0.022		0.018		0.007						0.016			
CD-16a	0.042	1	0.028	1	0.041	1	0.020	2	0.035	2	0.047	2	0.056	1	0.06	1	0.055	2	0.053	1
s.d.							0.024		0.018		0.007						0.016			
CD-16b	0.062	1	0.036	2	0.045	1	0.035	2	0.038	2	0.048	2	0.031	2	0.06	1	0.059	2	0.054	1
s.d.			0.036				0.024		0.017		0.007		0.041				0.016			
CD-17	0.072	1	0.037	2	0.047	1	0.032	2	0.038	2	0.050	2	0.060	1	0.06	1	0.057	2	0.055	1
s.d.			0.043				0.024		0.020		0.009						0.016			
CD-18	0.051	1	0.036	1	0.045	1	0.022	2	0.036	2	0.048	2	0.060	1	0.06	1	0.057	2	0.057	1
s.d.							0.026		0.021		0.009						0.018			
CD-19	0.121	4	0.094	4	0.072	1	0.129	3	0.061	2	0.057	2	0.039	3	0.06	1	0.069	2	0.056	1
s.d.	0.083		0.069				0.044		0.024		0.009		0.044				0.018			
CD-20	0.075	3	0.041	1	0.048	1	0.047	2	0.038	2	0.048	2	0.029	2	0.06	1	0.057	2	0.054	1
s.d.	0.058						0.031		0.020		0.008		0.041				0.016			
GBW	1.052	4	2.068	4	0.251	2	0.855	4	0.171	4	0.070	3	0.149	4	0.08	1	0.133	4	0.081	1
	0.175		0.328		0.047		0.113		0.037		0.021		0.059				0.053			
Certified	1.250		2.200				1.000		0.190		0.039		0.190		0.03		0.130		0.033	
1573a	2.030	4	1.581	4	0.315	2	1.197	4	0.184	4	0.082	3	0.177	4	0.08	1	0.130	4	0.081	1
1573a	0.271		0.243		0.140		0.162		0.068		0.020		0.088				0.072			
Certified	2.300		2.000						0.190				0.170							

上段：n が 2 以上の場合は、算術平均値、n=1 の場合はその値を記述。下段：標準誤差。

表 2.3-11 (つづき) (4/4)

試料コード	166 Er	169 Tm	172 Yb	175 Lu	178 Hf	182 W	205 Tl	208 Pb	232 Th	238 U										
EFIL-	mg/kg-dry																			
	n	n	n	n	n	n	n	n	n	n										
CD-1	0.038	1	0.004	1	0.04	3	0.32	4	0	2	0.04	1	0.014	1	6E-04	1				
s.d.					0.03		0.33		0											
CD-2	0.036	1	0.002	1	0.05	2	0.29	4	0	2	0.14	1	0.012	1	3E-04	1				
s.d.					0.02		0.3		0											
CD-3	0.033	1			0.05	2	0.26	4	0.01	4	0.09	1	0.010	1	2E-04	1				
s.d.					0.01		0.28		0.01											
CD-4	0.033	1			0.03	3	0.31	4	0.03	4	0.27	1	0.010	1	1E-04	1				
s.d.					0.03		0.27		0.01											
CD-5	0.041	1	0.006	1	0.05	3	0.26	4	0.17	4	0.21	4	0.013	4	0.003	1				
s.d.					0.02		0.28		0.01		0.07		0.006							
CD-6	0.033	1			0.04	2	0.33	3	0.02	4	0.03	1	0.010	1	2E-04	1				
s.d.					0.01		0.26		0.01											
CD-7	0.034	1	0.000	1	0.04	2	0.34	3	0.24	4	0.01	1	0.009	1	1E-04	1				
s.d.					0.01		0.31		0.01											
CD-8a	0.033	1			0.04	2	0.29	3	0.03	4	0.67	1	0.010	1	2E-04	1				
s.d.					0.01		0.25		0.01											
CD-8b	0.034	1			0.04	2	0.3	3	0.03	4	0.3	2	0.010	1	3E-04	1				
s.d.					0.01		0.27		0.01		0.38									
CD-9	0.059	3	0.060	1	0.032	3	0.07	1	0.1	4	0.49	4	0.17	4	0.25	4	0.023	4	0.009	3
s.d.	0.015				0.030				0.08		0.31		0.01		0.09		0.007		0.005	
CD-10	0.051	3	0.054	1	0.025	3	0.06	1	0.07	4	0.42	4	0.11	4	0.11	3	0.014	3	0.006	3
s.d.	0.013				0.027				0.06		0.28		0.01		0.12		0.001		0.004	
CD-11	0.048	3	0.053	1	0.034	2	0.06	1	0.08	3	0.49	4			0.07	1	0.008	3	0.004	3
s.d.	0.014				0.024				0.03		0.32						0.002		0.003	
CD-12	0.052	3	0.057	1	0.026	3	0.06	1	0.09	3	0.46	4	0	2	0.17	4	0.025	4	0.009	3
s.d.	0.014				0.028				0.04		0.3		0		0.07		0.008		0.004	
CD-13	0.066	3	0.061	1	0.040	3	0.07	1	0.09	4	0.48	4	0.01	3	0.35	4	0.089	4	0.017	4
s.d.	0.015				0.030				0.06		0.32		0		0.12		0.008		0.008	
CD-14	0.062	2	0.054	1	0.039	2	0.06	1	0.08	3	0.3	4	0	2	0.16	4	0.040	4	0.011	3
s.d.	0.006				0.026				0.07		0.24		0		0.13		0.008		0.005	
CD-15	0.055	2	0.054	1	0.033	2	0.06	1	0.08	3	0.26	4	0.24	4	0.11	1	0.008	3	0.004	3
s.d.	0.006				0.026				0.03		0.17		0.02				0.002		0.003	
CD-16a	0.054	2	0.053	1	0.032	2	0.06	1	0.08	3	0.24	4	0.04	4	0.13	1	0.007	3	0.004	3
s.d.	0.005				0.025				0.04		0.18		0.01				0.002		0.003	
CD-16b	0.056	2	0.053	1	0.034	2	0.06	1	0.08	3	0.23	4	0.03	4	0.09	3	0.010	3	0.005	3
s.d.	0.005				0.026				0.04		0.18		0.01		0.08		0.001		0.003	
CD-17	0.056	2	0.055	1	0.035	2	0.06	1	0.08	3	0.31	4	0.01	4	0.05	3	0.010	3	0.004	3
s.d.	0.007				0.028				0.04		0.19		0.01		0.04		0.002		0.003	
CD-18	0.055	2	0.056	1	0.035	2	0.06	1	0.08	3	0.31	4	0	1	0.07	2	0.008	3	0.004	3
s.d.	0.007				0.029				0.04		0.19				0.06		0.002		0.003	
CD-19	0.059	2	0.053	1	0.035	2	0.06	1	0.08	3	0.39	4	0	2	0.29	4	0.010	4	0.005	3
s.d.	0.006				0.027				0.04		0.26		0		0.12		0.006		0.003	
CD-20	0.055	2	0.053	1	0.034	2	0.06	1	0.08	3	0.36	4	0.01	4	0.16	2	0.008	3	0.004	3
s.d.	0.006				0.027				0.04		0.24		0		0.15		0.002		0.003	
GBW	0.116	3	0.067	1	0.087	3	0.07	1	0.15	4	0.45	4	0.02	4	55.1	4	0.335	4	0.148	4
	0.015				0.028				0.06		0.23		0.01		4.46		0.039		0.01	
Certified	0.060	0.010			0.01				0.15		0.06				47		0.360		0.12	
1573a	0.113	3	0.064	1	0.069	3	0.07	1	0.15	4	0.35	4	0.04	4	0.63	4	0.105	4	0.043	4
1573a	0.015				0.031				0.06		0.22		0.01		0.15		0.021		0.008	
Certified																	0.120		0.035	

上段：n が 2 以上の場合は、算術平均値、n=1 の場合はその値を記述。下段：標準誤差。

表2.3-12 H25年度採取試料の土壌-農作物移行係数（乾物重ベース）の追加（1/2）

作物名	EFII-CD-		N	Na	Mg	Al	Si	P	K	Ca	Sc
ネギ	1	高知	1.2E+1	2.0E-2	1.5E-1	2.5E-4	2.3E-5	2.7E+0	2.4E+0	9.5E-1	3.2E-3
ハクサイ	2	高知	1.1E+1	2.0E-2	5.1E-2	2.9E-4	4.3E-5	1.4E+0	2.8E+0	3.5E-1	2.7E-3
キャベツ	3	熊本	4.3E+0	8.8E-2	3.2E-1	1.4E-4	2.4E-5	6.8E-1	5.0E+0	7.6E-1	2.2E-3
ハクサイ	4	熊本	4.5E+0	7.0E-2	5.0E-1	8.1E-5	5.9E-5	1.1E+0	4.8E+0	7.5E-1	1.3E-3
ホウレンソウ	5	熊本	8.6E+0	6.6E-2	2.1E+0	3.0E-3	1.1E-3	1.3E+0	1.4E+1	5.4E-1	3.6E-3
レタス	6	熊本	4.5E+0	7.6E-2	3.3E-1	2.2E-4	1.4E-4	5.4E-1	9.9E+0	3.4E-1	1.0E-3
キャベツ	7	鹿児島	4.7E+0	3.7E-2	2.5E-1	2.3E-4	6.6E-5	8.1E-1	4.7E+0	4.1E-1	2.2E-3
ネギ	8a	鹿児島	2.9E+0	2.0E-3	9.5E-2	4.5E-4	7.4E-5	7.4E-1	2.5E+0	1.2E-1	1.2E-3
ホウレンソウ	9	鹿児島	1.9E+1	2.1E-2	8.0E-1	4.2E-3	5.7E-3	2.3E+0	1.6E+1	3.6E-1	5.0E-3
ホウレンソウ	10	宮崎	9.8E+0	2.0E-2	7.5E-1	3.8E-3	2.0E-3	1.2E+0	1.5E+1	4.1E-1	6.7E-3
キャベツ	11	沖縄	2.2E+1	8.1E-2	1.7E-1	2.1E-4	1.3E-5	3.2E+0	2.0E+0	3.3E-1	5.6E-3
ネギ	12a	沖縄	3.1E+1	7.2E-2	3.4E-1	2.1E-3	6.7E-4	6.1E+0	3.0E+0	8.7E-1	7.1E-3
ホウレンソウ	13	沖縄	3.3E+1	6.6E-1	8.9E-1	1.3E-2	4.3E-3	5.5E+0	5.9E+0	3.7E-1	9.9E-3
チンゲンサイ	14	沖縄	3.5E+1	7.1E-1	2.6E-1	5.4E-3	1.9E-3	6.7E+0	4.8E+0	1.4E+0	1.2E-2
キャベツ	15	宮崎	6.1E+0	1.9E-2	1.5E-1	1.7E-4	3.3E-5	8.5E-1	4.4E+0	2.4E-1	9.9E-3
ネギ	16	宮崎	3.3E+0	1.1E-3	9.2E-2	1.2E-3	1.4E-5	5.9E-1	2.7E+0	1.4E-1	7.5E-3
ハクサイ	17	宮崎	7.5E+0	1.2E-1	1.7E-1	6.6E-4	1.5E-4	1.6E+0	5.6E+0	3.6E-1	4.7E-3
キャベツ	18	高知	1.8E+1	6.5E-2	2.1E-1	1.3E-4		1.8E+0	3.4E+0	2.1E+0	1.8E-2
タカナ	19	高知	1.3E+1	3.0E-2	1.4E+0	9.0E-4	7.2E-4	2.4E+0	2.0E+0	2.3E+0	1.0E-2
ハクサイ	20	鹿児島	9.1E+0	5.9E-2	2.1E-1	2.7E-4	6.9E-5	1.4E+0	6.8E+0	4.4E-1	4.1E-3

EFII-CD-	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Se	Rb
1	4.8E-4	2.1E-4	3.0E-3	2.2E-2	7.8E-4	5.3E-2	7.8E-2	5.3E-2	3.4E-1	3.6E-2	6.1E-2
2	4.8E-4	1.5E-4	2.3E-3	7.6E-3	6.6E-4	4.5E-3	4.1E-3	2.8E-2	1.4E-1	1.2E-1	2.2E-1
3	2.3E-4	1.2E-4	2.8E-2	1.1E-2	7.7E-4	3.5E-3	7.2E-2	8.4E-4	1.7E-1	4.1E-2	1.4E+0
4	2.5E-4	6.1E-4	4.6E-1	1.7E-2	5.6E-4	1.3E-2	4.3E-1	6.1E-2	2.1E-1	4.2E-2	8.5E-1
5	1.9E-3	9.2E-4	1.3E-2	7.8E-2	2.7E-3	1.8E-1	7.1E-1	6.3E-2	6.8E-1	3.8E-2	2.5E+0
6	5.0E-4	3.6E-4	2.8E-3	4.4E-2	9.1E-4	4.0E-2	2.3E-1	5.1E-2	4.1E-1	3.8E-2	1.1E+1
7	4.1E-4	6.9E-4	2.4E-2	2.1E-2	7.0E-4	4.0E-3	6.3E-2		2.3E-1	5.5E-2	3.5E+0
8a	3.0E-4	6.2E-4	7.7E-3	6.2E-3	3.6E-4	1.5E-3	4.1E-1	2.4E-2	2.6E-1	4.2E-2	2.3E+0
9	2.7E-3	1.6E-3	4.7E-2	2.8E-2	8.1E-3	3.1E-2	5.1E-1	3.1E-1	9.3E-1	4.2E-2	8.7E+0
10	2.1E-3	2.4E-3	2.2E-2	2.8E-2	3.8E-3	2.4E-2	2.4E-1	1.1E-1	7.8E-1	6.6E-2	2.1E+0
11	5.0E-4	1.6E-3	3.2E-3	3.5E-2	1.0E-3	1.7E-2	2.9E-2	7.2E-2	2.7E-1	1.6E-1	5.8E-2
12a	1.6E-3	2.0E-3	4.7E-3	2.3E-2	2.0E-3	1.7E-2	2.4E-2	2.1E-1	3.8E-1	1.6E-1	2.6E-1
13	6.1E-3	6.1E-3	1.4E-2	6.8E-2	6.4E-3	1.2E-1	2.8E-1	3.6E-1	4.3E-1	4.6E-1	3.7E-1
14	3.2E-3	3.2E-3	7.9E-3	5.0E-2	3.0E-3	3.0E-2	3.0E-2	1.9E-1	3.9E-1	5.2E-1	6.2E-1
15	5.7E-4	7.9E-4	1.1E-2	1.8E-2	9.3E-4	8.6E-3	5.3E-2	4.6E-2	3.1E-1	4.0E-2	1.9E+0
16	3.3E-4	7.0E-4	1.4E-2	7.1E-3	4.1E-4	1.5E-3	1.1E-1	6.9E-2	2.2E-1	2.4E-2	4.3E-1
17	1.3E-3	6.3E-4	8.9E-3	1.9E-2	1.1E-3	2.3E-2	8.2E-2	6.0E-2	3.5E-1	9.5E-2	3.4E+0
18	6.6E-4	7.4E-4	1.8E-3	2.7E-2	1.0E-3	8.0E-3	1.1E-2	4.4E-2	2.1E-1	1.4E-1	6.7E-1
19	1.1E-3	6.9E-4	5.5E-3	2.6E-2	1.8E-3	8.7E-3	2.8E-2	1.1E-1	3.2E-1	1.9E-1	1.4E-1
20	6.1E-4	1.8E-4	2.2E-3	2.3E-2	8.3E-4	1.8E-2	2.1E-1	6.7E-2	3.7E-1	8.4E-2	3.4E+0

表2.3-12 (つづき) (2/2)

EFII-CD-	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Cd	Sn	Sb	Cs	Ba
1	2.9E-2	2.4E-3	7.7E-4	9.6E-3	4.9E-2	1.8E-1	5.4E-2	9.0E-2	8.9E-3	1.2E-3
2	1.7E-1	1.5E-3	5.7E-4	5.5E-3	7.1E-1	3.2E-1	2.2E-2	4.7E-2	8.4E-3	2.5E-2
3	2.7E-1	1.7E-3	4.2E-4	6.7E-3	1.4E-1	7.7E-2	2.0E-2	3.5E-2	1.8E-2	7.3E-2
4	2.0E-1	1.3E-3	4.4E-4	8.2E-3	3.1E-1	3.6E-2	4.0E-2	4.6E-2	2.4E-2	3.8E-2
5	2.6E-1	3.1E-3	1.6E-3	9.7E-3	1.7E-1	1.7E+0	3.3E-2	6.8E-2	2.0E-2	4.1E-2
6	1.9E-1	1.6E-3	1.2E-3	8.7E-3		2.7E-1	2.2E-2	5.2E-2	4.1E-2	5.0E-2
7	1.3E-1	2.7E-3	7.6E-4	1.4E-2	3.1E-1	2.2E-2	2.6E-2	1.4E-1	1.5E-1	6.0E-2
8a	6.1E-2	1.5E-3	7.4E-4	1.4E-2	2.0E-2	3.0E-2	5.5E-2	1.0E-1	3.4E-2	1.4E-2
9	1.9E-1	5.3E-3	2.9E-3	9.1E-3	8.5E-1	1.5E+0	3.5E-2	1.0E-1	4.3E-2	1.1E-1
10	9.2E-2	2.5E-3	1.9E-3	1.1E-2	8.0E-1	1.1E+0	3.7E-2	9.0E-2	1.9E-2	2.5E-2
11	1.7E-1	1.3E-3	7.8E-4	3.1E-3	1.5E+0	5.5E-1	2.5E-2	3.9E-2	4.8E-3	3.6E-3
12a	7.5E-1	3.2E-3	1.7E-3	4.1E-3	1.3E+0	1.8E-1	1.8E-2	4.5E-2	5.5E-3	7.1E-3
13	4.4E-1	7.9E-3	5.4E-3	8.8E-3	1.8E+0	3.4E+0	2.3E-2	5.2E-2	1.3E-2	1.0E-2
14	1.7E+0	4.2E-3	2.2E-3	2.8E-3	3.3E+0	2.3E+0	2.6E-2	3.7E-2	7.9E-3	1.2E-2
15	8.7E-2	1.6E-3	8.4E-4	1.7E-4	2.3E-1	4.0E-2	4.7E-2	5.7E-2	3.0E-2	3.2E-2
16	5.4E-2	1.3E-3	7.9E-4	1.5E-4	1.9E-1	5.8E-2	4.9E-2	5.6E-2	1.3E-2	2.1E-2
17	1.8E-1	1.3E-3	9.3E-4	1.5E-3	1.0E+0	5.5E-1	6.5E-2	4.4E-2	5.1E-2	8.1E-2
18	3.2E-1	4.4E-3	9.4E-4	7.3E-4	6.7E-1	1.1E-1	3.3E-2	4.2E-2	2.4E-2	4.4E-2
19	3.0E+0	5.9E-3	8.0E-4	8.5E-4	4.7E+0	3.0E-1	3.5E-2	4.0E-2	5.2E-3	1.3E-1
20	2.3E-1	1.3E-3	8.3E-4	7.3E-4	2.3E-1	4.7E-1	6.0E-2	6.3E-2	2.1E-2	7.2E-2

EFII-CD-	La	Ce	Sm	Eu	Hf	W	Tl	Pb	Th	U
1	2.9E-3	9.6E-4	3.7E-3	2.4E-2	1.1E-2	1.3E-1	6.3E-3	2.2E-3	2.0E-3	2.5E-4
2	2.3E-3	5.1E-4	2.4E-3	1.9E-2	1.2E-2	9.2E-2	9.7E-4	5.9E-3	1.7E-3	6.1E-5
3	4.3E-3	8.3E-4	2.6E-3	2.5E-2	8.9E-3	7.7E-2	1.9E-2	3.6E-3	1.9E-3	6.2E-5
4	2.5E-3	5.8E-4	1.5E-3	1.4E-2	6.0E-3	1.0E-1	3.3E-2	1.1E-2	1.2E-3	2.8E-5
5	4.6E-3	3.0E-3	5.7E-3	2.3E-2	9.7E-3	1.0E-1	2.5E-1	8.7E-3	2.0E-3	8.2E-4
6	3.9E-3	1.4E-3	2.0E-3	1.6E-2	9.4E-3	1.4E-1	5.5E-2	1.4E-3	1.8E-3	4.4E-5
7	8.2E-3	2.3E-3	3.6E-3	2.1E-2	1.3E-2	2.3E-1	7.4E-1	5.4E-4	2.2E-3	7.6E-5
8a	4.8E-3	1.3E-3	2.6E-3	1.9E-2	1.4E-2	2.3E-1	1.1E-1	3.5E-2	2.4E-3	1.3E-4
9	1.6E-2	7.5E-3	1.3E-2	4.8E-2	2.4E-2	2.5E-1	5.0E-1	1.3E-2	4.2E-3	5.8E-3
10	5.4E-3	2.1E-3	9.5E-3	4.5E-2	2.6E-2	3.5E-1	2.9E-1	7.1E-3	3.0E-3	2.6E-3
11	1.4E-3	3.9E-4	5.1E-3	3.4E-2	2.4E-2	1.7E-1		3.0E-3	6.6E-4	1.6E-3
12a	2.8E-3	2.1E-3	7.7E-3	4.1E-2	2.2E-2	1.4E-1	4.7E-3	5.8E-3	2.4E-3	4.0E-3
13	8.4E-3	7.1E-3	1.4E-2	4.8E-2	2.2E-2	1.4E-1	1.3E-2	1.2E-2	8.7E-3	7.6E-3
14	3.7E-3	2.0E-3	1.1E-2	5.4E-2	1.8E-2	8.5E-2	2.4E-3	5.6E-3	3.9E-3	5.0E-3
15	4.6E-3	1.7E-3	9.6E-3	5.1E-2	2.4E-2	1.5E-1	6.7E-1	6.2E-3	1.5E-3	1.7E-3
16	3.0E-3	9.7E-4	1.0E-2	5.3E-2	2.3E-2	1.4E-1	9.4E-2	7.3E-3	1.4E-3	1.9E-3
17	5.6E-3	1.3E-3	1.2E-2	6.1E-2	2.5E-2	1.7E-1	4.1E-2	2.7E-3	2.0E-3	2.1E-3
18	5.8E-3	1.7E-3	2.7E-2	1.8E-1	2.7E-2	1.9E-1	1.2E-2	4.3E-3	2.9E-3	1.6E-3
19	6.1E-3	1.8E-3	1.7E-2	8.5E-2	1.9E-2	1.3E-1	3.2E-3	1.1E-2	1.0E-3	2.0E-3
20	4.2E-3	2.5E-3	9.1E-3	5.0E-2	2.3E-2	1.8E-1	2.0E-2	8.5E-3	1.7E-3	2.2E-3

表2.4-1 炭素-14のKdと土壌に関する独立変数の相関 (1/2)

独立変数	単位	全試料		水田土壌		畑土壌	
		p値	相関係数(R)	p値	相関係数(R)	p値	相関係数(R)
Mn-54	Kd (L/kg)	0.0001	-0.39	0.1440	-0.19	0.0008	-0.37
Ni-63	Kd (L/kg)	0.0001	0.52	0.2195	0.29	0.0001	0.54
Se-75	Kd (L/kg)	0.0001	0.47	0.1821	0.17	0.0001	0.61
Sr-85	Kd (L/kg)	0.0001	0.35	0.0013	0.40	0.1400	0.17
Sn-113	Kd (L/kg)	0.0079	0.30	0.6335	0.08	0.0003	0.54
Sb-124	Kd (L/kg)	0.0001	0.73	0.0001	0.70	0.0001	0.76
I-125 (I-) 4°C	Kd (L/kg)	0.0002	0.31	0.8466	-0.02	0.0371	0.23
I-125 (I-) 23°C	Kd (L/kg)	0.0001	0.44	0.0001	0.51	0.0403	0.23
I-125 (IO3-) 4°C	Kd (L/kg)	0.0001	0.65	0.0002	0.45	0.0001	0.73
I-125 (IO3-) 23°C	Kd (L/kg)	0.0001	0.64	0.0001	0.52	0.0001	0.66
Cs-137	Kd (L/kg)	0.2163	-0.10	0.6580	0.06	0.5663	-0.07
coarse sand	(%)	0.0250	-0.19	0.0390	-0.26	0.8105	0.03
fine sand	(%)	0.2431	-0.10	0.9003	0.02	0.0242	-0.25
sand	(%)	0.0034	-0.24	0.0335	-0.27	0.0615	-0.21
silt	(%)	0.0002	0.31	0.0505	0.25	0.0084	0.30
clay	(%)	0.0032	0.25	0.0180	0.30	0.1724	0.16
仮比重		0.0003	-0.30	0.0267	-0.28	0.0001	-0.52
土粒子密度		0.0071	-0.23	0.0274	-0.28	0.0258	-0.25
含水率	(%)	0.0001	0.41	0.0104	0.32	0.0001	0.57
EC (1:5)	(μ S/cm)	0.0501	-0.16	0.5590	-0.08	0.8210	-0.03
pH	(H2O)	0.0001	-0.70	0.0001	-0.63	0.0001	-0.66
CEC	(meq/100g)	0.4142	0.07	0.6184	0.07	0.1983	0.15
Exchangeable Ca	(mg/100g)	0.0166	-0.20	0.7077	-0.05	0.2605	-0.13
Exchangeable K	(mg/100g)	0.2106	-0.11	0.0255	0.28	0.7978	0.03
Active Al	(g/kg)	0.0001	0.36	0.4085	0.11	0.0001	0.60
Active Fe	(g/kg)	0.0001	0.43	0.0007	0.42	0.0001	0.54
Li	mg/kg	0.0750	0.15	0.7290	0.04	0.1281	0.17
Be	mg/kg	0.3602	0.08	0.3993	-0.11	0.4184	0.09
B	mg/kg	0.3057	0.09	0.2218	0.18	0.9599	-0.01
C	mg/kg	0.0014	0.27	0.2829	0.14	0.0004	0.39
N	mg/kg	0.0036	0.24	0.2394	0.15	0.0019	0.34
Na	mg/kg	0.0160	-0.20	0.3667	-0.12	0.0027	-0.33
Mg	mg/kg	0.6239	0.04	0.8445	0.03	0.5724	0.06
Al	mg/kg	0.0021	0.26	0.0717	0.23	0.0340	0.24
Si	mg/kg	0.0002	-0.31	0.2772	-0.14	0.0001	-0.51
P	mg/kg	0.6604	-0.04	0.6939	0.05	0.3003	0.12
K	mg/kg	0.0004	-0.29	0.0177	-0.30	0.0004	-0.39
Ca	mg/kg	0.0029	-0.25	0.1982	-0.16	0.0164	-0.27
Sc	mg/kg	0.1611	0.12	0.6336	0.06	0.0487	0.22
Ti	mg/kg	0.0001	0.40	0.0068	0.34	0.0001	0.49
V	mg/kg	0.0001	0.32	0.0737	0.23	0.0001	0.44
Cr	mg/kg	0.7781	-0.02	0.1423	0.19	0.2620	-0.13
Mn	mg/kg	0.7085	-0.03	0.4177	-0.10	0.0725	0.20
Fe	mg/kg	0.0002	0.31	0.0515	0.25	0.0001	0.47
Co	mg/kg	0.0118	0.21	0.2118	0.16	0.0012	0.36
Ni	mg/kg	0.2415	0.10	0.0381	0.26	0.5950	0.06
Cu	mg/kg	0.1656	0.12	0.3604	0.12	0.0335	0.24
Zn	mg/kg	0.7869	-0.02	0.9530	-0.01	0.3777	0.10
Ga	mg/kg	0.0252	0.19	0.3429	0.12	0.0423	0.23
As	mg/kg	0.0167	0.20	0.0040	0.36	0.0212	0.26
Se	mg/kg	0.0002	0.31	0.1398	0.19	0.0001	0.48
Br	mg/kg	0.0150	0.20	0.2980	0.13	0.0001	0.50
Rb	mg/kg	0.0216	-0.19	0.0554	-0.24	0.0613	-0.21
Sr	mg/kg	0.0005	-0.29	0.0953	-0.21	0.0019	-0.34
Y	mg/kg	0.2342	-0.10	0.1169	-0.20	0.7208	-0.04

表 2.4-1 (つづき) (2/2)

独立変数	単位	全試料		水田土壌		畑土壌	
		p値	相関係数(R)	p値	相関係数(R)	p値	相関係数(R)
Zr	mg/kg	0.2557	0.10	0.8040	-0.03	0.4743	0.08
Nb	mg/kg	0.0272	0.19	0.7018	0.05	0.1426	0.17
Mo	mg/kg	0.0001	0.31	0.0065	0.34	0.0001	0.45
Ag	mg/kg	0.7544	0.03	0.1045	-0.30	0.0828	0.22
Cd	mg/kg	0.7198	0.03	0.2266	0.15	0.7999	0.03
Sn	mg/kg	0.0783	-0.15	0.3070	-0.13	0.1185	-0.18
Sb	mg/kg	0.0365	0.18	0.3259	0.13	0.1093	0.18
I	mg/kg	0.0639	0.16	0.4942	0.09	0.0001	0.46
Cs	mg/kg	0.4631	0.06	0.4416	-0.10	0.2603	0.13
Ba	mg/kg	0.0001	-0.32	0.0411	-0.26	0.0002	-0.40
La	mg/kg	0.0080	-0.22	0.0085	-0.33	0.0727	-0.20
Ce	mg/kg	0.0308	-0.18	0.0284	-0.28	0.0951	-0.19
Pr	mg/kg	0.0233	-0.19	0.0147	-0.31	0.1915	-0.15
Nd	mg/kg	0.0401	-0.17	0.0198	-0.29	0.3080	-0.12
Sm	mg/kg	0.1109	-0.13	0.0361	0.26	0.6284	-0.06
Eu	mg/kg	0.3332	-0.08	0.3853	-0.11	0.9190	-0.01
Gd	mg/kg	0.2289	-0.10	0.1013	-0.21	0.8412	-0.02
Tb	mg/kg	0.3070	-0.09	0.1370	-0.19	0.9903	0.00
Dy	mg/kg	0.4713	-0.06	0.1851	-0.17	0.8986	0.01
Ho	mg/kg	0.4534	-0.06	0.2506	-0.15	0.8838	0.02
Er	mg/kg	0.4712	-0.06	0.2434	-0.15	0.9876	0.00
Tm	mg/kg	0.4255	-0.07	0.2694	-0.14	0.9317	-0.01
Yb	mg/kg	0.4820	-0.06	0.2510	-0.15	0.8887	-0.02
Lu	mg/kg	0.4451	-0.06	0.3284	-0.13	0.8212	-0.03
Hf	mg/kg	0.0001	0.40	0.0001	0.50	0.0017	0.35
W	mg/kg	0.0371	0.18	0.2706	0.14	0.6331	0.05
Hg	mg/kg	0.1089	0.14	0.6147	0.06	0.6725	0.05
Tl	mg/kg	0.4493	-0.06	0.1245	-0.20	0.6772	-0.05
Pb	mg/kg	0.9776	0.00	0.9466	-0.01	0.8453	-0.02
Th	mg/kg	0.0194	-0.20	0.0022	-0.38	0.2473	-0.13
U	mg/kg	0.0803	0.15	0.8072	-0.03	0.1195	0.18
Cs-137	Bq/kg	0.0040	0.24	0.6771	0.05	0.1400	0.17
Ra-226	Bq/kg	0.7707	-0.03	0.0023	-0.38	0.5218	0.08
Na	水抽出ug/g-soil	0.5836	0.05	0.2054	0.16	0.4234	-0.09
NH4	水抽出ug/g-soil	0.5479	0.05	0.6139	0.06	0.3482	0.11
K	水抽出ug/g-soil	0.0049	-0.24	0.7329	-0.04	0.4199	-0.09
Mg	水抽出ug/g-soil	0.0061	-0.23	0.4726	-0.09	0.3185	-0.11
Ca	水抽出ug/g-soil	0.0023	-0.26	0.0067	-0.34	0.4606	-0.08
F	水抽出ug/g-soil	0.0001	-0.53	0.0003	-0.46	0.0001	-0.55
Cl	水抽出ug/g-soil	0.7643	0.03	0.4234	0.10	0.9599	-0.01
NO3	水抽出ug/g-soil	0.8727	-0.01	0.9847	0.00	0.4491	0.09
PO4	水抽出ug/g-soil	0.0705	-0.37	0.0001		0.1601	-0.30
SO4	水抽出ug/g-soil	0.0133	0.21	0.1806	0.17	0.0210	0.27
Ca	水抽出ug/g-soil	0.0013	-0.27	0.0030	-0.37	0.4004	-0.10
Na	水抽出ug/g-soil	0.5582	0.00	0.1365	0.19	0.4179	-0.09
K	水抽出ug/g-soil	0.0014	-0.27	0.7870	-0.03	0.2236	-0.14
Mg	水抽出ug/g-soil	0.0040	-0.24	0.4562	-0.10	0.2751	-0.12
Sr	水抽出ug/g-soil	0.6629	-0.04	0.6937	0.05	0.9904	0.00
Fe	水抽出ug/g-soil	0.0616	-0.16	0.9313	0.01	0.0040	-0.32
Al	水抽出ug/g-soil	0.0999	-0.14	0.3969	0.11	0.0063	-0.31
P	水抽出ug/g-soil	0.0001	-0.62	0.0007	-0.42	0.0001	-0.63
Zn	水抽出ug/g-soil	0.6913	-0.03	0.1805	0.17	0.0792	-0.20
Rb	水抽出ug/g-soil	0.7945	0.02	0.5533	0.08	0.0740	0.20
Cs	水抽出ug/g-soil	0.0640	0.16	0.3488	-0.12	0.0018	0.35

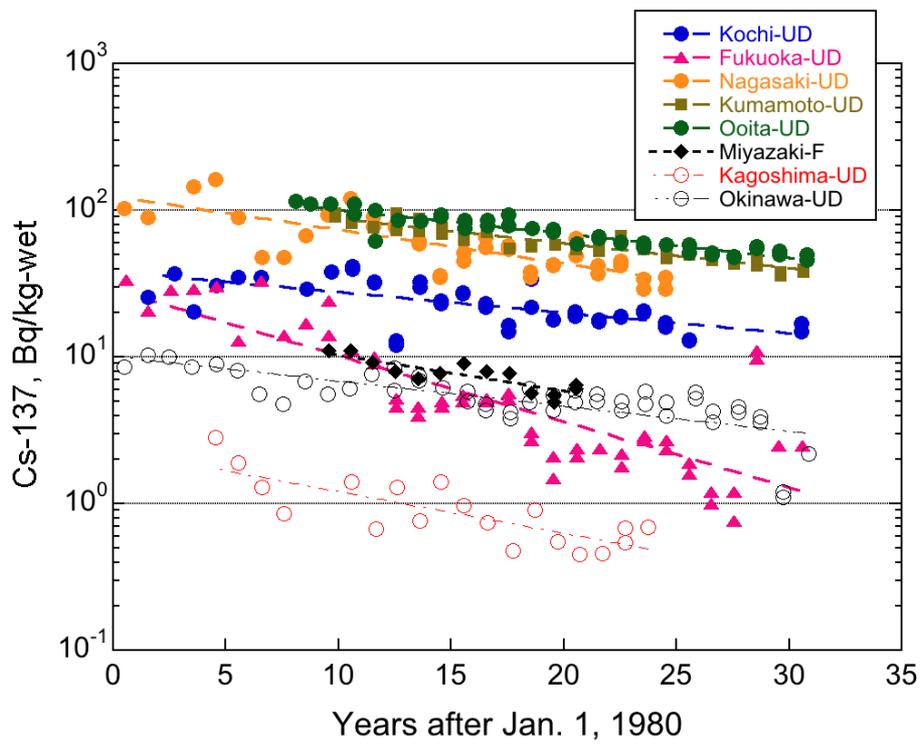
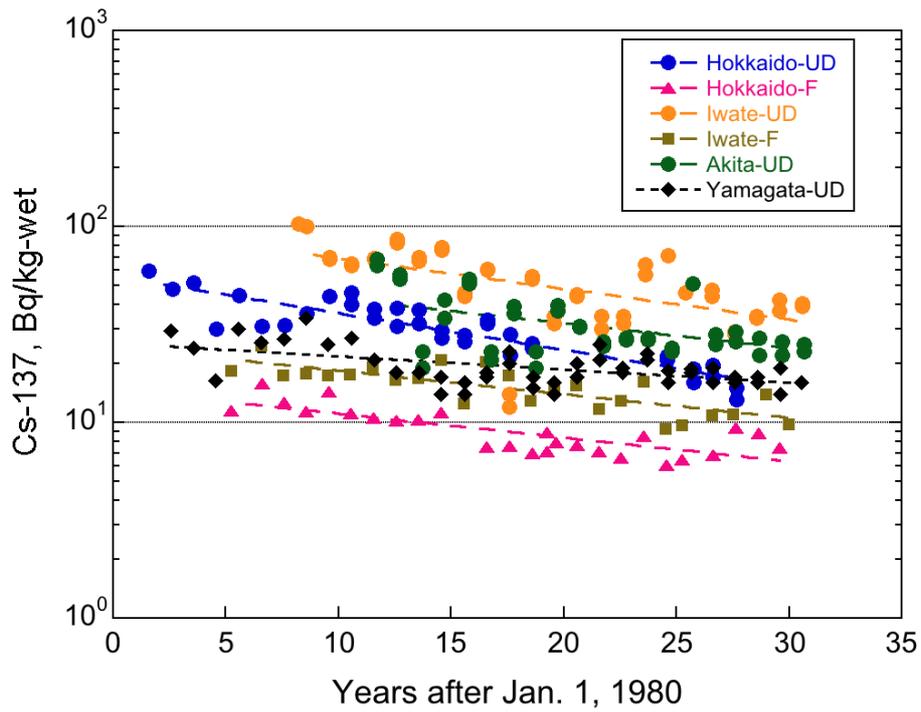


図 2.2-1 グローバルフォールアウト ^{137}Cs の表層土壌中濃度の経時変化
 UD: Undisturbed soil. F: Upland Field soil。上：寒冷地、下：温暖地

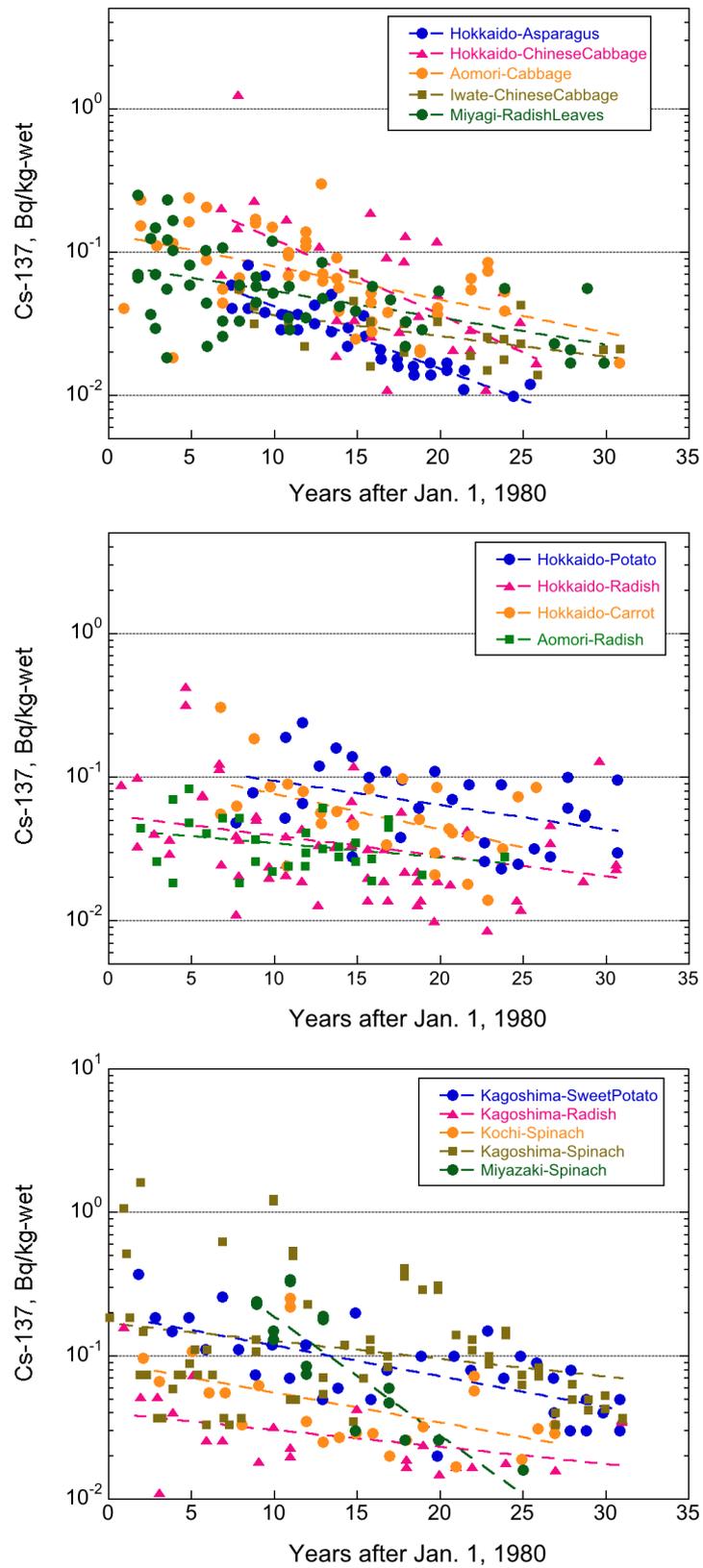


図 2.2-2 グローバルフォールアウト ^{137}Cs の農作物中濃度の経時変化
 上・中：寒冷地、下：相対的に温暖地

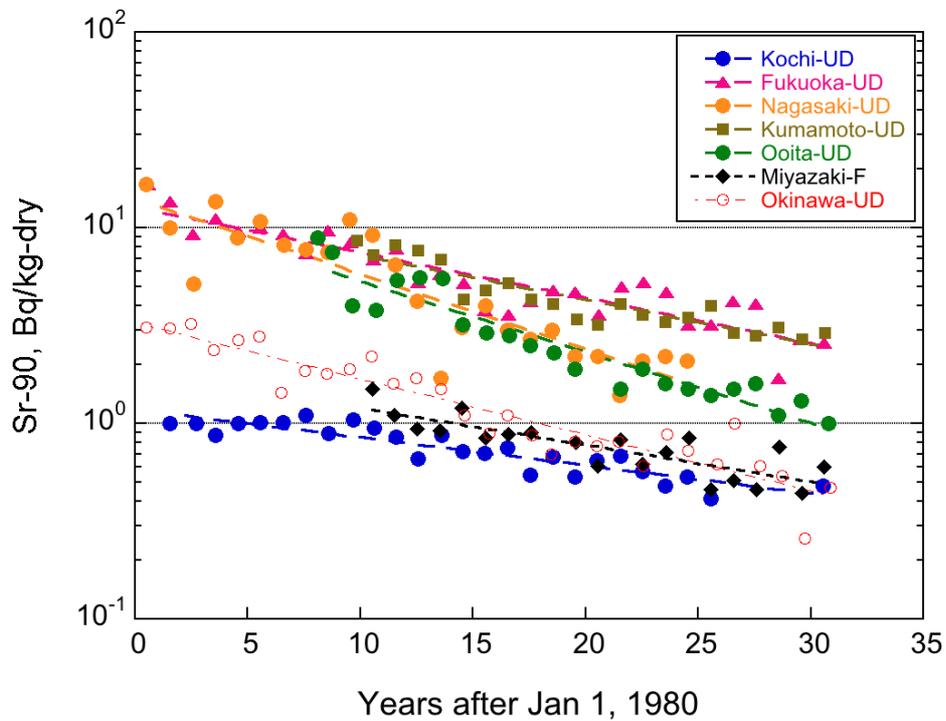
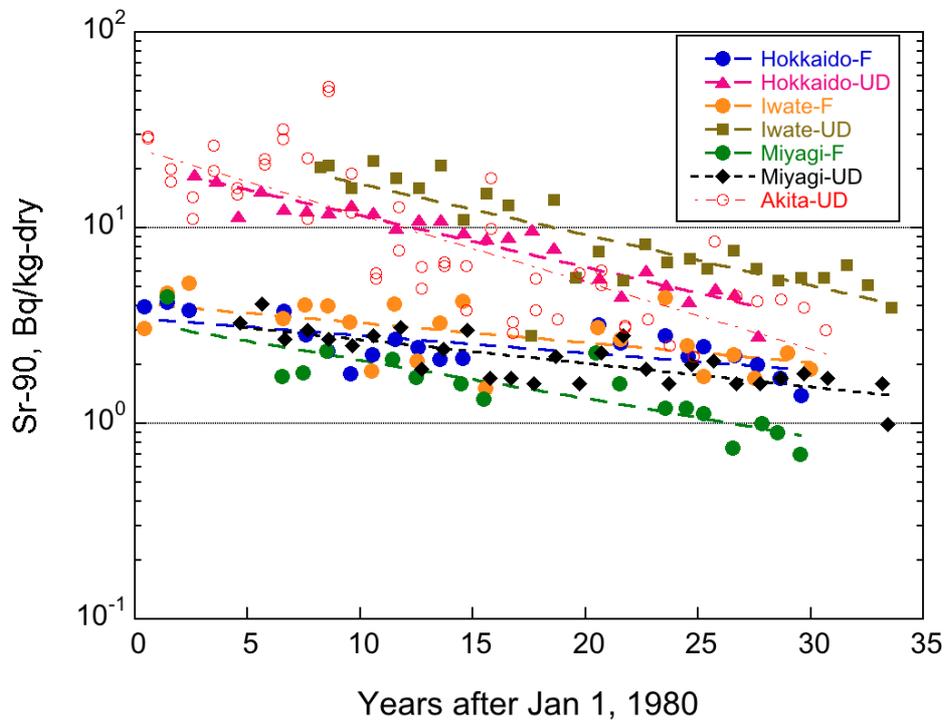


図 2.2-3 グローバルフォールアウト ^{90}Sr の表層土壌中濃度の経時変化
 UD: Undisturbed soil. F: Upland Field soil, 上: 寒冷地、下: 温暖地

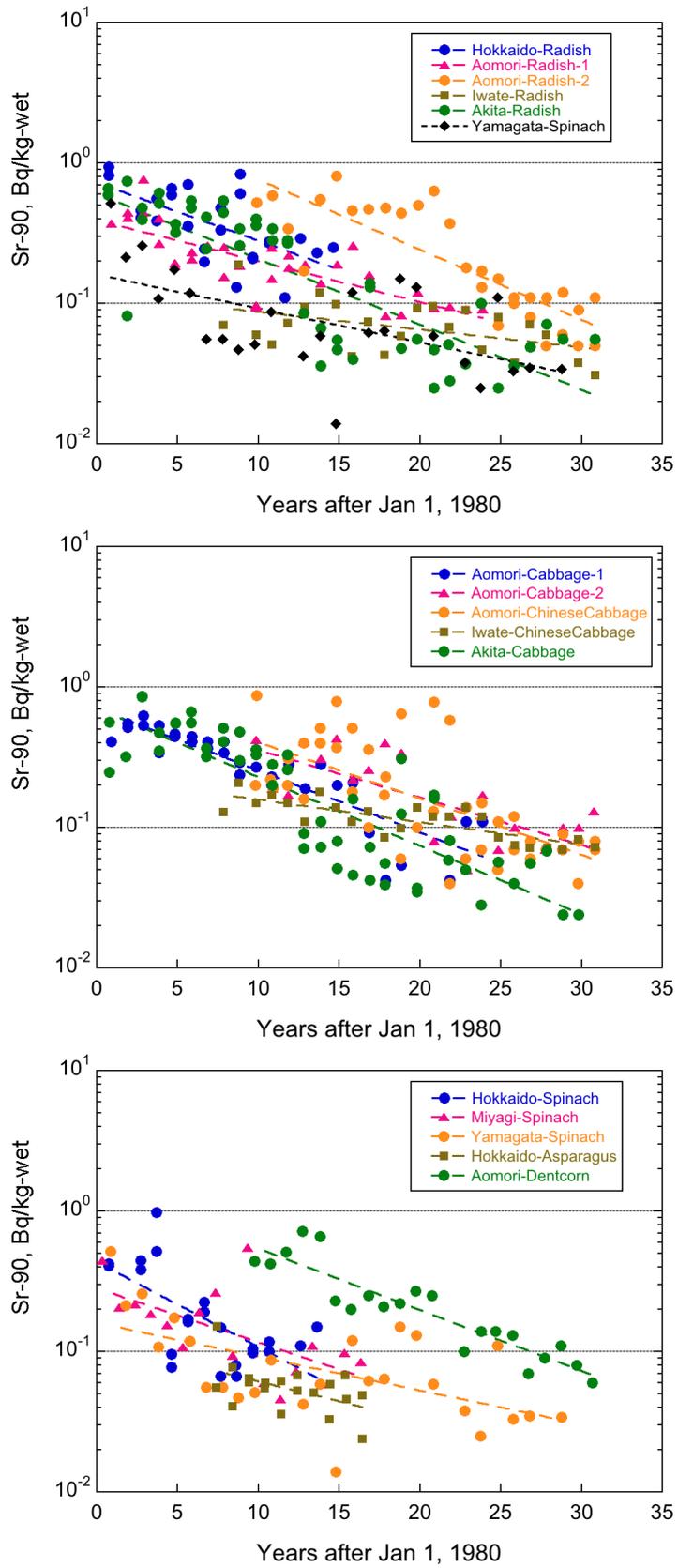


図 2.2-4 グローバルフォールアウト ^{90}Sr の農作物中濃度の経時変化 (寒冷地)

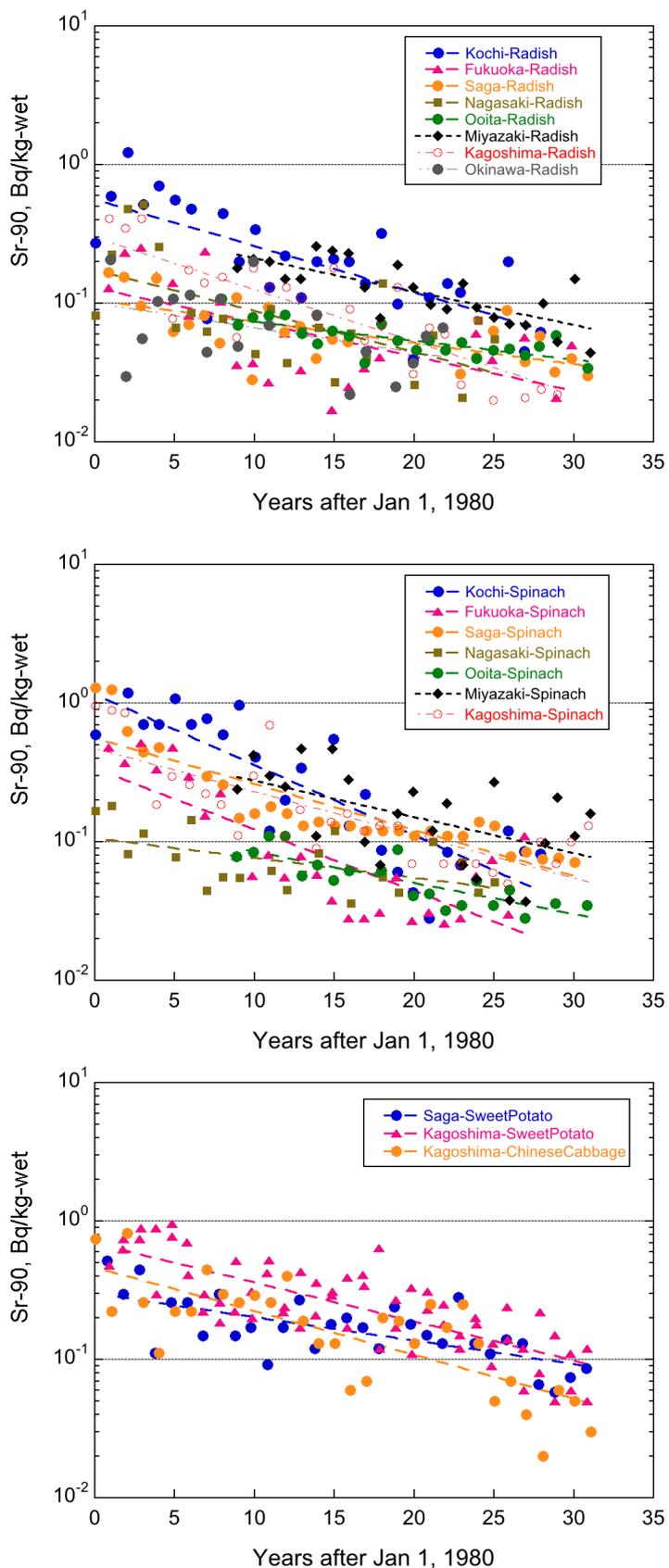


図 2.2-5 グローバルフォールアウト ⁹⁰Sr の農作物中濃度の経時変化 (温暖地)

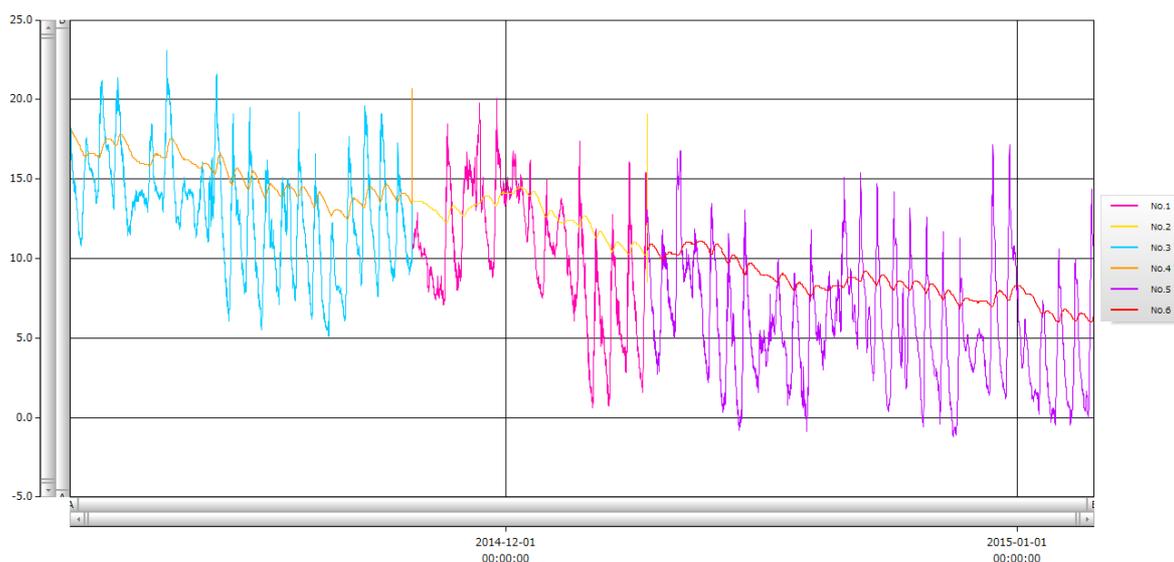


図2.2-6 2014年11月から12月における大気温度と土壌中（20 cm）温度の5分間隔計測の結果
 （注：色調変化する時間においてデータ回収を行っており、そのため一時的に土壌中温度が高くなっている）

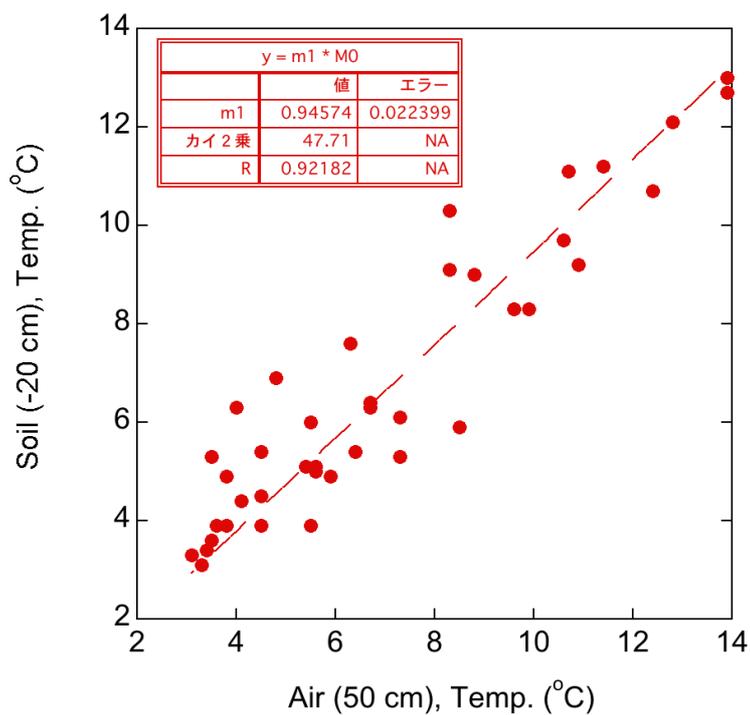


図2.2-7 2014年11月から12月における大気温度と土壌中（20 cm）温度の1日平均値の関係



精米



粉碎

図2.3-1 精米作業状況

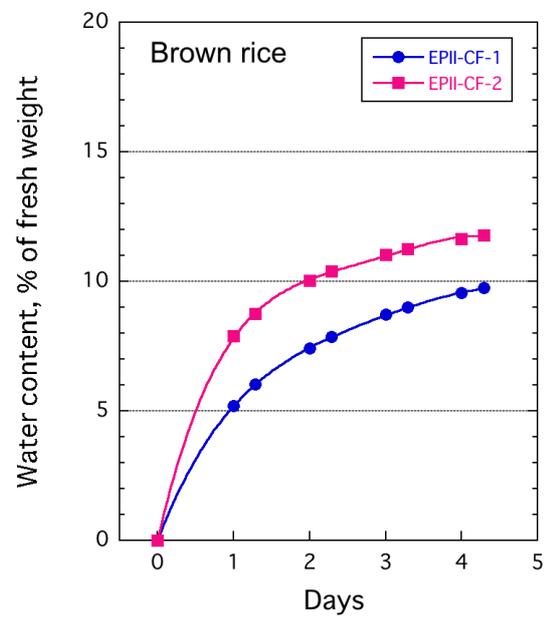
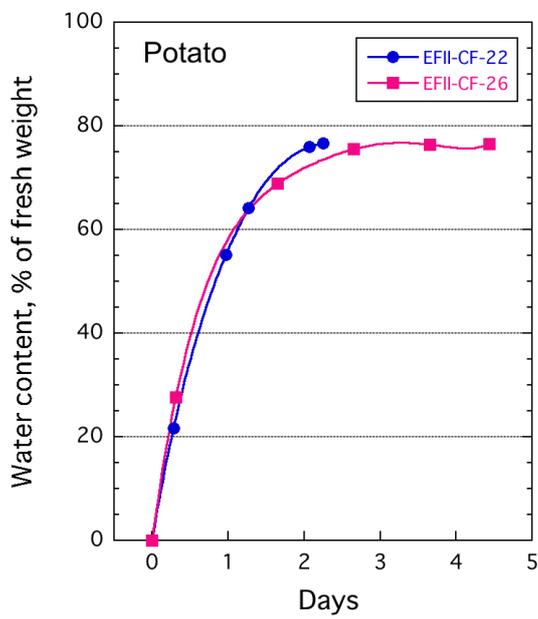


図2.3-2 凍結乾燥時の水分含量率の経時変化

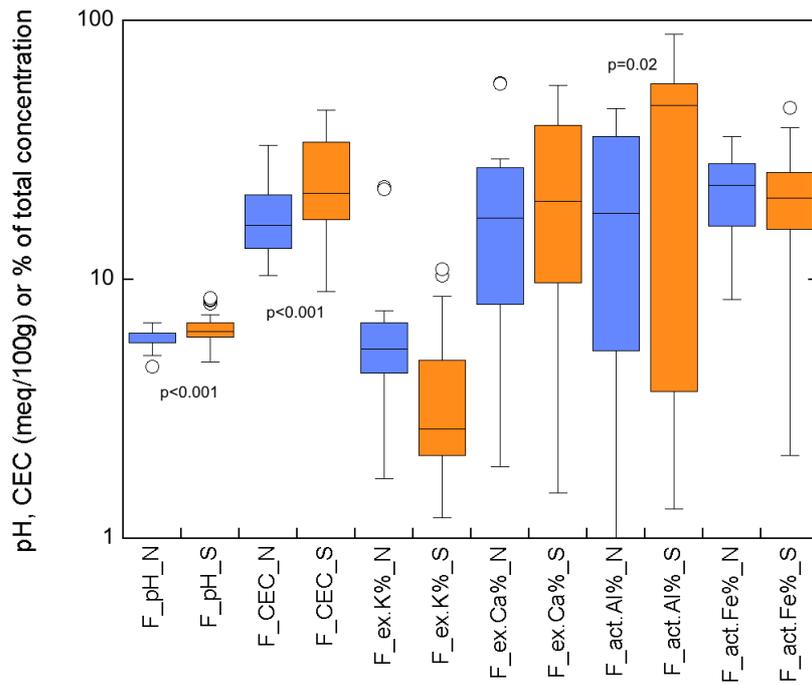


図2.3-3 寒冷地 (n=15) および温暖地 (n=30) で採取された畑土壌の物理化学成分の比較

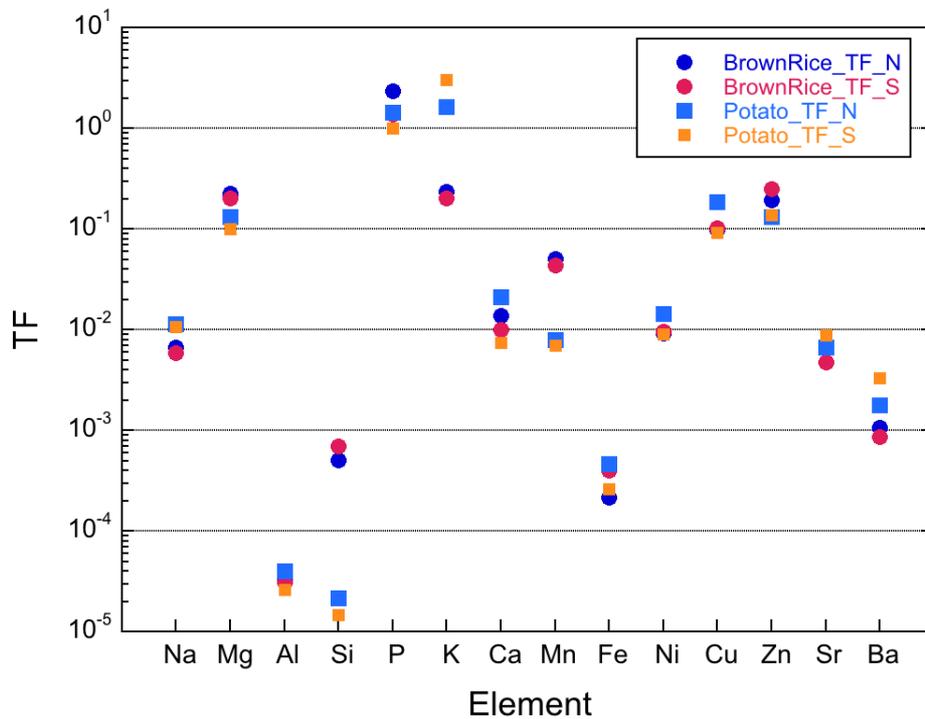


図2.3-4 平成26年度に採取した玄米およびジャガイモの移行係数 (幾何平均値)
Nは寒冷地、Sは温暖地

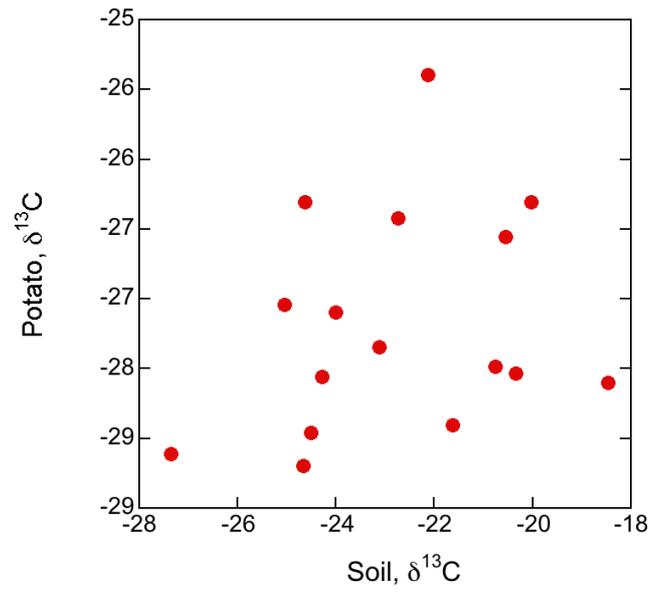


図2.3-5 ジャガイモと土壌の炭素安定同位体比 (δ¹³C) の関係

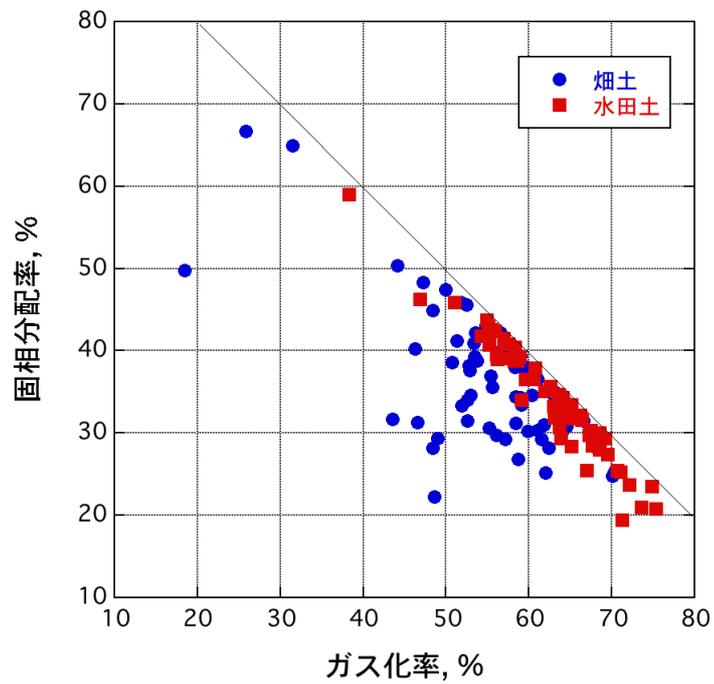


図 2.4-1 酢酸態 ¹⁴C の土壌固相と気相 (ガス化率) へ分配した割合の関係

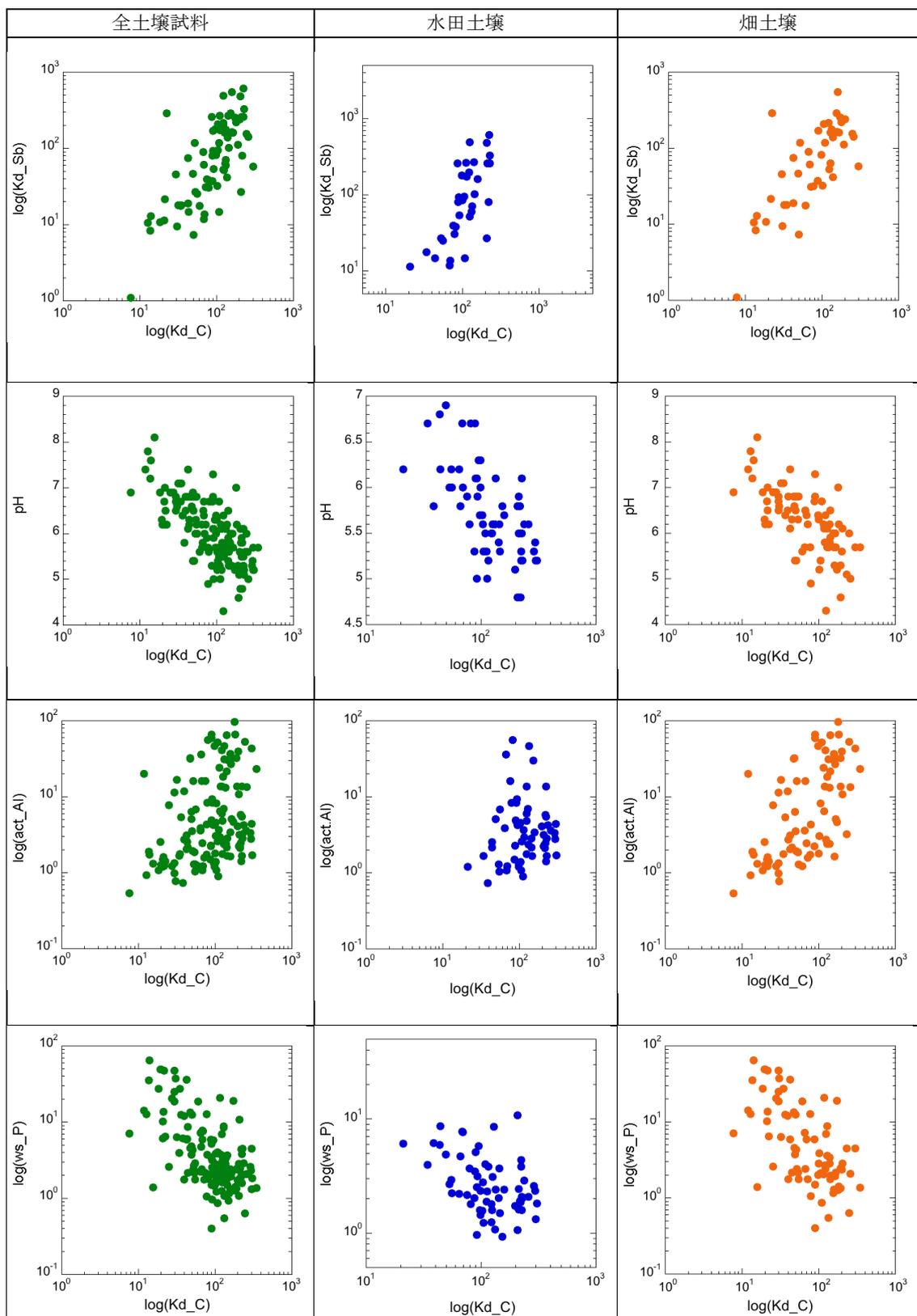


図 2.4-2 炭素-14 の Kd と相関の高い独立変数 (Kd_Sb, pH, 活性 Al および水溶性 P) のプロット

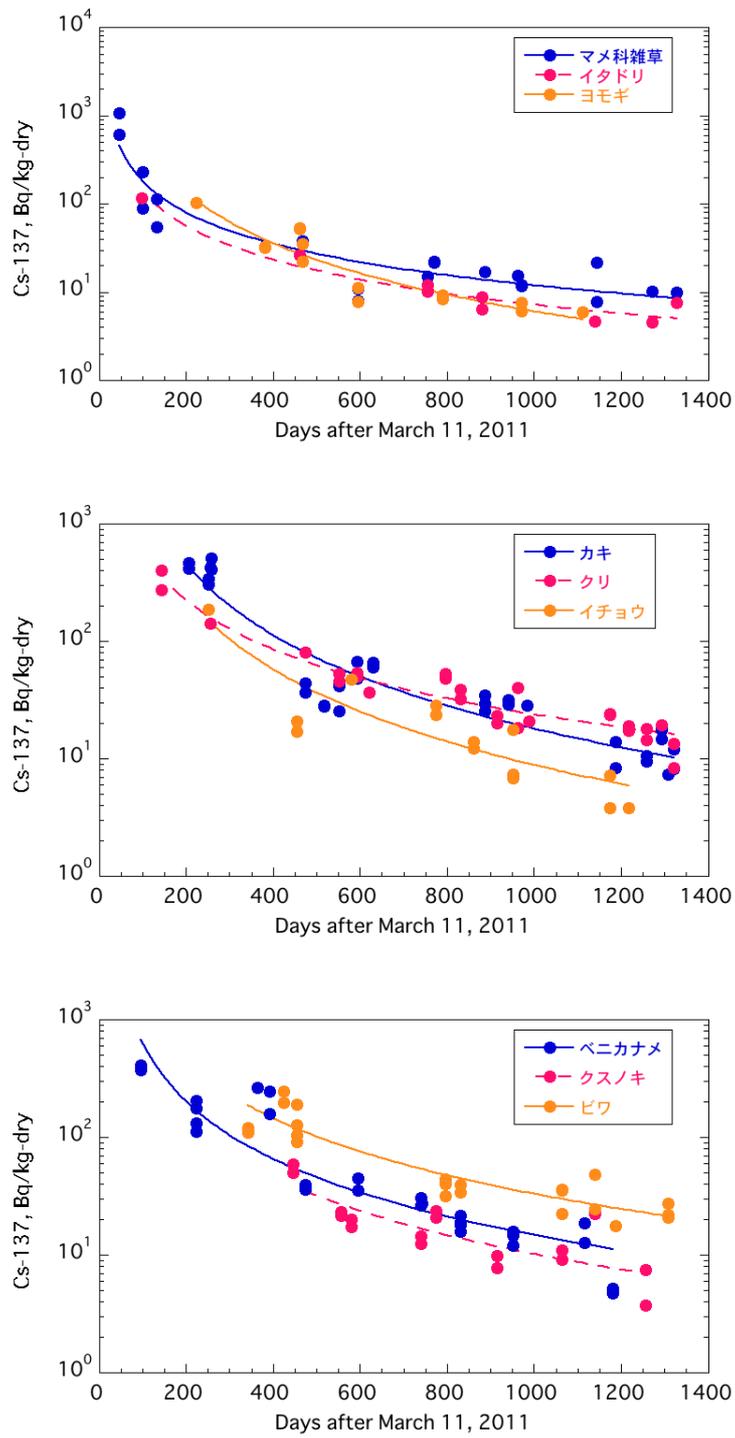


図 2.5-1 東電福島第一原発事故以降に観察された植物中の ^{137}Cs 濃度の経時変化
 上：草本植物、中：落葉樹、下：常緑樹

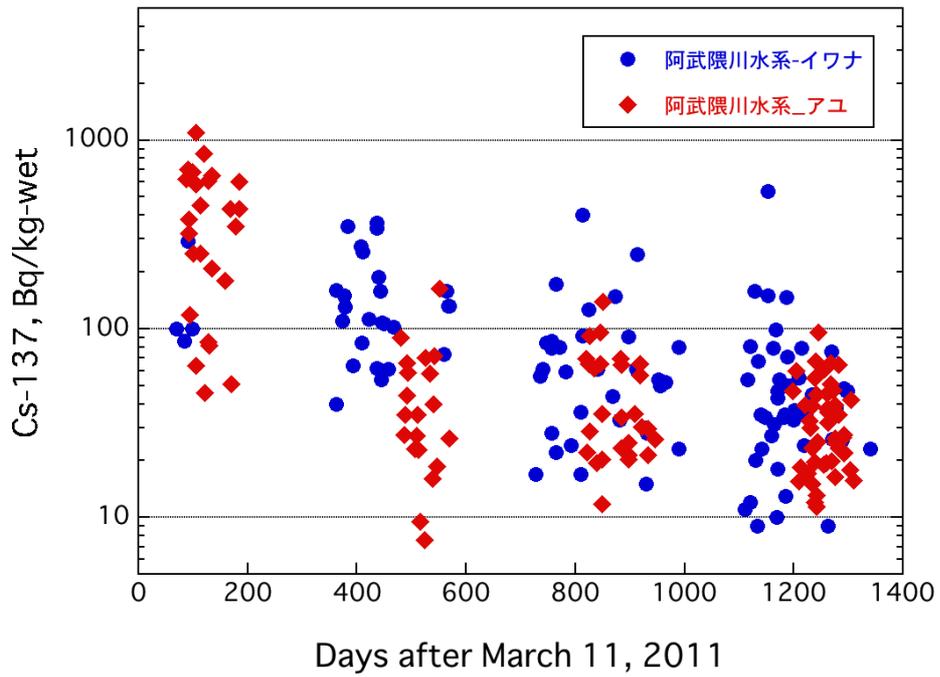


図 2.5-2 阿武隈川水系で採取されたイワナとアユ可食部中の ^{137}Cs 濃度の経時変化

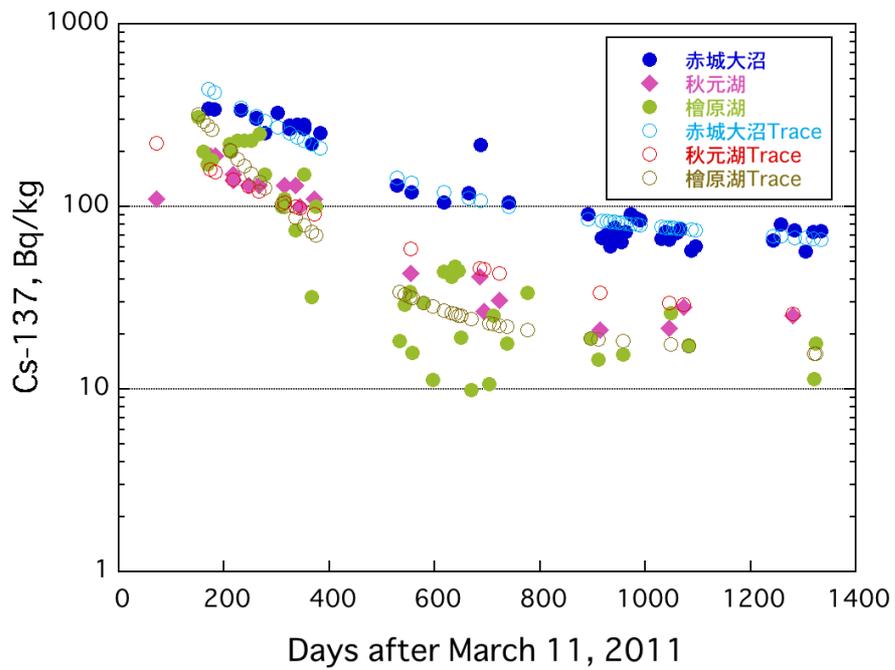


図 2.5-3 3つの湖沼において採取されたワカサギ中の ^{137}Cs 濃度の経時変化と
2つの指数関数によるフィッティング結果

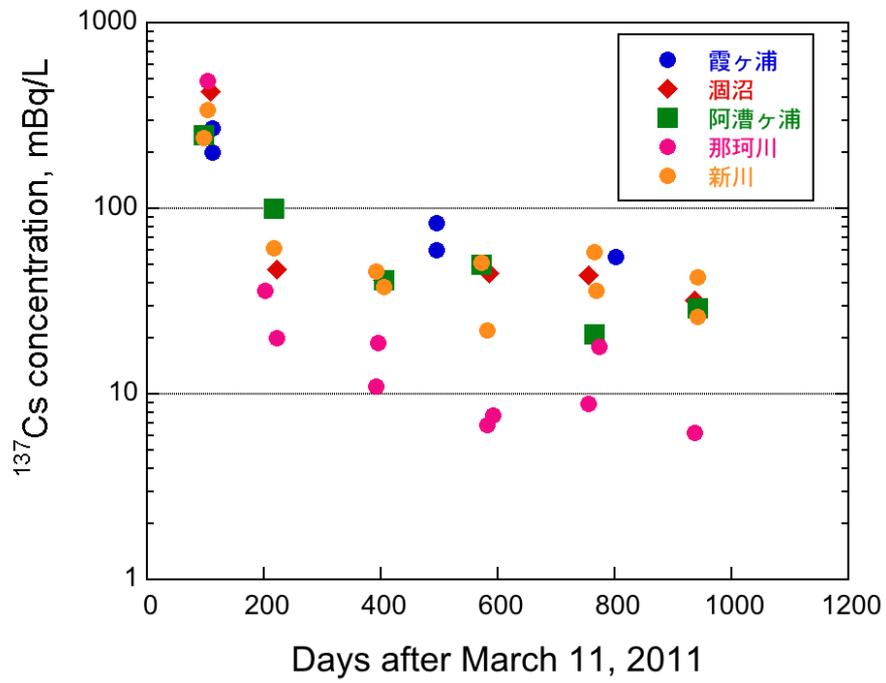


図 2.5-4 河川および湖沼水中 ^{137}Cs 濃度 (mBq/L) の経時変化

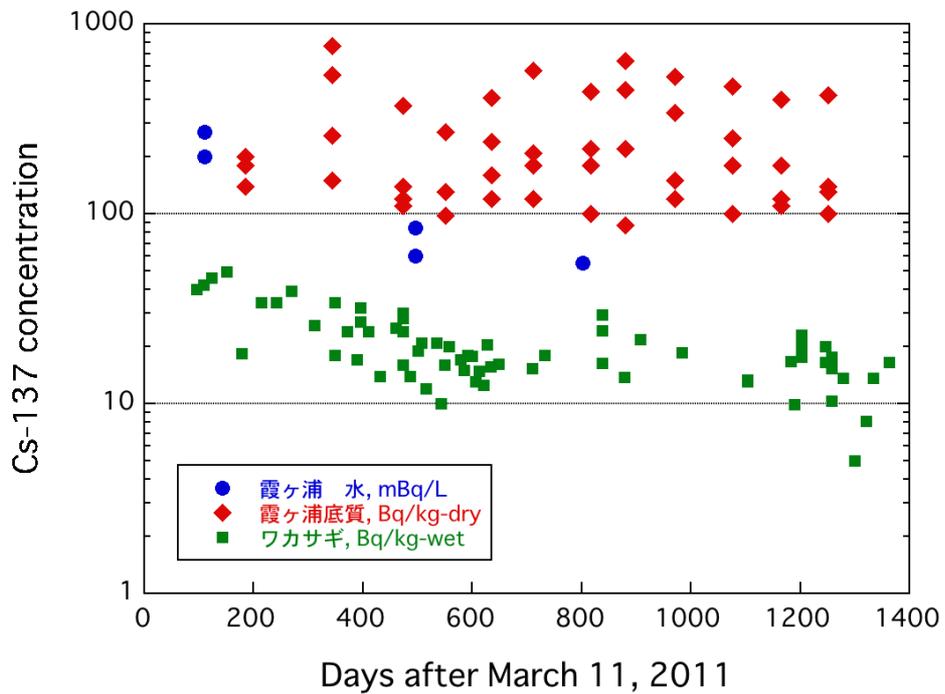


図 2.5-5 霞ヶ浦の湖水、堆積物およびワカサギ中の ^{137}Cs 濃度の経時変化

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}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 (JAEA and FEPC, 2007)。 ^{14}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ヒトとヒトの生活環境に影響を及ぼさないようにすることである。この目標を達成するために、大きく分けて二つのシナリオ (地下水シナリオ及び近接シナリオ) でシミュレーションが行われ、安全評価に役立てられている。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 (核燃料サイクル開発機構, 1999)。したがって、 ^{14}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が重要である。

本事業では生物圏、特に農耕地土壌から農作物への ^{14}C 移行プロセスに着目している。生物圏に到達した ^{14}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, 2013)。標準状態 (25°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}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-土壌溶液間分配係数や土壌-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}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}C のガス化は主に微生物活動が原因であることが分かってきた (放射線医学総合研究所, 2013)。例えば、高熱高压処理あるいは化学的に殺菌処理した土壌において、 ^{14}C のガス化はほとんど起こらなかった。つまり、農耕地における ^{14}C の移行プロセスは、そこに生息する微生物の代謝活性に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)、微生物代謝活性は地球環境の変化に伴う温度の変化に対して敏感に反応すると考えられている (Castro et al., 2010; Schindlbacher et al., 2011)。このことから、将来起こる可能性が指摘されている温暖化や寒冷化による気温の変化は、 ^{14}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}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。

本事業の目的は、微生物の代謝活性と ^{14}C のガス化との関係を明らかにし、新たな環

境移行パラメータを提案することである。この目的を達成するために、本年度は次の3つの項目について調査・研究を行った：1) 微生物活動と環境移行パラメータの関係、2) 温度変化と環境移行パラメータの関係についての文献調査、3) 微生物活動を反映したモデルの精緻化。まず初めに、微生物活動と環境移行パラメータの関係では、全国各地より採取した水田土壌における土壌呼吸量を測定し、得られた土壌呼吸量と¹⁴Cガス化率の関係を明らかにした。個々の微生物細胞の代謝活性が高い場合でも、それらの細胞が生息している土壌環境で必ずしも呼吸活性が高くなるとは限らない。例えば、その環境に生息する微生物量が少ない場合である。このように、¹⁴Cガス化率は微生物バイオマスとも関係する可能性があるため、アデノシン三リン酸(ATP)を指標とした土壌微生物バイオマスの測定方法についても開発した。温度変化と環境移行パラメータの関係についての文献調査では、関連する最新の文献をレビューし、今後必要となる情報を整理した。微生物活動を反映したモデルの精緻化では、大気から農作物への¹⁴C移行も考慮した統括的指標を検討するために文献調査を行い、得られた成果をこれまでに構築したモデルに組み込み、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。この章では以上の3点について報告する。

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 CO₂ emissions stoppage, *Nature Climate Change* 4, 40-44.
- JAEA, FEPC (2007): Second Progress Report on Research and Development for TRU Waste Disposal in Japan – Repository Design, Safety Assessment and Means of Implementation in the Generic Phase –, JAEA-Review 2007-010/ FEPC TRU-TR2-2007-01.
- 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.
- 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 99-020.
- 放射線医学総合研究所 (2013): 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].

3. 2. 微生物と環境移行パラメータの解析

放射化金属 TRU 廃棄物であるハルやエンドピースなどから放出される¹⁴C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 (Yamaguchi et al., 1999; 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2008)。いずれの化合物に含まれる¹⁴C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 ^{14}C の特徴的な環境挙動と言える。また、 ^{14}C のガス化は主に土壤微生物の働きによるため (Ishii et al., 2015)、微生物代謝活動と ^{14}C ガス化の間には何かしらの関係があると予想される。 ^{14}C 環境挙動における統括的指標として微生物代謝活性を提案するためには、まず微生物代謝活性と ^{14}C のガス化の関係を明らかにする必要がある。そこで、我が国の水田土壌を用いて土壤呼吸活性と ^{14}C ガス化を測定し、土壤呼吸活性が統括的指標として提案できるか検討した。本章では、多くの試料の土壤呼吸活性を同時に測定する方法を述べると共に、この多試料同時分析法で測定した土壤呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係についても述べる。土壤の呼吸活性は土壤微生物バイオマスにも影響されると考えられたため、アデノシン三リン酸 (ATP) を指標とした土壤微生物バイオマスの測定方法を開発し、土壤呼吸活性と同じく ATP 量が統括的指標と成り得るか検討した。

3.2.1. 土壤呼吸活性の多試料同時分析法の開発

Dehydrogenase (脱水素酵素) 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り、この反応は土壤微生物の呼吸経路及び電子伝達系に係わる。脱水素酵素活性は、土壤微生物の活性の指標としてよく利用されており、その測定にはテトラゾリウム塩が用いられることが多い。テトラゾリウム塩は電子受容体として働き、脱水素酵素などと反応し、有色のホルマザンに還元される (Berridge et al., 2005)。複数あるテトラゾリウム塩の中で、昨年度は 2-(4-Iodophenyl)-3-(4-nitrophenyl)-5-phenyl-2H-tetrazolium chloride (INT) を用いた土壤呼吸活性測定法を開発した。

昨年度開発した方法では次の手順で土壤呼吸活性の定量が行われた：土壤の培養、INT-formazan (INT-フォルマザン) の形成と抽出、そして抽出液の吸光度測定。また、INT-フォルマザンの抽出には劇物であるメタノールが使用されていた。本年度は全国各地より採取した水田土壌 63 試料を測定する必要があるが、昨年度の方法では分析に時間を要する。多数の試料を分析するには、効率よく測定を行うこと、そして劇物であるメタノールの使用量を減らすことが望まれる。そこで本年度は、昨年度に開発された方法をベースに、効率よく多試料を分析する方法について検討した。

多数の試料の吸光度を一度に測定する場合、96 穴のマイクロプレートがよく利用される。そこで、土壤呼吸活性をマイクロプレートで測定する方法について検討した。96 穴マイクロプレートに添加できる試料量は最大で 200 μL 程度であり、通常の 1 cm キュベット試料量の 1/10 程度である。それにもかかわらず、昨年度と同様の手順で試験を行えば、時間や労力、そして資源の無駄が生じる。ここでは、マイクロプレートリーダーを用いた土壤呼吸活性測定法の最適化について述べる。

3.2.1.1. 湛水土壌試料の作成と INT 溶液の調整

昨年度の事業では、50 mL 容のプラスチック遠沈管に 0.5 g の乾燥土壌を準備し、これに 5 mL の水を加え湛水土壌試料とした (放射線医学総合研究所, 2014)。そして、INT 溶液を添加する直前に湛水土壌試料を遠心分離し、上清を 4 mL 除いた後に同量の 0.05% INT 溶液を添加した。残念ながら遠心分離による微生物除去効果については確認されて

いなかった。そのため、上清を除去するこの方法では、もし上清に微生物が残っていた場合、それらを湛水土壌試料から除去することとなり、呼吸活性の過小評価につながる。そこで、本年度の事業では湛水土壌試料に直接 INT 溶液を添加することとした。

INT 溶液を直接湛水土壌試料に添加する場合、土壌と溶液の体積比はできる限り変化させないことが望ましい。つまり、湛水土壌試料に添加する INT 溶液は少量である必要がある。さらに、直接添加されることにより INT は湛水試料中で希釈される。湛水土壌試料中で形成される INT-フォルマザン量は INT 添加量に比例するため (Trevors, 1984)、添加量を少なくすれば INT の濃度を濃くする必要がある。以上の理由から 1% INT 溶液を湛水土壌試料に直接添加することとした。

本年度は 96 穴マイクロプレートを用いた分析を行うために、測定に必要な試料量は最大 200 μL である。したがって、昨年度に用いた湛水土壌試料よりも体積を減らしても測定に必要な試料量は十分確保できると考えた。ただし、用いた乾燥水田土壌は 2 mm メッシュのふるいにかけているため礫以上の粒子が除かれているが、砂、シルト、及び粘土は含まれる。例え一定重量の土壌をサンプリングしたとしても採取容量が小さければ含まれる土壌構成要素の比が、同じ土壌試料間でも異なる可能性が考えられる。つまり、サンプリング誤差が大きくなると考えられる。このサンプリング誤差を極力小さくするため、試料重量は昨年度と同様に 0.5 g とし、湛水する溶液量を減らすこととした。そこで添加する溶液量であるが、0.5 g の乾燥水田土壌を 2 mL 容のポリプロピレン容器に封入し、水を段階的に一定量ずつ添加したところ、500 μL 以上であれば湛水状態になることを確認した。そこで、本年度は 0.5 g の乾燥水田土壌に対して 500 μL の水を添加し湛水土壌試料とすることとした。

Trevors et al. (1982) は、10 g の土壌に対し 1 mL の溶液 (1% glucose, 1% yeast extract, あるいは水のいずれか) と 1.5 mL の 0.4% INT 溶液を添加し、土壌呼吸活性を測定した。つまり 1 g の土壌に対して 0.0006 g の INT を添加していた計算になる。著者は最終的に得られた INT-フォルマザンを分光高度計 (SP8-150, Pye Unicam Ltd.) で測定しており、そしておそらく測定には 1 cm 以上のキュベットが用いられたと考えられる。つまり光路長は 1 cm 以上であり、本事業で用いたマイクロプレートリーダの光路長よりも長いと考えられる。短い光路長で測定値を得るためには、より濃い INT-フォルマザンが抽出液中に含まれている必要がある。INT-フォルマザン量は INT 添加量に比例するので (Trevors, 1984)、本事業では 1 g の土壌当たり 0.0025 g の INT を添加することとした。つまり、前述の湛水土壌に対して 1% INT 溶液を 125 μL 添加することとした。

INT は水に対して難溶性であるが、温水に対してはわずかに溶解する。昨年度の本事業では、INT 試薬を 50°C 程度に暖めた水で溶解し、0.05% INT 溶液を作成した。1% INT 溶液も同様に温水で作成することを試みたが、この方法では INT を完全に溶解することはできなかった。

そこで、温水の代わりとなる INT 溶液の溶媒について検討した。INT を土壌に添加する場合、土壌微生物の活動に影響する可能性のある薬品はなるべく添加すべきではない。四本ら (2013) は、土壌呼吸を測定するために土壌をトリス緩衝液で浸漬した。そこで、INT 試薬の溶媒として 1M Tris-HCl (pH7.5) を試みたが、溶液中に白濁沈殿物が生じ、この緩衝液は溶媒として利用できないことが分かった。

von Mersi and Schinner (1991) は、INT を溶解するために *N,N*-dimethylformamide (DMF) を利用した。DMF による INT 試薬の溶解を確認したところ、確かに INT が DMF に溶解し黄透明の溶液となったため、本事業では DMF を INT の溶媒として使用することとした。

湛水土壤に添加する DMF 量は、土壤微生物に対する影響をできる限り小さくするため少量であることが望ましい。そこで INT 試薬を溶解するために必要な DMF の最低量を見積もるために 5 つの試料を準備し (表 3-1), 溶解の度合いを比較した。結果を図 3-1 に示す。INT を 1 M Tris HCl に添加した場合 (試料番号 1), 前述した通り, INT は溶けず沈殿が生じた。0.1 グラムの INT 試薬に 200 μ L の DMF を添加した場合 (試料番号 2), 一部は溶解したが時間経過と共に DMF が INT に吸収され固体となった (図 3-1, 試料番号 0 参照)。その後, 0.25M Tris HCl を添加したが, INT は溶解せず全体が白濁化した。300 μ L の DMF を添加した場合 (試料番号 3), これまで検討した中で INT が最も良く溶け透き通った黄色の溶液が得られた。しかしながら小さな粒子が残存し, それらは激しく浸透しても, そして 24 時間以上経過しても完全に溶解することはなかった。100 μ L の DMF を添加した場合 (試料番号 4), 添加直後はわずかに溶けるが, その後 INT が固まった。この塊に 300 μ L の DMF を追加で添加したが完全には溶解せず, さらに水を追加しても完全に溶解することはなかった。400 μ L を添加した場合 (試料番号 5), 激しく攪拌することで INT を完全に溶解することができた。この溶液に水を加えても沈殿が生じることはなく, また 24 時間後も沈殿等が生じることはなかった。以上の結果から, 0.1 g の INT を溶解するために必要な DMF 量は 400 μ L であることが分かった。同じ 400 μ L を用いるにしても 100 μ L と 300 μ L に分けて添加した場合, INT は完全には溶解しない。この様に, INT 試薬を溶解する場合, 一度に完全に溶解することが重要である。また DMF に溶解した INT 溶液であるが, 水で希釈できることが分かった。これらの結果に基づき, 本事業では DMF で溶解した INT 溶液を水で 1% に希釈し, 0.2 μ m 口径のフィルターでろ過滅菌した INT 溶液を使用することとした。また, INT は感光性であるため 1% INT 溶液は用事調整とした。

3.2.1.2. INT 溶液添加後の培養時間

INT は還元されることにより赤紫色の INT-フォルマザンを形成する。この還元反応は主に細胞内で行われるため, INT の添加からフォルマザン色素の形成までにはタイムラグが生じる。そこで, INT の添加から INT-フォルマザンの形成が最大となるまでの時間を求めるため, 培養試験を行った。

これは実験方法確立のために行われた試験であり, 最終的に確立した実験方法とは異なることを先に述べておく。0.5 g の水田土壤を 2 mL 容のポリプロピレンチューブに分取し 0.5 mL の超純水を添加した。この湛水土壤試料は 12 本準備した。これを 25°C で 3 日間静置培養したのち, 12,000 \times g で 1 分間遠心分離を行った。ただし, 遠心分離を行う前に, 12 本中 6 本の試料は 121°C で 15 分間オートクレイブ滅菌し, コントロール試料とした。遠心分離したこれらの試料から上清を 200 μ L 除き, 代わりに 1% INT 溶液を同量添加した。その後, 1 時間毎に 5 時間まで, そして 24 時間目に滅菌及び未滅菌試料から INF-フォルマザンを抽出した。この抽出は以下の手順で行った。培養試料を 12,000 \times g

で1分間遠心分離し、上清 200 μL を除き、代わりに 1,200 μL のメタノールを添加した。ミキサー (Delta Mixer Se-04, タイテック株式会社) で1分間激しく攪拌し、12,000 $\times\text{g}$ で1分間遠心分離を行った。遠心分離で除けなかった懸濁物質を除くために、上清 1,000 μL を 0.2 μm 口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。ろ液は 200 μL ずつ 96 穴マイクロプレートに分注した。湛水土壌試料からの INT-フォルマザンの抽出は、次の手順でさらにもう一度繰り返した。上清を除いた湛水土壌試料にメタノールを 1,000 μL 添加し、前述と同様に攪拌及び遠心分離を行った後、得られた上清 200 μL を 96 穴マイクロプレートに分注した。波長 480 nm における吸光度をマイクロプレートリーダー (SpectraMax Paradigm, Molecular Devices, LLC.) を用いて測定した。

測定結果を表 3-2 に示す。1 回目の抽出液の吸光度は、オートクレイブ滅菌したコントロール試料とほぼ同じ吸光度値を示したが、2 回目の抽出液の吸光度は明らかにコントロールの吸光度と差があった。この結果から、INT-フォルマザンを抽出するためには、少なくともメタノールで2回以上抽出が必要であることを示唆している。つまり、0.5 g の土壌に対して 2,000 μL 以上のメタノールで抽出する必要があることが分かった。

培養 1 時間から 5 時間まで毎時間 INT-フォルマザンを抽出し吸光度を測定したが、いずれの時間においても吸光度値に差はなかった (表 3-2)。つまり、1 時間培養すれば INT-フォルマザンは十分に形成されることが分かった。一方、24 時間後の吸光度は、明らかに 5 時間目までの吸光度より高い値となった。24 時間培養することで土壤微生物が増殖し、その結果、吸光度が高くなった可能性がある。したがって、土壤呼吸活性を測定するための実験条件として、湛水土壌に 1%INT 溶液を添加してから 1 時間培養することとした。

3.2.1.3. 抽出回数の検討

先の試験より、INT-フォルマザンを抽出するためには 2 回以上抽出を繰り返す必要があることが分かった。そこで、メタノールによる抽出回数と INT-フォルマザンの吸光度との関係について調査した。

水田より採取した 0.5 g の土壌を 500 μL の超純水で湛水し、25 $^{\circ}\text{C}$ で 5 日間培養した。培養後、12,000 $\times\text{g}$ で1分間の遠心で分離した上清を 200 μL 除いた後に 1% INT 溶液を 200 μL 添加した。25 $^{\circ}\text{C}$ で1時間 30 分静置培養した後、再び 12,000 $\times\text{g}$ で1分間遠心分離を行い、上清を 200 μL 除き、INT-フォルマザンを抽出するためにメタノールを 1,200 μL 添加した。ミキサーで1分間激しく攪拌した後、12,000 $\times\text{g}$ で1分間遠心分離し、1,000 μL 上清を回収した。これを1回目抽出液とした。上清を回収した土壤試料に、新たに 1,000 μL のメタノールを添加し、ミキサーによる攪拌、遠心分離による固相と液相 (上清) の分離、そして上清の回収、以上の操作を 17 回繰り返した。これらの操作により得られた抽出液 18 試料 (1 回目の抽出操作、及びその後の 17 回の抽出によって得られた試料) 及びメタノールのみを試料について、波長 480 nm における吸光度をマイクロプレートリーダーで測定した。

結果を図 3-2 に示す。吸光度は 4 回目の抽出まで増加し、それ以降 12 回目までほぼ一定の値を保ち、そしてそれ以降、吸光度は下がり続けた。特に 12 回目から 15 回目ま

での抽出において吸光度値は急速に小さくなり、15回目から18回目の抽出では緩やかな減少となった。これらの結果から、15回抽出を繰り返すことで0.5 gの水田土壌に生息する微生物が形成したINT-フォルマザンが、ほぼ抽出できたと考えられる。つまり、INT-フォルマザンを抽出するためには0.5 gの土壌に対して15 mL以上のメタノールが必要であることが分かった。昨年度の事業では0.5 gの土壌に対して8 mLのメタノールを添加し1分間激しく混合することでINT-フォルマザンを抽出していた(放射線医学総合研究所, 2014)。この方法では完全にINT-フォルマザンを抽出しきれていなかった可能性がある。

3.2.1.4. INT-フォルマザン抽出条件

<条件検討の目的>

0.5 gの土壌で形成されたINT-フォルマザンを1 mLのメタノールで抽出する場合、15回以上抽出作業を行わなければならない。この作業は時間を消費すると共に、測定には200 μ L程度必要な抽出液を15 mL以上準備することとなり、劇物であるメタノールを必要以上に使用することとなる。そこで、抽出作業の時間の短縮、及びメタノールの使用量の削減を目的に、効率よくINT-フォルマザンを抽出する溶液について検討した。

<INT添加量と抽出回数との関係>

初めに、湛水土壌に添加するINT量を減らせば形成されるINT-フォルマザン量も減り、その結果、抽出回数を減らすことができるのではないかと考えた。そこで、0.1%、0.5%、及び1% INT溶液を作成し、それぞれの溶液を湛水土壌に添加し、メタノールでINT-フォルマザンの抽出を6回行い、それぞれの吸光度値を比較した。

本検討を行うために0.5 gの水田土壌を500 μ Lの超純水で4日間湛水し、各濃度のINT溶液300 μ Lをこの湛水土壌に直接添加した。2時間25°Cで静置培養した後、12,000 \times gで1分間遠心分離し、上清300 μ Lを除いた。除いた上清の代わりに1,000 μ Lのメタノールを添加し、土壌微生物を物理的に破碎するためにビーズ式破碎装置(FastPrep 24, MP Bio Japan K.K.)を用いて5.5m/secの速度で30秒間振とうした。この振とうは2回行った。破碎の後、12,000 \times gで1分間遠心分離し、上清1,000 μ Lを回収し、これを1回抽出液とした。再びメタノールの添加、物理的破碎、遠心分離、上清の回収をさらに5回繰り返し、合計6回分の抽出液試料を得た。このようにして作成した抽出液試料の480 nmにおける吸光度をマイクロプレートリーダーで測定した。この試験は独立して2回繰り返した。

測定結果を図3-3に示す。0.5%と1% INT添加試料は6回目の抽出においてもINT-フォルマザンの抽出量が減少する傾向は認められなかった。一方、0.1% INTF添加試料では3回目まで抽出されるINT-フォルマザン量は増加したが、4回目以降の抽出量は減少し続けた。これらの結果からINTの添加量を少なくすれば抽出回数は減らせることが分かった。しかしながらINT添加量を減らした場合、呼吸活性が低い試料では検出下限値以下となる可能性があることに注意しなければならない。

この試験では、ミキサーによる振とうだけでなくビーズ式破碎装置による物理的破碎も試みた。しかしながら、いずれのINT濃度の試料においても1回目の抽出でINT-フォ

ルマザンが抽出されることはほとんどなかった。メタノール自身、INT-フォルマザンを溶解する能力が低く、抽出には向いていないのかもしれない。したがって、INT-フォルマザンを抽出する溶液を再検討する必要がある。

<INT-フォルマザン溶解溶液>

INT-フォルマザンが溶解する溶液ならば INT も溶けるのではないかと考え、メタノール、chloroform (クロロフォルム)、及び DMF を用い、INT-フォルマザン粉末 (ICN-Biomedicals Inc.) の溶解を試みた。メタノールでは INT-フォルマザンが完全に溶解することはなかったが、クロロフォルムと DMF には完全に溶解した。この結果からも、メタノールは INT-フォルマザンの抽出に最適な溶液ではないことが言える。クロロホルムは劇物であり、ガス化する恐れがあるためドラフトで取り扱う必要がある。そのため、細胞から INT-を抽出するには DMF が有効ではないかと考えた。

<DMF によるポリスチレン溶解濃度>

DMF はポリエチレン、ポリスチレン、ポリプロピレンといったマイクロプレートで良く使用される材質を溶解する。そのため、100% DMF で INT-フォルマザンを抽出した場合、得られた抽出液はマイクロプレートに分注する前に希釈する必要がある。そこで、マイクロプレートの材質に影響しない DMF の濃度について検討した。この検討を行うに当たり、DMF をメタノールと混合し、次の 5 段階の体積パーセントの DMF 溶液を作成した：0% (v/v), 12.5%, 25%, 37.5%, 50% DMF。これら DMF 溶液 200 μ L をポリスチレン製のマイクロプレートに分注し、480 nm の吸光度を測定した。もし DMF がマイクロプレートを溶かしたならば、光の透過率が下がり、吸光度値が増すと考えられる。吸光度測定は、分注直後、30 分後、及び 60 分後に行った。

吸光度測定の結果を表 3-3 に示す。DMF 含量の増加に伴い吸光度値は高くなった。つまり、高濃度の DMF を使用した場合、マイクロプレートは変質し、正確な吸光度値が得られないことを示唆している。0%と 12.5%の吸光度の差は 0.003 と小さく、*t* 検定の結果、有意差は認められなかった。この結果より、12.5% DMF ではプラスチックの溶解は生じなかったか、あるいは生じたとしても吸光度に影響を与えない程度であることが分かった。

時間経過に伴いプラスチックが溶解されないか確認するため、30 分後と 60 分後にも同じ試料の吸光度を測定した (表 3-3)。12.5% DMF では、いずれの時間においても 0% DMF の吸光度と有意な差は認められなかった。つまり、12.5%以下の DMF であれば、抽出した INT-フォルマザンをマイクロプレートに添加してから測定まで 1 時間以内に行えば、DMF によるマイクロプレートの影響を考慮しなくて良いことが分かった。

<DMF による土壌試料中の INT-フォルマザン抽出効率>

DMF による土壌から INT-フォルマザンの抽出効果を確認するために、湛水土壌 (0.5 g 水田土壌 + 500 μ L 超純水 + 200 μ L 1% INT) からメタノール及び DMF で INT-フォルマザンを抽出し、吸光度を比較した。INT-フォルマザンを抽出するために、800 μ L の抽出液を直接湛水土壌試料に添加し、ミキサーで激しく攪拌した後、遠心分離を行い、得

られた上清を抽出液試料として吸光度測定に供した。しかしながら、いずれの溶液で抽出した場合も、抽出液の吸光度はオートクレイブ滅菌したコントロールの値とほぼ同じであり、一度の抽出ではメタノール及び DMF とともに INT-フォルマザンは抽出できないことが分かった (表 3-4)。メタノール抽出の場合、抽出に 15 mL は必要であったように (3.2.1.3.節参照)、DMF においても 800 μ L の体積では 0.5 g の土壌から INT-フォルマザンを抽出する量として少なすぎると考えられる。メタノールと比較し DMF の吸光度は 2 倍程度高いが、これは DMF により抽出された土壌成分に 480 nm の波長に吸光特性がある物質が含まれていたためと考えられる。

<抽出液量の効果とメタノール及びエタノールの効果>

次に、添加する抽出液量を増やし、DMF による INT-フォルマザンの抽出効果を確認した。0.5 g の水田土壌を 500 μ L の超純水で湛水した後、2 日間培養し、1% INT 溶液を 200 μ L 添加後、さらに 1 時間、25°C で培養を行った。この後、抽出液ごとに準備した 3 本の湛水土壌試料のうち 1 本をオートクレイブ滅菌 (121°C, 15 分) し、コントロールとした。各試料には 10 mL の抽出液を添加した。本試験では、抽出液としてメタノール、50% (v/v) DMF in メタノール、50% (v/v) DMF in エタノールの 3 種類の抽出液を用いた。抽出液添加後、試料をミキサーで激しく攪拌し、この試料懸濁液から 1 mL 分取し 12,000 \times g で 1 分間遠心分離した。得られた上清 200 μ L をマイクロプレートに分注し、480 nm の吸光度を測定した。INT は非生物的に還元されることがあるため、試料とコントロールの吸光度の差を生物的に形成された INT-フォルマザンの吸光度として求めた。オートクレイブ滅菌試料の測定は 1 回のみであったが、湛水土壌試料は独立して 2 回実験を繰り返した。

抽出液として 800 μ L の DMF を添加した場合、試料上清はほとんど呈色せず無色のままであったが、今回の試験ではいずれの試料においても INT-フォルマザンの赤紫の呈色が確認できた。このことから抽出量を増やすことで INT-フォルマザンの抽出が可能であることが確認できた。本試験では抽出液量は 10 mL と一定だったため、抽出液量と抽出効果についてはもう少し詳細に調査する必要がある。

吸光度測定の結果を図 3-4 に示す。最も吸光度が高かったのは 50% DMF in メタノールで抽出した場合であり、吸光度値は 1.5 ± 0.11 であった。この値はメタノールのみで抽出した時よりも約 2.4 倍高い値であった。つまり、DMF を混合することで抽出効率上がるということが分かった。50% DMF in エタノールの場合、吸光度は 1.36 ± 0.012 であった。この値は 50% DMF in メタノールの抽出液の吸光度よりわずかに小さな値ではあったが、メタノール単独よりは明らかに高い抽出効率であった。これらの結果から、DMF は土壌試料からの INT-フォルマザン抽出において効果的な抽出液であることが分かった。

劇物の使用量を減らすことは本分析方法開発の目的の一つである。DMF を混合する溶液をメタノールからエタノールに変更した場合も、吸光度の減少はわずかであるため、メタノールをエタノールに置き換えることも可能であると判断した。

<抽出時間>

次に、INT-フォルマザンを抽出するための時間について検討した。これまでと同様に

0.5 g の土壌を 500 μ L の超純水で湛水し、25°C 暗条件の下、4 日間培養を行った。また、コントロールとしてオートクレイブ滅菌した試料も準備した。培養後、125 μ L の 1% INT を添加し、25°C 暗条件の下、2 時間静置培養を行った。培養期間中に形成された INT-フォルマザンを抽出するために、メタノール、エタノール、100% DMF、50% DMF in メタノール、DMF in エタノールの 5 種類の抽出液を準備し、それぞれ 10 mL を湛水土壌試料に添加した。抽出液を添加した試料はミキサーで激しく攪拌し、500 μ L 上清を回収した。回収した上清は遠心分離 (20,000 \times g, 5 分) を行い、遠心で得られた上清の吸光度を測定した。100% DMF や 50% DMF はマイクロプレートの材質を溶かす可能性があるため、それぞれの抽出液は水で 16 倍及び 8 倍希釈し吸光度測定を行った。上清を回収した後、抽出液を含む湛水土壌試料は 6 日間保管した。保管時の温度であるが、微生物活動を抑制するために 4°C とした。保管 1 日目、2 日目、3 日目、6 日目に上清を回収し、前述と同様の手順で測定試料を調整し吸光度を測定した。実験は繰り返し 3 回行った。

480 nm における吸光度測定の結果を図 3-5 に示す。吸光度はエタノール、メタノール、100% DMF、50% DMF in エタノール、50% DMF in メタノールの順で高く、この結果から INT-フォルマザンの抽出効率はエタノール、メタノール、DMF の順で高いことが分かった。興味深いことに DMF のみよりメタノールあるいはエタノールを混合することで、抽出効率が良くなることが分かった。

いずれの抽出液を用いた場合も、抽出開始 1 日目に吸光度が高く、それ以降は減少傾向となった。0 日目と 1 日目、及び 1 日目と 2 日目において、それぞれの抽出液の吸光度値について *t* 検定を行ったが有意な差は認められなかった。これらの結果から、土壌を抽出液に浸漬する時間は抽出効率に影響しないことが分かった。したがって、今後は抽出液添加直後に土壌試料をミキサーで激しく攪拌し、INT-フォルマザンを抽出することとした。

<最適 DMF 濃度>

抽出効率及び劇物使用削減の点から、DMF とエタノールの混合液を INT-フォルマザン抽出液とすることとした。前述したように、DMF はメタノールと混合した場合、12.5% まで 96 穴マイクロプレートの材質を溶かさないと分かっている (表 3-3)。そこで DMF によるプラスチックの溶解に対し、メタノールからエタノールに変えた場合、その影響があるか、そして 12.5 %より高濃度で DMF を添加できないかを確認するために、DMF in エタノール溶液によるプラスチック溶解試験を行った。エタノールで 7 段階の体積パーセント (0%, 12.5%, 15.0%, 17.5%, 20.0%, 22.5%, 25.0%) に調整した DMF 溶液を準備し、それぞれ 200 μ L をポリスチレン製のマイクロプレートに分注した。吸光度の測定は分注直後に行った。この試験は独立して 3 回繰り返した。もし DMF がマイクロプレートを溶かしたならば、光の透過率が下がり、吸光度値が増すと考えられる。

測定値の結果を図 3-6 に示す。0% DMF、つまりエタノールのみ吸光度は 0.044 ± 0.0015 であり、12.5% DMF の吸光度 (0.044 ± 0.0005) とほぼ同じ値であった。15% DMF の吸光度は 0.045 ± 0.0019 で、0% DMF の値よりは高かったが、*t* 検定の結果、有意差は認められなかった。一方、17.5% DMF の値は 0.047 ± 0.0009 で、0% DMF の吸光度との差は有意であった (*t*-検定, $P < 0.05$)。以上の結果から、15% DMF in エタノールはマイク

ロプレートの材質を溶かすことなく、INT-フォルマザンの抽出液として利用できることが分かった。

<最適抽出液量>

土壌試料中に形成された INT-フォルマザンを効率よく効果的に抽出するには、抽出液の選定だけでなく、抽出液量も重要である。例えば、本節<DMF による土壌試料中の INT-フォルマザン抽出効率>に示したように、800 μ L の DMF では抽出できなかった INT-フォルマザンが、10 mL の DMF では明らかに抽出できた(図 3-4)。そこで、15% DMF in エタノールの添加量と INT-フォルマザンの抽出量の関係について検討した。

これまでと同様の手順で作成した湛水土壌試料を 6 日間培養したのち 125 μ L の 1% INT 溶液を添加し、さらに 1 時間静置培養した。この試料中で形成された INT-フォルマザンを抽出するために、15% DMF in エタノールを 5 mL, 7 mL, 10 mL, および 15 mL 添加し、ミキサーで激しく攪拌した。攪拌後、懸濁粒子を沈殿するために 1,600 \times g で 5 分間遠心分離を行い、続いてさらに細かな粒子を除去するために 1000 μ L 上清を 1.5 mL 容チューブに回収し、20,000 \times g で 5 分間遠心分離を行った。このようにして得られたマイクロチューブの上清 200 μ L を 96 穴マイクロプレートに分注し、480 nm の吸光度を測定した。

次に、上述の 1 回目の抽出で INT-フォルマザンが十分抽出されたことを確認するために、抽出後の湛水土壌試料に 15% DMF in エタノールを加え、抽出を繰り返した。まず 1,600 \times g で遠心分離を行った湛水土壌試料に残っている溶液(湛水時の溶液、INT 溶液、及び抽出液の混合溶液)をデカントにより廃棄し、そこに新たに 5 mL の 15% DMF in エタノールを添加した。これをミキサーで激しく攪拌し 1 回目の抽出操作と同様の操作で懸濁粒子を除き、得られた上清の吸光度を測定した。そして同様の手順で 3 回目の抽出を行い、得られた試料の吸光度を測定した。

抽出液量が異なるため、得られた吸光度値をそのまま比較することはできない。そこで、5 mL の抽出液を基準に各抽出液の希釈倍率を掛けた値に補正した。つまり、抽出量 7 mL の場合、吸光度値を 1.4 倍(= 7 mL/5 mL)した。ただし、2 回目及び 3 回目の抽出時はいずれの試料も 5 mL の抽出液で抽出したため、数値の補正は行わなかった。結果を表 3-5 に示す。吸光度は抽出量の増加と共に増し、15 mL 添加したときに最大となった。この結果より、抽出液の添加量は 15 mL 以上が望ましいことが分かった。2 回目及び 3 回目の抽出では、抽出液量の違いによる差はほとんどなかった。15 mL で抽出した場合、2 回目抽出試料の吸光度は 0.123 であり、この値は 1 回目の抽出の約 7.7%であった。2 回目の抽出時において、抽出液を添加する前に試料に残存する溶液をデカントで廃棄したが、完全に除くことはできていない。つまり、デカント後のこの試料は湿潤な状態であり、残留溶液には抽出された INT-フォルマザンも含まれていたと言える。したがって、2 回目の抽出で得られた吸光度には 1 回目に抽出された INT-フォルマザンの吸光度も影響していると言える。そのため、実際に 2 回目の抽出で抽出された INT-フォルマザン量は 7.7%よりさらに低い割合と考えられる。3 回目の抽出ではさらに吸光度は小さく、ほぼ 15% DMF in エタノール溶液のみの吸光度(およそ 0.005)と同等となった。以上の結果から、15 mL で抽出した場合、1 回の抽出操作で形成された INT-フォル

マザンの 90%以上が抽出されると判断し、以後、抽出回数は 1 回とすることとした。

3.2.1.5. INT-フォルマザンの吸光度スペクトラム

湛水土壌試料中に形成された INT-フォルマザンは、15 % DMF in エタノール溶液で抽出することとした。土壌呼吸活性の測定には、この抽出液中で INT-フォルマザンの吸光度が最大となる波長で吸光度を求めることにより感度よく測定することが可能である。そこで市販されている INT-フォルマザン (ICN-Biomedicals Inc.) を 15 % DMF in エタノール溶液で溶解し、400 nm から 500 nm まで 2 nm 間隔で吸光度を測定した。

測定試料であるが、7段階の濃度の INT-フォルマザン溶液を準備した。0.0109 g の INT-フォルマザンを完全に溶解するため、まず 1.5 mL (1.425 g) の DMF でこれを溶解し、次に 8.5 mL (6.715 g) のエタノールと混合し標準液とした。この標準溶液を 15 % DMF in エタノールで希釈し 7 段階の希釈濃度の INT-フォルマザン溶液を作成した：0 µg/mL, 54.5 µg/mL, 81.8 µg/mL, 109 µg/mL, 136 µg/mL, 及び 164 µg/mL。

各濃度の波長スペクトラムの結果を図 3-7 に示す。極大値は主に 484 nm から 486 nm にあったため、15 % DMF in エタノールで INT-フォルマザンを抽出した場合、485 nm の吸光度を測定することとした。

3.2.1.6. 抽出液の添加順序

15 % DMF in エタノール溶液で INT-フォルマザンを抽出する場合、抽出液の添加方法が INT-フォルマザンの抽出効率に影響するか検討した。すなわち、15 % DMF in エタノール溶液を直接湛水土壌試料に添加するのがよいか、それとも DMF, エタノールの順、あるいはエタノール, DMF の順で添加するのがよいか検討した。

0.5 g の水田土壌を 500 µL の超純水で湛水し、25°C 暗条件の下、4 日間培養を行った。1% INT 溶液の添加後さらに 1 時間培養し、15 mL 15% DMF in エタノールで INT-フォルマザンを抽出した。15% DMF in エタノールの添加方法であるが、以下の 3 パターンで行った：

抽出 1 15 mL 15% DMF in エタノールを添加し激しく攪拌

抽出 2 2.1375 g (2.25 mL) の DMF を添加し激しく攪拌, 続いて 10.0725 g (12.75 mL) のエタノールを添加し激しく攪拌

抽出 3 10.0725 g (12.75 mL) のエタノールを添加し激しく攪拌, 続いて 2.1375 g (2.25 mL)

の DMF を添加し激しく攪拌

抽出の後、1,600 × g で 5 分間、続いて 20,000 × g で 5 分間遠心分離を行い、得られた上清 200 µL を 96 穴マイクロプレートに分注し、485 nm の吸光度を測定した。実験は独立して 3 回繰り返した。

各抽出方法で作成した測定試料の吸光度を図 3-8 に示す。分散分析の結果、吸光度に有意差は認められなかった。ただし、この図が示すように抽出 1 よりも抽出 2 の吸光度が高いため、両試料間の値を *t*-検定で比較したところ、有意な差が認められた ($P < 0.05$)。一方、抽出 3 の吸光度は抽出 1 と抽出 2 とともに差は認められなかった。以上の結果より、INT-フォルマザンの抽出は、まず湛水土壌試料に DMF を添加・攪拌し、次にエタノー

ルを添加・攪拌の順で行うこととした。この時の DMF とエタノールの混合割合であるが、DMF が体積パーセントで 15% となるように、そして添加量が 15 mL となるように調整することとした。

3.2.1.7. 遠心分離による吸光度測定試料の作成

これまで吸光度を測定する試料は、最終的に遠心分離で得られた上清を用いてきた。一方、Trevors et al. (1982) や von Mersi and Schinner (1991) は抽出された INT-フォルマザン溶液をフィルターでろ過した後、吸光度測定を行っている。そこで、フィルターろ過と遠心で得られた測定試料の吸光度を比較し、遠心分離による測定試料調整法が適切であるか確認した。

測定試料は「3.2.1.6. 抽出液の添加順序」で用いた試料と同じ湛水土壤試料を用い、同じ手順で準備した。INT-フォルマザンの抽出は、DMF の次にエタノールを添加する抽出 2 の方法で行った。この方法で得られた溶液を遠心分離あるいはフィルターで処理し、吸光度測定試料とした。遠心分離は $20,000 \times g$ で 3 分間行った。フィルターろ過は $0.2 \mu\text{m}$ 口径のセルロースアセテートメンブランフィルターを用いた。そして得られた測定試料の 485 nm 及び 680 nm における吸光度を測定した。680 nm の吸光度は溶液の濁度の指標としてデータを取得した。この試験は独立して 3 回繰り返した。

吸光度の結果を表 3-6 に示す。遠心分離で測定試料を作成した場合、485 nm における吸光度は 1.079 であり、フィルターろ過で作成した測定試料の吸光度と差はなかった。また、濁度も同様に、両試料間で差はなかった。これらの結果より、いずれの処理で準備した測定試料も同等の品質であることが分かった。遠心分離での処理はコスト、労力、作業時間の点でフィルター処理よりも優れている。そこで、96 穴マイクロプレートを用いた多試料同時分析では、遠心分離で吸光度測定試料を調整することとした。

3.2.2. 全国各地から採取した水田土壤の呼吸活性

本年度開発した多試料同時分析方法により、全国各地から採取した水田土壤の土壤呼吸活性を測定した。本章では分析に用いた物理化学特性、培養 7 日目における土壤呼吸活性、土壤呼吸活性の経時変化について述べる。

3.2.2.1. 実験材料と方法

平成 14 年度から平成 18 年度までに行われた「放射性核種生物圏移行パラメータ調査」において全国各地より採取された水田土壤（63 試料）を用いた。土壤試料は採取後風乾し、2 mm メッシュのふるいにかけて、大きな粒子を除いた。その後、実験に使用するまでの期間、プラスチック容器に封入し室温で保存した。土壤試料の採取場所（都道府県）、FAO-UNESCO 分類名、日本の土壤分類、炭素量、窒素量、及び C/N 比を表 3-7 に示す。

これら水田土壤の土壤呼吸活性は、以下の手順に従って処理し、得られた吸光度から求めた。INT-フォルマザンの抽出液として添加する DMF とエタノールであるが、これらの溶液の性質上ピペットで正確な体積を分取することが難しいため、それぞれの比重から必要体積に等しい重量を求め、15% DMF in エタノールとなるよう重量で調整した。DMF とエタノールの比重はそれぞれ 0.95 及び 0.79 とした。湛水してからの培養期間で

あるが、特に記載の無い限り 7 日間行った。また、呼吸活性以外による還元作用で形成された INT-フォルマザンを補正するために、7 日間培養した湛水土壌試料を 121°C で 15 分間オートクレイブ滅菌し、その後 INT 溶液を添加するコントロールを必ず作成した。最終的に得られた試料の吸光度とコントロールの吸光度の差を、土壌呼吸活性により形成された INT-フォルマザンの吸光度とした。以上の実験は 3 回繰り返し行った。以下に上述の手順を簡単にまとめた。

- 1) 0.5 g 乾燥土壌 + 500 μ L 超純水 in 50 mL 容ポリプロピレンチューブ
- 2) 培養 (25°C, 暗条件)
- 3) 125 μ L 1% INT 溶液添加
- 4) 25°C, 1 時間培養
- 5) 2.1375 g (2.25 mL) DMF を添加し激しく攪拌
- 6) 10.0725 g (12.75 mL) エタノールを添加し激しく攪拌
- 7) 15 分間静置し懸濁物を沈降
- 8) 1 mL 上清を 1.5 mL チューブに回収
- 9) 20,000 \times g で 3 分間遠心分離
- 10) 200 μ L 上清をマイクロプレートに分注
- 11) 波長 485 nm の吸光度測定

この測定によって得られた吸光度から形成された INT-フォルマザンの定量を行うために検量線を作成した。市販の INT-フォルマザン (ICN-Biomedicals Inc.) を 15 % DMF in エタノールで溶解し (DMF で先に INT-フォルマザンを完全に溶かしてからエタノールを添加)、これを 15 % DMF in エタノールで 0~100 μ g/mL の範囲で 8 段階に希釈し、それぞれの波長 485 nm における吸光度を測定し、各濃度と吸光度の関係から検量線を作成した。この検量線は用事調整し、これまでに蓄積したデータと比較することで、作成した検量線の精度を確認した。このようにして準備した検量線は、概ね傾き 0.0124、切片 0.0427 の一次式で表された (図 3-9)。

3.2.2.2. 水田土壌における呼吸活性

日本の各地より採取した水田土壌の培養 7 日目における土壌呼吸活性の結果を表 3-8 に示す。また、測定値の基本統計量 (平均値, 中央値, 標準偏差, 最大値, 最小値, 歪度, 及び尖度) を表 3-9 に示す。得られた土壌呼吸活性の範囲は検出下限値 (10 μ g INT-フォルマザン/g-dry soil/h) から 1,443 μ g/g-soil/h で、平均値と中央値はそれぞれ 476 μ g/g-soil/h と 461 μ g/g-soil/h であった。土壌呼吸活性の平均値と標準偏差から求めた変動係数は 73.1%と大きく、日本の水田土壌における土壌呼吸活性は、土壌間で大きく異なるといえる。歪度は正の値であるため左に偏りのある分布、つまり平均値よりも小さい値の度数が多い分布であることが分かった。一方、尖度は負の値であり、正規分布と比較して分布に広がりがあった。しかしながら、歪度及び尖度も値は小さく分布の偏りは小さいと言える。

水田土壌の炭素含量や窒素含量は、そこに生息する微生物の活動や作物の生長に影響

する。例えば、C/N 比が高い土壌の場合、土壌中の微生物は窒素不足のために土壌から窒素分を補おうと活動する。そのため農作物が必要とする窒素分が不足することがある。逆に C/N 比の低い土壌の場合、土壌微生物にとって窒素過剰の状態となり、それら余剰の窒素が植物の生長を支えることとなる。C/N 比の違いは、したがって、微生物がより窒素を利用しようとするのか、あるいは炭素を利用しようとするのか、その活動に影響する。そこで、土壌呼吸活性の差の要因を探る目的で C/N 比と土壌呼吸活性の関係について検討した。結果を図 3-10 に示す。C/N 比の増加に伴い土壌呼吸活性の増加傾向が見られたが、有意な相関関係ではなかった。土壌に含まれる有機物の質が、この様な結果を引き起こしたのかもしれない。つまり、C/N 比が低いにもかかわらず高い土壌呼吸活性を示した水田土壌は、土壌中の全炭素量に対して微生物が利用しやすい炭素の割合が高く、逆に C/N 比が高いにもかかわらず呼吸活性が低い水田土壌は、微生物が利用できる炭素の割合が少なかったと考えられる。これらのことから、土壌中に含まれる炭素の化学形態は、土壌微生物による呼吸活性を決定する要因として重要なパラメータであると考えられる。

3.2.3. 土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係

^{14}C ガス化率と土壌呼吸活性の関係を明らかにするため、 $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムを用いたトレーサー実験を行った。本章ではこのトレーサー実験で得られた ^{14}C ガス化率の結果、及び ^{14}C ガス化率と土壌呼吸活性の関係について述べる。

3.2.3.1. ^{14}C ガス化率を求める実験における実験材料と方法

土壌呼吸活性測定で使用した土壌と同じ土壌を使用した。土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率との関係を明らかにするため、実験方法はできる限り同様に行った。ただし、実験の都合上、異なる準備あるいは操作を行った箇所は後に述べる。実験手順の概要を以下に示す。

- 1) 0.5 g 乾燥土壌 + 500 μL 超純水 in 30 mL 容遮光性ガラスバイアル
- 2) 培養 (25°C, 暗条件, 7 日間)
- 3) 125 μL $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウム溶液 (約 415 Bq) 添加
- 4) 25°C, 1 時間培養
- 5) ヘッドスペースのガスを空気で置換し、置換されたガスを 16 mL 1N NaOH \times 3 連で捕集
- 6) ^{14}C を捕集するために設置した NaOH を液体シンチレーションカクテルと混合
- 7) 液体シンチレーションカウンタによる ^{14}C 測定

土壌呼吸活性試験では湛水土壌試料の容器として 50 mL 容量のポリプロピレンチューブを利用した。本試験の目的は ^{14}C ガス発生量を求めることが目的であり、土壌呼吸活性試験で使用したポリプロピレンチューブを用いた場合、発生したガスが容器から漏洩する可能性があった。同じく、土壌呼吸活性試験でガラスバイアルを用いることも難しい。ガラスバイアルの容量は 30 mL であり、これに 15 mL の 15% DMF 抽出溶液を添

加した場合、ヘッドスペース容量が小さくなり、抽出溶液と土壌が十分に混合できなくなる可能性があった。さらに、ガラスバイアルを遠心分離にかけることは難しく、混合過程でブチルゴム栓に土壌が付着した場合、これを抽出溶液に再度回収することが難しい。以上の理由から、湛水土壌試料作成に ^{14}C ガス化の実験ではガラスバイアルを、土壌呼吸の実験ではポリプロピレンチューブを用いた。

CO_2 は光合成により農作物に取り込まれ固定されるために、安全評価において注意すべき重要な化学形態である。そこで、 $^{14}\text{CO}_2$ 発生量を評価するために、操作5)において図3-11に示した装置を用いて $^{14}\text{CO}_2$ を回収した。[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウム添加後、1時間培養した湛水土壌試料の下流側に $^{14}\text{CO}_2$ を回収するため16 mLの1N NaOHを3本準備し、その後試料上流側にエアポンプを接続し、1分間に20 mLの速度で通気した。このNaOH溶液に捕集された $^{14}\text{CO}_2$ を定量するために、 $^{14}\text{CO}_2$ を捕集したNaOH約3 mLと15 mLの液体シンチレーションカクテル(Hionic-Fluor, PerkinElmer Japan Co., Ltd.)を混合し、液体シンチレーションカウンタ(Tri-Carb 2100TR, PerkinElmer Japan Co., Ltd.)で5分間測定した。以上の実験は3回繰り返して行った。

3.2.3.2. [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムの ^{14}C ガス化率

日本の各地より採取した水田土壌の培養7日目における $^{14}\text{CO}_2$ 発生速度及び ^{14}C ガス化率の結果を表3-10に示す。本試験において ^{14}C はどの試料についても同量添加するよう心がけたが、ピペット操作の誤差により、わずかに差が生じた(表3-10)。 $^{14}\text{CO}_2$ 発生速度の場合、 ^{14}C 初期添加量の違いにより発生量が異なるため、 ^{14}C ガス化率についてのみ、基本統計量(平均値、中央値、標準偏差、最大値、最小値、歪度、及び尖度)をまとめた(表3-11)。 ^{14}C ガス化率の平均値と標準偏差から求めた変動係数は16.2%であった。湛水土壌試料がそれぞれ異なる水田土壌を用いたことを考慮すれば、この値は比較的小さいといえる。また、平均値と中央値間にほとんど差はみられなかった。歪度は正の値であるため、左に偏りのある分布であることが分かった。一方、尖度は負の値であり、正規分布と比較して分布に広がりがあることが分かった。しかしながら、歪度及び尖度とも値は小さく、分布の偏りは小さいと言える。また、最大値と最小値の差も2倍以下であり、異なる土壌にもかかわらず ^{14}C ガス化率の差は小さかった。これらの結果は、日本の水田土壌における ^{14}C ガス化率は大きく異なることを示唆している。

過年度の本事業では、培養開始時に湛水土壌試料に[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを添加し、7日間培養した後、 ^{14}C ガス化率を求めた(放射線医学総合研究所, 2009)。この培養期間、容器は密閉されていたため、発生した ^{14}C ガスは培養期間にガス化した ^{14}C の積算量である(積算 ^{14}C ガス化率)。さらに、この試験での ^{14}C ガス化は、初期添加 ^{14}C 量と固相及び液相の ^{14}C 量の差として求められた。すなわち、 $^{14}\text{CO}_2$ だけでなく、 ^{14}C を含むガス全てを対象としてガス化率が求められている。以上を考慮しつつ、本試験で得られた ^{14}C ガス化率と以前に本事業で得られた積算 ^{14}C ガス化率との違いを明らかにするために、両ガス化率を比較した。結果を図3-12に示す。同じ水田土壌試料を用いて測定したにもかかわらず、 ^{14}C ガス化率と積算 ^{14}C ガス化率の間に高い相関関係は認められなかった。傾向としては積算 ^{14}C ガス化率が高い試料ほど、 ^{14}C ガス化率が低かった。この結果の要因として二つの理由が考えられる。一つ目の理由は微生物活動の低下である。 ^{14}C ガス化率が低い試料は、土壌を湛水してから短時間の間に微生物が活発に

活動したため、7日目には活動が落ちつき、 ^{14}C ガス化率が低くなったと考えられる。二つ目の理由は $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスの発生である。還元状態が発達した水田においてメタンガスが発生することはよく知られている(Takai, 1970; Tsutsuki and Ponnampereuma, 1987)。本試験ではブチルゴム栓で密封した容器を使用しており、これにより培養期間中に湛水土壌試料は酸化状態から還元状態に変化し、 $^{14}\text{CO}_2$ 以外の ^{14}C ガスが発生した可能性がある。そして、容器内において $^{14}\text{CO}_2$ 以外の化学形態の ^{14}C ガスの分圧が高くなり、 $^{14}\text{CO}_2$ の発生を抑制したのかもしれない。

3.2.3.3. 土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係

有機物は呼吸代謝により最終的には水と二酸化炭素に分解される。この分解過程で働く脱水素酵素より、湛水土壌試料に添加された INT は還元され、INT-フォルマザンが形成される。INT-フォルマザンの形成は、つまり二酸化炭素の発生を意味する。したがって、土壌呼吸活性から ^{14}C ガス化率を見積ることが可能であり、統括的指標となり得るのではないかと期待した。そこで土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率（積算 ^{14}C ガス化率ではなく、培養7日目におけるガス化率）の関係について調査したが、土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の間に明確な相関関係は認められなかった(図 3-13)。 ^{14}C ガス化率は、土壌呼吸活性の増加と共に、むしろ減少する傾向にあった。

この結果は培養7日目の結果であり、いわゆる微生物活動的には安定した定常状態における結果である。したがって、例えば、湛水後1日目や2日目など、微生物活動が最も活発な時期における土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係については不明である。また、 ^{14}C ガス化の試験ではトレーサーとして[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを添加している。したがって、トレーサー実験において添加した微量の酢酸ナトリウムが土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係に影響したのかもしれない。

3.2.3.4. 連続測定における土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係

前述したように、培養7日目において、土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の間に相関関係は認められなかった。しかしながら7日目以外の培養期間における土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係については不明である。そこで湛水土壌を10日間連続培養し、各日1時間当たりの土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率を求めた。

土壌試料として表 3-7 の EP-SD-36 を用いた。土壌呼吸活性の測定は「3.2.2.1. 実験材料と方法」と同様に、そしてガス化率の測定は「3.2.3.1. ^{14}C ガス化率の実験材料と方法」と同様に行った。ただし、1% INT 溶液や[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムは10日間毎日異なる試料に添加し、1時間後に土壌呼吸活性とガス化した ^{14}C を測定した。

土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の結果を図 3-14 に示す。培養1日目の土壌呼吸活性はマイナスの値となったが、これはオートクレイブ滅菌した試料で得られた吸光度と未滅菌試料の吸光度との差が検量線の切片より小さくなったためであり、検出下限値(10 $\mu\text{g/g/h}$)以下の意味である。培養2日目以降7日目まで土壌呼吸活性は上昇し、それ以降10日目まで減少し続けた。土壌呼吸活性の上昇は、土壌中で休眠していた微生物が湛水により代謝を活性化させたこと、そしてこの活性化に伴い微生物バイオマスが増加したことが要因と考えられる。そして、7日目以降の土壌呼吸活性の減少は、湛水土壌試料内の物理化学的な環境の変化(例えば易利用性の有機物の枯渇、溶存酸素濃度の低下、

酸化還元電位の低下、pH の変化など)とともに微生物の活動が低下し、呼吸活性が下がったことが要因と考えられる。

一方、 ^{14}C のガス化率は培養 1 日目に最も高く、時間と共に低下した (図 3-14)。この結果は過去の試験結果と一致する (放射線医学総合研究所, 2009)。当時の調査結果では添加した ^{14}C が枯渇したために ^{14}C ガス化率が低下したのか、それとも ^{14}C ガス化率自体が低下したのか不明であった。本年度の試験は各日において新たに ^{14}C を添加しガス化率を求めた。そのため ^{14}C の枯渇はあり得ない。したがって、時間の経過とともに ^{14}C ガス化率自体が低下することが明らかとなった。処分場から漏洩した ^{14}C が灌漑水を介して水田に添加された場合、添加されるタイミングにより ^{14}C のガス率が異なると考えられる。

異なる水田土壌では土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率との間に有意な相関関係は認められなかったが (図 3-13)、単独の水田土壌では有意な負の相関が観察された ($P < 0.01$, 図 3-15)。酢酸は単純な構造の有機物であるため、異化代謝経路における基質として利用され、その結果呼吸活性の上昇に伴い ^{14}C ガス化率も上昇するのではないかと期待した。しかしながら、図 3-15 は逆の結果を示している。酢酸は一般的な土壌微生物にとって利用しにくい基質なのかもしれない。確かにギ酸やホルムアルデヒドと比較して、 $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムの ^{14}C はガス化し難いことが分かっている (放射線医学総合研究所, 2013)。

本試験結果より、土壌中では図 3-16 に示した有機物炭素の流れが考えられる。まず初めに、水田土壌を湛水することにより有機物が遊離する。遊離した有機物が土壌微生物にとって利用しやすい化学形態であれば酢酸を利用せず、遊離した有機物を利用し代謝活動を活性化し、そして増殖する。代謝を活発に行うことで細胞外に酵素を分泌し、土壌にある難利用性有機物を易利用性有機物に変換し、それを利用してさらに増殖する。この経路の場合、呼吸活性の上昇と比較して $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウム由来の ^{14}C ガス化率は小さくなる。

本試験で用いた土壌では ^{14}C 添加翌日の ^{14}C ガス化率が最も高い値を示したが、これは図 3-16 に示した '易利用性有機物'、つまり培養 1 日目に土壌から遊離した有機物量が少なかったか、あるいはこの有機物より酢酸の方が利用しやすかったためと考えられる。一度酢酸を利用して土壌微生物が活性化すると、活性化した微生物の働きにより土壌から酢酸より利用しやすい有機物が生産され、次はその易利用性有機物を利用し、さらなる活性化及び増殖が促進されるようになると考えられる。その結果、時間経過と共に酢酸は利用されにくくなり、 ^{14}C のガス化率も低下する。一般的に多糖類、タンパク質、脂質は加水分解により、より低分子の単糖、アミノ酸、脂肪酸等となり、さらにこれらは酸生成作用により酢酸などのモノカルボン酸、アルコール類へと変化する。湛水した水田で酢酸が検出されるのも、酢酸が分解されにくい分子であることを示唆している。

有機物の資化性は、微生物種により異なる。そのため有機物の易利用性及び難利用性は、そこに生息する微生物種構成に依存する。図 3-16 に示した考え方が正しいのならば、土壌に含まれる有機物の化学形態、微生物の種構成、そしてどのような化学形態の ^{14}C が廃棄物処分地から漏洩するのかにより、 ^{14}C ガス化率は変化すると考えられる。

3.2.3.5. 酢酸キャリアの添加効果

土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の間に相関が認められなかった原因として、実験方法の違いも考えられる。例えば、土壌呼吸活性の試験において酢酸ナトリウムは添加していないが、 ^{14}C ガス化率の試験ではトレーサーとして添加している。そこで土壌微生物の基質となる酢酸を添加し、7日間各日の土壌呼吸活性を測定し、 ^{14}C ガス化率との関係について明らかにすることを試みた。

土壌試料として表 3-7 の EP-SD-36 を用いた。土壌呼吸活性の測定は「3.2.2.1. 実験材料と方法」と同様に、そしてガス化率の測定は「3.2.3.1. ^{14}C ガス化率の実験材料と方法」と同様に行った。ただし、1% INT 溶液及び[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムは 40 mmol/L の酢酸ナトリウム溶液で準備した。湛水土壌試料中の酢酸の最終濃度であるが、水田土壌でよく見られる 10 mmol/kg (犬伏, 1994) とするため、準備した 1% INT in 40 mmol/L 酢酸ナトリウム溶液及び[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウム in 40 mmol/L 酢酸ナトリウム溶液を湛水土壌試料 (0.5 g 乾燥土壌 + 500 μL 水) に対し 125 μL 添加した。これらの添加操作は7日間毎日異なる試料に対して行い、添加1時間後に土壌活性とガス化した ^{14}C を測定した。

土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の結果を図 3-17 に示す。10日間連続培養試験と同様に、培養1日目における土壌呼吸活性はマイナスの値となった。つまり、この日の土壌呼吸活性は検出下限値 (10 $\mu\text{g/g-soil/h}$) 以下であった。培養2日目以降6日目まで土壌呼吸活性は上がり、7日目には下がった。この傾向は10日間連続培養試験と同様であるが、土壌呼吸活性の最大値は1日早かった。

キャリア添加試験と前述の10日間連続培養試験の違いは、培養日数と酢酸添加である。そこで土壌呼吸活性について、両試験結果を比較した。 ^{14}C のガス化率は培養1日目に最も高く、 $2.7 \pm 0.1\%$ であった (図 3-17)。その後は 1.0% から 1.5% の範囲であった。これらの値は10日間連続培養試験の結果 (図 3-14) と比較して 13~27 倍程度低く、酢酸の添加は ^{14}C ガスの発生を抑制することが分かった。これは [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムがキャリアとして添加した酢酸ナトリウムにより希釈されたことが原因と考えられる。本試験で使用した [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムの比放射能は、110 mCi/mmol であった。湛水土壌試料に初期添加したこの ^{14}C 量はおよそ 450 Bq であったので、この試料には約 110 pmol の [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムが添加されたと計算される。一方、キャリアとして添加した酢酸ナトリウムは 10 mmol/kg であり、一試料当たり 0.5 g の水田土壌を含む本試験の試料中の酢酸ナトリウム量は 5 μmol と計算される。これらの計算結果から、キャリアとして添加した酢酸ナトリウムは [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウム量の約 45,000 倍であったと試算される。[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムが酢酸ナトリウムによって 45,000 倍希釈されたのであれば、ガス化率も同様に 45,000 倍低下すると考えられるが、実測した希釈倍率は 13~27 倍であった。つまり、酢酸ナトリウムの添加により、 ^{14}C のガス化は活発になったのかもしれない。しかしながら、この試験において [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムと酢酸ナトリウムの濃度差があまりにも大きく過ぎることが問題であり、この結論を主張するためには、小さな濃度差での試験も必要である。

土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係を図 3-18 に示す。10日間連続培養試験では両パラメータの間に有意な負の相関が観察されたが ($P < 0.01$, 図 3-15)、酢酸ナトリウム添加

試験では正負いずれの相関関係も得られなかった。つまり、土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の間で相関関係が認められなかったのは、キャリアガスの影響ではないことが分かった。

3.2.4. ATP を指標とした土壌微生物バイオマスの測定方法

^{14}C のガス化は主に微生物活動に依存している（放射線医学総合研究所, 2013）。そのため、土壌呼吸活性に加え微生物バイオマスの情報も ^{14}C の動態解明には必要である。本章ではハンドタイプのルミノメータを用いた簡便な ATP 測定法について検討した結果を報告する。

3.2.4.1. ATP の測定について

微生物バイオマスの測定には、直接検鏡法、ATP 法、基質誘導法、クロロフォルム燻蒸培養法など様々な手法が用いられている（木村, 1991）。直接検鏡法は顕微鏡下で直接微生物細胞を観察し、計数する方法であるが、土壌微生物の場合、土壌と細胞の判別が難しい。近年では蛍光染色剤で染色した微生物細胞を計数する方法（Someya, 1995）が考案されているが、計数には時間がかかるために多試料の測定には向かない。基質誘導法やクロロフォルム燻蒸法は微生物活動を活性化あるいは抑制した場合に生産される CO_2 ガス量から微生物バイオマスを求める方法である。微生物を活性化するための基質としてグルコースがよく用いられるが、供試土壌に易分解性の有機物が多く含まれる場合、グルコースよりもこれらの有機物に対し微生物が反応するため、基質誘導法は利用できない。本試験で用いる水田土壌の場合、どのような有機物が含まれているかは不明であるため、この方法は利用しなかった。またクロロフォルム燻蒸法は劇物であるクロロフォルムを使用するため、ドラフト内での作業が必須であるなど、試験自体が制限される。一方、ATP 法は微生物生体内に存在する ATP 量から微生物バイオマスを求める方法であり、近年、青山により土壌中の ATP を簡便に測定する方法が報告された（青山, 2011）。そこで、青山の方法を参考に、水田土壌試料中の ATP 測定法を開発した。測定法の開発にあたり、発光測定値の安定性及び抽出試薬について検討した。

3.2.4.2. 発光の安定性

まず初めに、土壌微生物から抽出した ATP がルシフェリン及びルシフェラーゼと反応した結果生じる発光の安定性について検討した。Lucifell ATP Standard Reagent Set（キッコーマン）を用いて 2×10^{-12} M から 2×10^{-6} M まで 10 倍ごとに 7 段階の ATP 希釈標準試料を作成し、ルシフェリン・ルシフェラーゼ反応によるこれら標準試料の相対発光量をルミテスター PD-20（キッコーマン）で測定した。ATP の希釈は 10 mM グリシン in 5 mM Mg-EDTA 溶液で行い、測定は発光試薬を混合した 10 秒後から 10 秒毎に 20 回測定した。

結果を表 3-12 に示す。 2×10^{-10} M の相対発光量は 50-56 Relative Light Unit (RLU) であった。したがって、これを 10 倍希釈した 2×10^{-11} M ATP 希釈標準試料の相対発光量は 5-5.6 RLU になると期待されたが、測定値は 8-12 RLU であった。同様に 2×10^{-12} M ATP 希釈標準試料の場合も期待された値よりも高い値が得られた。これらのことから、ルミテス

ターPD-20においてATPの検出下限値は 2×10^{-10} Mと考えられる。 2×10^{-10} Mから 2×10^{-6} MのATP希釈標準試料の相対発光量は、測定期間中下がり続け、平衡に達することはなかった。つまり、発光の安定性は高くないと言える。

土壌から抽出したATPについても発光の安定性について検討した。0.5 gの水田土壌（表3-7, EP-SD-36）を500 μ Lの超純水で湛水し、25°C暗条件で5日間培養したこの水田土壌試料に5 mL DMSO添加した。ミキサー（Delta Mixer Se-04, タイテック株式会社）で激しく攪拌したのち、20 mL 0.01 Mリン酸三ナトリウムを加えて再度激しく攪拌し、遠心分離（1,600 \times g, 5分）を行った。その後1 mL上清を9 mL 10 mM グリシン in 5 mM Mg-EDTA溶液で希釈し、この希釈100 μ LをLuciPac Pen-AQUA（キッコーマン）の発光試薬と混合した。相対発光量はルミテスターPD-20（キッコーマン）で測定した。発光試薬と混合して10秒後から10秒間隔で20回測定を繰り返した。また、DMSO、リン酸三ナトリウム、及びグリシン in Mg-EDTA溶液を試料と同様の割合で混合した溶液（つまり土壌抽出液を含まない溶液）を作成し、これをネガティブコントロールとして相対発光量を測定した。この試験は独立して2回繰り返した。

水田土壌試料及びネガティブコントロール試料の相対発光量測定結果を図3-19に示す。ネガティブコントロールに関しては、ほとんど発光が確認できなかった（相対発光量6以下）。水田土壌試料の相対発光量であるが、ATP希釈標準試料の結果と同様（表3-12）、測定期間中、一度も上がることはなく下がり続けた。つまり、発光量は試料と発光試薬を混合してから測定までの時間に依存することが分かった。以上の結果から、相対発光量を感度良く測定するためには、ATP抽出液と発光試薬を混合したのち速やかに測定することが重要であるが、途中の作業工程にかかる時間を考慮し、ATP抽出試料と発光試薬の混合から30秒後に相対発光量を測定することとした。

3.2.4.3. ATP抽出試薬の検討

次に、微生物細胞内のATP抽出試薬について検討した。青山（2011）はATP抽出試薬としてDimethyl sulfoxide（DMSO）を利用した。INT-フォルマザンの抽出にはDMFが効果的であったため、DMSOとDMFの抽出効率について比較した。

0.5 gの水田土壌（表3-7, EP-SD-36）を500 μ Lの超純水で湛水し、25°C暗条件で7日間培養したこの水田土壌試料にDMSOあるいはDMFを5 mL添加した。ミキサー（Delta Mixer Se-04, タイテック株式会社）で激しく攪拌したのち、20 mL 0.01 Mリン酸三ナトリウムを加えて再度激しく攪拌し、遠心分離（1,600 \times g, 5分）を行った。その後100 μ L上清を900 μ L 10 mM グリシン in 5 mM Mg-EDTA溶液で希釈し、この希釈100 μ LをLuciPac Pen-AQUA（キッコーマン）に添加し発光試薬と混合した。相対発光量はルミテスターPD-20（キッコーマン）で測定した。測定は発光試薬との混合の後、30秒後から10秒間隔で5回繰り返し、最大値を試料の相対発光量とした。この試験は独立して2回繰り返した。

結果を図3-20に示す。DMSOでATPを抽出した場合、相対発光量は 802 ± 30 RLUであった。一方、DMFで抽出した場合、 652 ± 13 RLUであった。2回の繰り返し実験であったため有意差検定は行わなかったが、この結果はATP抽出にはDMSOが適していることを示唆している。したがって、ATP法による微生物バイオマスの測定ではATP

の抽出試薬として DMSO を用いることとした。

3.2.5. 全国各地から採取した水田土壌の微生物バイオマスと環境パラメータとの関係

前節で検討した ATP 法を利用し、全国各地から採取した水田土壌の土壌微生物バイオマスを測定した。本章では湛水 7 日目の ATP 量及び ATP 量とその他の環境パラメータ (^{14}C ガス化率, 土壌-土壌溶液間分配係数, C/N 比, 土壌呼吸活性) との関係について述べる。

3.2.5.1. 実験材料と方法

平成 14 年度から平成 18 年度までに行われた「放射性核種生物圏移行パラメータ調査」において全国各地より採取された水田土壌 (63 試料) を土壌微生物バイオマス測定試料として用いた。これらの土壌は ^{14}C ガス化率や土壌呼吸活性で用いた土壌と同じであり、したがってこれらの環境パラメータと微生物バイオマスとの関係を求めることが可能である。土壌試料の採取場所 (都道府県), FAO-UNESCO 分類名, 日本の土壌分類, 炭素量, 窒素量及び C/N 比は表 3-7 の通りである。

水田土壌は以下の操作手順に従い処理し, ATP 由来の相対発光量を測定した。実験は 3 回繰り返した。

- 1) 0.5 g 乾燥土壌 + 500 μL 超純水 in 50 mL 容ポリプロピレンチューブ
- 2) 培養 (25°C, 暗条件, 7 日間)
- 3) 5 mL DMSO を試料に添加し激しく攪拌
- 4) 20 mL 10 mM リン酸三ナトリウムを添加し激しく攪拌
- 5) 遠心分離 (1,600 \times g, 5 分, 室温)
- 6) 100 μL 上清を 900 μL 10 mM グリシン in 5 mM Mg-EDTA 溶液で希釈混合
- 7) 100 μL 希釈溶液を LuciPac Pen-AQUA に添加し, これに含まれる発光試薬と混合
- 8) 30 秒後ルミテスター PD-20 で RLU 測定

一般的に微生物バイオマスは土壌の単位重量当たりの微生物の総炭素量として与えられる (木村, 1991)。しかしながら, 本事業は微生物バイオマスの絶対量を測定することが目的ではなく, ^{14}C ガス化率の統括的指標を探索することが目的である。この目的を達成するためには, 様々な水田土壌における微生物バイオマスと ^{14}C ガス化率との関係を明らかにすることが重要であり, 微生物バイオマスの相対的な変化を明らかにすることで目的は達成できる。そこで, 本章では相対発光量から ATP の定量を行い本来の微生物バイオマスに換算することはせず, ATP 由来の相対発光量を微生物バイオマスの相対量ととらえ, 得られた結果について ^{14}C ガス化率及びその他の環境パラメータとの関係について考察する。

3.2.5.2. 土壌微生物バイオマスと環境パラメータとの関係

日本の各地より採取した水田土壌の培養 7 日目における土壌微生物バイオマスの結果を表 3-13 に示す。また, 測定値の基本統計量 (平均値, 中央値, 標準偏差, 最大値,

最小値、歪度、及び尖度)を表 3-14 に示す。得られた微生物バイオマスの範囲は 202 RLU から 1,518 RLU と広く、平均値と中央値はそれぞれ 583 RLU と 488 RLU であった。微生物バイオマスの平均値と標準偏差から求めた変動係数は 47%と大きく、日本の水田土壌における微生物バイオマスは土壌呼吸活性(表 3-9)と同じく、土壌間で大きく異なることが分かった。歪度及び尖度共に正の値であるため、左に偏りのある分布でかつ正規分布と比較して分布の広がり狭いことが分かった。

細胞当たりの呼吸量が同じであれば、バイオマスの増加に伴い CO₂ の発生量も多くなる。そこで、微生物バイオマスの増加に伴う ¹⁴C ガス化率の増加が期待された。もし、この関係が成立するのであれば、バイオマスは ¹⁴C ガス化の統括的指標と成り得る。土壌微生物バイオマスと ¹⁴C ガス化率の関係について調査した結果を図 3-21 に示す。両パラメータ間の関係であるが、期待された関係とは逆に、微生物バイオマスの増加に伴い、¹⁴C ガス化率は減少する傾向が観察された。ただし、この関係は有意な相関ではなかった。以上の結果から、微生物バイオマスも ¹⁴C ガス化の統括的指標として利用できないことが分かった。この結果は、土壌呼吸活性と同じ理由により生じたと考えられる(図 3-16)。つまり、水田の土壌微生物の成長は有機物の利用しやすさに依存するために、微生物バイオマスと ¹⁴C ガス化率との間に相関関係が得られなかったと考えられる。この考え方が正しければ、処分地で発生した ¹⁴C が生活圏に到達したときの化学形態は ¹⁴C の安全評価において極めて重要な情報である。

水田土壌の微生物は[1,2-¹⁴C]酢酸ナトリウムを細胞内に取り込むことができる(放射線医学総合研究所, 2013)。細胞内に取り込まれた ¹⁴C は、物理的に 0.2 μm の口径を通過できなくなる。つまり、0.2 μm を境に溶存態と懸濁態と分別した場合、懸濁態に分画される。土壌-土壌溶液間分配係数は平衡状態において土壌溶液中の RI 濃度に対する土壌中の RI 濃度の比で表されるので、懸濁態に分画された ¹⁴C は土壌中含まれる ¹⁴C と見なされる。したがって、土壌微生物による ¹⁴C の取り込みが多ければ、土壌-土壌溶液間分配係数の値は高くなる。細胞当たりの ¹⁴C 取り込み量が同じと仮定すれば、微生物バイオマスの増大に対して土壌-土壌溶液間分配係数は大きくなると考えられる。そこで、土壌微生物バイオマスと土壌-土壌溶液間分配係数の関係について調査した。土壌-土壌溶液間分配係数であるが、放射線医学総合研究所(2008)のデータを利用した。結果を図 3-21 に示す。微生物バイオマスの増加に伴い、土壌-土壌溶液間分配係数も増加した($P < 0.05$)。有意な相関関係ではあるが、相関係数は 0.263 と低かった。ここで使用した土壌-土壌溶液間分配係数は[1,2-¹⁴C]酢酸ナトリウム添加後 7 日目に取得した値であり、途中、微生物の異化代謝により細胞内の ¹⁴C がガスとして大気に放出されたことが影響したかもしれない。例えば図 3-21 に示した P-43 (表 3-7, EP-SD-43)であるが、バイオマスを表す RLU が最も高い値であったにもかかわらず土壌-土壌溶液間分配係数は $67.8 \pm 13.4 \text{ L kg}^{-1}$ と比較的小さな値であった。一方、7 日間の積算ガス化率は $70.7 \pm 1.3\%$ と(放射線医学総合研究所, 2008)、添加された ¹⁴C の多くがガスとして大気中に放出されていたことから、7 日間の培養過程において、¹⁴C が多量に細胞内に取り込まれたことを示唆している。したがって、微生物バイオマスと土壌-土壌溶液間分配係数の関係を明らかにするためには測定するタイミングが重要である。

次に C/N 比と土壌微生物バイオマスとの関係について調査したが、両パラメータ間に明確な相関関係は認められなかった(図 3-21)。この結果は、炭素含量が多ければ必ずしも微生物バイオマスが多くなるとは限らないことを示唆している。土壌微生物群集の種構成そして、それらの

微生物の炭素資化性について明らかにする必要がある。

最後に土壤呼吸活性と土壤微生物バイオマスとの関係について調査したところ、最も良い正の相関関係が得られた(図 3-21)。CO₂ 発生量は微生物バイオマス測定においてよく利用される指標である(木村, 1991)。例えば、基質誘導法は易分解性の有機物を添加し、この有機物の分解に伴う CO₂ 発生量から微生物バイオマスを推定する方法である。同じく、クロロフォルム燻蒸法はクロロフォルム燻蒸により滅菌した土壤に新鮮な土壤を加え、この試料から発生する CO₂ 量からバイオマスを見積もる方法である。つまり、これらの方法はいずれも微生物バイオマスと CO₂ 発生量には相関があることを意味しており、本試験もこの関係を反映した結果と考えられる。

3.2.6. まとめ

放射性炭素の移行を統括的に評価するパラメータとして、土壤呼吸活性あるいは微生物バイオマスが利用可能かどうかを検討した。初めにこれらパラメータの測定法の開発を行った。次に本年度開発した測定法を用いて、日本各地 63 箇所から採取した水田土壤における土壤呼吸活性、微生物バイオマスを測定した。最後に両パラメータの測定値と ¹⁴C ガス化率の関係について調査し、これらのパラメータが統括指標として利用できるか検討した。

土壤呼吸活性測定法では、これまで一試料毎に吸光度測定をしていたところマイクロプレートリーダーを利用することにより最大で 96 試料を同時に測定できるようになった。また、マイクロプレートリーダーでの測定に適した実験条件を検討した結果、細胞内に形成された INT-フォルマザンを抽出する試薬として DMF が有効であることを明らかにした。これにより、昨年度の本事業において使用されていた劇物であるメタノールの使用量をゼロにすることができた。具体的な土壤呼吸活性の測定法については本文 (3.2.2.1. 章) を参照されたい。

微生物バイオマスの指標として ATP の測定法を開発した。この方法は青山 (2011) の方法を参考にしており、簡便でかつ迅速に測定できる方法である。細胞内の ATP は有機溶媒で抽出する。抽出試薬として DMSO と DMF を比較したところ、DMSO により効率よく ATP が抽出できることを明らかにした。青山 (2011) は、試料を発光試薬と混合したのち相対発光量を 5~10 回測定し最大値を記録すると述べている。ところが、ATP による発光は不安定であり、ATP 標準試薬でさえ相対発光量は時間と共に減少することを確認した。つまり、発光試薬の混合から相対発光量の測定までの時間が測定値に影響することを明らかにした。本事業では試料に発光試薬を混合したのち 30 秒後に相対発光量を繰り返し測定することとした。以上のことを踏まえ確立した測定方法については本文 (3.2.5.1. 章) 参照されたい。

本年度開発した方法で、日本各地の水田土壤の土壤呼吸活性及び微生物バイオマスを測定した。それぞれの測定値は表 3-8 及び表 3-13 を参照されたい。得られた結果から、日本の水田土壤における土壤呼吸活性及び微生物バイオマスは土壤間で大きく異なることが分かった。一方、[1,2-¹⁴C]酢酸ナトリウム由来の ¹⁴C のガス化率は、水田土壤間ではほとんど差がなかった。土壤呼吸活性及び微生物バイオマスと ¹⁴C のガス化率の相関関係を調べたところ、¹⁴C のガス化率は土壤呼吸活性及び微生物バイオマスの増加に伴い減

少する傾向が見られた。相関係数も共に 0.3 以下と低く、土壌呼吸活性及び微生物バイオマスは共に放射性炭素の移行の統括的指標として利用できないことが示された。おそらく、水田土壌に生息する微生物の種類と数、そしてそれらの微生物が利用できる有機物あるいは利用しやすい有機物の量が ^{14}C のガス化に影響していると考えられる。したがって、統括的指標を提案するためには、TRU 廃棄物由来の ^{14}C の地上での化学形態を明らかにし、その ^{14}C 化合物とガス化率との関係を明らかにすることが重要である。炭素は地上の生物にとって必須元素であり、そのため地上における TRU 由来の ^{14}C の化学形態を予測することは困難である。そのため、まずは土壌微生物群集による様々な炭素資化性を明らかにすることが重要である。

冬期、水田は落水され乾燥状態となり、春に再び灌漑を行い水稻栽培が開始される。そこで本年度は一度乾燥した土壌を湛水し、実験に供した。しかしながら、TRU 由来 ^{14}C は必ずしも灌漑直後に水田に入り込むわけではない。灌漑から時間が経過した後に負荷されることもあるかもしれない。乾燥は微生物群集構造を大きく変える変化であり、したがって、乾燥土壌だけでなく生土の場合でも統括的指標について調査が必要である。

引用文献

- 青山正和 (2011): 一体型 ATP 測定試薬キットと小型ルミノメーターを用いた農耕地土壌の微生物バイオマスの推定, 日本土壌肥料学会誌 82, 305-308.
- Berridge, M.V., Herst, P.M., Tan, A.S. (2005): Tetrazolium dyes as tools in cell biology: new insights into their cellular reduction, *Biotechnol Annu Rev* 11, 127-152.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター (2008): 平成 19 年度 地層処分技術調査等-放射化金属 廃棄物炭素移行評価技術調査.
- 放射線医学総合研究所 (2009): 平成 20 年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.
- 放射線医学総合研究所 (2013): 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].
- 放射線医学総合研究所 (2014): 平成 25 年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開発.
- 犬伏和之 (1994): 水田の物質循環と微生物の働き. In 微生物の生態 19 一物質循環における微生物の役割一, (eds, 日本微生物生態学会), 学会出版センター, 91-118.
- Ishii, N., Ogiyama, S., Sakurai, S., Tagami, K., Uchida, S. (2015): Environmental transfer of carbon-14 in Japanese paddy fields. In *Nuclear Back-end and transmutation technology for waste disposal*, (eds, Nakajima, K.), Springer, 303-309.
- 木村真人 (1991): 土壌中の微生物とその働き (その 5) —微生物バイオマス—, 農業土木学会誌 59, 944-948.
- Someya, T. (1995): Three-dimensional observation of soil bacteria in organic debris with a confocal laser scanning microscope, *Soil Microorganisms* 46, 61-69.
- Trevors, J.T. (1984): Effect of substrate concentration, inorganic nitrogen, O_2 concentration, temperature and pH on dehydrogenase activity in soil, *Plant and Soil* 77, 285-293.
- Trevors, J.T., Mayfield, C.I., Inniss, W.E. (1982): Measurement of Electron Transport System

- (ETS) activity in soil, *Microbial Ecology* 8, 163-168.
- Takai, Y. (1970): The mechanism of methane fermentation in flooded paddy soil, *Soil Science and Plant Nutrition* 16, 238-244.
- Tsutsuki, K., Ponnamperna, F.N. (1987): Behavior of anaerobic decomposition products in submerged soils -Effects of organic material amendment, soil properties, and temperature-, *Soil Sci. Plant Nutr* 33, 13-33.
- von Mersi, W., Schinner, F. (1991): An improved and accurate method for determining the dehydrogenase activity of soils with iodinitrotetrazolium chloride, *Biology and Fertility of Soils* 11, 216-220.
- Yamaguchi, T., Tanuma, S., Yasutomi, I., Nakayama, T., Tanabe, H., Katsurai, K., Kawamura, W., Maeda, K., Kitao, H., Saigusa, M. (1999): A study on chemical forms and migration behavior of radionuclides in HULL waste, *International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management*, 26-30.
- 四本瑞世, 千野裕之, 石川洋二 (2003): 油汚染土のハイオレメティエーションに関する研究(その 6)一分解微生物の有効性の評価方法と浄化処理期間の短縮化技術の開発一, 1-6 pp.

3. 3. 温度変化と微生物活動の関係についての調査

近年, 気象変動による微生物活動の変化が注目されている。土壌微生物が大気中の二酸化炭素のバランスに重要な役割を果たしており, 気温が上昇した場合, 土壌からの二酸化炭素放出量が増大し, 気象変動が拡大することが懸念されるためである。廃棄物処分場で発生した ^{14}C が地表面へと移動した場合, 同様に気候変動の影響を受けることが予想され, 気温変化によりガス化の促進, あるいは抑制, いずれかに変化すると考えられる。一方, 地層処分の安全評価では, 温暖化だけでなく寒冷化についても検討する必要がある。つまり, これら気候変動を踏まえて放射性廃棄物由来の ^{14}C の挙動をモデル化するためには, 温度変化に対する微生物活動の反応を理解する必要がある。そこで, 温度変化と微生物活動の関係について最新の論文を中心に文献調査を行い, 今後の調査・研究に資する情報の整理を行った。

3.3.1. 土壌微生物による炭素循環と気候変動の関係

まず初めに土壌微生物による炭素循環と気候変動の関係を概観する (図 3-22)。土壌微生物は生態系における土壌-大気炭素交換を担っており, そのため気候変動による土壌微生物への影響は土壌-大気炭素交換にも影響する (Bardgett et al., 2008)。土壌微生物に対する気候変動の影響であるが, 大きく直接影響と間接影響の 2 つに分類することができる。直接的影響は, 例えば微生物活性に対する温度変化の影響, 降雨量の変化による影響, 異常気象などである。一方, 間接的影響は, 気候変化によってもたらされた植物生産や植生などの変化を介した影響である。植物生産や植生の変化は土壌の物理化学的な状態, 土壌への炭素供給量, 微生物群集の活性などに影響し, 有機物分解過程や土壌からの炭素放出に影響する。これらの影響が複雑に絡み合い, 土壌-大気の炭素交換が決

定される。

Jenkinson et al., (1991)は、植物による炭素の取り込みより、土壤有機物の分解による炭素放出の方が気候変動に対して反応しやすいとしている。しかし、土壤炭素の分解に関しては未だ統一的な結論が得られていない。気温の上昇により土壤微生物による有機炭素の分解が増大し、温室効果ガスが多量に大気中に放出されれば気候変動に対する正のフィードバックが起こる。逆に、大気中のCO₂濃度の上昇に伴い植物によるCO₂の吸収が有機炭素の分解量を上回れば、気候変動に対する負のフィードバックが起こる。このように、土壤微生物による有機物の分解特性が気候変動におけるフィードバックに重要な役割を果たしている。

3.3.2. 温度変化に対する微生物の反応

気候変動に関する政府間パネル (IPCC) の報告によれば、気候システムの温暖化は疑う余地がなく、その主要因は1750年以降の大気中の二酸化炭素濃度の増加としている (ICPP, 2013)。増加した二酸化炭素の放出は主に人為起源ではあるが、自然起源の放出も起こる。例えば、土壤からの放出である。土壤に貯蔵されている炭素量は約15,000億トンと試算されており、これは大気中存在する炭素量の約2倍である (松本, 2005)。土壤-大気間の炭素交換に対し気候変動がどのように影響するかについてはよく分かっておらず、現在、多くの研究が進められている。地表面の酸化的条件下において、土壤微生物は土壤中の有機化合物を分解し二酸化炭素として大気中に放出する。温室効果ガスの一つである二酸化炭素の土壤からの放出量は、すなわち、微生物の活動に影響される。気候変動を予測するためにこれまで多くのモデルが用いられてきたが、気候変動に対する微生物の影響を考慮したモデルは多くない。しかしながら、近年では微生物の活動を考慮した気候変動モデルが計画されており、注目を集めている (The American Academy of Microbiology, 2011)。

温度に対する微生物の反応であるが、Xiong et al.,(2014)はチベットの高山放牧地において地温の上昇と微生物群集構造の関係について15月間に渡り調査を行った。この調査では、地温を1°C及び2°C上昇させることで、試験区で様々な変化が生じることを明らかにした。年平均地温は1.12°Cから2.24°C及び3.54°Cに変化し、この温度上昇に伴い土壤湿度と総炭素量が減少し、逆にpH、草丈、被覆面積、生物量が増加したことを報告している。同じく地温上昇により*Acidobacteria*と*Bacteroidetes*が顕著に減少し、その結果、土壤微生物群集構造も変化することを明らかにした。*Acidobacteria*の減少はCastro et al., (2010)によっても確認されている。この土壤微生物群集の変化の原因であるが、variance partitioning analysisの結果、地温の上昇は微生物群集の変化に対して7.15%しか説明できず、むしろ土壤特性や植生の変化が微生物群集に影響したとしている (土壤特性の影響:28.3%, 植生影響:20.6%)。つまり、チベットの高山牧草地では地温変化による直接影響より間接的影響が強いことを明らかにした。微生物群集構造の変化に伴う炭素資性の変化も、今後検討すべき課題と思われる。

Schiendlbacher et al.,(2011)も同様に高山で地温の上昇が微生物群集構造や微生物バイオマス (微生物炭素及び微生物窒素量) 及びバイオマス当たりの呼吸量に与える影響について調査した。5年に渡る調査の結果、4°Cの上昇により微生物群集構造や微生物バイ

オマースについては変化が見られなかったことを報告している。この結果は Xiong et al.,(2014)の結果と異なるように思えるが、Xiong et al.,(2014)も微生物群集構造の変化は地温の変化よりもむしろ土壌特性や植生の変化が影響していることを述べている。農耕地土壌は管理された土壌であり、かつ栽培される農作物はある程度限定されるため、地温の変化による微生物群集構造の変化は小さいかもしれない。

一方、バイオマス当たりの呼吸量は、地温の上昇により増加したと報告している (Schiendlbacher et al., 2011)。呼吸量増加の要因として、微生物のストレスバイオマーカー (c17:0/16:1 ω 7 比) が温度上昇と共に増加していることから、微生物細胞の維持するための呼吸量が地温の上昇により上がったためとしている。

Steinweg et al. (2013)は、気候変動が土壌酵素活性及び微生物バイオマス炭素に与える影響を調査するために、耕作放棄地の土壌を用いてこれらのパラメータに対する湿度と温度の関係について調査した。湿度は周囲の湿度に対して 50%及び 150%に調整され、温度は地上 1 メートルにヒーターを設置し、ヒーターの電力量を変えることで周囲の温度より最大で 4°C 高い試験区を準備した。準備した試験区はこの“周囲+4°C”の他、これより低い温度の試験区を 3つ準備した (合計 4つの温度試験区)。また、炭素循環に係わる酵素として β -glucosidase, cellobiohydrolase, 及び xylosidase の活性を測定し、得られた値から温度上昇と湿度の影響について検討した。その結果として、酵素活性自体は温度上昇や湿度にほとんど影響されないことを明らかにした。

以上の文献調査結果から、温度に対する微生物の反応は直接影響だけでなく間接的影響が強いことを示唆している。したがって、微生物による ^{14}C のガス化を調査する場合、微生物- ^{14}C ガス化の関係に対する地質環境による影響及び農作物による影響についても調査する必要がある。

3.3.3. 微生物反応の地域差

Cregger et al. (2014)は異なる気候帯間で微生物群集や微生物の機能に対する気温上昇の影響について比較した。南部 (年平均気温 15.5°C, 降水量 1140 mm) では人為的な地温の上昇に伴い細菌数が増えるが、北部 (年平均気温 7.1°C, 降水量 1066 mm) ではそのような増加は観察されなかったことを報告している。ただし、種構成に関しては明確な地温の影響は無く、地温や降雨量よりもむしろ植生や歴史的な背景に依存するのでは無いかと考察している。著者らは酵素についても同様の結果を得ている。多糖類の一種、ヘミセルロース分解酵素である xylosidase 活性は、南部において地温や土壌湿度に影響されるが北部では影響されなかった。一方、キチン質から窒素の無機化を促進する nagase 活性は北部では地温や土壌湿度に影響されるが、南部では影響されなかったことを報告している。この様に、微生物群集に対する温度上昇の影響は地域によって様々であり、したがって、土壌酵素活性に対する温度の効果は無いとする Steinweg et al. (2013)の結果も、著者らが用いた土壌だからこその結果と考えられる。もし、土壌微生物の数や土壌活性が地域により異なるのであれば、地層処分地近傍の農耕地において ^{14}C ガス化の詳細な試験を行う必要がある。例えば、TRU 地層処分地由来の放射性炭素の化学形態は、カルボン酸やアルコール類といった低分子化合物の可能性が示唆されているが

(Yamaguchi, 1999), どのような土壌酵素活性が温度変化に影響されるのか不明である

以上、TRU 地層処分地で発生する可能性のある炭素化合物について温度変化と分解速度について調査する必要がある。

3.3.4. まとめ

温度変化は微生物バイオマスや種構成に影響する可能性があるが、その影響は温度による直積的影響よりも、むしろ温度変化による環境の変化が間接的に影響することが分かった。また、温度変化がもたらす影響が炭素フラックスに及ぼす効果は、地域によって異なることが分かった。また、これらの影響は在来の微生物種組成や土壌有機物の化学形態や存在形態に依存することが示唆された。微生物及び土壌有機物は多様で、それぞれの環境で異なるため、地層処分の安全評価のためには、我が国の土壌を用いてその土壌に生息する微生物の網羅的解析及び温度変化に対するこれら微生物集団の生態生理の反応の情報を収集することが必要である。

引用文献

- Bardgett, R.D., Freeman, C., Ostle, N.J. (2008): Microbial contributions to climate change through carbon cycle feedbacks, *ISME J* 2, 805-814.
- 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.
- Cregger, M.A., Sanders, N.J., Dunn, R.R., Classen, A.T. (2014): Microbial communities respond to experimental warming, but site matters, *PeerJ* 2, e358.
- IPCC. 2013. Summary for Policymakers. In *Climate Change 2013: The Physical Science Basis.*, edited by Stocker, T.F., Qin, D., Plattner, G.-K., Tignor, M., Allen, S.K., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V., Midgley, P.M. Cambridge, United Kingdom: Cambridge University Press, 1-30.
- Jenkinson, D.S., Adams, D.E., Wild, A. (1991): Model estimates of CO₂ emissions from soil in response to global warming, *Nature* 351, 304-306.
- 松本聰 (2005): 土壌における炭素のダイナミクスと地球環境. In 土壌圏と地球温暖化, (eds, 木村真人, 波多野隆介), 名古屋大出版会, 3-20.
- The American Academy of Microbiology. (2011): Incorporating microbial processes into climate models, *American Academy for Microbiology*, 28pp.
- 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.
- Steinweg, J.M., Dukes, J.S., Paul, E.A., Wallenstein, M.D. (2013): Microbial responses to multi-factor climate change: effects on soil enzymes, *Front Microbiol* 4, 146.
- Xiong, J., Sun, H., Peng, F., Zhang, H., Xue, X., Gibbons, S.M., Gilbert, J.A., Chu, H. (2014): Characterizing changes in soil bacterial community structure in response to short-term warming, *FEMS Microbiol Ecol* 89, 281-292.
- Yamaguchi, T., Tanuma, S., Yasutomi, I., Nakayama, T., Tanabe, H., Katsurai, K., Kawamura,

W., Maeda, K., Kitao, H., Saigusa, M. (1999): A study on chemical forms and migration behavior of radionuclides in HULL waste, International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, 26-30.

3. 4. 微生物を反映したモデルの検討

廃棄物から放出される可能性のある有機態 ^{14}C を対象に、日本の特徴である水田生態系における ^{14}C 水稲移行モデル（水稲全体モデル）を構築することを目的とする。本事業のこれまでの調査から、TRU 廃棄物由来の有機態 ^{14}C は、その多くが炭酸ガスとして近傍大気へ放出され、その一部は光合成により農作物に取り込まれることが分かってきた。土壌から発生する炭酸ガスの多くは土壌微生物による有機物分解に依存し、その微生物の活動は周囲の温度に影響される。すなわち、土壌微生物活性と土壌-大気炭素交換との関係、及びこの関係に及ぼす気候変動の影響を明らかにすることは、気候変動を考慮した ^{14}C の影響評価に結び付くことが期待される。昨年度の事業では、特に近傍大気と環境大気に着目してモデルの精緻化を行った。

近傍大気と環境大気の移行半減期は水田における水稲全体モデルの重要な移行パラメータであり、この移行半減期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再認識された。そこで、本年度は、近傍大気の移行半減期の値と切り替え時期について水稲全体モデルの精緻化を行った。また、土壌微生物の呼吸活性量から ^{14}C のガス化が推定できるか検討するために、水田における ^{14}C の挙動に係わる事象について文献調査を行い、水稲全体モデルの精緻化に利用した。本章では、文献調査の結果、この調査で得られた成果を利用した水稲全体モデルの精緻化、精緻化したモデルを用いた基本解析、及び各パラメータの変動幅を考慮した感度解析の結果について報告する。

3.4.1. 文献調査

近傍大気の移行半減期に対してより現実的な値を設定するために文献調査を行った。また、文献調査の結果モデルに利用できるパラメータや相関式を整理し、水稲全体モデルの精緻化に利用した。

3.4.1.1. 近傍大気の移行半減期

近傍大気と環境大気との移行半減期は、水稲全体モデルにおいて重要な役割を果たす。そこで、自然環境下における植物の物質生産と風との関係を整理した矢吹の著書（1990）について調査した。本著書は、葉面における空気との摩擦によって生じる境界層（葉面境界層）に着目し、この層が CO_2 の拡散速度や水の蒸散速度に大きな影響を及ぼすことについてまとめ、微気象と植物反応との相互作用の重要性を述べている。

まず初めに、葉面境界層抵抗と気孔抵抗の関係について整理する。 CO_2 の葉内拡散において、葉面境界層抵抗と気孔抵抗は極めて重要な役割を担う。葉面境界層抵抗とは葉表面付近に形成された空気流動の小さな空気層のことで、気孔抵抗とは気孔を介してガス交換をする際の抵抗のことである。風速と葉面境界層の関係であるが、風速が速いほど葉面境界層が薄くなることが知られており、葉面境界層が薄くなるということは、つ

まり葉面境界層抵抗が小さくなることを意味している。葉面境界層抵抗が小さくなれば葉への CO₂ 供給量が増し、光合成量が多くなる。しかしながら、必ずしも風速が速ければ光合成量が多くなるわけではない。湿度が低い場合、風速が速いと逆に光合成量が少なくなる。一般に風速が速くなれば葉からの蒸散速度も速くなるが、この蒸散を抑制するために気孔は閉じられる。つまり、気孔抵抗が大きくなる。このため、風速に伴い葉への CO₂ 供給量は増加するにもかかわらず、気孔が葉面での CO₂ 拡散を抑制するために、全体として光合成量が少なくなる。以上のことは光合成量に最適な風速があることを意味しており、例えばイネの場合、毎秒 1メートルの風速において収量が最大となることが報告されている。

熱帯地域における常緑樹林で 1 月（乾燥季）と 8 月（湿潤季）に調査した日照量と CO₂ フラックスの関係では、乾燥季と湿潤季で CO₂ フラックスに対する風速の影響が全く異なることを報告している。つまり、湿潤季では日照量が多くなれば CO₂ フラックスも増し、風速が速くなることにより、さらに CO₂ フラックスが増す。ところが乾燥季では日照量が多くなれば CO₂ フラックスは増すが、風速が速くなれば逆に CO₂ フラックスが減少する。水田の場合、水稲の生育期間は限られており、この期間における日照量、CO₂ フラックス、そして風速の関係は熱帯地域の常緑樹林の湿潤季と同様の傾向を示す。

水稲が最も生長した時期の葉面積指数（LAI：地表単位面積あたりに占める葉面積の割合）は大きく、葉で水田が覆われるような状態となる。そのため、例え群落外に風が吹こうと群落内部の風速は小さくなる。土壌から放出された CO₂ も環境大気へは移行しにくく、群落内部の植物体や土壌に再度吸収されると考えられる。このことから、モデルで考慮している水稲周辺の近傍大気と環境大気の CO₂ 移行半減期については、この時期に限って考慮しなくてよいと考えられる。

しかし、水稲の生長過程については考慮が必要である。田植え直後など LAI が小さい時期では、群落内部と群落上部がガス交換している（群落内部がない状態）と考えられるので、LAI によって群落内部と群落上部を区分けする必要がある。LAI は水稲の生長時期に関係しているため、両者の関係を調査し、LAI によって近傍大気と環境大気の移行半減期が変化するようにモデル化することが必要と考えられる。

これまで観測された光合成速度と、実際の水稲の生長量や収穫量の関係が不明であったが、この著書には正味光合成速度と乾物増加速度が同じであることが示されており、さらに正味光合成速度が群落の CO₂ フラックスと土壌呼吸量の合算であることが示されていた。すなわち、観測結果の正味光合成速度、または CO₂ フラックス + 土壌呼吸量の増減を水稲の乾物重量の増減とみなしてよいと考えられる。観測結果の知見をモデルに反映する際には、これを活用することが可能である。

3.4.1.2. 渦相関法について

地球温暖化研究等では、植物群落における炭素の収支が着目されている。炭素収支を測定するために eddy-covariance method（渦相関法）が用いられており、これが植物群落の微気象観測にも有用とされている。今回の調査文献の中にも渦相関法を用いて観測された CO₂ 変化量等の報告があることから、渦相関法について整理した。

植物群落において葉面積指数、水平風速、気温、葉温、比湿、及び CO₂ 濃度などの

環境因子は、群落内外で種々のスケールの渦によって輸送される。渦相関法とはそれらの渦を合成することで環境因子の乱流変動を模擬し、フラックスを求める方法である。つまり、乱流輸送に寄与する全てのスケールの渦を直接測定することでフラックスを計測する手法である。

群落上の CO₂ フラックスは、測定高度を通過する物質の速度であり、生態系のプロセスを評価するためには、計測された CO₂ フラックスに測定高度以下における物質の変化量（貯留変化）を加える必要がある。

$$NEE = F_c + F_s \quad \text{式 3-1}$$

$$F_s = \int_0^m \frac{\Delta C(z)}{\Delta t} dz$$

ここで、

NEE ; 生態系純交換量	F_s ; 貯留変化	F_c ; CO ₂ フラックス
C ; CO ₂ 濃度	t ; 時間	z ; 高さ

群落内の貯留変化 (F_s) は、高度別に測定された CO₂ 濃度の時間変化から求めることができる。

地球温暖化などの研究では植物群落における炭素収支を評価するため NEE を生態活動の要素（呼吸と光合成）に分割して評価される。その評価方法は以下のようにして算出される。まず測定値から求められた NEE は、群落上では光合成によって取り込まれる量と呼吸（植物と土壌）によって放出される量の差であり、下式のように表現される。

$$NEE = RE + GPP \quad \text{式 3-2}$$

ここで、

RE ; 生態系呼吸量（植物と土壌微生物の呼吸の総和 : Ecosystem Respiration)
 GPP ; 総一次生産量（光合成量 : Gross Primary Productivity)

夜間には光合成が起こらないこと、そして、植物・土壌微生物の呼吸が温度に依存することを利用して、 NEE を光合成と呼吸に分離する。呼吸の温度依存に関しては、最も簡単なものとして式 3-3 がよく使用される。

$$RE = R_{ref} \times Q_{10}^{T/10} \quad \text{式 3-3}$$

ここで、

R_{ref} ; 0°C のときの生態系呼吸量
 Q_{10} ; 呼吸の温度依存係数
 T ; 温度（気温や地温）

観測から求めた NEE と上式の RE （植物と土壌微生物による呼吸）が求まることで、式 3-2 から GPP （総一次生産量）を求めることができる。 GPP は式 3-4 で表現でき、 P_{max} と α は日射量と NEE の回帰式によって求めることができる。

$$GPP = \frac{P_{max} \cdot \alpha \cdot PAR}{P_{max} + \alpha \cdot PAR}$$

式 3-4

ここで、

GPP ; 総一次生産量 α ; 初期勾配
 P_{max} ; 最大光合成速度 PAR ; 光合成有効放射

渦相関法では、植物群落上部の CO_2 フラックス (F_c) と渦相関法計測高度以下の CO_2 貯留量 (F_s) を求める必要があることは先に述べた。しかしながら、実際には F_s が実測できない場合がある。そこで斎藤ら (2011) は 2 つのケースで $NEE (= RE + GPP)$ を試算し、どの程度渦相関法で求めた NEE (NEE_{cont}) と差異が生じるかを検討した (Case1 : F_s なしで NEE を推定, Case2 : 渦相関法観測高度の濃度変化で算出された簡易 CO_2 貯留変化量 (F_{sc}) を用いて NEE を推定)。

この論文では、 F_s の見積り誤差が、 RE や GPP の算定誤差に影響することから、この F_s をどの程度精度よく算定するかが重要であることを述べている。Case1 で求めた NEE は NEE_{cont} と比較して夏季 (5-10 月) に過小評価することを明らかにした。この推定では日中の呼吸量を十分に反映できないことが理由として考えられている。一方、Case2 の場合、 NEE の推定が大幅に改善されたことを報告している。この論文の内容を水稻全体モデルに反映させることは難しいが、水田において、もし F_s が実測できない場合、 CO_2 貯留量から RE や GPP が求められることが確認できた。

3.4.1.3. 水田における CO_2 フラックス

渦相関法は水田における CO_2 フラックス解明のために、実際に利用されている。Saito et al., (2005) は、つくば市の水田において渦相関法による長期的な CO_2 フラックスを観測し、 CO_2 収支の季節変動を検討した。

2002 年 8 月 7 日から 11 日の CO_2 貯留量 (F_s) は、日中ほぼゼロであった。日中は群落表層の乱流により摩擦速度が大きくなり、これが蓋効果となったためと考えられている。また、 CO_2 フラックス (F_c) は日没時に最大となり、日の出で最小となった。これらの結果は、 CO_2 は夜に蓄積され、日中に放出する状態を繰り返すことを意味している。また、 F_c 及び F_s と群落表層の摩擦速度の関係から、水稻のように丈の低い植物群落においても、 F_s を 1 つの高度での測定値から算出することは不十分であると述べている。

生態系純交換量 (NEE) と光合成有効放射 (PAR) の日変化を整理したところ、水稻の生長に伴い日中の PAR が大きくなった。5/2 (田植え) ~ 5/25 の期間では明確でなかった NEE の日変化が、5/26 ~ 6/18 (6/19 : 中干し開始) の期間から明確になってきた。7/24 ~ 7/31 (二回目の中干し期間) において日中の NEE の減少がピークとなり、8/12 ~ 8/30 (8/11 : 収穫前の落水) の期間では日中の NEE の減少が小さくなり始めた。水稻収穫後、切株苗が成育してくる 9/20 ~ 10/3 の期間では、日中の NEE がマイナスの値となっておらず、切株苗の光合成による CO_2 吸収よりも土壌からの CO_2 放出が多いことが分かった。

森林生態系とは異なり、農耕地における植物バイオマスは季節によって大きく変わり、それは生態系の呼吸にも影響する。そのため、生態系の呼吸を議論する際は植物のバイ

オマスを考慮することが必要である。地上部の水稲バイオマス当たりの生態系呼吸量 ($R_{e,b}$) と気温との関係を調査した結果、5月～6月の灌漑期間の $R_{e,b}$ はそれ以降の期間よりも約1桁大きい、値のばらつきが大きく気温と一定の関係は認められなかった。このばらつきは、この期間、水稲バイオマスがまだ小さかったからと考えられる。その後の期間において、 $R_{e,b}$ は気温とともに上昇する傾向があった。ただし、各期間における $R_{e,b}$ 値自体は減少した。例えば、最初の中干し期間に含まれる 6/23～7/9 の $R_{e,b}$ は、2回目の中干し期間に含まれる 7/10～23 の値の2倍であった。初回の落水時において生態系呼吸量が大きかったのは、冬季に蓄積された土壌中の易分解性有機物が分解され発生した CO_2 ガスが、落水により大気中に拡散されやすくなったためである。対照的に2回目の中干し期と収穫前の落水期の $R_{e,b}$ は、灌漑期間と大差なかった。これは、成熟した水稲による呼吸が支配的であり、 NEE 値に対する土壌呼吸による貢献が少ないからと考えられる。水稲収穫後の 10/2～10/15 にかけて、 $R_{e,b}$ は水稲の生長時期よりも1オーダー大きい値であった。これは、収穫により地上部のバイオマスが減少したにもかかわらず、切株苗の根呼吸によって発生した CO_2 が落水条件下で大気中に拡散したことによる。

群落のキャノピーに吸収される光合成有効照射 (PAR) と光合成速度の関係 (式 3-4) であるが、式 3-4 の α は、葉面積指数 (LAI) が大きくなるほど小さくなる傾向にあり、逆に P_{max} は LAI が大きくなるほど大きくなり、出穂期に最大となった。

水稲全体モデルにおける、近傍大気と環境大気の CO_2 移行半減期について、 CO_2 貯留 (F_s) の知見が役立つ可能性がある。水稲の出穂以降において、摩擦速度が大きい日中では F_s がゼロであり、このことが近傍大気と環境大気の CO_2 交換が無いことを意味するのであれば、それを考慮する必要がある。また、 LAI と水稲の生長曲線がグラフ化されていることから、両者の対応関係が明らかとなり、水稲全体モデルにおける2つの大気間の移行半減期の切り替えに利用できると思われる。

3.4.1.4. 土壌呼吸の温度感受性

地球規模の炭素サイクルを研究する上で、土壌炭素蓄積量や CO_2 フラックスに影響する土壌呼吸 (R_s) の温度感度に注意を払う必要がある。しかし、長期的な気候変動がもたらす土壌有機炭素の分解に対する影響については共通した見解は未だ得られていない。

生態系の炭素サイクルモデルにおいて、 R_s の温度感度を示す指標として Q_{10} が用いられている。しかし、種々のモデルでは Q_{10} を固定値として扱っており、 Q_{10} の僅かな変動が炭素サイクルモデルにおける大きなバイアスとなっている可能性がある。そこで、Zheng et al., (2009) は、炭素収支の精度を上げるために、中国における過去10年の R_s 値をまとめ、欧州や北アメリカなど、異なる生態系の Q_{10} とも比較した。

土壌呼吸 (R_s) と土壌温度との相関から求めた農耕地の Q_{10} は 1.67-2.14 であり、過去に報告されている値の範囲であることを明らかにした。異なる森林タイプ間で Q_{10} を比較したところ、常緑樹森に比べて落葉樹森の Q_{10} が高く、また常緑針葉樹は常緑広葉樹よりも Q_{10} が高いことが分かった。常緑と落葉における Q_{10} の差は、地下の生物活性の季節的な違いによって生じたと考えられる。春における根の活動は、一般的に常緑樹林よりも落葉樹林で活発であり、その結果、年間の Q_{10} は落葉樹林で高くなったのである。

う。もう一つの理由として、そのそれぞれの生態系に生息する土壤微生物の種構成や土壤有機物が異なることが考えられる。これらは気温に対する R_s の感受性にも影響する。

さらに、気候によっても Q_{10} に違いが見られた。 Q_{10} は冷温地帯の方が大きく、この結果は今までの報告と一致する。 Q_{10} の温度感受性は土壤微生物活性や根による根呼吸といった R_s 過程に依存する。低温条件では微生物や根の活性は低いが、土壤が暖められることによりそれらの活性があがり、土壤有機炭素の分解や根からの CO_2 放出につながるためである。

Q_{10} と地温（深さ 5 ± 5 cm）の回帰式から、地温が $1^\circ C$ 温度上昇することにより Q_{10} は 3.3% 減少することが分かった。

また、土壤有機炭素易分解性プールは、微生物の呼吸の重要な基質であり、したがって土壤有機炭素量の変化は土壤微生物の活性にも影響する。深さ 20 cm までの土壤有機物量と Q_{10} の関係を調べたところ正の相関が確認できた。

著者らの調査で得られた Q_{10} の結果と欧州や北アメリカの結果を比較したところ、有意な差は観察されず、 Q_{10} は気温や土壤有機物含量に影響されることが分かった。

以上の結果から考えられることを図 3-23 にまとめた。冷温地帯では土壤有機物が分解されずに蓄積される傾向にあるが、夏季等において気温が上昇すると微生物が活性化し、 Q_{10} が大きくなる。一方、亜熱帯地帯では常時土壤有機物が分解されているため Q_{10} は小さくなる。この場合、土壤への土壤有機物の供給量が同じであれば、冷温地帯では土壤内の土壤有機物量が多く、亜熱帯地帯等では土壤有機物量が少なくなる。このことから、土壤有機炭素量と地温には相関があると考えられたので相関を調べた結果、両パラメータ間に非常に高い相関が見られた（図 3-24）。この関係が成立すると仮定するならば、水稻全体モデルに対して、土壤から近傍大気への移行半減期は、対象とする地点の平均土壤温度から土壤コンパートメント内の土壤有機物量を決定し、さらに月別等の土壤温度から Q_{10} に基づいて動的に変動させることが有用と思われる。

3.4.1.5. 水田における CO_2 発生の温度依存性

炭素の無機化と CO_2 の発生は地球規模の炭素循環や陸水生態系機能に影響を与えるとして関心が高まっている。Zhang et al., (2007)は、中国の水田でよく利用されている Haplaquept（灰色化低地土）、Hapludult（普通赤色土）、Fluvaquent（グライ低地土）を用い、土壤有機物の無機化に対する温度の影響を室内実験で検討した。

114 日に渡る培養期間中に無機化した総炭素量は、温度の上昇と共に増加した。この培養期間を 1-23 日、24-74 日、及び 75-114 日の 3 つの期間に分けて無機化炭素量を求めたところ、いずれの土壤においても、そしていずれの培養温度においても 24-74 日の期間において無機化炭素量が多くなった。炭素無機化量に対する温度上昇の効果であるが、3 つの期間いずれも温度上昇により無機化炭素量が多くなったのは、グライ低地土のみであった。特に、75 日目以降は温度上昇に伴う無機化炭素量の増加量は小さく、易分解性有機物の枯渇が疑われた。これらの結果から、温度上昇の影響は土壤の種類や土壤培養期間に依存する傾向があると言える。

一方、培養期間の各ステージにおいて、放出された CO_2 の $\delta^{13}C$ を調べたところ、灰色低地土と普通赤色土において時間とともに $\delta^{13}C$ が上昇した。これは時間と共に発生し

た CO₂ が重くなっていることを示している。この理由については今後更なる検討が必要である。

Q₁₀ と C/N 比の関係であるが、森林土壌ではよく正の相関関係が得られるが、水田では負の相関が得られた。一方、有機炭素中の微生物バイオマス炭素の比率と Q₁₀ の関係では、正の相関関係が得られた。また、土壌内の炭素プールと Q₁₀ との関係についても調べたが、明確な関係は認められなかった。

本論文は、水田土壌における土壌有機炭素分解について測定されたものである。検討内容自体は水稻全体モデルに有用であるが、他の土壌に対する一般的な知見とは結果が異なっており、その異なる理由が明確でない。したがって、この文献から得られた知見をモデルに反映することはできないものの、森林や牧草地の土壌とは、土壌分解の状態が異なるという結果については今後留意しておく必要があると考えられる。

3.4.1.6. 土壌有機物の分子構造と分解速度との関係

土壌有機物分解速度の温度依存性の指標として Q₁₀ がよく利用される。土壌有機物の分解プロセスは、分解に係わる微生物が多様であること、無機物に吸着することで物理的に分解が抑制されるなど、複雑な現象である。その結果、有機物分解に対する温度感受性については未だに議論が続いている。炭素の質が土壌有機物分解の温度感受性を決める要因ではないかと言われているが、必ずしも炭素の質と温度との関係が Q₁₀ の変動パターンと一致するわけではない。そこで、Wagai et al., (2013) は土壌有機物の分子構造が Q₁₀ の変動要因ではないかと考え試験を行った。

試験は有機物含量や土質が異なる 5 つの畑土壌を用いて行われた。呼吸に用いられた炭素量は土壌中の総炭素量が多くなるに従い多くなり、同様に、温度の上昇に伴い多くなった。

¹³C-NMR を用いて未処理土壌、低密度 (<1.6 g/cm³) 土壌、及び中密度 (1.6 – 1.8 g/cm³) 土壌中の分子構造を決定した結果、O-アルキル炭素が最も多く含まれることが分かった。総炭素量に対する O-アルキル炭素の割合は未処理土壌で 32-48%、低密度土壌で 40-54%、中密度土壌で 31-53%であった。

Q₁₀ と炭素の質の間接的な指標である未処理土壌の土壌特性との相関係数を求めたが、良い相関は得られなかった。一方、低密度及び中密度土壌の炭素分子構造と Q₁₀ の間には良い相関関係が認められた。中でも最も良い相関関係は、O-アルキル炭素に対する芳香族炭素とアルキル炭素の和との比であった。O-アルキル炭素は主にセルロースやヘミセルロース由来であり、微生物の作用を受けやすい成分である。逆に、芳香族炭素やアルキル炭素は分解されにくい成分である。この結果は、従来の“炭素の質”で Q₁₀ の変動要因を説明することは難しく、むしろ低密度土壌に含まれる炭素の分子構造を、新たな“炭素の質”の指標とすることで説明できる可能性を示している。つまり、土壌有機炭素分解の温度依存性は、その土壌にどの程度分解されやすい炭素が含まれているかに依存し、その分解しやすさは O-アルキル炭素を指標として評価できる可能性が示された。

この研究は土壌内の炭素結合状態で分類した、よりミクロな状態について検討している。興味深い内容ではあるが。現時点で上述の内容を水稻全体モデルに反映することは

難しい。

3.4.2. 近傍大気と環境大気の移行半減期の水稻全体モデルへの反映

前章で調査した文献情報から、水稻全体モデルにおける、近傍大気と環境大気の移行半減期について反映できるか、その可能性について検討を行い、反映が可能と思われる場合には、その数値設定を検討した。

3.4.2.1 水稻の生長段階区分

水稻の草丈が伸び、葉面積が多くなると、葉によって群落内部と群落上部の間のガス交換が遮られる。したがって、ガス交換を考慮する場合の水稻の生長段階は、葉面積指数 (Leaf Area Index; LAI) によって分類するのが適当と思われる。

Saito et al., (2005)は、稲の LAI と乾燥重量の生長日数変化について報告している。この報告による乾燥重量の単位及び生長期間は、現水稻全体モデルとは異なる。そこで、重量については収穫時の重量で規格化し、生長日数については Saito et al., (2005)の日数でモデルの日数を規格化した (図 3-25)。水稻の LAI は、生長とともに上昇し、出穂期に最大となり、その時の LAI は 6 を超えた。その後、葉が枯れるなどにより収穫期には LAI は最大値の半分の約 3 まで低下した。ただし、出穂後に LAI が低下しても、穂が成熟して稲上部が垂れてくるので、稲群落内部は確保されると考えられる。一方、収穫期と同じ LAI 値でも、生殖生長期では、稲及びその葉が鉛直上部にまっすぐ立っているために、群落内部に蓋をする状態にはなっていないであろう。また、田植え直後や栄養生長期では、まだ群落内部と上部を区画できるほど群落が生長していない。従って、LAI 値だけでなく水稻の群落状態を考慮して、ガス交換の状態を分類することが重要である。以上の点を考慮し、水稻の生長段階を以下の 3 期に分類することとした。

I	群落未発達期	田植え～栄養生長期	LAI=0～2
II	群落生長期	栄養生長期後～生殖生長	LAI=2～4
III	群落成熟期	生殖生長後～収穫まで	出穂前 LAI=4 以上～収穫まで

ここで設定した水稻の生長区分を水稻全体モデルにおいて判断する指標を設定することを試みた。LAI の指標はモデルにはないことから、水稻の重量等で新たに LAI 指標を設定する必要がある。出穂期までの乾燥重量 (規格化値) と LAI の関係を図 3-26 に示す。出穂前であれば両者は線形関係にある。したがって、モデル内の重量から LAI を算出するのが妥当である。しかし、本モデルに用いているプログラムでは各移行パスに微分式等の計算式を設定することが必要であり、別の移行パスで設定している重量計算式を別の移行パスで流用することができない。近傍大気から環境大気への移行パスでは、その重量計算式を設定していないので、プログラム化が煩雑となることから、ここでは、予め移行半減期を区分する LAI となる重量の日数を算出しておき、その日数で区分を判断させることとした。その結果、LAI=2 となるのは現行の水稻モデルでは 49 day, LAI=4 となるのは 58 day であった。したがって、モデルでは移行半減期の区分判断を、以下のように設定した。

- I 群落未発達期 0~49 day
- II 群落生長期 50-58 day
- III 群落成熟期 59-150 day

3.4.2.2. 近傍大気と環境大気の移行半減期の検討

文献調査の結果、群落上と群落内の鉛直方向の風速分布が異なる挙動であることが分かった(矢吹, 1990)。群落上の水平方向の風速が大きくなると、ベルヌーイの定理により群落内から群落上へガス移動が生じる可能性がある。そこで、生長区分 III (群落成熟期) を例に、ベルヌーイの定理を用いて ^{14}C の近傍大気から環境大気への移行半減期の推定を試みた。

ここでは図 3-27 に示した水稻群落を想定した。群落上部と内部には、水平方向に異なる風速があると仮定した。群落内部より群落上部で風速が大きく、そのため群落内部から上部へ鉛直方向に流速が生じるとした。基本的には、群落内部と上部でエネルギー保存則は適用できないので、ベルヌーイの法則も適用できないが、仮に算定してみた。群落上部と内部のエネルギーは下式で表わされる。

$$\cdot \text{群落内部} \quad P_1 + \rho \frac{v_1^2}{2} + \rho \cdot g \cdot z_1 \quad \text{式 3-5}$$

$$\cdot \text{群落上部} \quad P_2 + \rho \frac{v_2^2}{2} + \rho \cdot g \cdot z_2 \quad \text{式 3-6}$$

ここで、 P ; 圧力 (gf/cm^2), v ; 速度 (m/s), ρ ; 密度(g/cm^3), z ; 高さ(m)
 添え字: 1 群落内部, 2 群落上部

P は大気圧, ρ は空気密度で群落上部と内部で同じである。そのエネルギー差により稲穂等内の仮想円筒状の管を空気が通過する。位置エネルギー項 ($\rho \cdot g \cdot z$) は鉛直方向の上部への流れのため負とした。

$$\rho \frac{V^2}{2} = \rho \frac{v_2^2 - v_1^2}{2} - \rho \cdot g \cdot (z_2 - z_1) \quad \text{式 3-7}$$

$$V = \sqrt{(v_2^2 - v_1^2) - 2g(z_2 - z_1)} \quad \text{式 3-8}$$

z_2 は z_1 を基準に 50 cm, 群落内部の風速 (v_1) をゼロ, そして群落上部の風速 (v_2) を 2 m/s と仮定した。仮想する円筒内を通過する空気流量は, Q (流量) = A (円筒の断面積) $\cdot V$ (流速) で算出できる。しかし, 式 3-8 のルート内は $4 - 2 \times 9.8 \times 0.5 = 4 - 9.8 = -5.8$ とマイナスとなった。

仮想計算では, 群落内部から上部への空気の移動は, 高さに逆らった流れなので, 相応の流速差による圧力差が必要である。また, 群落上部と内部自体がエネルギー保存と

なるような円筒状のような形態ではないので、群落を鉛直方向へ貫通する円筒を空気が流れる状態は、流体力学的には困難であることが分かった。

Saito et al., (2005)は、稲の出穂直後において、摩擦速度が大きい日中では群落内部のCO₂貯留量に変化しないことを示した。つまり、群落内部と群落上ではCO₂ガス交換がない、あるいは平衡に達していることを示した。ただし、夜明け時点と日没直後で群落内のCO₂貯留が減少しており、1日2回短時間で群落内部から群落上部へCO₂ガス交換が起こっていると考えられる。この理由は明確ではないが、CO₂ガス交換量を日平均することで、これを移行半減期に代用できる可能性がある。そこで、群落内のCO₂貯留量の時間変化から¹⁴C移行半減期の推定を試みた。

Sato et al., (2005)の報告では、1日ごとの最終F_s値は、約-0.1 gCO₂/m²であった。この量が1日平均的に群落上部へ移行した量と仮定すると、その移動速度は次のように計算される。

$$-0.1 \text{ (gCO}_2\text{/m}^2\text{)} \times (12/44) \times (1/24/3600) = 3.156 \times 10^{-7} \text{ (g-C/m}^2\text{/s)}$$

群落内のCO₂濃度は変動しているが、モデル上と同じ340 ppm濃度とすると、炭素濃度は次のように計算される。

$$340 \times 10^{-6} \times (12/44) \text{ (g/m}^3\text{)} = 9.27 \times 10^{-5} \text{ (g-C/m}^3\text{)}$$

群落内を鉛直方向に貫通する円筒管を想定すると、そこを通過する空気の流速は、次のように計算される。

$$(3.156 \times 10^{-7} \text{ g-C/m}^2\text{/s}) \text{ / } (9.27 \times 10^{-5} \text{ g-C/m}^3\text{)} \cong 1/300 \text{ (m/s)}$$

この関係式を用いて、以下の3つのケースについて検討した。

1. 円筒管を5 cmφ (= 半径 2.5 cm) と仮定する。そのとき体積流量は $(0.025^2 \times \pi) \times 1/300 = 6.5 \times 10^{-6} \text{ m}^3\text{/s}$ となる。次に円筒管が土地1 m²当たり1つ存在すると仮定すると、1 m³の空気が群落上部に移動するのに必要な時間は、 $1 \text{ m}^3 / 6.5 \times 10^{-6} \text{ m}^3\text{/s} \cong 1.8 \text{ day}$ と計算される。
2. 円筒管を1 cmφ (= 半径 0.5 cm) と仮定する。体積流量は $(0.005^2 \times \pi) \times 1/300 = 2.6 \times 10^{-7} \text{ m}^3\text{/s}$ となる。次に円筒管が土地1 m²当たり5つ存在する(上記1.と円筒管の直径合計を同じとした)と仮定すると、1 m³の空気が群落上部に移動するのに必要な時間は、 $1 \text{ m}^3 / (2.6 \times 10^{-7} \text{ m}^3\text{/s} \times 5) \cong 8.9 \text{ day}$ と計算される。
3. 円筒管を0.5 cmφ (= 半径 0.25 cm) と仮定する。同様の計算方法で、体積流量は $(0.0025^2 \times \pi) \times 1/300 = 6.5 \times 10^{-8} \text{ m}^3\text{/s}$ となる。次にこの円筒管が10個存在すると仮定すると、1 m³の空気が群落上部に移動するのに必要な時間は、 $1 \text{ m}^3 / (6.5 \times 10^{-8} \text{ m}^3\text{/s} \times 10) \cong 17.7 \text{ day}$ と計算される。

群落が生長した状況での LAI は 4 以上であることから、そのキャノピー（葉や穂）に円筒管を想定できるほどの間隙は無いと考えられる。たとえキャノピーが揺らいでいたとしても、群落上部に通じる間隙は、間欠的に生じているに過ぎないと思われる。上記 1～3 のケースにおいて、常時貫通口があるとして、円筒管の半径を変えることで間欠的な条件を模擬しようとしている。例えば、間欠的に隙間ができる状態を、1 秒おき、2 秒おきと仮定すると、ケース 1 で算出した値はそれぞれ 2 倍 (3.6 day)、3 倍 (5.4 day) となる。円筒管の合計直径を 1 m^2 当たり 5 cm と仮定したが、この値の妥当性も定かでない。群落上部と群落内部が積極的なガス交換は行われていないと思われるものの（矢吹, 1990; Sato et al., 2005）、ごく自然に多少のガス交換が行われているならば、上記で算出した数日レベルの移行半減期は現実的な値のように思われる。少なくとも、現行モデルの上限側 2 day の移行半減期では短過ぎることや、殆どガス交換されていないとしても 50 day を超えるような長い移行半減期は適当ではないと思われる。

3.4.2.3. 各生長区分の移行半減期

群落未発達期（生長区分 I）において、水稻は群落の状態になっておらず、草丈も小さいことから、近傍大気と環境大気はほぼ同じと考えられる。しかし、地表面に近いところでは（平坦な土地でも）風速が小さくなるので（矢吹, 1990）、均一に混合されている状態ではない。また、田植え時とその後の生長した状態では、ガス交換の状態が若干異なることも考慮することが必要である。そこで、現行モデルの下限値 (0.1 day) 及び上限値 (0.5 day) を設定した。

群落生長期（生長区分 II）については、群落自体はある程度形成されているが、水稻がまっすぐに伸びた状態であることから、群落上部へのガス移行があると想定される。群落未発達期と群落成熟期の間中となることから、両期間の移行半減期の幾何平均で算出した。つまり、下限側は $(0.1 \times 3)^{1/2} = 0.54 \text{ day} \approx 0.5 \text{ day}$ 、上限側は $(0.5 \times 17)^{1/2} = 2.92 \text{ day} \approx 3 \text{ day}$ となった。

群落成熟期（生長区分 III）では、群落内部から上部への移行は遅いと推定される。そして、現行モデルでは、0.1 day～2 day を変動幅としているが、もっと長い半減期を想定して良いと思われる。まだ今後の検討が必要であるが、本文「3.4.2.2. 近傍大気と環境大気の移行半減期の検討」の試算結果を参考に 3～17 day の不確かさ幅を与え、基準値として中間値の 10 day を群落成熟期における近傍大気から環境大気への移行半減期とした。

各区分の基準値を上下限のほぼ中央値とし、近傍大気→環境大気の移行半減期を以下のように設定した。

I 群落未発達期	0.1～0.5 day（基準値：0.3 day）
II 群落生長期	0.5～3 day（基準値：2 day）
III 群落成熟期	3～17 day（基準値：10 day）

3.4.3. 土壌から近傍大気への移行半減期の水稻全体モデルへの反映

前章で調査した文献情報から、水稻全体モデルにおける、土壌と近傍大気の移行半減

期（土壌中の炭素分解速度）について反映できるか、その可能性について検討を行い、反映が可能と思われる場合には、その数値設定を検討した。

3.4.3.1. 土壌分解速度の温度依存性に関する知見

土壌呼吸量は気候や森林状態（針葉樹や広葉樹など）の影響を受ける一方で、土壌有機炭素量とも相関がある（Zheng et al., 2009）。土壌有機物濃度は地温により異なり（図 3-24）、この濃度の違いはおそらく土壌有機物の分解速度の違いによるものと考えられる。Zheng et al., (2009)の調査の結果、得られた土壌分解速度の温度依存性（ Q_{10} ）は、1.6～4.75 の幅があり、平均で 2.37 であった。また、中国の水田土壌で調査された Q_{10} は、日本の水田でも良く利用されているグライ低地土において 2.27 であった（Zhang et al., 2007）。Wagai et al., (2013)は、 Q_{10} の変動要因について有機物の構造に着目した研究を行い、比重の軽い土壌（比重 1.6 以下）中に含まれる異なる種類の炭素の比、具体的には酵素分解作用を受けやすい炭素（ α -アルキル炭素）に対する酵素分解作用を受けにくい炭素（芳香族炭素とアルキル炭素の和）の比が Q_{10} と良く一致することを明らかにした。水稻全体モデルでは、土壌内炭素の構造を細かく分類してないので、知見が得られたとしてもそれを反映することは困難であるが、土壌全体の分解速度を反映することは可能である。

現在のモデルでは、土壌から近傍大気への移行半減期は灌漑水が無い状態では 25 day を設定しており、季節変動（即ち、気温変動）を考慮していない年間平均値である。そこで、文献から得られた Q_{10} 値を用いて季節変動を考慮したモデルに改良することを検討した。

3.4.3.2. Q_{10} の水稻全体モデルへの反映

Q_{10} は、「ある温度 T における生体の反応速度と、それより 10°C 高い温度 $T+10$ での反応速度の比」と定義される。反応速度が下式のように温度の指数関数で表わされるとする。

$$R_T = a \cdot \exp(bT) \quad \text{式 3-9}$$

R_T ; 温度 T における反応速度, a, b ; 定数, T ; 温度

Q_{10} はその定義から以下のように温度パラメータが無くなり、どの温度範囲でも Q_{10} は同じとなる。

$$Q_{10} = \frac{R_{T+10}}{R_T} = \frac{a \cdot \exp\{b(T+10)\}}{a \cdot \exp\{bT\}} = \exp(10b) \quad \text{式 3-10}$$

しかし、反応速度が下式のようにアレニウス式に従うと、 Q_{10} は様々な温度範囲に対して一定とはならない（指数内が温度の逆数となっているため）。

$$k = a \cdot \exp\left(-\frac{E}{R_a \cdot T}\right) \quad \text{式 3-11}$$

k ; 反応速度定数, E ; 活性化エネルギー, R_a ; アボガドロ数

ここでは, どの温度範囲でも Q_{10} が一定であるとして, 以下の手順で, 月別の「土壌から近傍大気への移行半減期」を求めた。

まず, 月別の平均気温を調べ, この平均気温の分解速度を 1 とし, そして Q_{10} を用いて月別の年間平均値に対する分解速度の比を下式で求めた。

$$r_T = Q_{10}^{\frac{T-T_{ave}}{10}} \quad \text{式 3-12}$$

r_T ; 気温 T の時 (月別の平均気温) の平均気温 T_{ave} の分解速度に対する反応速度比

月別の r_T 値を合算して年間値として 1.0 となるのが望ましいが, 1.0 にならないことから合計が 1.0 となるように, 統計から求めた平均気温を変更した。これにより, 最終的に月別の r_T が算出できた。表 3-15 に 1971 年から 2000 年までの過去 30 年間の主要都市の月別平均気温をまとめた。また, 表 3-16 に月平均気温から算出した月別の土壌分解速度を, 表 3-17 には水稻生育期間と生育期間外の平均分解速度と分解半減期をまとめた。5 月から 9 月の水稻の生育期間中の r_T 値は 1.0 を超え, その他の月では 1.0 未満であった。

次に, 土壌から近傍大気への移行半減期 25 day の分解速度を基準に, 求めた r_T となるように月別の移行半減期を算出した。月別の移行半減期 (t_{half_x}) であるが, 下式から算出した。

$$r_T = \frac{1 - \exp\left(-\frac{\ln(2) \cdot t}{t_{half_x}}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{\ln(2) \cdot t}{t_{half}}\right)} \quad \text{式 3-13}$$

式 3-13 を t_{half_x} の算出式に変換すると次式となる。

$$t_{half_x} = \frac{-\ln(2) \cdot t}{\ln\left[1 - r_T \left\{1 - \exp\left(-\frac{\ln(2) \cdot t}{t_{half}}\right)\right\}\right]} \quad \text{式 3-14}$$

T_{half} ; 現行モデルの土壌から近傍大気への移行半減期 (=25 day)

T_{half_x} ; 求める月別の土壌から近傍大気への移行半減期 (day)

t ; 時間 (day)。月毎なので 30 day に固定

表 3-17 では, 上式から求めた月別の分解半減期を示している。さらに, 水稻生育期間 (5 月~9 月) とそれ以外の月, さらに年間通しての各々の平均を整理した。分解速度

の比は、年間では 1.0 である（1.0 となるように平均気温を調整）。また、分解速度の比から求めた分解半減期の年間平均は、現行モデルと同じ約 25 day となった。

3.4.3.3. 土壌から近傍大気及び灌漑水への移行半減期

得られた月別の分解半減期から、水稻全体モデルにおける土壌 1（易分解性土壌）から近傍大気、または灌漑水への移行半減期を設定した。表 3-16 で示したように、水稻生育期間とそれ以外の期間で分けて検討した。

・水稻生育期間外（1月～4月及び10月～12月）

この期間では灌漑水が無いので、期間を通して「土壌 1→近傍大気への移行半減期」が対象となる。表 3-16 で示したように、分解半減期は月によって大きな差があるが、その期間において水稻全体モデルにおける他の環境因子の変化（例えば灌漑水の有無など）はない。そのため分解半減期だけを変化させても効果はない。したがって、1月～4月及び10月～12月の平均の分解半減期を当該パスの移行半減期とし、以下のように設定した。

基準値 ; 67 day（対象期間の平均。現行値は 25 day）

不確実さ幅 ; 27 day～114 day（対象期間の月別の最大／最小値から。現行値は 25～50 day）

・水稻生育期間（5月～9月）

この期間では、灌漑水の有無によって対象となる移行経路が異なる。灌漑水が存在する期間は「土壌 1→灌漑水の移行半減期」が対象であり、落水している期間は「土壌 1→近傍大気への移行半減期」が対象である。さらに、中干し及び収穫前落水時では、土壌内に蓄積された無機炭素が一気に大気に放出されるため、この時の移行半減期は分解半減期とは性質が異なるので、過年度作業で得られた現行の 2.5 day を基本的に適用した。ただし、中干し期や収穫前落水期に相当する 7月～9月では、気温が高く分解半減期も平均 4.2 day と短い結果が得られており、不確実さ幅としては本作業の結果も参考に決定する。これらより、以下の移行半減期を設定した。

<灌漑水がある時＝土壌 1→灌漑水の移行半減期>

基準値 ; 6.1 day（対象期間の平均。現行値は 10 day）

不確実さ幅 ; 1.9 day～24 day（対象期間の月別の最大／最小値から。現行値は 5～10 day）

<灌漑水が無い時（落水時）＝土壌 1→近傍大気への移行半減期>

基準値 ; 2.5 day（現行値）

不確実さ幅 ; 1.9 day～24 day（対象期間の月別の最大／最小値から。現行値は 2.5～5 day）

3.4.4. 水稻全体モデルの改良

前章までに検討した水稻全体モデルのモデルパラメータをプログラムに反映した。本年度検討し、変更したパラメータ値等を図 3-28 にまとめた。具体的なプログラム変更内容は以下のとおりである。(移行半減期の数値は左から“下限値～基準値～上限値”を意味する。)

1) Air コンパートメントから Atmosphere コンパートメントの移行経路

- ・ LAI = 群落未発達期に適用する移行半減期 : 0.1~0.3~0.5 day
- ・ LAI = 群落生長期に適用する移行半減期 : 0.5~2~3 day
- ・ LAI = 群落成熟期に適用する移行半減期 : 3~10~17 day

2) Soil1 コンパートメントから Air コンパートメントの移行経路

- ・ 灌漑水がある時に適用する移行半減期 : 10,000 day
- ・ 水稻生育期間において、灌漑水が無い時に適用する移行半減期 : 1.9~2.5~24 day
- ・ 水稻生育期間において、灌漑水が無い時に適用する移行半減期 : 27~67~114 day

3) Soil1 コンパートメントから Water コンパートメントの移行経路

- ・ 昨年度のパラメータ値 (5~10 day) の変更 : 1.9~6.1~24 day

3.4.5. 水稻全体モデルによる検証解析

改良した水稻全体モデルにおいて、各パラメータの基準値を適用した基本解析、及び各パラメータの変動幅を考慮した感度解析を実施し、モデル化が適切に為されていることを確認する検証解析を行った。

3.4.5.1. 基本解析

各モデルパラメータの基準値を用いた場合の解析を行った(基本解析)。解析は、田植え直後(時刻=0 day)から収穫後50日(時刻=200 day)までの期間で実施し、昨年度のモデルによる解析と比較した(図 3-29)。本年度の基本解析ケースでは、各移行経路の移行半減期が変わるタイミングで移行量の変動しており、プログラムの改良内容が適切であることが窺える。また、中干し及び収穫前の落水時期において、土壌1から近傍大気への移行量は大きくなり、それによって近傍大気から環境大気への移行量も増えた。平成25年度モデルでも、中干し時期に土壌1から近傍大気への移行量が増えるが、出穂時期(83 day)に、近傍大気から環境大気への移行半減期が大きくなる(移行速度が遅くなる)ので、近傍大気から環境大気への移行量は、その時期に大きく減少した。また、収穫前の落水時期では、本年度モデル及び平成25年度モデルともに、土壌1から近傍大気と近傍大気から環境大気への移行半減期が同じなので、その時点の移行量は両モデルともに移行量はほぼ同じであった。

図 3-30 に本年度と平成25年度のモデルによる各コンパートメント内の¹⁴C存在量を示す。本年度の基本解析ケースと平成25年度モデルでは、出穂期(83 day)までの近傍大気内¹⁴C量が異なる。本年度の基本解析ケースでは、水稻が生長するにつれ(LAIが大きくなるにつれ)近傍大気内¹⁴C量が増加し、中干し期のピーク時では、

近傍大気内 ^{14}C 量は平成 25 年度モデルに対して約 1.3 倍となった。

出穂期 (83 day) 以降は、上記で述べたように土壌 1 から近傍大気、及び近傍大気から環境大気への移行量は両モデルともほぼ同じであることから近傍大気内 ^{14}C 量もほぼ同じとなっているが、収穫時における穂部や茎葉部の ^{14}C 存在量は本年度モデルの方が大きくなった。これは、出穂期までの茎葉部の ^{14}C 存在量が異なるためであり、それは、上記のように出穂までの近傍大気内 ^{14}C 量の違いに起因している。収穫時の穂部の ^{14}C 存在量も茎葉部からの転流分の寄与によって平成 25 年度モデルよりも大きく、最終的に収穫時の ^{14}C 量は、茎葉部では平成 25 年度モデルより約 30% 多く、穂部では約 15% 多くなった。従来から、穂部の ^{14}C 量 (濃度) に対して出穂後の近傍大気内の ^{14}C 量 (濃度) の影響が大きいことは分かっていたが、本年度の基本解析結果から、出穂前の時点でも近傍大気内の ^{14}C 量が大きいと茎葉部の ^{14}C 量が多くなり、結果的に穂部の ^{14}C 量が増えることが分かった。

3.4.5.2. 感度解析

感度解析は、変更したモデルパラメータについて、その上下限幅から、その組合せを考慮して 10 通りの条件を設定した。表 3-18 に感度解析ケース一覧をまとめた。感度解析ケースは次の 3 つに大別できる。

- ・感度解析 No. 1～No. 4：移行経路別に移行半減期を上下限で設定した場合。
- ・感度解析 No. 5～No. 7：感度解析 No. 3 と No. 4 の結果から、近傍大気から環境大気への移行経路を対象に、群落未発達期 (0-49 day)、群落生長期 (50-58 day)、群落成熟期 (59-150 day) のうち、解析結果への影響が大きいと思われるものの移行半減期を上限値にした場合。
- ・感度解析 No. 8～No. 10：感度解析 No. 1～No. 7 の結果から、解析結果への影響が大きい (コンパートメント内の ^{14}C 量が大きくなる) と思われる移行半減期の値を特定するために、設定した条件。特に、感度解析 No. 10 は、今回変更した移行半減期の中で、収穫時における水稻内部の ^{14}C 量に対する影響が大きくなると考えられる必要最小限の組合せの条件を与えた。なお、近傍大気から環境大気への群落未発達期と群落生長期の移行半減期については、影響が小さいと判断し基準値を与えた。

i) 感度解析 No. 1 ケース

本ケースは、土壌 1 から近傍大気と土壌 1 から灌漑水への移行半減期を下限值に設定した場合である。

図 3-31 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。このケースでは土壌 1 から近傍大気への移行半減期が短いので、基本解析と比較すると中干し期や収穫前落花期における移行量が大きくなるはずなのだが、解析結果は基本解析よりも移行量が少なくなった。この結果は土壌 1 から灌漑水への移行半減期が短くなったことが影響している。灌漑水が存在するとき、 ^{14}C は土壌 1 から灌漑水へ移行するため、土壌 1 コンパートメント内の ^{14}C 存在量が少なくなる。その結果、中干し期等において土壌 1 から近傍大気への移行量が、基本解析に比べ少なくなった。しかしながら、収穫期における水稻

内（水稲穂部及び茎葉部）の ^{14}C 量は基本解析結果と同程度であった。

ii) 感度解析 No. 2 ケース

本ケースは、土壌 1 から近傍大気と土壌 1 から灌漑水の移行半減期を上限値に設定した場合である。

図 3-32 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。このケースは土壌 1 から ^{14}C が移行しにくい条件であり、近傍大気の ^{14}C 量はあまり上昇しなかった。中干し期や収穫前落水期における土壌 1 から近傍大気への移行量も、基本解析に比べて極めて少ない結果となった。結果的に収穫期における水稲内（水稲穂部及び茎葉部）の ^{14}C 量は、基本解析の約半分となった。

感度解析 No. 1 の結果と併せて考えると、土壌 1 から近傍大気と土壌 1 から灌漑水への移行半減期は、基準値に対して ^{14}C の移行量や収穫時の水稲内 ^{14}C 量が多くなる方向にはあまり働かないが、少なくなる方向には顕著に寄与することが分かった。

iii) 感度解析 No. 3 ケース

本ケースは、近傍大気から環境大気の移行半減期を、設定した水稲の 3 つ生長区分において下限値に設定した場合である。

図 3-33 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。このケースは環境大気に ^{14}C が移行し易い条件であることから、近傍大気内の ^{14}C 量は基本解析よりも少なくなり、収穫期における水稲内の ^{14}C 量は、基本解析の約 1/3 となった。この結果からも近傍大気中の ^{14}C 濃度は安全評価において重要なパラメータであることが分かった。

iv) 感度解析 No. 4 ケース

本ケースは、近傍大気から環境大気への移行半減期を、水稲の 3 つ生長区分において上限値に設定した場合である。

図 3-34 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。このケースでは環境大気に ^{14}C が移行し難い条件となるので、感度解析 No. 3 とは逆に、近傍大気内の ^{14}C 量は基本解析よりも多くなった。特に、中干し期や収穫前落水期における土壌 1 から近傍大気の移行量が増え、一方で近傍大気から環境大気への移行が遅いため、水稲茎葉部の ^{14}C 量が基本解析の約 1.5 倍となった。そして、収穫期における水稲内の ^{14}C 量も、基本解析の約 1.5 倍となった。この感度解析結果の時間変化を見ると、やはり LAI が 4 以上である群落成熟期の移行半減期の影響が大きいことが分かった。

v) 感度解析 No. 5 ケース

本ケースは、感度解析 No. 4 の結果を受けて、近傍大気から環境大気の移行半減期を、群落成熟期のみ上限値に設定した場合である。

図 3-35 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。本ケースは感度解析 No. 4 の結果と殆ど同じであった。その結果、群落成熟期の移行半減期の影響が大きいことが再確認できた。

vi) 感度解析 No. 6 ケース

本ケースは、近傍大気から環境大気の移行半減期を、群落生長期のみ上限値に設定した場合である。

図 3-36 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。本ケースは基本解析の結果と殆ど同じであった。したがって、群落生長期の移行半減期の影響は、現状では殆ど無いことが確認できた。しかし、群落生長期は期間として短く、移行半減期の上下限幅も小さいことから、その影響が出にくい条件であることに留意しておく必要がある。今後、その対象期間やパラメータ値を変更することがあれば、解析結果への影響度合いも異なってくることが予想される。

vii) 感度解析 No. 7 ケース

本ケースは、近傍大気から環境大気の移行半減期を、群落生長期と群落成熟期において上限値に設定した場合である。

図 3-37 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。本ケースは感度解析 No. 4 と No. 5 の結果と殆ど同じであった。上記感度解析 No. 6 と併せ、解析結果には、群落成熟期の影響が大きく、群落生長期の影響が少ないことが再確認できた。

viii) 感度解析 No. 8 ケース

本ケースは、土壌 1 から近傍大気への移行半減期のみ下限値に設定した場合である。この条件は、感度解析 No. 1 での土壌 1 から灌漑水への移行半減期の影響を確認するために設定した。

図 3-38 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。このケースでは、土壌 1 から近傍大気への移行半減期が短いので、基本解析に比べて中干し期や収穫前落水期では、当該移行経路の移行量が大きくなり、解析結果も基本解析に比べて当該経路の移行量が多くなった。そのため、中干し期や収穫前落水期において、近傍大気内の ^{14}C 量はピーク時点で基本解析に対して約 20% 多くなった。しかし、収穫期における水稻内の ^{14}C 量は、基本解析よりわずかに多いものの同程度であった。これは、近傍大気から環境大気への移行半減期が基準値であるので、近傍大気内 ^{14}C 量の時間減少が基本解析と同じであったためと考えられる。即ち、近傍大気の ^{14}C 量がこの程度の違いであれば、瞬間的にやや高い状態であっても水稻の取り込みには大きな影響を与えないといえる。

ix) 感度解析 No. 9 ケース

本ケースは、土壌 1 から灌漑水への移行半減期のみを上限値に設定した場合である。この条件も、感度解析 No. 1 での土壌 1 から灌漑水への移行半減期の影響を確認するために、土壌 1 内の ^{14}C 量が灌漑水に移行し難い設定とした。

図 3-39 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。この変更により ^{14}C の土壌 1 から灌漑水への移行量は、基本解析よりも少なくなった。その一方で、中干し期等で土壌 1 から近傍大気への移行量は大きくなった。さらに、土壌 1 から近傍大気への移行量及び近傍大気内の ^{14}C 量は、収穫期前落水期よりも中干し期で顕著に大きくなった。土壌 1 コンパートメント内の ^{14}C 存在量の影響と考えられる。灌漑水に移行せず土壌 1

に残留する ^{14}C 量が多く、そのために灌漑水が無くなると近傍大気に一気に移行し、土壌 1 内の ^{14}C 量が減少する。その結果、収穫前落水期での土壌 1 内の ^{14}C 量が中干し期に比べて少なくなる。このような ^{14}C の挙動が考えられた。

しかし、収穫期における水稲内の ^{14}C 量は、基本解析よりやや多いものの同程度となった。これも感度解析 No. 8 と同様、近傍大気から環境大気への移行半減期が基準値であるため、近傍大気内 ^{14}C 量の経時的な減少が基本解析と同じであり、近傍大気の ^{14}C 量がこの程度の違いであれば、瞬間的にやや高い状態であっても水稲の取り込みには大きな影響を与えないと考えられる。

x) 感度解析 No. 10 ケース

本ケースは、上記までの感度解析結果を踏まえ、収穫期における水稲内の ^{14}C 量が大きくなる条件を設定した場合である。殆ど影響がないと思われる群落未発達期及び群落生長期における近傍大気から環境大気への移行半減期は基準値とした。

図 3-40 に移行量とコンパートメント内の ^{14}C 存在量を示す。中干し期等の落水時では、土壌 1 から近傍大気への ^{14}C 移行量は基本解析の約 2 倍となった。それに伴い、落水時の近傍大気の ^{14}C 存在量も 2 倍以上となった。その結果、収穫期における水稲内の ^{14}C 量も、基本解析に対して約 1.7 倍となった。近傍大気から環境大気への移行半減期のみを変更した感度解析 No. 4, No. 5 と比べても、水稲内の ^{14}C 量が多い。土壌 1 から近傍大気や土壌 1 から灌漑水の移行半減期のみを変更した場合では水稲内の ^{14}C 量への影響が小さかったこと（感度解析 No. 8, No. 9）から、これら 3 つの移行半減期の相乗効果があると考えられる。

3.4.5.3. 収穫期における水稲内 ^{14}C 量及び解析結果のまとめ

上記の各解析結果の収穫期における水稲内 ^{14}C 量を図 3-41 にまとめた。近傍大気から環境大気への移行半減期については、近傍大気の ^{14}C 量（濃度）が高くなる中干し期等の落水期の群落成熟期の影響が大きい。水稲群落が生長した後の環境大気とのガス交換が水稲への ^{14}C 移行に重要であることが改めて確認することができた。

また、土壌 1 から近傍大気や土壌 1 から灌漑水への移行半減期については、それだけでは解析結果に与える影響は小さいが、複合的な効果によって重要なファクターとなることが分かった（感度解析 No. 10）。逆に、感度解析 No. 1 や No. 2 のように、お互いに効果を打ち消しあって水稲内 ^{14}C 量が小さくなるように働く場合もある。パラメータ単独では水稲内 ^{14}C 量が多くなることを感度解析 No. 8 と No. 9 で確認している。

予想通り、感度解析 No. 10 で水稲内 ^{14}C 量が最も高くなった（図 3-41）。この結果は、基本解析の約 1.7 倍である。また、最も低かった感度解析 No. 3 の値と比べると約 6 倍になる。水稲が最も大きく生長する時期、即ち、 ^{14}C 取り込み量が大きい時期（特に中干し期以降）に近傍大気の ^{14}C 濃度が高くなると収穫期の水稲内 ^{14}C 量も高くなることが分かった。また、近傍大気コンパートメントに直接関連する移行経路だけでなく、間接的に影響する移行経路（土壌 1 から灌漑水）も、条件によっては（土壌 1 から近傍大気の移行が速く、その移行経路が機能するまでに、土壌 1 内の ^{14}C 量が減少しないように働く時）、解析結果（水稲内 ^{14}C 量）に重要なファクターとなることが確認できた。

3.4.6. まとめ

本作業では、文献調査によりイネ周辺の近傍大気と環境大気のカス交換半減期の知見、及び土壌内微生物の分解速度による土壌から大気または灌漑水への炭素移行の知見を収集した。その結果、イネ群落の成長状態によって（イネ群落内の）近傍大気と環境大気のカス交換が異なり、群落が成熟した状態では殆どカス交換が為されていない可能性が示唆された。

それを水稻全体モデルで模擬するため、LAIを指標に近傍大気と環境大気の移行半減期を切り替えるようにプログラムを改良した。イネ群落がまだ成熟していない田植え時期などは、近傍大気と環境大気間でのカス交換は移行半減期 0.3 day 前後と速く、群落成熟期でのカス交換は移行半減期 10 day 前後と遅い条件に設定した。

土壌からの CO₂ 放出については、Q₁₀ と呼ばれる分解速度の温度依存性の指標から、土壌から近傍大気または灌漑水への移行半減期に換算し、当該パラメータに設定した。ただし、中干し期や収穫前落水期については、土壌内での分解速度とは異なる現象（土壌内に蓄積された CO₂ が、灌漑水がなくなることで一気に大気に放出される状態）であることから、過年度作業で得られた移行半減期をそのまま適用した。

上記の内容で改良した水稻全体モデルにより解析を行ったところ、近傍大気から環境大気への移行半減期の解析結果への寄与が大きく、特に群落成熟期である田植え後 59 day 以降の移行半減期の影響が高いことが確認できた。

土壌 1 から灌漑水、土壌 1 から近傍大気の移行半減期については、パラメータ単独では解析結果に与える影響は小さいが、近傍大気から環境大気などの移行半減期と併せると、相乗効果で解析結果に影響を与えることが分かった。

引用文献

- Saito, M., Miyata, A., Nagai, H., Yamada, T. (2005): Seasonal variation of carbon dioxide exchange in rice paddy field in Japan, *Agricultural and Forest Meteorology* 135, 93-109.
- 齋藤琢, 玉川一郎, 村岡裕由 (2011): 渦相関法を用いた炭素収支評価における CO₂ 貯留変化量の影響, *日本森林学会誌* 93, 105-112.
- Wagai, R., Kishimoto-Mo, A.W., Yonemura, S., Shirato, Y., Hiradate, S., Yagasaki, Y. (2013): Linking temperature sensitivity of soil organic matter decomposition to its molecular structure, accessibility, and microbial physiology, *Glob Chang Biol* 19, 1114-1125.
- 矢吹満壽 (1990): 風と光合成—葉面境界層と植物の環境対応, 農山漁村文化協会, 211pp.
- Zhang, X.H., Li, L.Q., Pan, G.X. (2007): Top soil organic carbon mineralization and CO₂ evolution of three paddy soils from South China and the temperature dependence, *Journal of Environmental Sciences* 19, 319-326.
- Zheng, Z.M., Yu, G.R., Fu, Y.L., Wang, Y.S., Sun, X.M., Wang, Y.H. (2009): Temperature sensitivity of soil respiration is affected by prevailing climatic conditions and soil organic carbon content: A trans-China based case study, *Soil Biology and Biochemistry* 41, 1531-1540.

3. 5. おわりに

本事業は、微生物の代謝活性と ^{14}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、全国各地より採取した水田土壌を用いて土壌呼吸量及び微生物バイオマスの指標である ATP 量と ^{14}C ガス化率の関係を明らかにした。また、今後の研究開発の基礎情報を得るために、温度変化と炭素の環境挙動と微生物活動の関係について文献調査を行った。さらに、大気から農作物への ^{14}C 移行評価モデル構築に資する文献調査、及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。

分析時間の短縮及び試料量と試薬量の減量を目的に、マイクロプレートリーダーを利用した土壌呼吸量の多試料同時分析法を開発した。この分析法では INT-フォルマザンを抽出するために DMF とエタノールの混合液を用いたが、これにより、これまで抽出溶液として使用していた劇物であるメタノールの使用量をゼロにすることができた。さらに、分析のための試料量も昨年度の方法では 1 試料当たり最低 3 mL 必要であったところ、200 μL まで減量することに成功した。96 穴マイクロプレートを利用することで、最高 96 試料まで同時分析できるようになり、分析時間の短縮に結び付いた。本年度開発したこの方法を用いて全国各地の水田土壌の呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係を求めたところ、有意な相関は得られなかった。

本年度は微生物バイオマスの指標として ATP 測定方法についても検討した。ハンドタイプのルミノメータ及び測定キットを用いた方法であり、簡便に ATP が測定できることを確認した。土壌呼吸活性の測定に用いたプレートリーダーは発光測定にも対応することから、今後、マイクロプレートリーダーに対応した測定法を開発することにより多試料同時分析にも対応可能と思われる。ハンドタイプルミノメータを用いて、全国各地より採取した水田土壌の湛水 7 日目の ATP 量と ^{14}C ガス化率の関係を求めた。土壌呼吸活性と同様、ATP 量と ^{14}C ガス化率との間に相関関係は認められなかった。

以上のように、土壌呼吸活性及び ATP 量は共に ^{14}C ガス化率との間に相関関係が認められなかったが、 ^{14}C のガス化に土壌微生物が関与していることは、これまでの本事業の成果より明らかである。本年度の事業において、 ^{14}C のガス化率は ^{14}C で標識された酢酸を用いて評価したが、土壌呼吸は酢酸に限らず有機物の分解をベースとする異化代謝系を評価している。土壌中には酢酸以外にも呼吸の基質となる炭素源が多数存在するため、酢酸以外の分子を炭素源として呼吸する微生物が優占していたことが原因で相関が得られなかったのかもしれない。つまり、土壌呼吸活性は酢酸以外の有機物分解に依存していた可能性がある。炭素は生物にとって必須元素であり、それ故、生物圏では様々な化学形態へと変化すると考えられる。したがって、統括的指標となる新たな環境移行パラメータを得るためには、多くの炭素源の資化性、特に地層処分サイトから生物圏に移行すると考えられる炭素源の資化性と ^{14}C ガス化率の関係を明らかにする必要がある。

温度変化と環境移行パラメータの関係については、温度変化と微生物活性と炭素フラックスについて述べられている文献調査を中心に情報収集を行った。その結果、温度変化による微生物群集構造や微生物機能に対する影響や、これらの影響が炭素フラックスに及ぼす効果は、地域によって異なることが分かった。また、これらの影響は微生物の

種類や土壌有機物の存在形態に依存することが示唆された。微生物及び土壌有機物は多様で、それぞれの環境で異なるため、地層処分の安全評価のためには、我が国の土壌を用いてその土壌に生息する微生物の網羅的解析、及び温度変化に対するこれら微生物集団の生態生理の反応の情報を収集することが必要である。

水稲全体モデルの精緻化のために行った文献調査では、土壌有機物分解速度を指標とする土壌から近傍大気への移行半減期及び近傍大気と環境大気との移行半減期の値と切り替え時期について必要な情報の収取に努めた。調査の結果、土壌から近傍大気への移行半減期については Q_{10} （土壌呼吸の変化率）を利用し、季節変動を考慮したモデルに改良できる可能性が示された。そこで現行のモデルを精緻化するために水稲生育期間とそれ以外の期間とに分け、それぞれの期間において Q_{10} を反映した土壌-近傍大気移行半減期を求めたところ、湛水状態の水稲生育期間ではこれまで 10 日として与えられていた値が 6.1 日となった。同じく落水状態の水稲生育期間では 25 日として与えられていた値が 67 日となった。近傍大気と環境大気との移行半減期の値と切り替え時期についての文献調査では、水稲の生長状態により近傍大気と環境大気の間でのガス交換が異なり、群落が成熟した状態ではほとんどガス交換が行われていない可能性があることが分かった。これらの情報を基に、水稲の生育段階を 3 段階に分類し、それぞれの生長段階における近傍大気-環境大気移行半減期を再検討したところ、田植から栄養生長期の期間は 0.1 日-0.5 日、栄養生長期後期から生殖生長期の期間は 0.5 日-3 日、生殖生長後から収穫までの期間は 3 日から 17 日の値が得られた。新たに得られたこれらの情報を基に改良したモデルで解析を行ったところ、群落が成熟した後の近傍大気-環境大気間の移行半減期が水稲による ^{14}C 取り込みに強く影響することが分かった。これらは様々な地域で様々な植物による調査で得られた値を用いた結果であるため、今後は我が国の水稲栽培実測値に基づく値をモデルに組み込む必要がある。

表 3-1 INT 試薬溶解に必要な DMF 量の検討のための試料

試料番号	INT量 (g)	DMF量 (μL)	処理
1	0.1	0	10 mL 1M Tris HCl (pH 7.5)を添加
2	0.1	200	DMF添加混合後、9.8 mL 0.25M Tris HClを添加
3	0.1	300	DMF添加混合後、9.7 mLの水を添加
4	0.1	100, 300	DMFを100μLを添加混合後、300 μLのDMFを新たに添加し、さらに9.6 mLの水を添加
5	0.1	400	DMF添加混合後、9.6 mLの水を添加

表 3-2 INT 溶液添加後の培養時間と抽出液の吸光度の関係 (n = 1)

培養時間(h)	OD480					
	抽出1回目			抽出2回目		
	Control	Sample	差	Control	Sample	差
1	0.252	0.195	-0.057	0.271	0.866	0.595
2	0.281	0.240	-0.041	0.310	0.795	0.485
3	0.263	0.138	-0.125	0.314	0.924	0.610
4	0.273	0.256	-0.017	0.276	0.719	0.443
5	0.336	0.343	0.007	0.395	0.757	0.362
24	0.480	0.238	-0.242	0.417	1.162	0.745

表 3-3 DMF によるプラスチックの溶解試験 (n = 3, mean ± sd)

DMF % (v/v)	OD480		
	直後	30分後	60分後
0	0.043 ± 0.0017	0.044 ± 0.0034	0.043 ± 0.0028
12.5	0.046 ± 0.0021	0.046 ± 0.0022	0.048 ± 0.0049
25	0.052 ± 0.0015	0.055 ± 0.0073	0.058 ± 0.0029
27.5	0.052 ± 0.0010	0.060 ± 0.0032	0.063 ± 0.0057
50	0.46 ± 0.70	0.43 ± 0.62	0.38 ± 0.53

表 3-4 波長 480 nm における吸光度の比較 (n = 3, mean ± sd)

抽出液	OD480	
	オートクレイブ コントロール	試料
メタノール	0.061 ± 0.0016	0.063 ± 0.0015
DMF	0.17 ± 0.0026	0.15 ± 0.0030

表 3-5 抽出液添加量と吸光度の関係 (n = 1)

添加量(mL)	吸光度(480 nm)		
	1回目	2回目	3回目
5	0.298	0.117	0.0641
7	0.621	0.166	0.0679
10	1.190	0.188	0.0615
15	1.600	0.123	0.0615

表 3-6 遠心分離およびフィルターろ過で作成した測定試料の吸光度

吸光度	処理	#1	#2	#3	平均	標準偏差	P値(t-test)
OD480	遠心分離	0.983	1.089	1.164	1.079	0.091	0.697
	フィルターろ過	0.953	1.077	1.116	1.049	0.085	
OD680	遠心分離	0.0474	0.0439	0.0464	0.0459	0.0018	0.482
	フィルターろ過	0.0463	0.0422	0.0454	0.0446	0.0022	

表 3-7 全国より採取した水田土壌の分類と炭素および窒素含量 (その 1)

Sample code	都道府県	FAO-UNESCO	土壌分類	C (g/kg)	N (g/kg)	C/N
EP-SD-01	北海道	Fluvisol	灰色低地土	37.2	3.2	11.6
EP-SD-02	岩手	Andosol	多湿黒ボク土	84.7	6.4	13.3
EP-SD-03	福島	Andosol	多湿黒ボク土	28.5	2.6	11.0
EP-SD-04	宮城	Fluvisol	灰色低地土	24.7	2.6	9.6
EP-SD-05	千葉	Fluvisol	グライ低地土	20.3	2.6	7.9
EP-SD-06	茨城	Cambisol	褐色低地土	27.6	2.4	11.6
EP-SD-07	富山	Fluvisol	灰色台地土	35.1	3.1	11.3
EP-SD-08	兵庫	Fluvisol	灰色低地土	21.2	2.0	10.4
EP-SD-09	三重	Fluvisol	灰色低地土	19.6	2.0	9.9
EP-SD-10	広島	Fluvisol	グライ低地土	19.2	1.9	10.1
EP-SD-11	福岡	Fluvisol	灰色低地土	21.3	2.2	9.8
EP-SD-12	北海道	Fluvisol	グライ低地土	34.8	2.9	11.9
EP-SD-13	秋田	Fluvisol	低地水田土	25.7	2.6	10.0
EP-SD-14	栃木	Andosol	多湿黒ボク土	108.0	7.4	14.6
EP-SD-15	長野	Cambisol	褐色低地土	19.2	2.3	8.5
EP-SD-16	静岡	Fluvisol	グライ低地土	16.5	1.9	8.5
EP-SD-17	新潟	Fluvisol	グライ低地土	23.5	2.7	8.8
EP-SD-18	福井	Fluvisol	グライ低地土	29.8	2.7	10.9
EP-SD-19	岐阜	Fluvisol	灰色低地土	15.6	1.9	8.1
EP-SD-20	愛知	Fluvisol	グライ低地土	18.3	2.0	9.2
EP-SD-21	滋賀	Fluvisol	灰色低地土	15.6	1.9	8.2
EP-SD-22	鳥取	Fluvisol	灰色低地土	22.0	2.7	8.1
EP-SD-23	香川	Fluvisol	低地水田土	16.2	1.9	8.5
EP-SD-24	鹿児島	Fluvisol	低地水田土	14.0	1.8	7.7
EP-SD-25	北海道	Cambisol	褐色低地土	24.7	2.2	11.5
EP-SD-26	青森	Fluvisol	グライ低地土	33.2	3.1	10.8
EP-SD-27	山形	Fluvisol	低地水田土	46.6	3.2	14.7
EP-SD-28	神奈川	Fluvisol	グライ低地土	23.4	2.2	10.5
EP-SD-29	新潟	Fluvisol	灰色低地土	43.5	4.3	10.2
EP-SD-30	石川	Fluvisol	灰色低地土	16.1	1.6	10.1
EP-SD-31	長野	Cambisol	褐色低地土	17.1	1.7	10.1
EP-SD-32	京都	Fluvisol	灰色低地土	29.2	2.2	13.6
EP-SD-33	広島	Fluvisol	グライ低地土	30.2	2.7	11.2
EP-SD-34	島根	Fluvisol	グライ低地土	16.2	1.4	11.9
EP-SD-35	高知	Fluvisol	低地水田土	16.8	1.9	8.9
EP-SD-36	長崎	Cambisol	褐色低地土	22.9	2.6	9.0
EP-SD-37	宮崎	Andosol	非アロフェン質黒ボク土	25.2	2.9	8.7
EP-SD-38	北海道	Fluvisol	灰色低地土	18.9	2.0	9.4
EP-SD-39	宮城	Fluvisol	灰色低地土	30.4	2.7	11.2
EP-SD-40	千葉	Histosol	黒泥土	29.7	2.8	10.8
EP-SD-41	埼玉	Fluvisol	グライ低地土	19.4	2.0	9.6
EP-SD-42	富山	Gleysol	グライ台地土	18.8	1.9	10.0
EP-SD-43	岐阜	Andosol	黒ボク土	125.3	10.0	12.5
EP-SD-44	滋賀	Fluvisol	灰色低地土	14.7	1.6	9.0
EP-SD-45	奈良	Fluvisol	灰色低地土	18.9	2.1	8.8

表 3-7 全国より採取した水田土壌の分類と炭素および窒素含量（その 2）

Sample code	都道府県	FAO-UNESCO	土壌分類	C (g/kg)	N (g/kg)	C/N
EP-SD-46	岡山	Fluvisol	グライ低地土	29.0	3.3	8.9
EP-SD-47	山口	Fluvisol	グライ低地土	13.8	1.7	8.2
EP-SD-48	徳島	Cambisol	褐色低地土	19.0	2.1	9.0
EP-SD-49	大分	Fluvisol	灰色低地土	22.6	2.7	8.2
EP-SD-50	鹿児島	Fluvisol	低地水田土	28.4	3.4	8.4
EP-SD-51	北海道	Fluvisol	灰色低地土	18.2	2.1	8.5
EP-SD-52	青森	Fluvisol	グライ低地土	37.4	3.2	11.7
EP-SD-53	秋田	Fluvisol	グライ低地土	34.6	3.3	10.5
EP-SD-54	福島	Cambisol	黄色土	24.6	2.2	11.1
EP-SD-55	群馬	Andosol	黒ボク土	21.6	2.2	9.8
EP-SD-56	東京	Gleysol	黒ボクグライ土	58.3	5.6	10.4
EP-SD-57	山梨	Fluvisol	灰色低地土	19.0	1.9	10.2
EP-SD-58	大阪	Fluvisol	灰色低地土	34.4	3.3	10.5
EP-SD-59	和歌山	Fluvisol	灰色低地土	44.9	4.9	9.2
EP-SD-60	愛媛	Fluvisol	低地水田土	17.5	2.0	8.8
EP-SD-61	佐賀	Cambisol	黄色土	17.9	1.8	10.2
EP-SD-62	熊本	Fluvisol	グライ低地土	15.0	1.4	10.4
EP-SD-63	沖縄	Fluvisol	灰色低地土	15.8	1.6	9.8

表 3-8 日本各地の水田土壌における培養 7 日目の土壌呼吸活性（その 1）

Sample code	INT-フォルマザン濃度 (µg/g-dry soil/h)				
	#1	#2	#3	mean	sd
EP-SD-01	388.0	596.5	399.9	461	117
EP-SD-02	757.0	952.6	880.9	864	99
EP-SD-03	1207.2	1273.4	903.6	1,128	197
EP-SD-04	911.4	721.2	1022.3	885	152
EP-SD-05	1101.8	1157.7	1076.6	1,112	41
EP-SD-06	222.9	505.0	292.2	340	147
EP-SD-07	354.0	292.1	405.9	351	57
EP-SD-08	461.1	491.5	525.1	493	32
EP-SD-09	375.6	396.9	208.1	327	103
EP-SD-10	567.8	707.0	595.2	623	74
EP-SD-11	930.5	971.9	1026.1	976	48
EP-SD-12	173.1	292.7	188.0	218	65
EP-SD-13	-13.6	-15.4	25.6	-1	23
EP-SD-14	117.6	139.7	555.6	271	247
EP-SD-15	592.4	292.5	571.5	485	167
EP-SD-16	-25.6	-45.9	-50.7	-41	13
EP-SD-17	369.7	341.9	325.9	346	22
EP-SD-18	57.0	37.7	14.1	36	22
EP-SD-19	527.5	450.9	571.2	517	61
EP-SD-20	511.0	509.6	428.3	483	47
EP-SD-21	278.4	242.2	263.7	261	18
EP-SD-22	789.0	822.6	833.3	815	23
EP-SD-23	469.5	465.3	551.3	495	48
EP-SD-24	-54.4	-53.7	-51.2	-53	2
EP-SD-25	333.2	394.3	403.5	377	38
EP-SD-26	917.6	747.7	867.9	844	87
EP-SD-27	1399.1	1487.0	1442.5	1,443	44
EP-SD-28	665.5	549.9	356.8	524	156
EP-SD-29	548.4	608.9	475.0	544	67
EP-SD-30	641.7	520.6	675.9	613	82

表 3-8 日本各地の水田土壌における培養 7 日目の土壌呼吸活性 (その 2)

Sample code	INT-フォルマザン濃度 (µg/g-dry soil/h)				
	#1	#2	#3	mean	sd
EP-SD-31	1005.5	459.3	529.3	665	297
EP-SD-32	194.2	58.2	39.2	97	85
EP-SD-33	1147.1	1338.0	1213.8	1,233	97
EP-SD-34	1066.6	1010.2	1408.4	1,162	215
EP-SD-35	372.5	334.7	197.9	302	92
EP-SD-36	450.4	608.9	488.6	516	83
EP-SD-37	173.0	110.2	196.4	160	45
EP-SD-38	163.7	341.8	115.5	207	119
EP-SD-39	520.9	744.7	340.8	535	202
EP-SD-40	382.1	663.3	473.1	506	143
EP-SD-41	547.9	503.7	324.5	459	118
EP-SD-42	46.4	57.0	57.0	53	6
EP-SD-43	596.4	931.1	628.5	719	185
EP-SD-44	56.5	30.9	71.2	53	20
EP-SD-45	579.3	483.4	283.5	449	151
EP-SD-46	921.4	855.1	894.6	890	33
EP-SD-47	321.4	200.9	223.9	249	64
EP-SD-48	673.2	851.2	655.2	727	108
EP-SD-49	1164.1	753.5	958.8	959	205
EP-SD-50	558.3	513.3	383.1	485	91
EP-SD-51	160.2	39.8	-23.8	59	93
EP-SD-52	437.1	595.2	576.6	536	86
EP-SD-53	890.3	1023.6	1123.0	1,012	117
EP-SD-54	150.3	270.6	-17.3	135	145
EP-SD-55	299.2	54.1	4.0	119	158
EP-SD-56	24.2	47.6	15.9	29	16
EP-SD-57	80.8	85.4	135.3	101	30
EP-SD-58	251.7	370.8	190.8	271	92
EP-SD-59	295.9	298.9	252.8	283	26
EP-SD-60	301.6	311.0	264.4	292	25
EP-SD-61	363.4	487.3	203.2	351	142
EP-SD-62	134.4	200.0	85.2	140	58
EP-SD-63	393.9	621.2	454.2	490	118

表 3-9 水田土壌の培養 7 日目における土壌呼吸活性の基本統計量

統計量	値	単位
平均値	476	µg/g-dry soil/h
中央値	461	µg/g-dry soil/h
標準偏差	348	µg/g-dry soil/h
最大値	1,443	µg/g-dry soil/h
最小値	検出下限値以下*	µg/g-dry soil/h
歪度	0.696	
尖度	-0.0182	

*検出下限値: 10 µg INT-フォルマザン/g-乾土/h

表 3-10 日本各地の水田土壌における培養 7 日目の $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度と ^{14}C ガス化率

Sample code	$^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度(Bq/vial/h)					^{14}C 初期添加量 (Bq/vial)	^{14}C ガス化率 (%)
	#1	#2	#3	mean	sd		
EP-SD-01	116.6	117.2	119.4	117.8	1.5	414.7	28.4
EP-SD-02	111.0	124.7	115.7	117.1	7.0	414.9	28.2
EP-SD-03	90.6	100.7	92.1	94.5	5.4	414.9	22.8
EP-SD-04	114.4	73.8	88.9	92.4	20.5	414.7	22.3
EP-SD-05	95.3	98.6	104.3	99.4	4.5	414.9	24.0
EP-SD-06	88.5	88.2	82.5	86.4	3.4	414.9	20.8
EP-SD-07	87.7	101.6	80.8	90.0	10.6	414.9	21.7
EP-SD-08	92.1	96.3	98.9	95.8	3.5	414.9	23.1
EP-SD-09	90.8	89.0	95.4	91.7	3.3	414.9	22.1
EP-SD-10	88.8	97.0	104.5	96.8	7.8	414.9	23.3
EP-SD-11	80.3	74.3	76.3	77.0	3.1	413.9	18.6
EP-SD-12	109.3	125.6	123.2	119.4	8.8	413.9	28.8
EP-SD-13	120.2	117.3	118.7	118.7	1.4	413.9	28.7
EP-SD-14	80.9	79.8	91.7	84.1	6.6	413.9	20.3
EP-SD-15	95.7	110.8	106.5	104.3	7.8	413.9	25.2
EP-SD-16	136.0	132.4	135.2	134.5	1.9	432.4	31.1
EP-SD-17	125.6	128.5	130.2	128.1	2.4	432.4	29.6
EP-SD-18	109.3	105.7	105.1	106.7	2.2	432.4	24.7
EP-SD-19	104.5	105.4	98.2	102.7	3.9	432.4	23.8
EP-SD-20	118.7	115.7	121.2	118.5	2.8	414.7	28.6
EP-SD-21	112.6	109.7	115.2	112.5	2.7	430.6	26.1
EP-SD-22	120.3	113.4	123.6	119.1	5.2	430.6	27.7
EP-SD-23	114.9	120.6	119.6	118.3	3.0	430.6	27.5
EP-SD-24	116.8	124.3	115.7	119.0	4.7	430.6	27.6
EP-SD-25	120.2	112.3	119.3	117.3	4.3	430.6	27.2
EP-SD-26	92.6	83.1	90.5	88.7	5.0	430.5	20.6
EP-SD-27	112.0	103.0	113.7	109.6	5.8	427.8	25.6
EP-SD-28	144.3	143.8	139.2	142.4	2.8	430.5	33.1
EP-SD-29	117.1	113.3	118.9	116.4	2.9	430.5	27.0
EP-SD-30	95.2	93.4	78.6	89.0	9.1	414.7	21.5
EP-SD-31	102.2	103.3	108.9	104.8	3.6	435.3	24.1
EP-SD-32	121.9	138.9	126.7	129.2	8.8	435.3	29.7
EP-SD-33	129.2	130.5	129.4	129.7	0.7	435.3	29.8
EP-SD-34	99.3	95.6	91.6	95.5	3.8	435.3	21.9
EP-SD-35	138.7	142.6	135.2	138.8	3.7	435.3	31.9
EP-SD-36	116.2	124.7	112.3	117.7	6.4	430.4	27.4
EP-SD-37	110.4	104.4	109.4	108.1	3.2	435.9	24.8
EP-SD-38	141.1	141.3	129.8	137.4	6.6	430.4	31.9
EP-SD-39	128.7	143.6	144.6	138.9	8.9	430.4	32.3
EP-SD-40	105.7	103.7	103.2	104.2	1.3	430.4	24.2
EP-SD-41	132.8	138.6	136.8	136.1	3.0	431.7	31.5
EP-SD-42	124.1	129.7	125.8	126.5	2.9	431.7	29.3
EP-SD-43	98.2	98.3	96.3	97.6	1.1	431.7	22.6
EP-SD-44	143.1	139.2	130.8	137.7	6.3	431.7	31.9
EP-SD-45	128.8	132.8	121.4	127.7	5.8	431.7	29.6
EP-SD-46	120.1	124.5	125.7	123.4	3.0	428.8	28.8
EP-SD-47	115.7	121.4	120.8	119.3	3.1	428.8	27.8
EP-SD-48	120.7	120.9	120.8	120.8	0.1	428.8	28.2
EP-SD-49	88.4	80.4	78.8	82.5	5.2	435.9	18.9
EP-SD-50	91.2	94.5	95.1	93.6	2.1	435.9	21.5
EP-SD-51	168.1	154.2	149.7	157.3	9.6	424.7	37.0
EP-SD-52	126.4	133.1	143.8	134.4	8.8	424.7	31.6
EP-SD-53	130.2	134.1	136.6	133.6	3.2	424.7	31.5
EP-SD-54	124.1	126.5	132.0	127.5	4.0	424.7	30.0
EP-SD-55	155.1	159.9	157.8	157.6	2.4	424.7	37.1
EP-SD-56	111.1	104.3	109.6	108.4	3.6	428.6	25.3
EP-SD-57	88.0	80.6	78.8	82.5	4.8	428.6	19.2
EP-SD-58	91.0	94.2	95.0	93.4	2.1	428.6	21.8
EP-SD-59	95.4	74.2	111.7	93.8	18.8	428.6	21.9
EP-SD-60	122.9	118.4	122.0	121.1	2.4	428.6	28.3
EP-SD-61	94.3	100.3	99.6	98.1	3.3	427.8	22.9
EP-SD-62	123.6	118.9	122.4	121.6	2.4	435.9	27.9
EP-SD-63	107.5	98.6	103.0	103.0	4.4	427.8	24.1

表 3-11 水田土壌の培養 7 日目における ^{14}C ガス化率の基本統計量

統計量	値	単位
平均値	26	%
中央値	27	%
標準偏差	4	%
最大値	37	%
最小値	19	%
歪度	0.241	
尖度	-0.4125	

表 3-12 ATP 希釈標準試料の発光量経時変化

経過時間 (秒)	Relative Light Unit (RLU)						
	$2 \times 10^{-6} \text{ M}$	$2 \times 10^{-7} \text{ M}$	$2 \times 10^{-8} \text{ M}$	$2 \times 10^{-9} \text{ M}$	$2 \times 10^{-10} \text{ M}$	$2 \times 10^{-11} \text{ M}$	$2 \times 10^{-12} \text{ M}$
10	462,278	43,928	4,192	489	56	9	6
20	455,872	43,793	4,146	486	56	12	6
30	448,214	43,268	4,115	478	55	11	5
40	439,749	42,847	4,079	474	56	10	6
50	431,700	42,387	4,031	471	55	8	7
60	425,529	41,985	4,006	467	57	11	7
70	416,789	41,519	3,979	462	52	11	6
80	410,876	41,178	3,929	456	52	12	8
90	405,057	40,759	3,897	451	55	11	7
100	399,308	40,290	3,859	447	53	10	7
110	392,039	40,024	3,838	443	50	11	7
120	386,878	39,624	3,807	442	53	9	6
130	381,095	39,290	3,777	437	50	9	6
140	375,655	38,920	3,749	434	51	10	4
150	370,706	38,643	3,719	430	51	9	5
160	365,703	38,362	3,690	429	50	9	6
170	361,105	38,040	3,664	427	53	10	7
180	356,482	37,672	3,638	421	49	10	5
190	351,832	37,469	3,610	419	49	11	7
200	347,810	37,163	3,584	414	50	10	5

表 3-13 日本各地の水田土壌における培養 7 日目の ATP 量

Sample code	Relative Luminescence Unit			mean	sd	CV
	#1	#2	#3			
EP-SD-01	544	602	548	565	32	5.7
EP-SD-02	467	429	420	439	25	5.7
EP-SD-03	464	508	471	481	24	4.9
EP-SD-04	836	763	813	804	37	4.6
EP-SD-05	616	639	678	644	31	4.9
EP-SD-06	415	548	501	488	67	13.8
EP-SD-07	670	674	757	700	49	7.0
EP-SD-08	542	544	589	558	27	4.8
EP-SD-09	399	440	418	419	21	4.9
EP-SD-10	1164	1134	1104	1,134	30	2.6
EP-SD-11	539	500	514	518	20	3.8
EP-SD-12	341	362	394	366	27	7.3
EP-SD-13	365	399	393	386	18	4.7
EP-SD-14	300	237	301	279	37	13.1
EP-SD-15	554	632	656	614	53	8.7
EP-SD-16	369	341	365	358	15	4.2
EP-SD-17	437	407	446	430	20	4.7
EP-SD-18	295	270	287	284	13	4.5
EP-SD-19	285	296	317	299	16	5.4
EP-SD-20	564	529	481	525	42	7.9
EP-SD-21	300	307	285	297	11	3.8
EP-SD-22	550	641	665	619	61	9.8
EP-SD-23	511	505	555	524	27	5.2
EP-SD-24	199	215	192	202	12	5.8
EP-SD-25	645	644	713	667	40	5.9
EP-SD-26	1143	1040	1022	1,068	65	6.1
EP-SD-27	873	811	827	837	32	3.8
EP-SD-28	398	311	358	356	44	12.2
EP-SD-29	669	673	718	687	27	4.0
EP-SD-30	794	801	771	789	16	2.0
EP-SD-31	613	625	592	610	17	2.7
EP-SD-32	416	430	382	409	25	6.0
EP-SD-33	710	677	734	707	29	4.0
EP-SD-34	672	726	615	671	56	8.3
EP-SD-35	609	652	681	647	36	5.6
EP-SD-36	816	714	781	770	52	6.7
EP-SD-37	476	401	431	436	38	8.7
EP-SD-38	391	438	399	409	25	6.1
EP-SD-39	734	787	770	764	27	3.5
EP-SD-40	394	423	448	422	27	6.4
EP-SD-41	572	622	602	599	25	4.2
EP-SD-42	446	371	386	401	40	9.9
EP-SD-43	1428	1620	1505	1,518	97	6.4
EP-SD-44	494	421	440	452	38	8.4
EP-SD-45	463	491	426	460	33	7.1
EP-SD-46	1164	1196	1091	1,150	54	4.7
EP-SD-47	401	429	391	407	20	4.8
EP-SD-48	396	529	536	487	79	16.2
EP-SD-49	1160	1204	1043	1,136	83	7.3
EP-SD-50	423	380	376	393	26	6.6
EP-SD-51	258	234	245	246	12	4.9
EP-SD-52	701	678	748	709	36	5.0
EP-SD-53	1254	1198	1145	1,199	55	4.5
EP-SD-54	476	455	492	474	19	3.9
EP-SD-55	432	374	408	405	29	7.2
EP-SD-56	319	298	299	305	12	3.9
EP-SD-57	432	385	383	400	28	6.9
EP-SD-58	708	666	686	687	21	3.1
EP-SD-59	1203	1424	1097	1,241	167	13.4
EP-SD-60	753	774	746	758	15	1.9
EP-SD-61	461	509	467	479	26	5.5
EP-SD-62	227	193	228	216	20	9.2
EP-SD-63	411	462	424	432	27	6.1

表 3-14 水田土壌の培養 7 日目における微生物バイオマスの基本統計量

統計量	値	単位
平均値	583	RLU
中央値	488	RLU
標準偏差	274	RLU
最大値	1,518	RLU
最小値	202	RLU
歪度	1.33	
尖度	1.75	

表 3-15 大阪以北の主要都市における 1971 年から 2000 年までの月平均気温

都市	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月
札幌	-4.1	-3.5	0.1	6.7	12.1	16.3	20.5	22.0	17.6	11.3	4.6	-1.0
青森	-1.4	-1.1	2.0	7.9	13.1	17.0	21.1	23.0	18.9	12.6	6.4	1.3
秋田	-0.1	0.2	3.2	9.2	14.2	18.8	22.8	24.5	19.9	13.6	7.6	2.8
福島	1.4	1.8	4.9	1.3	16.5	19.9	23.5	25.2	20.7	14.8	9.0	4.2
山形	-0.5	-0.2	3.1	9.8	15.4	19.5	23.2	24.6	19.7	13.2	7.2	2.4
水戸	2.8	3.3	6.3	11.8	16.3	19.6	23.2	25.0	21.4	15.7	10.2	5.1
新潟	2.6	2.5	5.4	11.2	16.1	20.4	24.5	26.2	22.0	16.0	10.2	5.3
富山	2.5	2.5	5.7	11.8	16.7	20.6	24.7	26.1	21.8	15.9	10.4	5.5
金沢	3.7	3.6	6.5	12.2	16.9	20.9	25.1	26.6	22.2	16.7	11.3	6.5
長野	-0.7	-0.3	3.4	10.5	15.7	19.9	23.6	24.9	20.1	13.5	7.4	1.9
福井	3.1	3.1	6.4	12.7	17.5	21.4	25.5	26.8	22.3	16.3	10.8	5.8
岐阜	4.3	4.7	8.2	14.1	18.6	22.5	26.2	27.5	23.5	17.7	11.9	6.6
大阪	5.8	5.9	9.0	14.8	19.4	23.2	27.2	28.4	24.4	18.7	13.2	8.3
京都	4.6	4.8	8.1	14.1	18.8	22.7	26.7	27.8	23.6	17.5	11.9	6.9
平均気温	1.7	2.0	5.2	10.6	16.2	20.2	24.1	25.6	21.3	15.3	9.4	4.4

水稲栽培期間と仮定

表 3-16 月別平均気温から算出した月別の土壌分解速度と分解半減期

	単位	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	備考
平均気温	°C	1.7	2.0	5.2	10.6	16.2	20.2	24.1	25.6	21.3	15.3	9.4	4.4	主要都市の1971年～2000年の30年間の平均気温
年間平均気温での分解速度に対する分解速度の比(r_r)	-	0.30	0.30	0.40	0.64	1.04	1.46	2.05	2.33	1.60	0.95	0.58	0.37	$Q_{10} = 2.37$ Zheng et al., (2009)の平均値
年間平均気温での分解半減期を25 dayとした時の月別分解半減期	day	113.9	111.3	81.6	46.8	23.7	12.0	1.9	1.9	8.8	27.0	52.9	87.9	土壌から均等大気の移行半減期に相当

注: 7月、8月は分解速度の比が1.77を超えたため1.77に設定(分解半減期を数式上算出できないため)として分解半減期を算出

水稲栽培期間と仮定

表 3-17 水稻生育期間と生育期間外の平均分解速度と分解半減期

	水稻生育期間	水稻生育期間外	年間平均	備考
	5~9月	1~4月、10~12月		
平均気温(°C)	21.5	6.9	13.0	r_T 算出の平均を15.8°Cに修正した (年間の分解半減期を25 dayにするため)
r_T の平均値	1.69	0.50	1.00	上記の平均気温の変更は、 r_T の 年間平均が1.0となるように調整したもの
分解半減期の幾何平均(day)	6.1	67.0	24.7	半減期の年間平均は現行モデルの 25 dayとなることを確認

表 3-18 感度解析ケースのパラメーター一覧

移行経路	対象期間	パラメータ値			基本解析	感度解析ケース										
		下限	基準	上限		No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	No.6	No.7	No.8	No.9	No.10	
均傍大気 →環境大気	0-49 day	0.1	0.3	0.5	基準	基準	基準	下限	上限	基準	基準	基準	基準	基準	基準	基準
	50-58 day	0.5	2	3	基準	基準	基準	下限	上限	基準	上限	上限	基準	基準	基準	
	59-150 day	3	10	17	基準	基準	基準	下限	上限	上限	基準	上限	基準	基準	上限	
土壌1→ 近傍大気	落水期間 ・水稻成育中(0-149 day) ・収穫以後(150-365 day)	1.9	2.5	24	基準	下限	上限	基準	基準	基準	基準	基準	下限	基準	下限	
		27	67	114												
土壌1→ 灌漑水	湛水期間 (0-80 day、90-120 day)	1.9	6.1	24	基準	下限	上限	基準	基準	基準	基準	基準	基準	上限	上限	
						各移行経路の移行半減期の 上下限幅での違い				近傍大気→環境大気の 生長区分別の移行半減期 の上下限幅の検討				No. 1とNo. 2の 影響の再確認		影響 最大

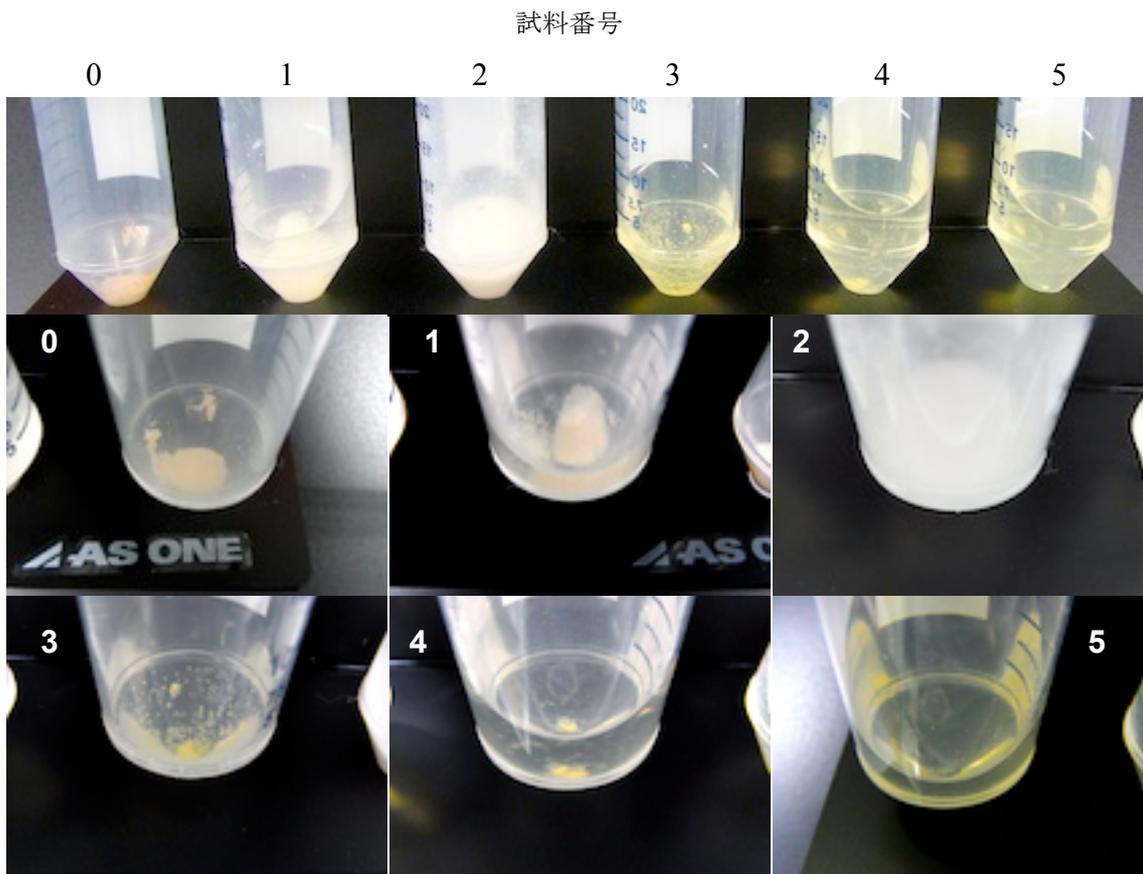


図 3-1 INT 試薬の溶解試験結果（上：全体写真、下：個別写真）
 左端の試料番号 0 は 0.1 g の INT 試薬に 200 μ L の DMF を添加してできた INT の塊。

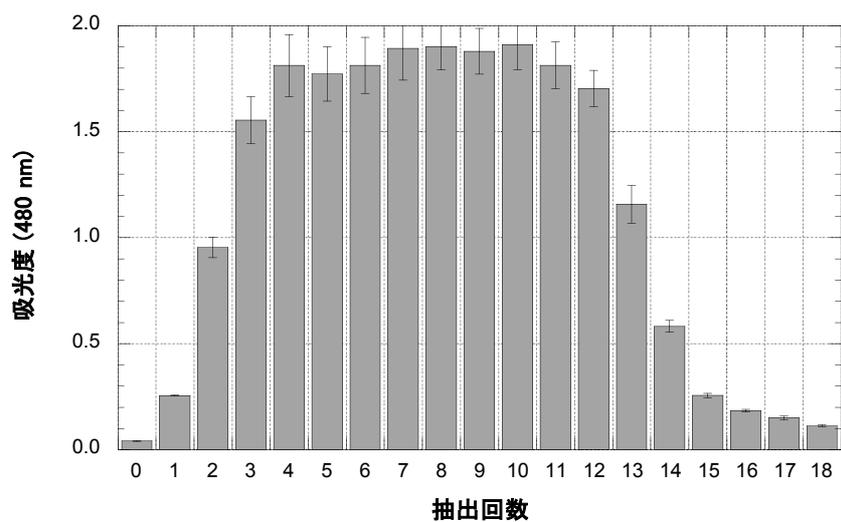


図 3-2 INT-フォルマザン抽出回数と抽出液の吸光度との関係（n=2）
 エラーバーは測定値の最大値および最小値の幅を意味する。

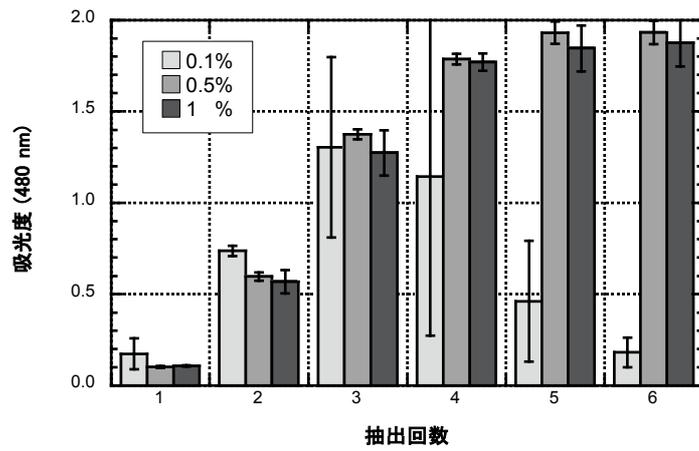


図 3-3 INT 溶液添加濃度と抽出液の吸光度との関係 (n=2)
エラーバーは測定値の最大値および最小値の幅を意味する。

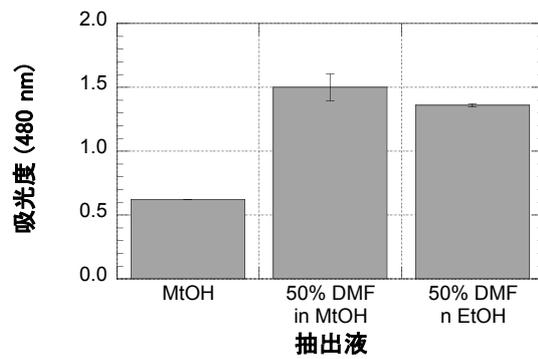


図 3-4 3 種類の抽出溶液による INT-フォルマザン抽出効果の比較 (n=2)
エラーバーは測定値の最大値および最小値の幅を意味する。

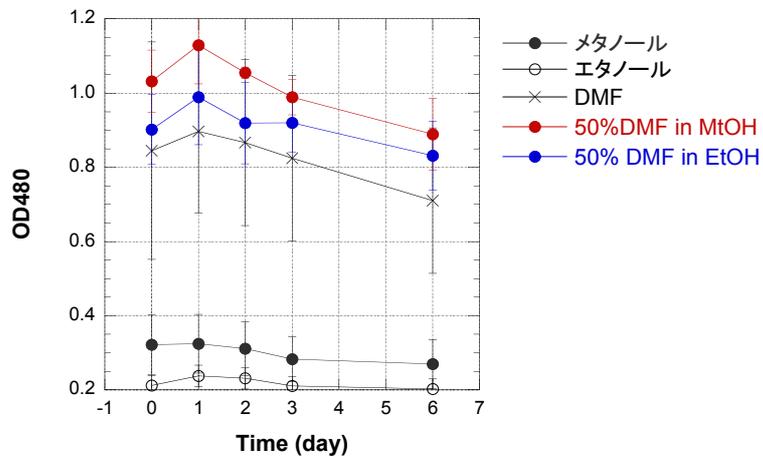


図 3-5 抽出時間と吸光度の関係 (n=3, mean ± sd)

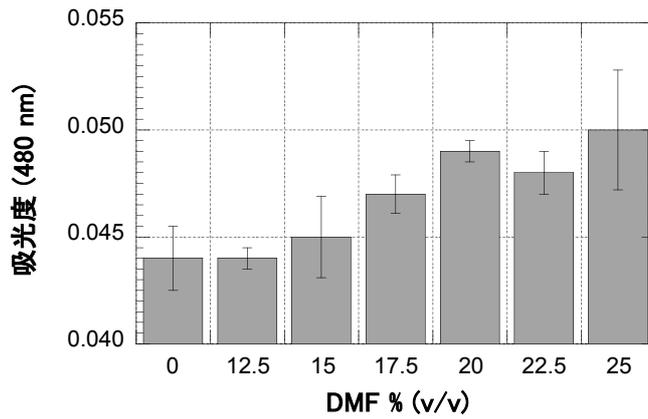


図 3-6 DMF によるポリスチレンの溶解 (n=3, mean ± sd)

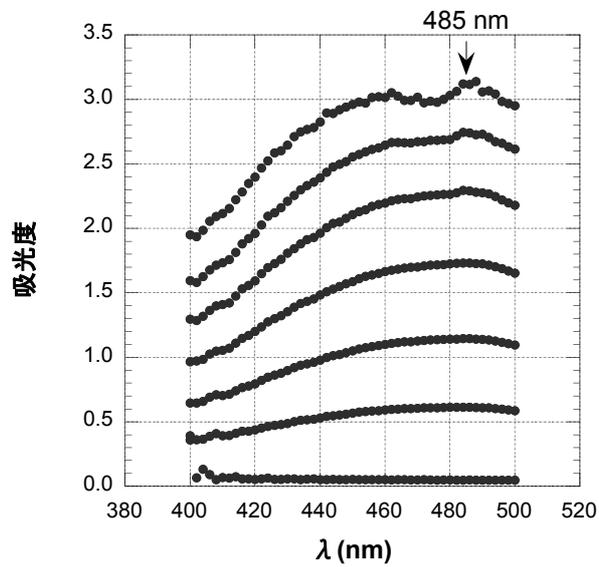


図 3-7 15% DMF in エタノールで溶解した INT-フォルマザンの吸光度スペクトラム

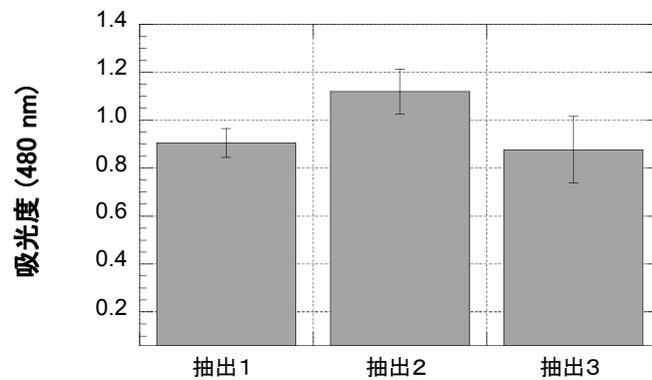


図 3-8 抽出効率に対する抽出方法の効果 (n=3, mean ± sd)

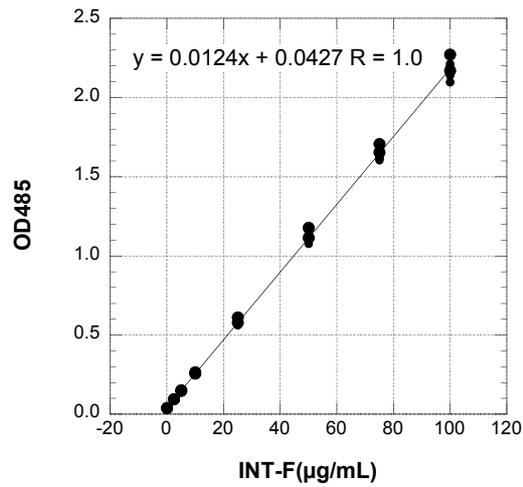


図 3-9 INT-フォルマザン濃度と吸光度の関係 (n=11)

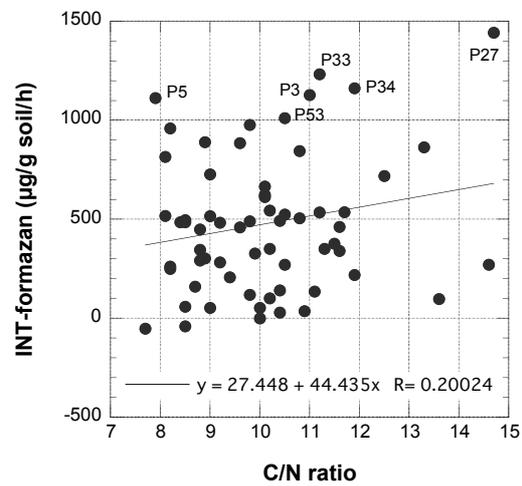


図 3-10 C/N 比と土壤呼吸活性の関係

図中“P”は“EP-SD”の略。例えば、P5は表3-7のEP-SD-5の試料であることを意味する。

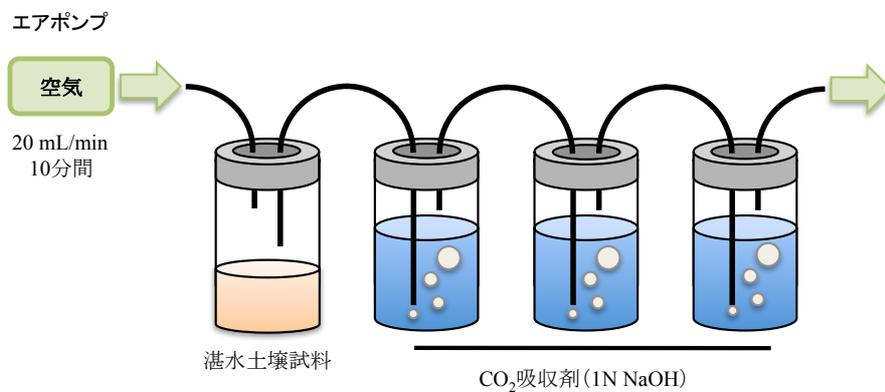


図 3-11 発生した¹⁴CO₂の回収方法

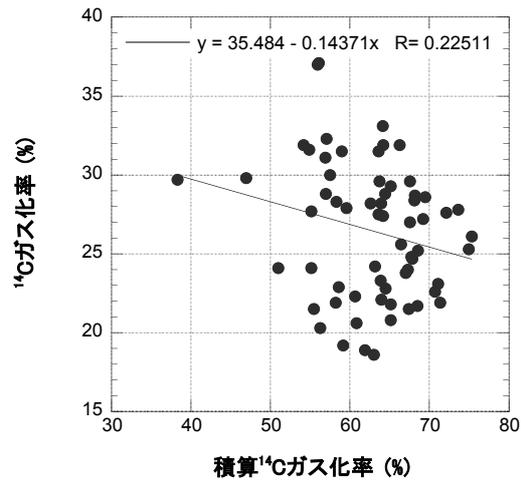


図 3-12 ^{14}C ガス化率と積算 ^{14}C ガス化率の関係

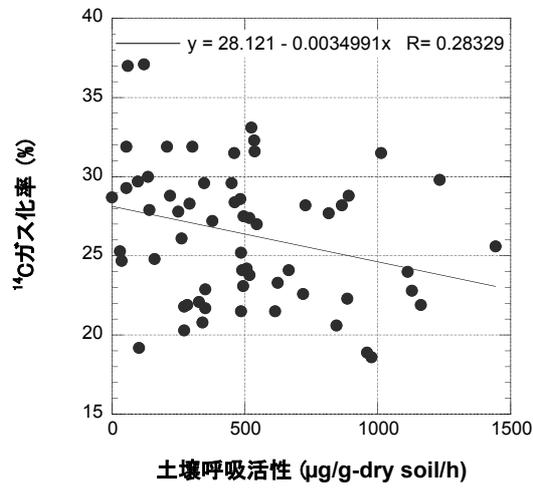


図 3-13 土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率との関係

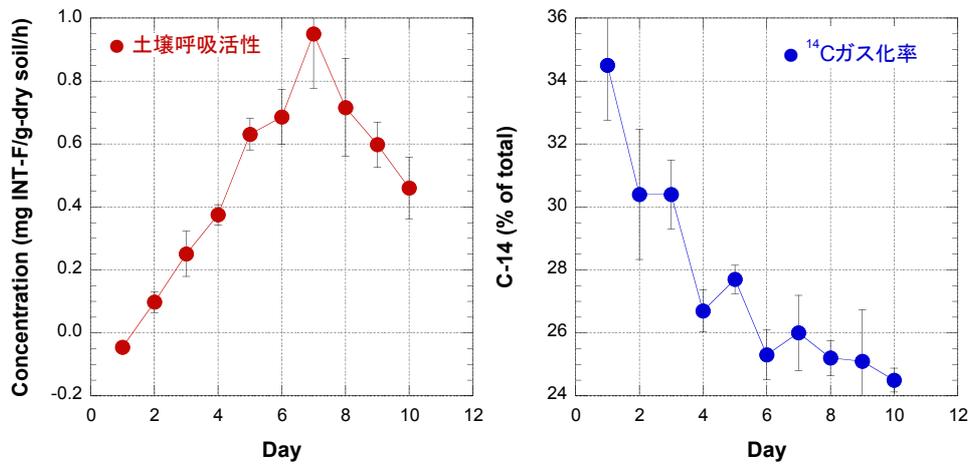


図 3-14 10 日間の土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率 (n=3, mean \pm sd)

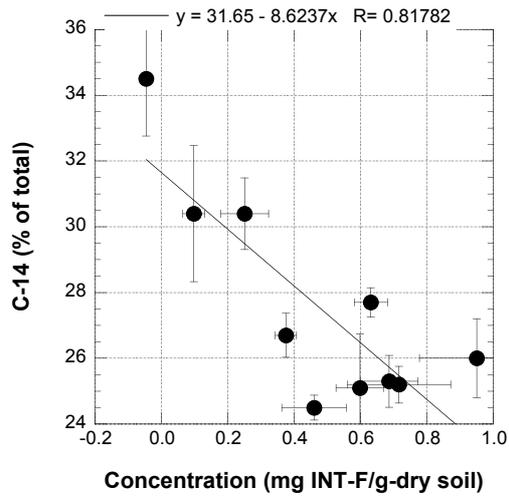


図 3-15 10日間連続培養における土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係

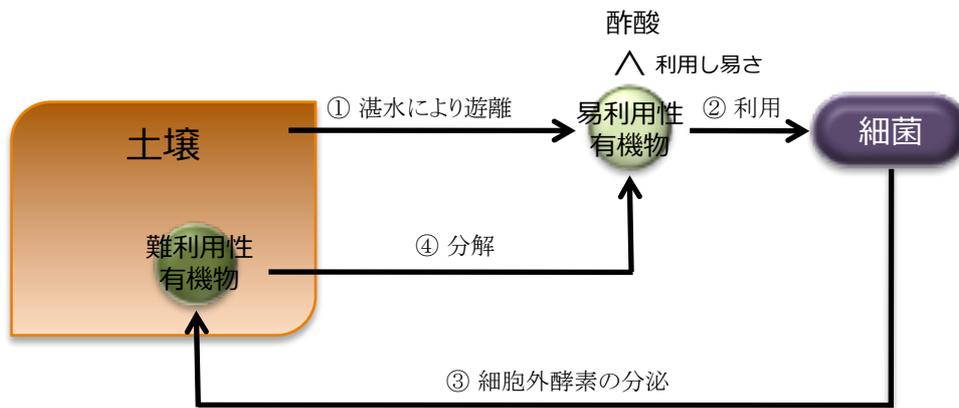


図 3-16 土壌有機物に含まれる炭素の流れの考え方

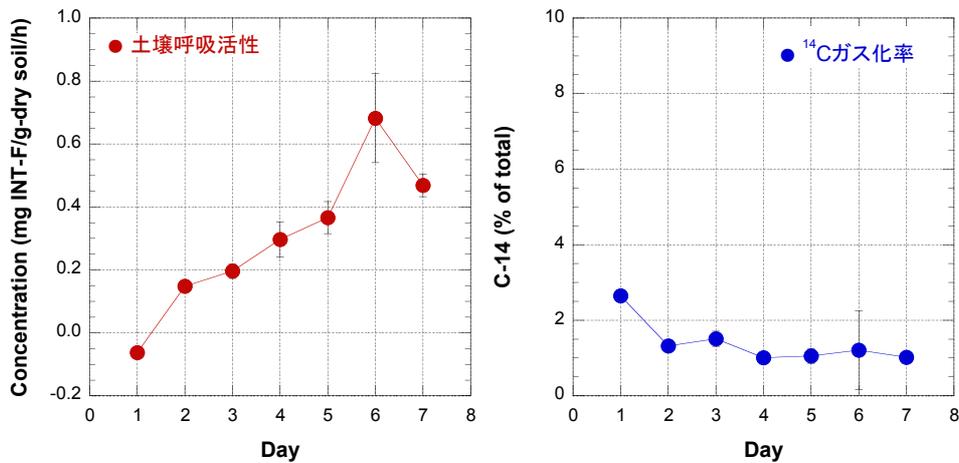


図 3-17 7日間の土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率 (n=3, mean \pm sd)

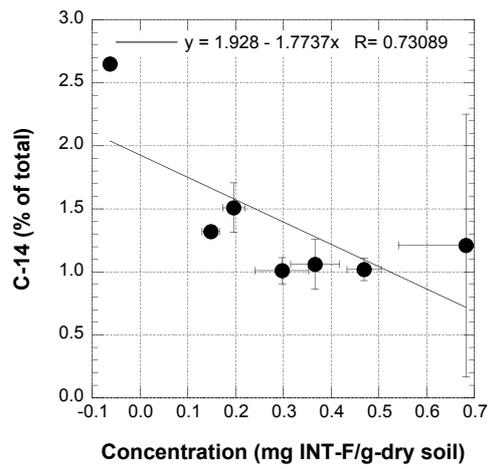


図 3-18 酢酸を添加した試料の土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係

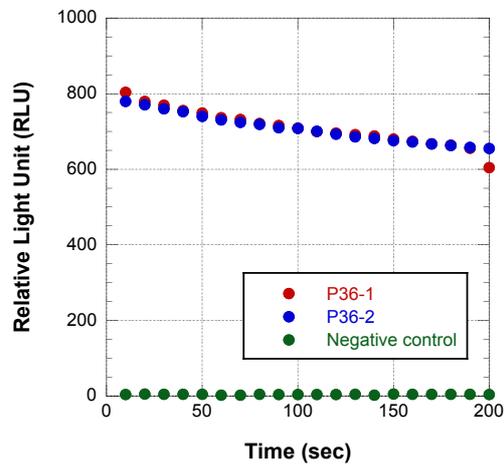


図 3-19 ルシフェリン・ルシフェラーゼ反応による発光の安定性

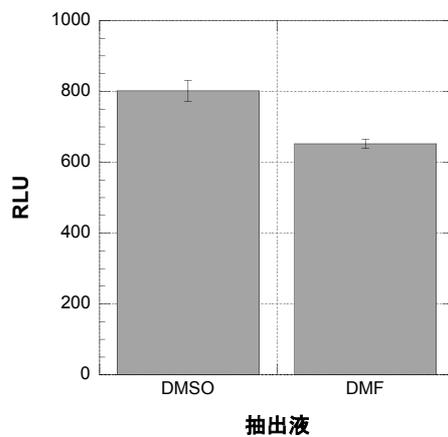


図 3-20 DMSO と DMF による ATP 抽出効率の比較 (n=2)
エラーバーは測定値の最大値および最小値の幅を意味する。

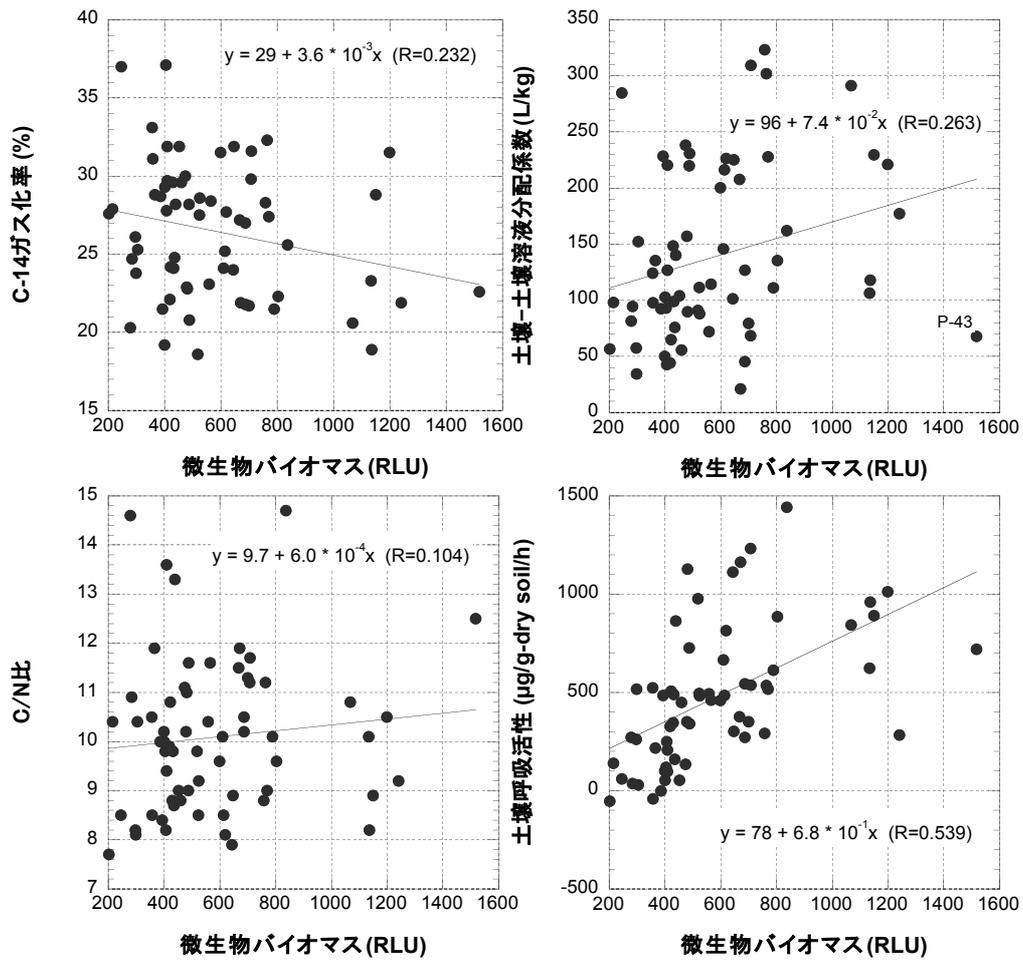


図 3-21 土壌微生物バイオマスと ^{14}C ガス化率、土壌-土壌溶液分配係数、C/N 比、および土壌呼吸活性との関係

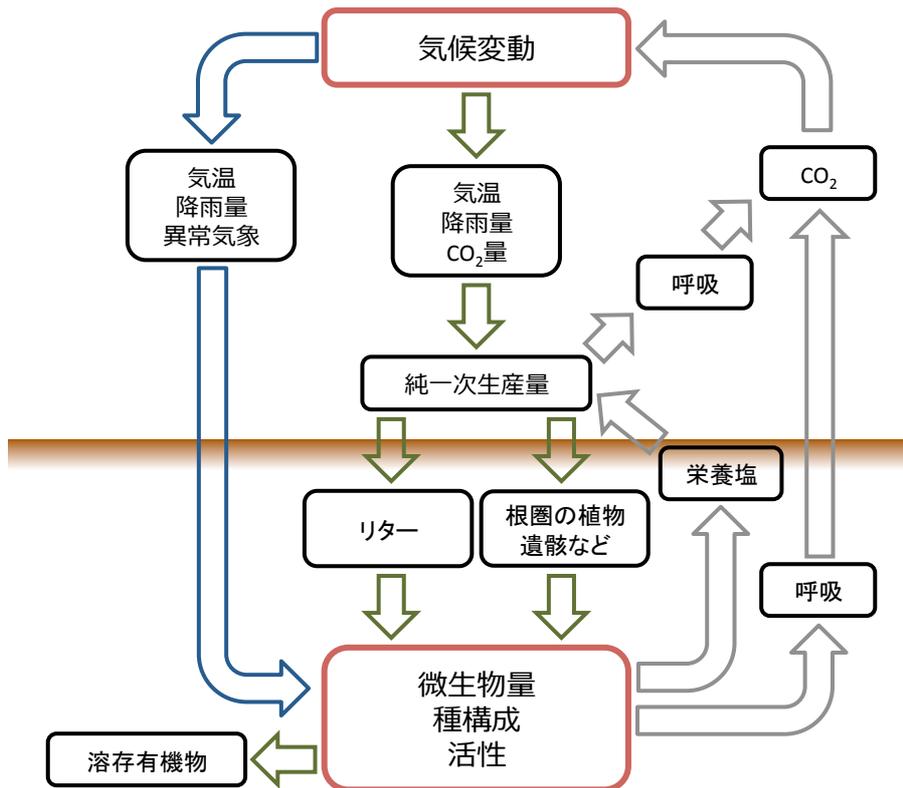


図 3-22 土壌微生物による炭素循環と気候変動の関係
 青矢印は気候変動による直接影響、緑矢印が間接影響を意味する。
 Bardgett et al., (2013)を改変。

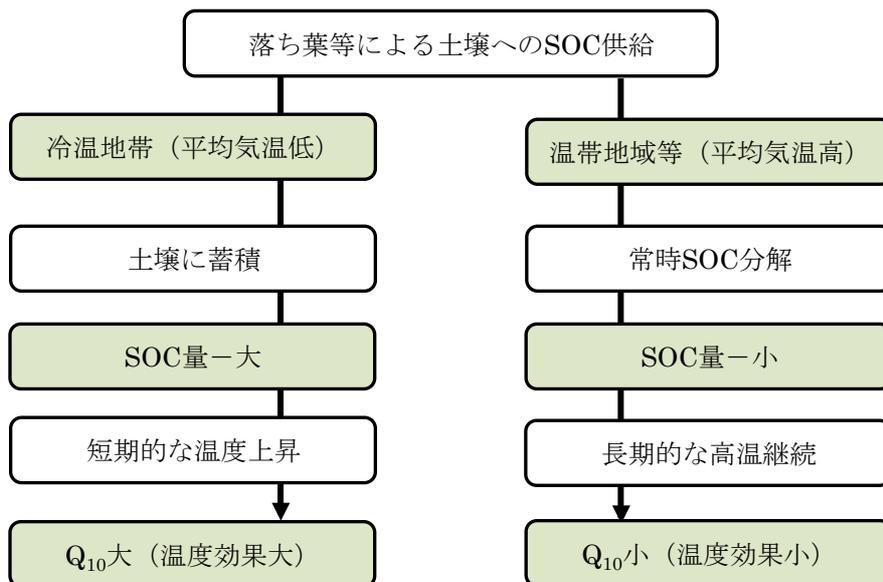


図 3-23 土壌有機炭素および Q₁₀ に対する気候の影響

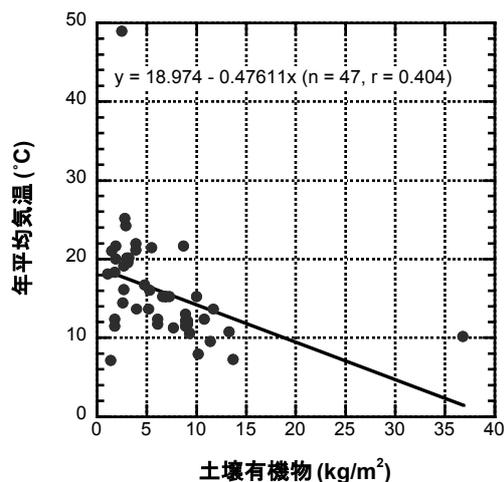


図 3-24 土壌有機物量と年平均気温の関係

Zheng et al., (2009)の Table 1 のデータを用いて作成。
ただし、年平均気温が欠損している 2 地点のデータは除いた。

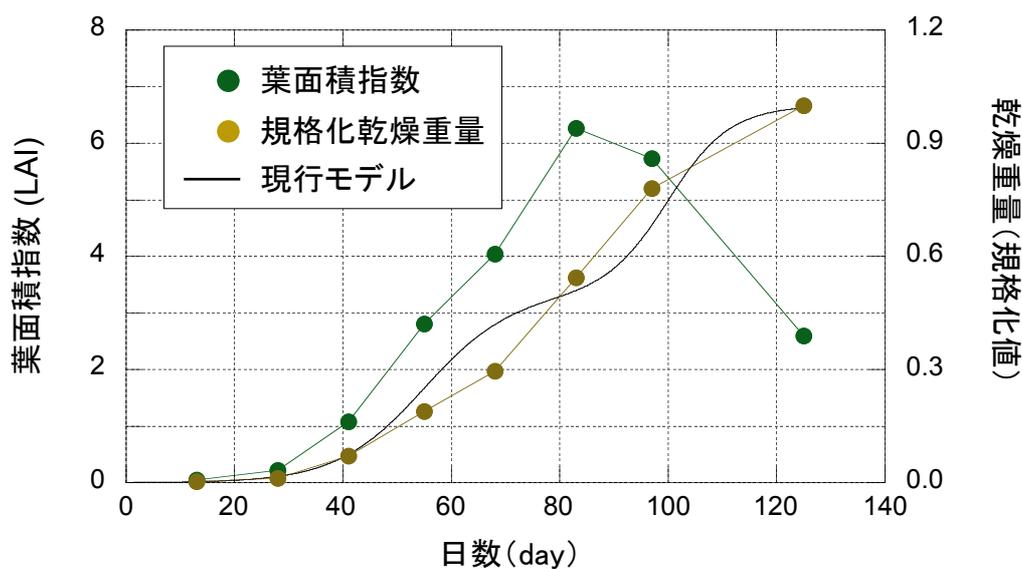


図 3-25 葉面積指数 (LAI) と乾燥重量の変化

Saito et al. (2005)の Fig.1 を改変。

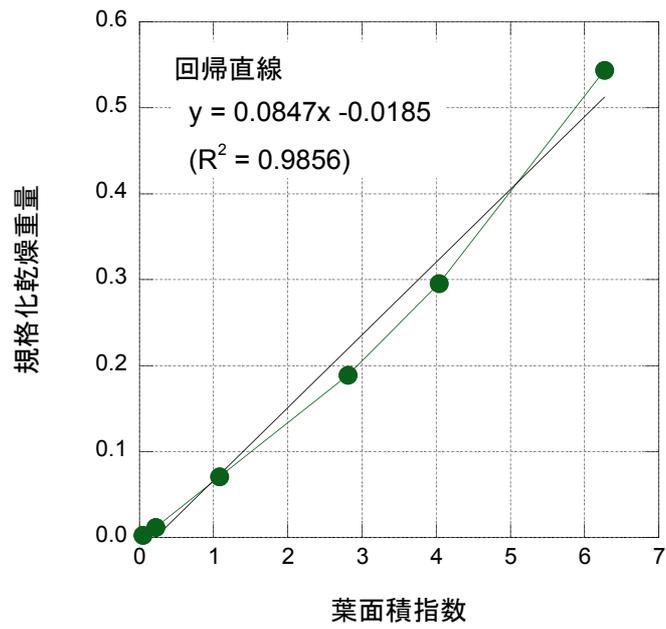


図 3-26 出穂期までの葉面積指数 (LAI) と乾燥重量との関係

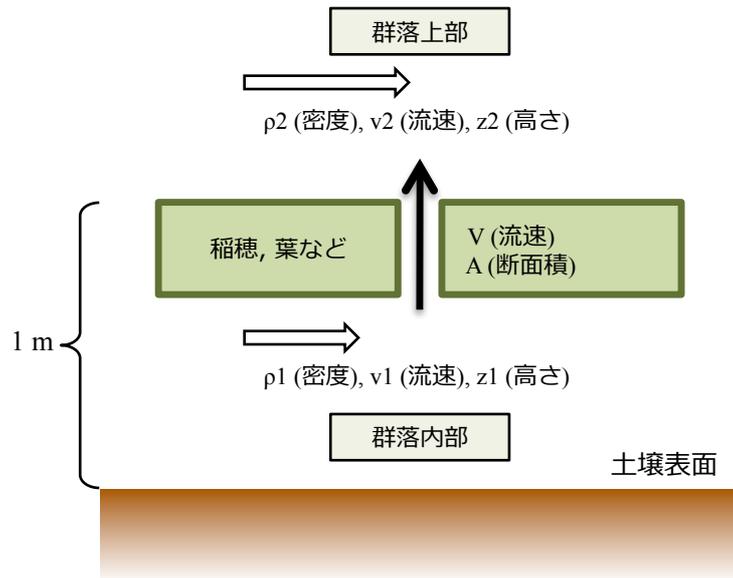


図 3-27 仮想水稻群落

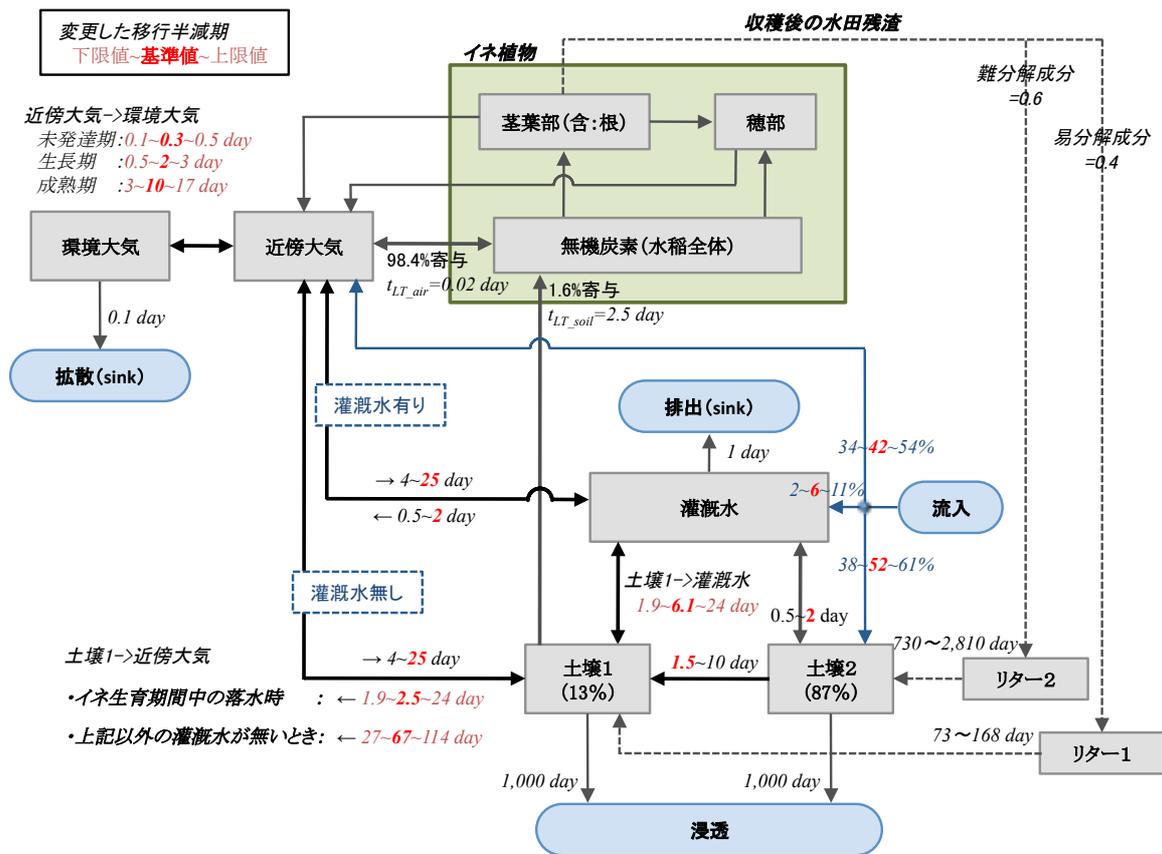


図 3-28 精緻化した水稻全体モデル
 赤字箇所が変更したパラメータ値

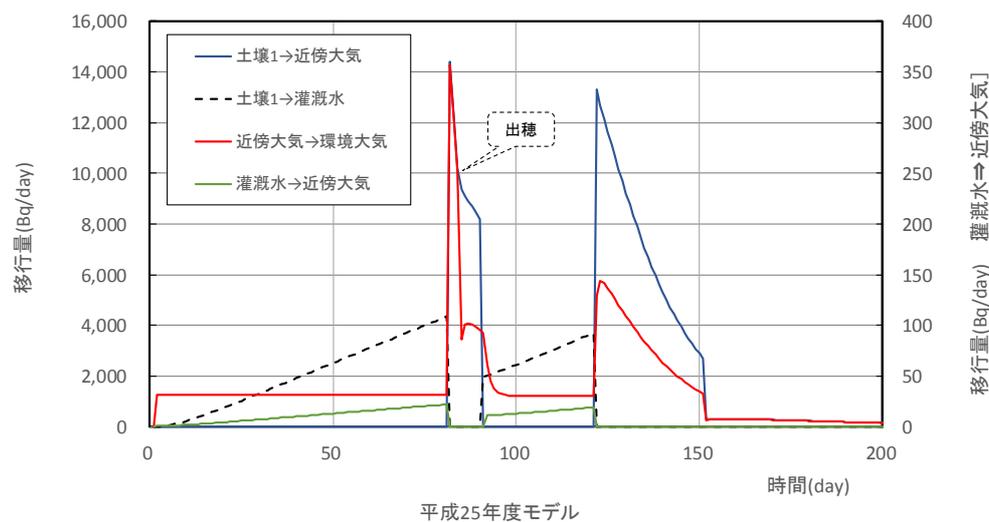
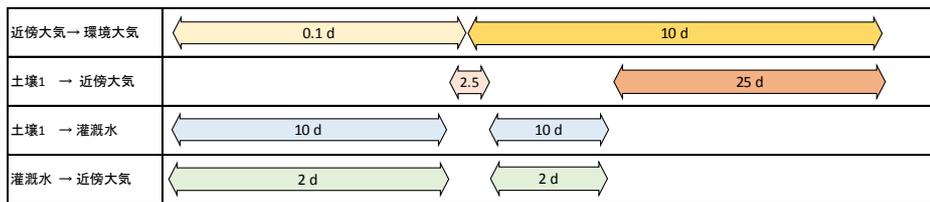
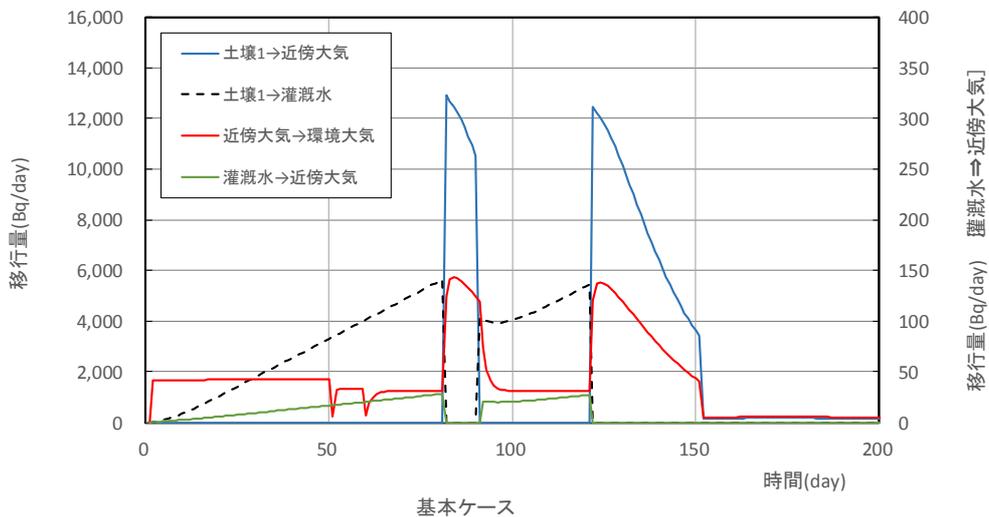
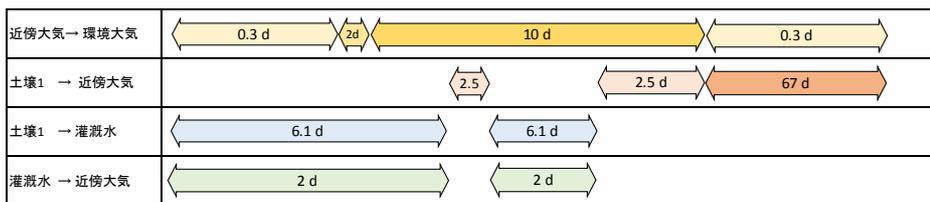
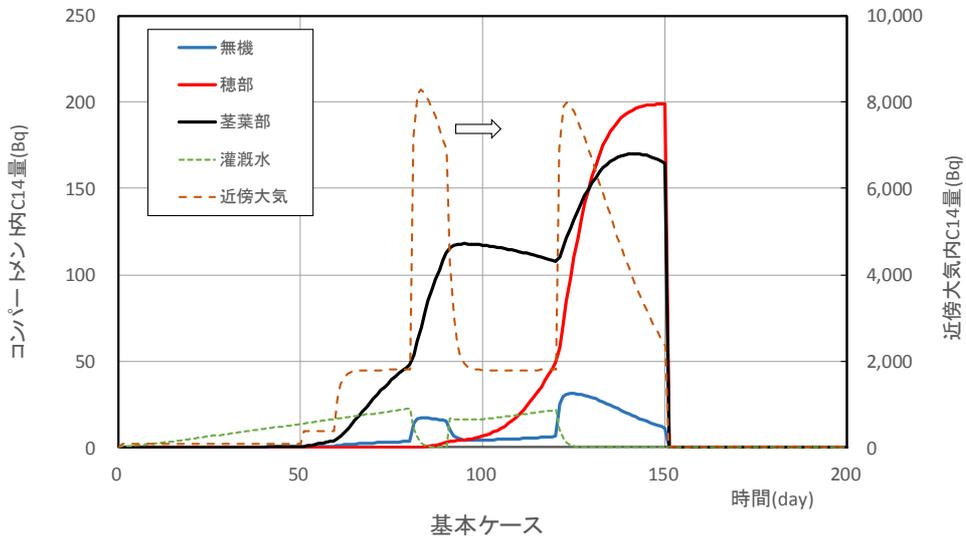


図 3-29 基本解析における環境コンパートメント間の移行量変化
(上：本年度モデル、下：昨年度モデル)

近傍大気 → 環境大気	0.3 d	2 d	10 d	0.3 d
土壌1 → 近傍大気		2.5	2.5 d	67 d
土壌1 → 灌漑水	6.1 d	6.1 d		
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d		



近傍大気 → 環境大気	0.1 d	10 d	
土壌1 → 近傍大気		2.5	25 d
土壌1 → 灌漑水	10 d	10 d	
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d	

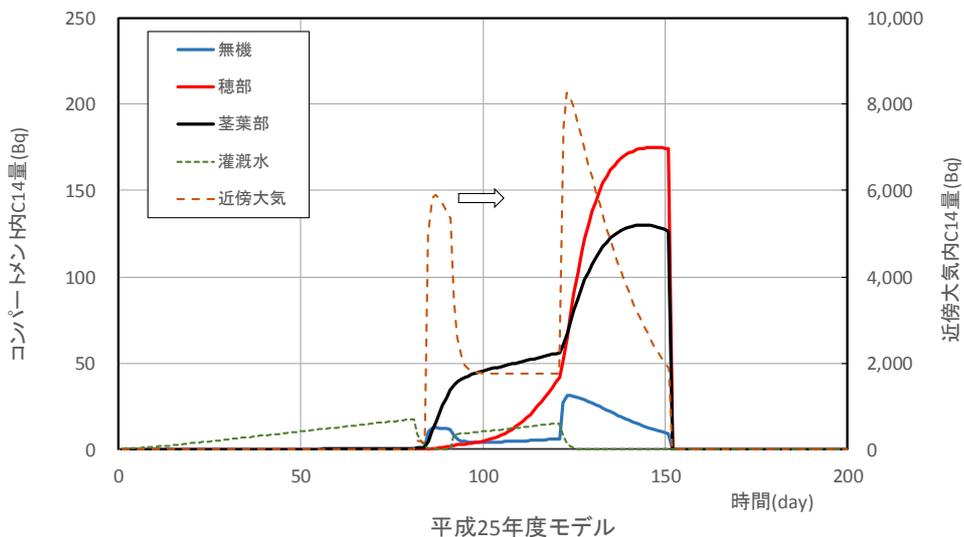


図 3-30 基本解析におけるコンパートメント内の¹⁴C存在量
(上：本年度モデル、下：昨年度モデル)

近傍大気 → 環境大気	0.3 d	2d	10 d	0.3 d	基準
土壌1 → 近傍大気		1.9	1.9 d	27 d	下限
土壌1 → 灌漑水	1.9 d	1.9 d			下限
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d			-

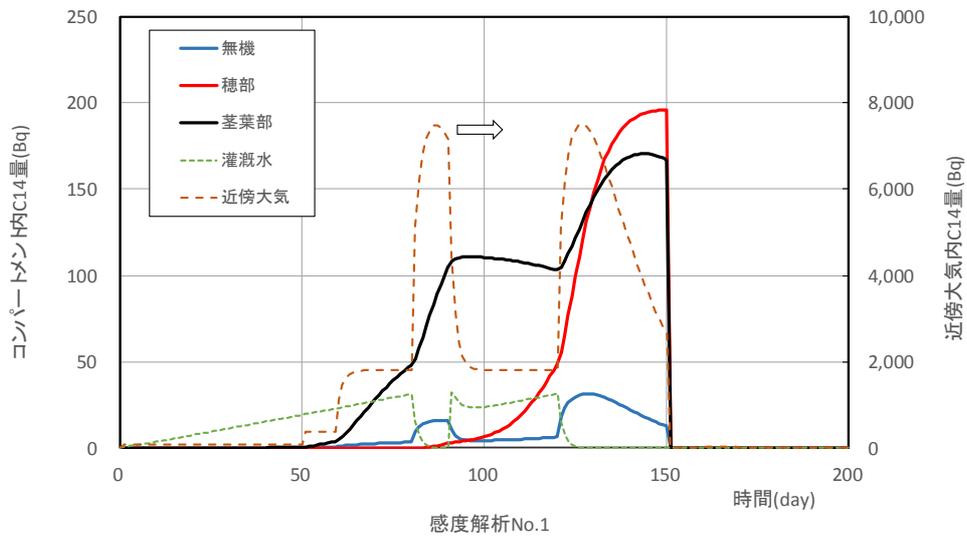
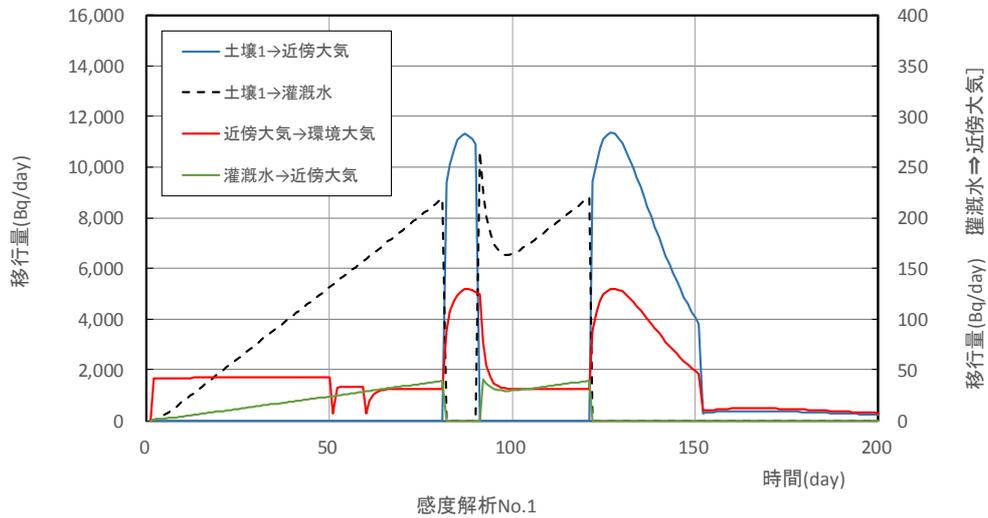


図 3-31 感度解析 No. 1 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

近傍大気 → 環境大気	0.3 d	2 d	10 d	0.3 d	基準
土壌1 → 近傍大気		24	24 d	114 d	上限
土壌1 → 灌漑水	24 d	24 d			上限
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d			-

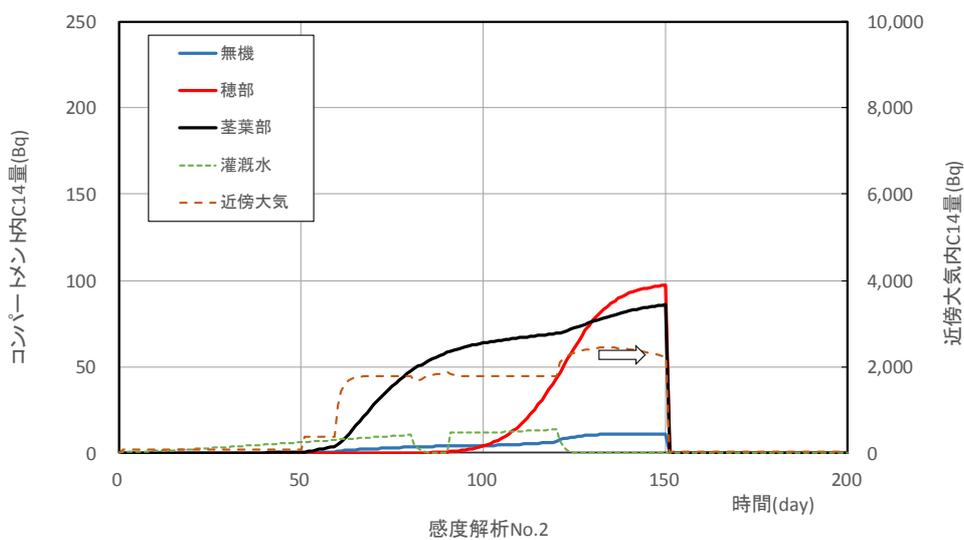
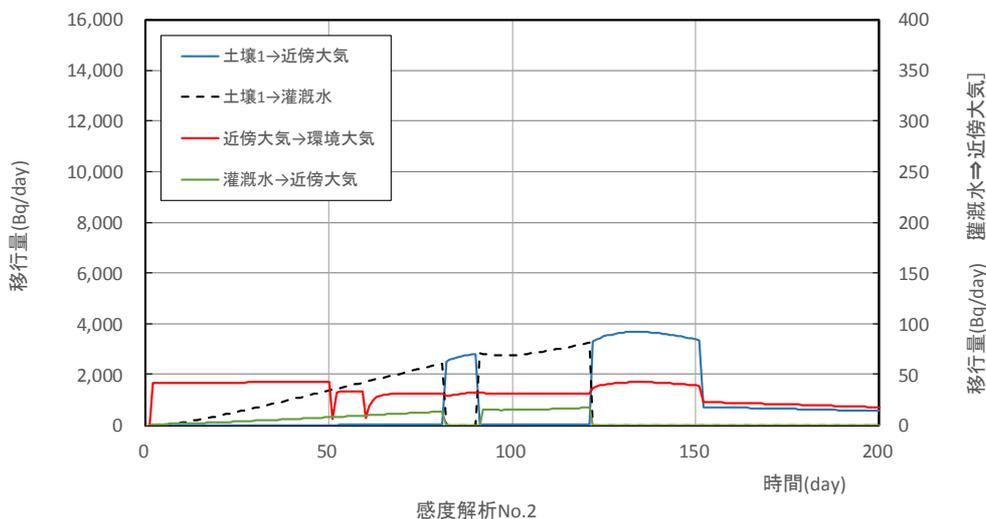


図 3-32 感度解析 No. 2 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

近傍大気 → 環境大気	0.1 d	0.5	3 d	0.1 d	下限	
土壌1 → 近傍大気		2.5		2.5 d	67 d	基準
土壌1 → 灌漑水	6.1 d		6.1 d			基準
灌漑水 → 近傍大気	2 d		2 d			-

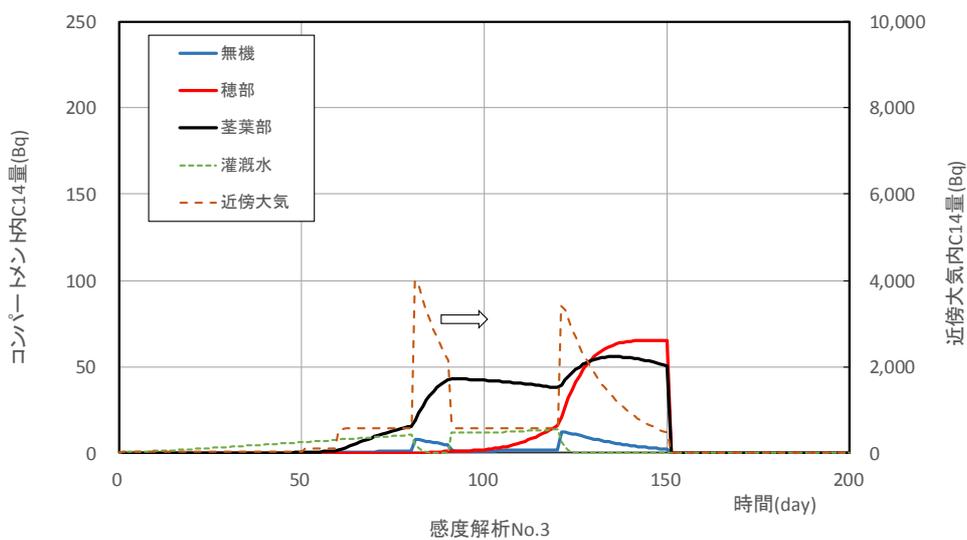
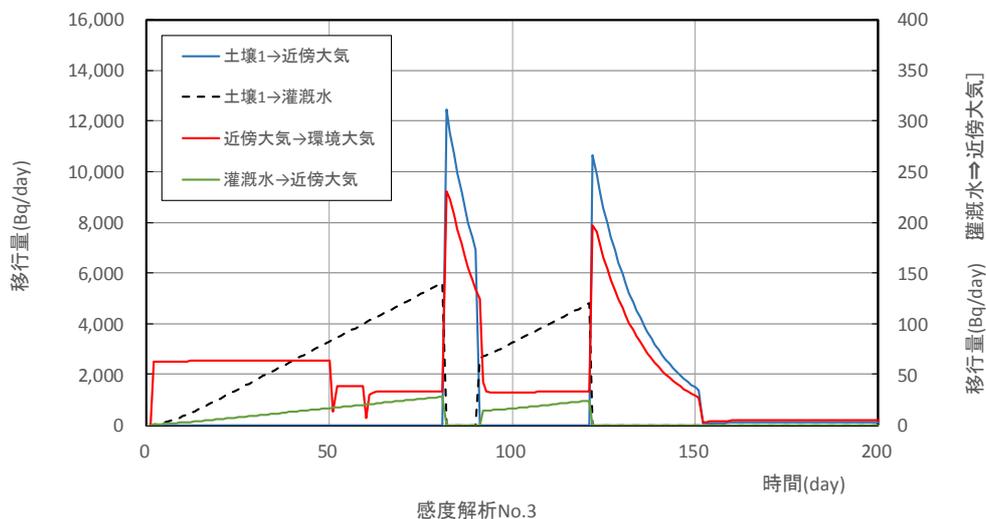
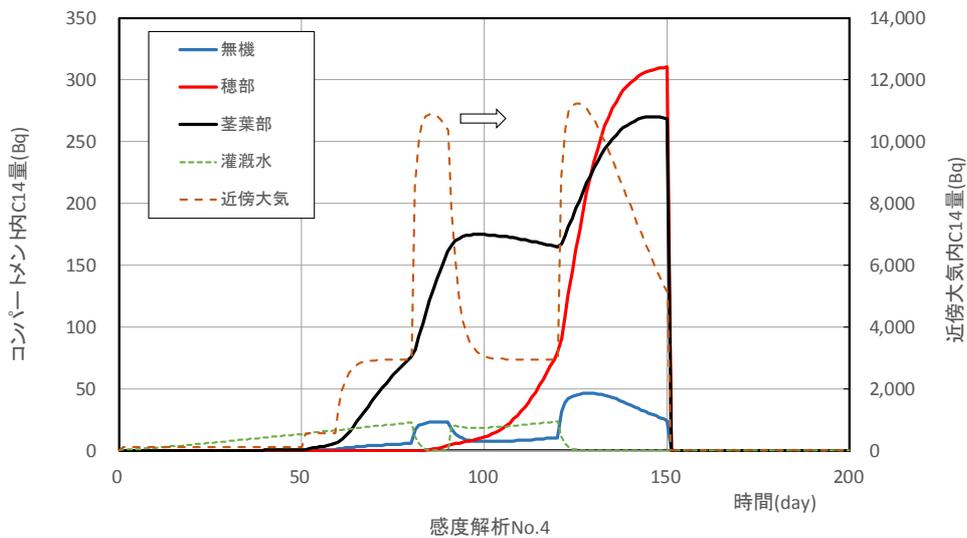
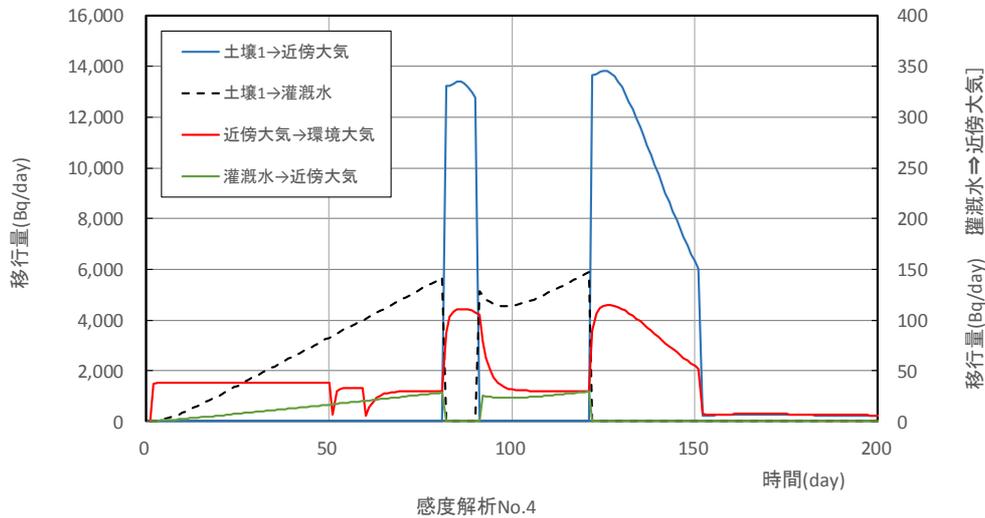


図 3-33 感度解析 No. 3 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

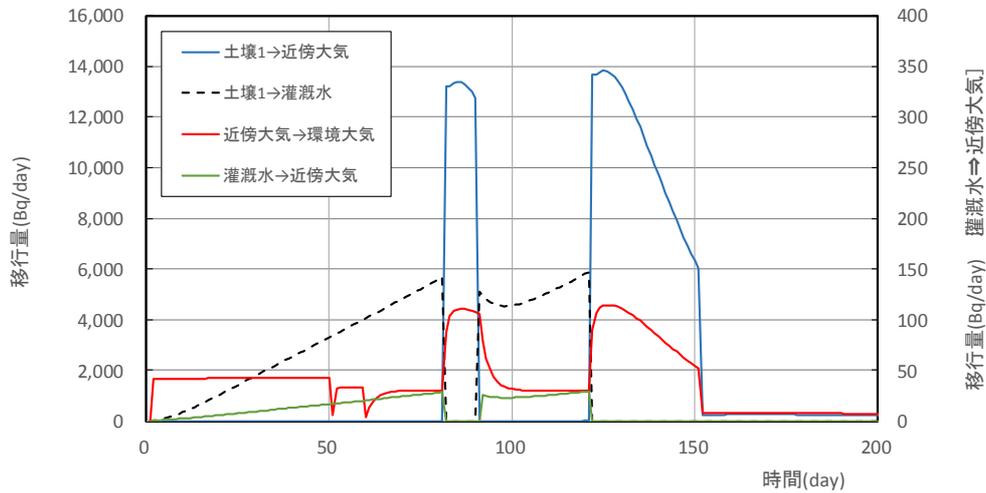
近傍大気→環境大気	0.5 d → 3d → 17 d → 0.5 d	上限
土壌1 → 近傍大気	2.5 → 2.5 d → 67 d	基準
土壌1 → 灌漑水	6.1 d → 6.1 d	基準
灌漑水 → 近傍大気	2 d → 2 d	-



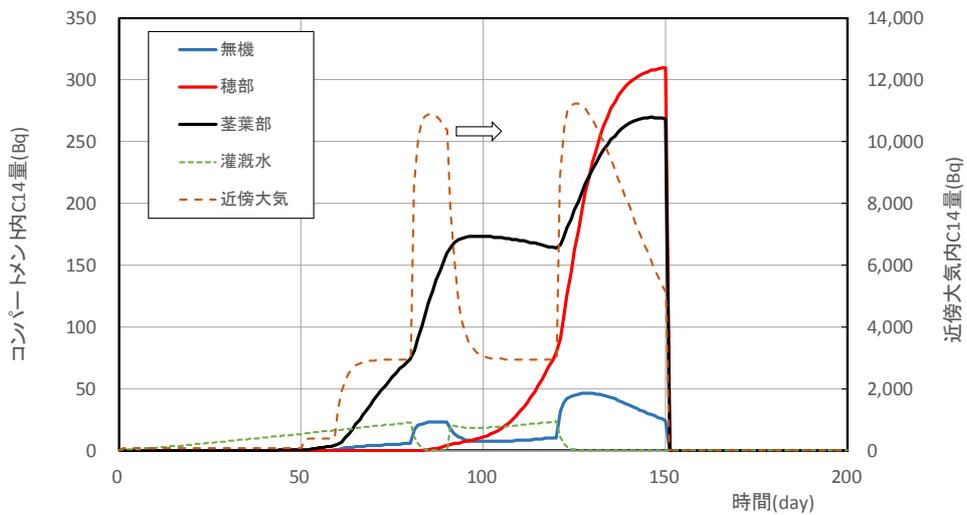
注：どちらの縦軸のスケールも基本解析と異なる

図 3-34 感度解析 No. 4 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

近傍大気→環境大気	0.3 d	2d	17 d	0.3 d	区分③ 上限
土壌1 → 近傍大気		2.5	2.5 d	67 d	基準
土壌1 → 灌漑水	6.1 d	6.1 d			基準
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d			-



感度解析No.5

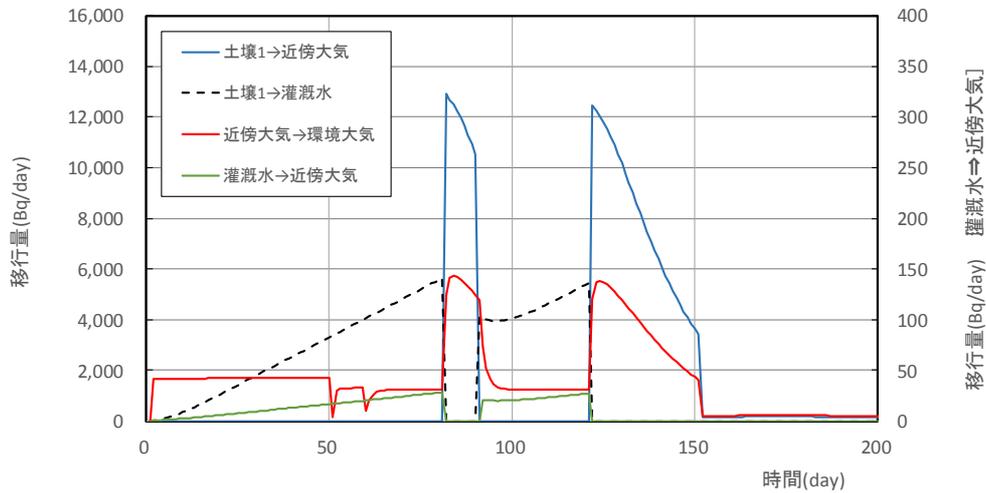


感度解析No.5

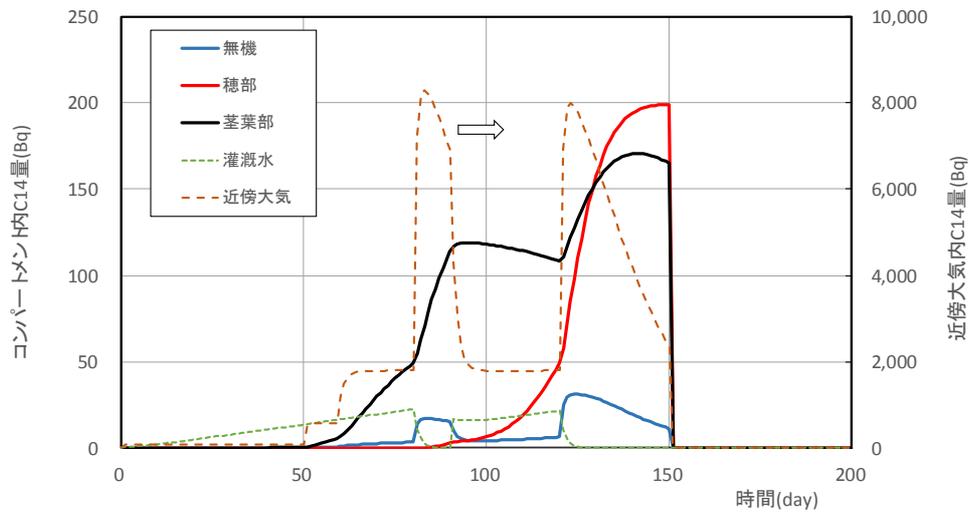
注: どちらの縦軸のスケールも基本解析と異なる

図 3-35 感度解析 No. 5 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図: ^{14}C 移行量、下図: ^{14}C 存在量)

近傍大気→環境大気	0.3 d	3d	10 d	0.3 d	区分① 上限
土壌1 → 近傍大気		2.5	2.5 d	67 d	基準
土壌1 → 灌漑水	6.1 d	6.1 d			基準
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d			-



感度解析No.6



感度解析No.6

図 3-36 感度解析 No. 6 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

近傍大気→環境大気	0.3 d	3d	17 d	0.3 d	区分①、② 上限
土壌1 → 近傍大気		2.5	2.5 d	67 d	基準
土壌1 → 灌漑水	6.1 d	6.1 d			基準
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d			-

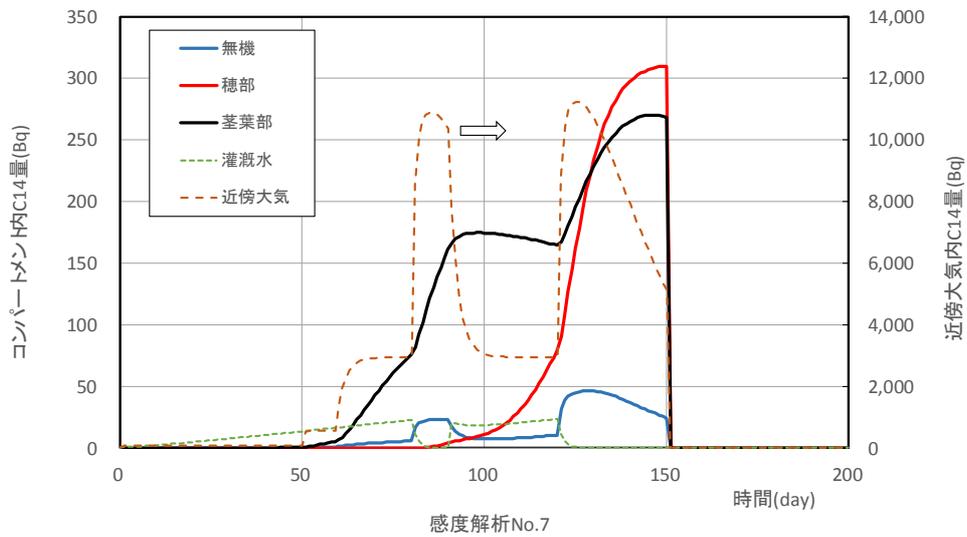
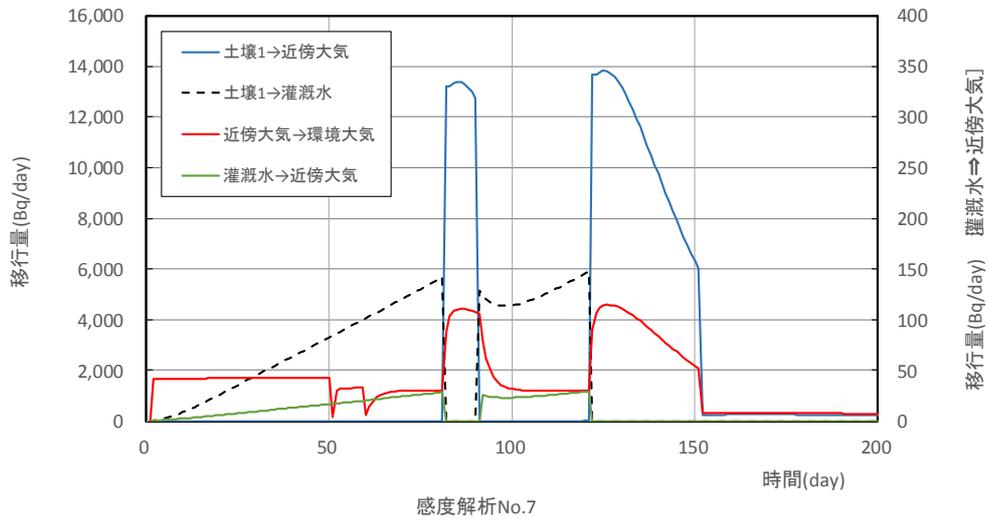
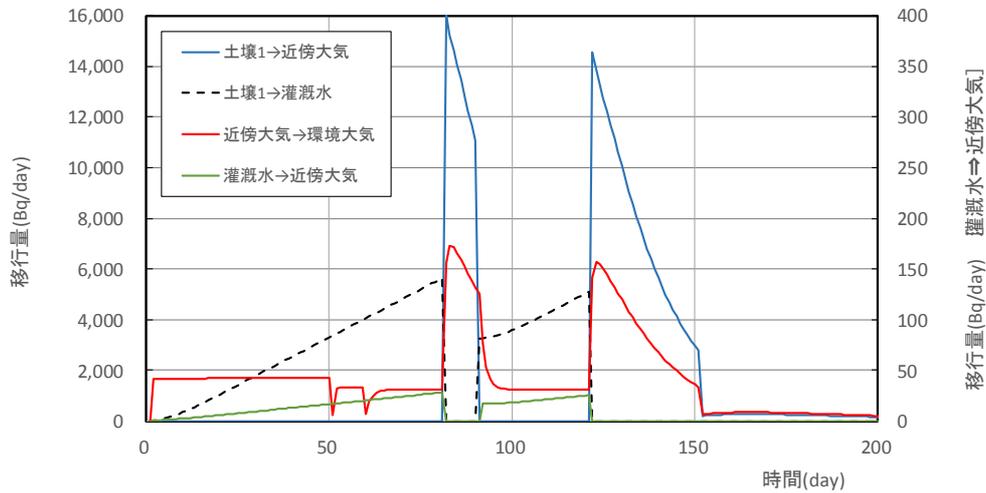
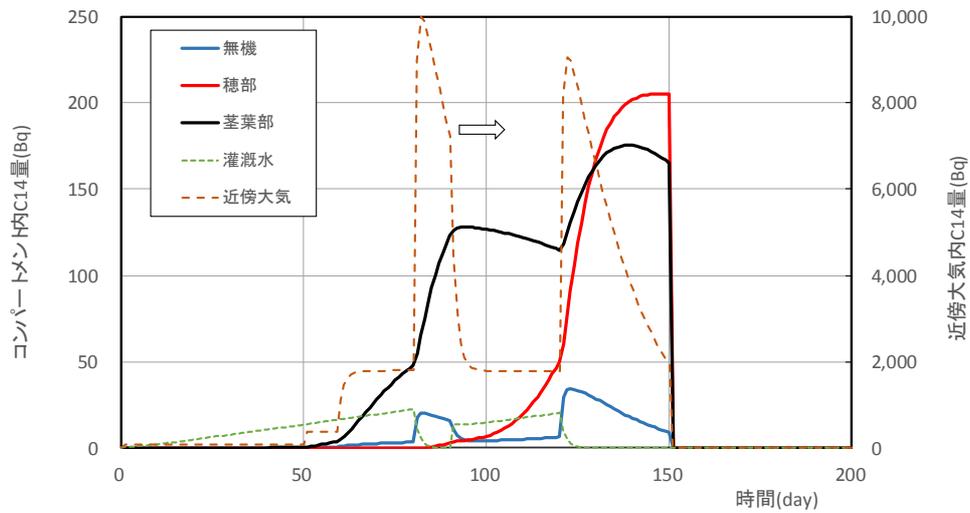


図 3-37 感度解析 No. 7 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

近傍大気→環境大気	0.3 d	2d	10 d	0.3 d	基準	
土壌1 → 近傍大気			1.9	1.9 d	27 d	下限
土壌1 → 灌漑水	6.1 d	6.1 d			基準	
灌漑水 → 近傍大気	2 d	2 d			-	



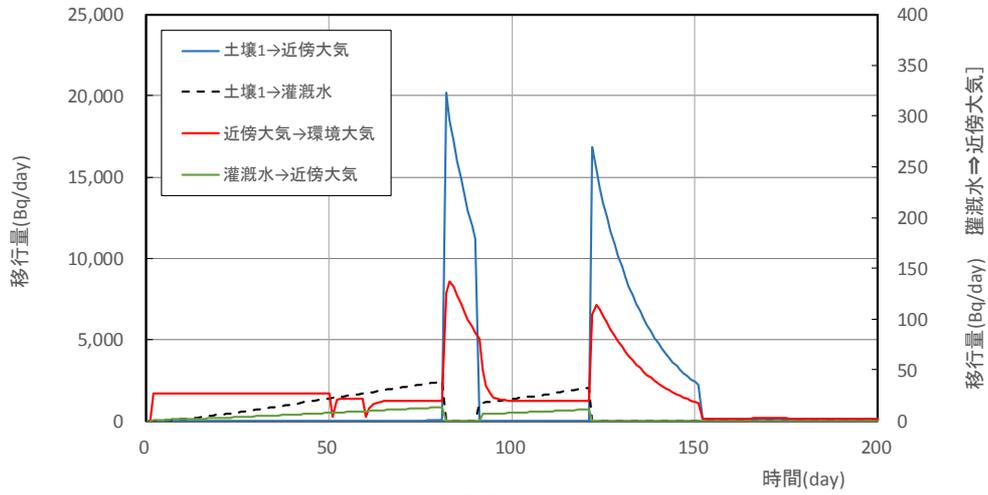
感度解析No.8



感度解析No.8

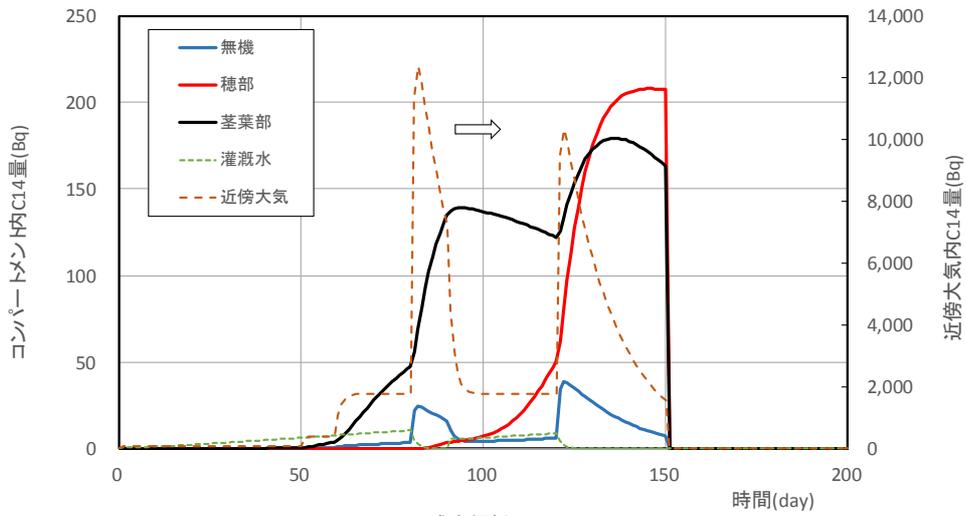
図 3-38 感度解析 No. 8 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

近傍大気→環境大気	0.3 d	2d	10 d	0.3 d	基準	
土壌1 → 近傍大気		2.5		2.5 d	67 d	基準
土壌1 → 灌漑水	24 d		24 d			上限
灌漑水 → 近傍大気	2 d		2 d			-



感度解析No.9

注:左側の縦軸スケールは基本解析と異なる

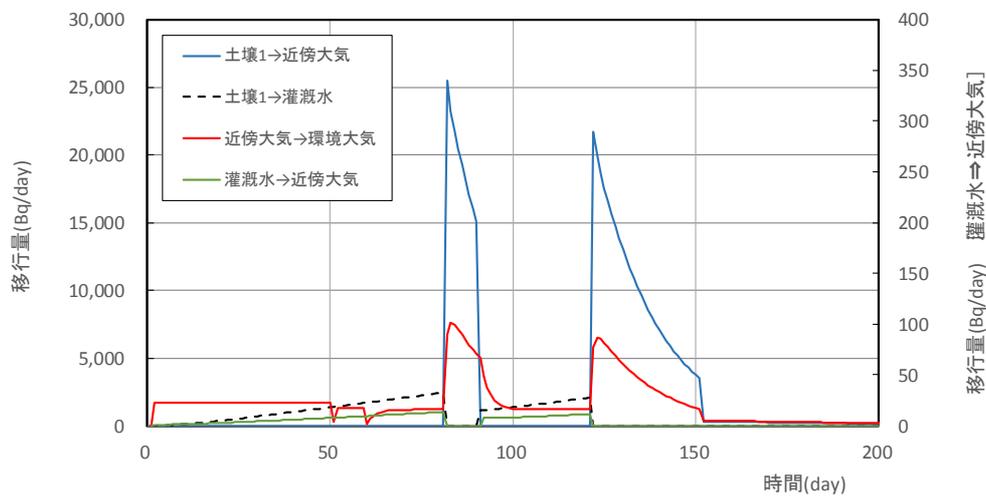


感度解析No.9

注:右側の縦軸スケールは基本解析と異なる

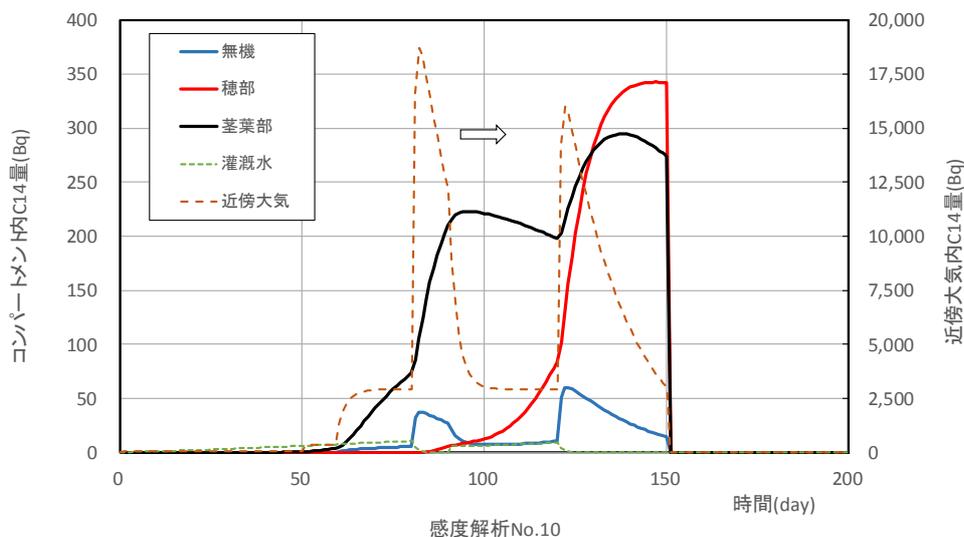
図 3-39 感度解析 No. 9 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図: ^{14}C 移行量、下図: ^{14}C 存在量)

近傍大気→環境大気	0.3 d	2d	17 d	0.3 d	区分③ 上限
土壌1 → 近傍大気		1.9	1.9 d	27 d	下限
土壌1 → 灌漑水	24 d		24 d		上限
灌漑水 → 近傍大気	2 d		2 d		—



感度解析No.10

注：左側の縦軸スケールは基本解析と異なる



感度解析No.10

注：どちらの縦軸もスケールは基本解析と異なる

図 3-40 感度解析 No. 10 における ^{14}C 移行量と各コンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図： ^{14}C 移行量、下図： ^{14}C 存在量)

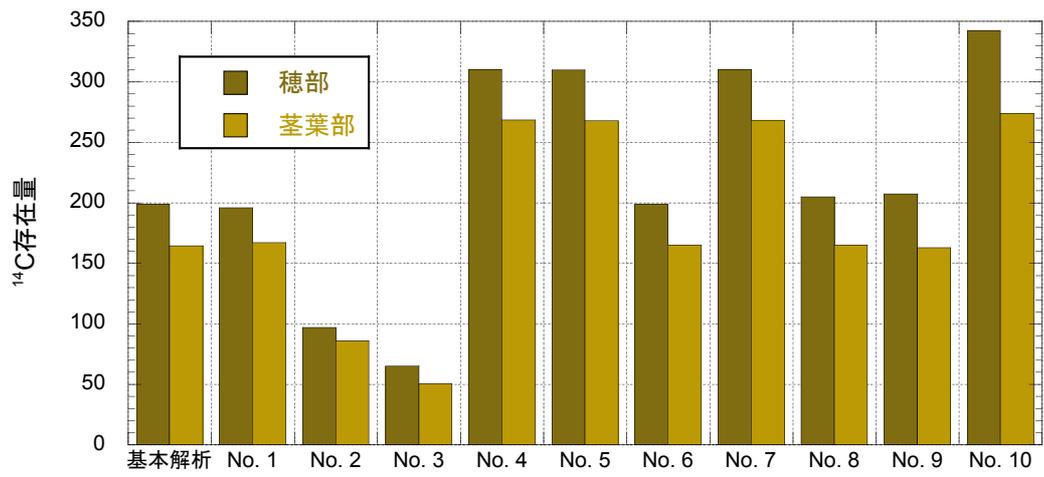


図 3-41 各解析ケースのイネ収穫時におけるイネ内の ^{14}C 存在量

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年度までに放射線医学総合研究所では、生物圏における環境媒体中元素濃度を蓄積し、土壌-植物移行係数 (TF) や土壌-土壌溶液分配係数 (K_d) 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は十分蓄積されていない。

本事業では、データが少なくかつ重要核種、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、環境移行パラメータ、特に TF を求めることを目的の一つとしている。今年度は Pu, Th と塩素の超高精度分析法の開発を進め、さらに Pu, Am, Th 及び塩素等の TF について、2010年にIAEAがTRS-472 Reportを公表後、2014年現在までに報告されている国内外最新文献の調査を行なった。特に Pu に関しては、高分解能 ICP-MS を用いて土壌と米中 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、土壌の灰化温度と Pu 同位体測定の正確さの関連、及び米中 Pu 同位体分析の化学分離法の調査・研究を実施した。塩素については、最適な分析条件の設定を行った。さらに、開発した Pu, Th と塩素の超高精度分析法を用いて、土壌-農作物中の微量 Pu 同位体および Th, また土壌中の塩素の分析を試み、重要核種元素である Pu, Th 及び塩素について、日本の環境中独自の土壌-植物間移行係数データの収集を開始した。このような調査研究は、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とともに、Pu については、福島原発事故により環境中に放出された放射性核種の中で注目されている核種の一つであり、これらの分析結果はその挙動予測のために役立つと考えられる。

4. 2. 重要核種 Pu の超高精度分析法開発

4.2.1. 高分解能質量分析装置 (Element XR) の性能調査

4.2.1.1 装置概要

本調査において超高精度分析を進めるために、最新の SF-ICP-MS (Element XR, Thermo Finnigan, Bremen, Germany) を H25 年 3 月に導入した。今年度は導入した Element XR の詳細な性能調査および試料導入装置を連動させて性能向上試験を行った。導入した Element XR は、超微量レベルの多元素分析を迅速に行う高性能・高精度の二重収束型 ICP-MS である。超高精度分析を実現するために、Element XR にはいくつか重要な特徴がある。その特徴について概述する。

- (1)イオン源とインターフェイス部：Element XR のアルゴンプラズマイオン源とそのインターフェイス (サンプリングコーン部) はグラウンド電位である。また、プラズマとロードコイルの間にグラウンド電位を入れ、プラズマで生成されるイオンの運動エ

エネルギー幅を約 5 eV(通常約 20 eV)まで減少させている。このことにより、イオンの透過性は向上し、すべての分解能で優れた感度を実現している。さらに、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を組み合わせることにより、分析の感度を旧装置より 10 倍以上向上できた。

- (2) 分解能：固定幅のスリットが 3 種類あり、低、中、高分解能を選択できる。この固定スリット機構技術により、最高の安定性と分解能の再現性がある（図 4.2-1）。低分解能モードには、ピークトップがフラットになる特徴があり、優れた安定性の下で分析ができる。超微量 Pu 同位体測定においては、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。
- (3) 二重収束質量分析計：イオンの質量と電荷によりイオン分離するために、磁場が非常に重要である。磁場で分離されたイオンは電場でエネルギー収束され、高分解能が得られる。本装置は ICP-MS 用のラミネート型マグネット（質量範囲は 2–260u）を使用している。マス軸の安定性が高く、また新設計の磁場制御により、高速のスキャンが可能であるため、Pu 同位体測定の精度が向上している。
- (4) 検出器：本装置はディスクリットダイノード検出器とファラデー検出器を組み合わせた機構を採用している。ファラデー検出器と組み合わせることにより、12 桁のダイナミックレンジを実現している。超微量 Pu 同位体測定の際、同時に他の元素、たとえば、ウランの濃度をモニタリングすることができ、妨害イオンの確認のために有用である。

4.2.1.2 高効率試料導入システム（APEX-Q と Aridus II）の概要

土壌と農作物中の極微量 Pu 分析のために、上述の特徴を持つ SF-ICP-MS を用いた。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、感度が下がることになる。Pu 測定において、感度低下は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。それを補うために、最初のステップである、元素のアルゴンプラズマ中でのイオン化を向上させることが重要であり、そのためには導入する元素の総量を向上させれば良い。そこで 2 種類の高効率試料導入装置（APEX-Q：Elemental Scientific Inc., Omaha, NE, USA と Aridus II：CETAC Inc., USA）をメンブラン脱溶媒装置（ACM）と共に用いた。

(1) APEX-Q/SF-ICP-MS (Element XR)

まず、高効率試料導入装置（APEX-Q）と SF-ICP-MS（Element XR）を接続したシステムの概要を図 4.2-2 に示す。APEX-Q は脱溶媒試料導入システムであり、感度の向上とバックグラウンドに存在する核種の水素化物生成を減少させることができる。ICP を用いる装置では通常水溶液として試料を導入するが、より多くの試料を導入させるために水の量が増えれば、 H_2O もアルゴンプラズマに同時に入れることになり、それにより発生する水素化物（H を付加した状態のイオン）や酸化物（O を付加した状態のイオン）が生成する。そのため、水（溶媒）を除去することが必要である。例えば、 UO^+ や水素化ウラン（ $^{238}U^1H^+$ と $^{238}U^1H_2^+$ ）が生成すれば、 ^{239}Pu や ^{240}Pu 測定における妨害となる。

APEX-Q では、ネブライザーで霧状になった試料を 140°C に加熱したサイクロン型スプ

レイチェンバーに導入することで水を気化させ、その後直ちに霧は多重パス冷却器により 2°C まで冷却する。次に付属の脱溶媒膜モジュール(ACM Nafion fluoropolymer membrane desolvation module)に移送され、試料導入方向に対してアルゴンガスを逆流させて、膜の多孔質壁に溶媒を吸収させることで、水を除去する。非揮発性成分は膜の多孔質壁を通過できないが、揮発した成分はドライなエアロゾルとしてトーチに到達し、プラズマ中でイオン化される。このシステムでは、いろいろなタイプのネブライザーが使える、試料の導入率を $20 \mu\text{L min}^{-1}$ から 1 mL min^{-1} 以上の広範囲で使用することができるのも特徴的である。このネブライザーは、自立吸引（ネブライザーの構造上、ポンプで送液しなくても試料水を吸引する）とポンプによる送液のどちらでも使用可能である。すなわち、APEX-Q システムは、主として試料導入効率の向上とエアロゾルの質の向上（水分を極力含まない状態にする）により感度を改良する。さらに感度を向上させるためには、APEX システムへ N_2 ガスを導入する方法も挙げられる。水や非揮発成分を吸着させてしまう ACM 脱溶媒モジュールの性能を維持するためには、APEX システムから取り外して酸性溶液に浸漬して清掃をする必要がある。

(2) Aridus II/SF-ICP-MS (Element XR)

使用した機器の概要を図 4.2-3 に示す。Aridus の脱溶媒システムは超微量放射性核種測定に広く使用されている。このシステムは、Aspire PFA ネブライザーを加熱した PFA 製スプレーチェンバーに取り付け、加熱したフッ素樹脂製膜を通過させる仕組みになっている。試料溶液は、Aspire PFA ネブライザーの自立吸引で Aridus II システムに導入される。ネブライザーで生成されたエアロゾルは、最大 110°C に加熱された PFA スプレーチェンバーに噴霧することで、蒸発した状態を維持させておく。次にこの蒸気状の試料を、加熱した PTFE 膜脱溶媒モジュールに導入する。APEX-Q システムと同様に、アルゴンガスが逆流して、膜の多孔質壁に溶媒を取り除かれる。このとき、非揮発性成分は膜の多孔質壁を通過できない。最後に脱溶媒されたエアロゾルが SF-ICP-MS のトーチに到達する仕組みである。APEX-Q と Aridus II の相違点は、Aridus II では加熱した霧状の試料をすぐに膜脱溶媒モジュールに導入する点であり、APEX-Q では、一旦、加熱した霧状試料を冷却装置に通過させて冷却し水を結晶化させているのとは異なる。脱溶媒モジュールは Aridus II 装置の重要な部分であるが、清浄に保つために脱着が容易にできるようになっている。この装置の場合には、吸引速度が異なる 3 種類の PFA ネブライザーが使用可能であり ($50, 100$ もしくは $200 \mu\text{L min}^{-1}$)、本研究では $50 \mu\text{L min}^{-1}$ のネブライザーを用いた。

(3) ウラン水素化物 (UH^+) の影響

Pu の正確な測定をするためには、ウランが妨害になる。特に、ウラン水素化物 ($^{238}\text{UH}^+$) が形成されると ^{239}Pu と同じ質量のため妨害になる。さらに、 $^{238}\text{U}^+$ の量が多く、カウントが高すぎると、質量数 238 だけではなく、その周辺質量域にまでカウントが影響し（テールリング効果）、これも ^{239}Pu 分析の妨害となる。試料導入装置は、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る。そこで、 1 ng mL^{-1} のウラン標準溶液を用いて、APEX-Q ACM 膜脱溶媒モジュールと Aridus II 膜脱溶媒モジュールとを比較した。

脱モジュールを用いた SF-ICP-MS システムにおけるウラン水素化物の生成率を比較した。その結果、どちらの試料導入装置を用いても $^{238}\text{UH}^+$ イオンの生成率はほぼ 2×10^{-5} 以下であることがわかった (2.0×10^{-5} : APEX-Q/SF-ICP-MS; 2.2×10^{-5} : Aridus II/SF-ICP-MS)。ウラン水素化物の生成率は、以前使用していたシステムである APEX-Q-Element 2 system (Zheng and Yamada, 2006) とほぼ同じであることがわかった。SF-ICP-MS の感度の向上は、 $^{238}\text{UH}^+$ の低減にはつながっていないが、これらの導入装置を用いると $^{238}\text{UH}^+$ の生成率は十分に低いことから、Pu の定量にはこれらの導入装置を使った方が良いといえる。

4.2.1.3 Pu 分析の感度、精度及び検出限界

Pu 同位体標準溶液(NBS 947)を用いて、APEX-Q/SF-ICP-MS および Aridus II/SF-ICP-MS システムにおける Pu 測定の感度、精度及び検出限界について調査を行った。測定では、ペリスタリックポンプによる汚染のリスクを低減するために自立吸引モードを用いた。ペリスタリックポンプは、試料を一定速度でネブライザーに送ることができるが、一方で、ポンプに用いるチューブ材料には弾力性の高いものを用いなければならず、弾力性が低いが最も汚染が少ないテフロン製品を用いることができないためである。測定対象の質量数は、 ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu に対応しており、質量ピークのトップ部分のみをスキャンするピークホッピングモードで測定した。それぞれの質量数のカウントは各質量数のピーク幅の 10%を設定している。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。なお、毎回試料を測定する前に、濃度が 0.02 ng mL^{-1} のウラン標準溶液 (Merck standard) を用いて、SF-ICP-MS の最適化を行っている。

図 4.2-4 は、APEX-Q と Aridus II 試料導入システムを用いた Pu 同位体質量領域 (m/z 238-242) におけるバックグラウンドレベル (cps) の比較である。このバックグラウンド評価においては 4%の希硝酸液を用いた。2つの導入装置を使ったシステムでは Pu 同位体質量領域においてほぼ同様の低バックグラウンド (*ca.* 2 cps) を示した。さらに Pu 分析の感度を 10 および 100 fg mL^{-1} 濃度の Pu 同位体標準溶液 (NBS 947) で調べた。得られたマススペクトルを図 4.2-5 に示す。ジェットインターフェイス (Jet-interface) を使用しないで Element XR SF-ICP-MS で測定した場合 (図 4.2-5A), ^{239}Pu 濃度が 100 fg mL^{-1} の溶液における信号強度は約 350 cps であった。Aridus II/SF-ICP-MS (Jet-interface も使用) (図 4.2-5B) および APEX-Q/SF-ICP-MS (Jet-interface も使用) (図 4.2-5C) を用いた場合、どちらも感度の改良が認められた。Aridus II/SF-ICP-MS を使用した場合、 ^{239}Pu 濃度が 100 fg mL^{-1} の溶液における信号強度は 110,000 cps が得られ、APEX-Q/SF-ICP-MS を用いた場合、 ^{239}Pu 濃度が 10 fg mL^{-1} の溶液における信号強度は 600 cps が得られた。これらの結果は、それぞれ 100 M/ppb と 60M/ppb の感度に相当する (M/ppb は 1 ng mL^{-1} に対する 1 秒あたりのメガカウント値)。これらの結果は、ジェットインターフェイス (Jet-interface) を使用しない測定結果と比較すると、ジェットインターフェイス (Jet-interface) と APEX-Q および Aridus II 試料導入システムとの連結を行うことで、約 20 倍および 30 倍の感度を得ることができることを示している。Aridus II システムでより高い感度を得られたのは、Aridus II の方が高い脱溶媒能力であることを示している。しかし、この装置内部に試料が微量に残留し続けるによる影響 (メモリー効果) が早く無くなるのは APEX-Q システムの方が Aridus II よりも早いことがわかった。これは、上述した

Aridus II システムにおいて、加熱 PFA スプレーチャンバーを用いているが、その内壁に測定対象物そのものや試料マトリクスが付着するためである。その結果、バックグラウンド測定中に異常ピークが認められたり、洗浄により多くの時間が必要となってしまうのである。これについては、CETAC 社によって最近開発された迅速洗浄の付属装置を取り付けることにより解決できる。この迅速洗浄装置は、スプレーチャンバーの斜め前方方向からアルゴンガスをチャンバー内に吹き付けることで迅速にチャンバー内を清浄にするシステムであり、これにより洗浄時間を大幅に減少させることができる。以上のことから、今回 Jet-interface も使用した Aridus II/SF-ICP-MS で非常に高い感度が得られたが、この結果は、これまでのところ超微量 Pu 同位体分析において世界で最高感度と言われている加速器質量分析 (AMS) (Olivier et al. 2004) と同程度を達成することができた。

次に、ブランク溶液 (4 % HNO₃) の 10 回測定における標準偏差の 3 倍という定義に従い、検出下限値を評価した。その結果、Pu 同位体分析において 0.043 fg mL⁻¹ という非常に低い検出下限値を達成した。低流量の PFA ネブライザー (0.05 mL min⁻¹) を使用し、1 回あたりの測定時間が短い (150 s) ことを考慮すると、Pu 分析に必要な試料溶液量は 0.125 mL である。したがって、実質の検出感度は 1 回の測定において 0.005 fg ということになる。この検出下限値はこれまでに Zheng and Yamada (2006) によって APEX-Q/SF-ICP-MS (Element 2) を用いて得られている値よりも約 1 桁低い値である。今回開発した測定条件は、AMS の技術とほぼ同等といえる。

この Aridus II/SF-ICP-MS (with Jet-interface) 分析システムを用いた Pu 同位体分析の精度と確度を、NBS947Pu 同位体標準溶液 100 fg mL⁻¹ の 1 回測定 (runs x passes : 20 x 4) により評価した。比較のために、Jet-interface を使用せず Element XR だけで得られた結果も示す (表 4.2-2)。Element XR だけで得られた ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比の精度 (RSD %) は 20.5 %、確度は -3.3 % であった。一方、Aridus II/SF-ICP-MS (with Jet-interface) 分析システムを用いた Pu 分析結果は、精度が 5.0 %、確度が 0.83 % であった。開発した方法が、精度および確度共に非常に改善されていることがわかる。

また超微量レベルの ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比測定における SF-ICP-MS の長期間にわたる測定の安定性について、濃度が ²³⁹Pu で 11 fg mL⁻¹、²⁴⁰Pu で 2.7 fg mL⁻¹ レベルの NBS 947 試料を用いて 2014 年 4 月から 12 月まで APEX-Q/SF-ICP-MS システムにより評価した。その結果を図 4.2-6 に示す。8 ヶ月間にわたるテストにおいて、測定された ⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比の変動は、±1σ 以内であった。これは、超微量レベル Pu 同位体測定分析においても優れた長期間安定性である。

この超高感度の Aridus II/SF-ICP-MS (with Jet-interface) 分析システムは、本調査・研究事業において実施する Pu の土壌-農作物移行研究に十分適応できるものである。参考までに、土壌試料の典型的な質量スペクトルを図 4.2-7 に示す。

引用文献

- Olivier, S., Bajo, S., Fifield, L. K., Gäggeler, H. W., Papina, T., Santschi, P. H., Schotterer, U., Schwikowski M. and Wacker, L. Plutonium from global fallout recorded in an ice core from the Belukha glacier, Siberian Altai. *Environ. Sci. Technol.*, 2004, 38, 6507.
- Zheng, J., Yamada, M. 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, 2006.

4.2.2. 土壌試料中の Pu 分析における土壌灰化温度の影響

4.2.2.1 はじめに

核実験により前世紀にもたらされたグローバルフォールアウト Pu, 特に土壌中の Pu は、トレーサーとして様々な研究に利用されている。例えば、環境中の Pu の定量 (Zheng et al., 2009), 土壌浸食 (Xu et al., 2013), Pu の土壌から植物への移行 (Lehto et al., 2013), 堆積物年代測定 (Zheng et al., 2008), そして砂漠化の研究 (Hirose et al., 2003) が挙げられる。通常, このような研究において, 数十グラムから 100 グラムの土壌が分析のために必要となる。分析時間の短縮と分析の効率化のため, 迅速な試料分解法として硝酸抽出法が一般的に研究者に用いられている (Hrnecek et al., 2008; Muramatsu et al., 1999; Ohtsuka et al., 2005; Tavcar et al., 2005; McAninch et al., 2000)。これは, 土壌中の Pu の起源がほとんどグローバルフォールアウトであることから, 土壌鉱物として強く結合しておらず, 土壌粒子表面にあると考えられることから簡易的に用いられている方法である。

硝酸抽出法は, 簡単に述べると, 土壌試料中の Pu 成分溶出のために, まずは高温で灰化して有機物を分解した後, 濃硝酸 (または, 8 M HNO₃) を用いて加熱抽出を行うものである。その後, 化学分離と Pu 測定を行なう。しかし, 有機物の分解とその後の化学分離ステップにおいて妨害となる元素を除去ために行なう灰化操作において, 実に様々な灰化温度 (400 – 600 °C) が異なった研究者により使用されている (Hrnecek et al., 2008; Child et al., 2008; Qiao et al., 2011)。このように異なる灰化温度は, Pu 分析結果にさらに不確実性を与える可能性がある。すなわち, 低温では有機物を十分分解できないし, 一方高温では, 熔融-結晶化することによる溶解しにくい粒子を生成する可能性がある。このような粒子は単に硝酸だけでは溶出できないものになることがある。したがって, 硝酸抽出法の信頼性と確度を高めるためには, 適切な灰化温度に統一すべきであろう。

本研究において, IAEA の土壌標準試料である, IAEA-soil-6 と IAEA-375, を用いて, 異なった灰化温度が Pu 分析にどのような影響をもたらすのかを調べた。これらの試料は実環境試料であり, 多くの研究機関が Pu 濃度を測定している。この試料について高温で灰化した際, 溶解しにくいフラクションの形成についても X 線回折による化学変化の検査および総分解法による Pu 分析との比較により議論を行なった。最終的に, 硝酸抽出法に最適な灰化温度を報告する。

4.2.2.2 土壌試料測定のための SF-ICP-MS 条件設定

土壌中の Pu 分析のために, SF-ICP-MS と APEX-Q で測定を行った。土壌中 Pu 濃度は数 g を用いた化学分離を行えば, SF-ICP-MS では十分に定量でき, また, APEX-Q の方がメモリー効果が少ないためである。ただし, 土壌試料中には数 mg kg⁻¹ オーダーで U が存在するので, 化学分離後にごく微量残留していても, Pu の正確な測定を妨害する。そこで試料の前処理-化学分離に加え, APEX-Q 試料導入装置によりウラン水素化物の生成率を抑えることで, ウランの妨害をほぼなくすことに成功した。なお, 測定においては, 自

立吸引モードを用いた。測定対象のアイソトープ (^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu) は、ピークポッピングモードで測定し、それぞれの質量数の測定は、ピーク幅の 10% で測定を行った。なお、試料を毎回測定する前に、濃度が 0.1 ng mL^{-1} のウラン標準溶液 (Merck standard) を用いて、SF-ICP-MS の感度調整を行った。

4.2.2.3 測定試料

土壌灰化温度の Pu 定量への影響や Pu 同位体測定 of 長期安定性の調査において、土壌標準物質試料 IAEA Soil-6 を用いた。IAEA Soil-6 は (表層から深さ 10cm までの土壌) はチェルノブイリ原発以前にオーストリア北部の海拔 1000m の高さにある Ebensee の近くで採取されたもので、グローバルフォールアウトのみを含む。まず孔径 1cm の篩で篩分のうち、 450°C で 24 時間加熱して有機物を分解し、その後粉砕して粉末状になったものを孔径 $71 \mu\text{m}$ で篩分けした。この粉砕試料を 24 時間混合し、プラスチック製の容器に約 250g ずつ封入したものである。 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度として、IAEA は 1.04 (95%信頼区間: $0.96 - 1.11$) mBq g^{-1} を推奨値として報告している (Pszonicki et al., 1984)。

4.2.2.4 試薬

実験に使用したすべての試薬 (HCl , HNO_3 , NaNO_2 , NH_4I , H_2O_2 , HBr , H_3BO_3 , NH_3 , FeCl_3) は、分析グレードであり、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 メッシュ, Cl-形) と AG MP-1M (100-200 メッシュ, Cl-形), を用いた。どちらも前処理ののうち、ムロマック製のミニカラム (M type, 内径 6.5-8.5 mm x 長さ 58 mm) に充填し Pu 分離に使用した。試料には ^{242}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 ($>18 \text{ M}\Omega \text{ cm}^{-1}$) をすべての実験に使用した。

4.2.2.5 実験手順

調査対象の灰化温度範囲はこれまで報告のある $400-600^\circ\text{C}$ である。温度処理を変えたのち、以下の 3 つの抽出法を用いて、灰化温度に関する調査を行った。

(1) HNO_3 抽出分離法

本法は H25 年度開発した土壌 Pu 分析法である。まず土壌試料 1-3g を秤量し、約 1 pg の ^{242}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調査の温度で 5 時間灰化した。灰化試料は、硝酸抽出を行うが、その際、一般に用いられるガラスビーカーと時計皿では、加熱すると酸が損失する上、抽出効果が低くなってしまふ。そこで、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で濾過してビーカー (100 mL) に移した。用い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、洗液もビーカーに合わせた。濃硝酸は約 14.6 M なので、超純水を濾液に添加することで 8 M HNO_3 に調整した。AG 1X8 樹脂カラムに通水する前に、Pu の化学形を 4 価に調整するために、

NaNO₂を添加してNaNO₂濃度として0.2 Mに調整した後、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 HNO₃-0.2 M NaNO₂溶液で処理を行った。試料を導入後、50 mLの8 M HNO₃溶液でU, PbおよびFeをカラムから洗い流した。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。最後にPuを40 mLの0.1 M NH₄I-8.5 M HCl溶液で溶離させた。溶離液は100 mLのテフロンビーカーに採取し、ほぼ乾固するまで蒸発を行った。乾固物に1 mLの王水を添加し、再びホットプレート上で蒸発乾固を行った。この操作を2回繰り返し、残存する有機物を分解し、かつ残っているヨウ素を除去した。次に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-H₂O₂溶液（混合比：10 mL conc. HCl + 0.01 mL 30% H₂O₂）を添加し、40°Cで約30分加熱した。

この試料溶液を二番目のAG MP-1M樹脂カラムに流入した。AG MP-1M樹脂カラムは試料溶液を流入する前に8 mLのHCl-H₂O₂溶液で前処理を行っている。AG MP-1M樹脂に試料溶液を流入した後、20 mLのHNO₃で、最初にUを洗い出した。その後、カラムに残っているHNO₃を洗い出し、さらにThの除去のために8 mLの10 M HCl溶液を流入した。Puは16 mLのHBr溶液により溶離させて30 mLのテフロンビーカーに採取した。ほぼ乾固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の濃硝酸を添加し、さらに加熱した。再度乾固状態にしてから最終の残渣を0.8 mLの4% HNO₃溶液で溶解し、SF-ICP-MS測定用の試料とした。

(2) HNO₃-HF 抽出分離法

ケイ酸塩画分に含まれる残渣Pu溶出を行うためにフッ酸を使用した。(1)と同様の手順で灰化まで行った後、試料を密閉テフロン容器に移し、20-40 mLの10M硝酸-1M HF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。その後、蒸発乾固を行い、20 mL 8 M HNO₃濃度に溶解した。Puの化学形を4価に調整する方法は(1)と同じである。その後、0.3gのホウ酸を添加し、80°Cで30分間加熱した。その後の精製法は(1)と同様である(Bu et al., 2015)。試料の分解・Puの抽出、分離、精製の手順を図4.2-8に示す。

(3) HNO₃-HF-HClO₄ 分解分離法

土壌試料を完全に分解するために用いた(Zheng and Yamada, 2009)。約1-3 gの試料を秤量し、²⁴²Pu(1 pg)を収率とレーサーとして添加した。試料を100 mLのテフロンビーカーに移し、濃HNO₃(40 mL)とHF(10 mL)を加え、180-200°Cに加熱したホットプレート上で分解を行なった。分解後、試料を蒸発乾固し、3 mLの70% HClO₄を加え、HClO₄の煙がでるまで加熱した。その後、試料に3 mLの濃HNO₃を添加し蒸発乾固した。この作業を2回繰り返した。

分解した試料は、60 mLの1 M HNO₃で溶解し、4 mgの鉄(Fe²⁺)をキャリアーとして加えた(0.2 mL of 20 mg Fe mL⁻¹ in 1 M HNO₃)。溶液中のPuは0.2 gの塩酸ヒドロキシルアミン(NH₂OH・HCl)を添加し、ホットプレート上で90°Cで2時間加熱することによ

り三価の Pu(III)に還元される。室温まで冷却した後、pH を 9-10 に調整して溶液中の Pu を水酸化鉄と共沈させ、生成した沈殿をマグネティックスターラーで 2 時間静かに攪拌して熟成させてから一晩静置した。上澄み液を注意深く取り除き、水酸化鉄沈殿物を遠心分離により (3000 rpm, 1 h) 溶液から分離し、さらに上澄みを除去した。得られた沈殿物は 3 mL の濃 HNO₃ で溶解したのち、Pu(IV)に調整するために 50 mL の 8 M HNO₃ と 0.5 g の NaNO₂ を添加して、40°C のウォーターバスで 15 分間加熱した。以上の操作により得られた試料溶液を (1) の HNO₃ 抽出分離法と同じイオン交換分離法を用いて精製し、SF-ICP-MS 測定用の試料を作成した。試料の分解・Pu の抽出、分離、精製の手順を図 4.2-9 に示す。

4.2.2.6 結果と考察

IAEA の土壤標準試料-soil-6 の (1) 硝酸抽出法による分解で得られた Pu 定量結果を図 4.2-10 に示す。²³⁹⁺²⁴⁰Pu 濃度は灰化温度が上昇するに従い、減少する傾向を示した。450°C を超えない温度で灰化した試料の ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 濃度は常に報告値の範囲 (0.96 – 1.11 mBq g⁻¹) と一致した (IAEA, 1984)。しかし 450°C より高い温度で灰化した場合は、Pu 濃度が減少を示した。この結果は、温度が高くなるにつれ、測定される Pu が減少したことを示している。すべての実験条件は灰化温度以外同じであるため、我々はこれら標準物質の Pu 濃度の減少は高温 (450°C 以上) によるものと仮定した。

これを証明するために、灰化後の土壤試料中に存在する化学物質の同定のため X 線回折分析を行なった。その結果を図 4.2-11 に示す。400°C と 600°C で灰化した土壤試料と灰化しない試料について X 線回折測定を行なった。灰化していない試料と 400°C で灰化した土壤試料から得られたスペクトルはほとんど同じスペクトル・パターンを示したことから、400°C 加熱後も土壤中の化学構成物に変化がないことを示している。しかし、600°C で灰化した土壤試料のスペクトルでは、ほかの 2 つにはない 3 つの新たなピークが 25° と 30° の間に観察された。これらのピークに対応する新しい化学物質は 600°C での灰化過程において生じたものである。

これら新しく生じた物質がどのようなものであるのかを明らかにするために、今回得られた X 線回折スペクトルと向井ら (2014) が求めた土壤のスペクトルの比較を行なった。その結果を図 4.2-12 に示す。向井らは福島県の森林から腐食層土壤 (litter soil sample) を採取し、X 線回折によりその試料を分析した。彼らの結果は、土壤試料中に石英、斜長石そして角閃石があることを示している。彼らのスペクトルの一部 (20° から 30°) を図 4.2-12 に比較して示したが、2 本の石英に由来するピークはどちらのスペクトルにも同じ位置に現れており、これらを比較のためのマーカーとすることができる。なお、今回の測定で得られた 30° 近辺のピークについては、非加熱-加熱試料でも観察されているが、向井らの試料には含まれていないので、異なった組成が影響しているものと考えられた。今回観察した試料の 25° から 30° の間の 2 つの大きなピークの間には、上述したとおり、非加熱試料と 400°C 加熱試料には、明確なピークが無いが、600°C では 3 つのピークが存在しているが、同様なピークが向井らのスペクトルに現れていることがわかる。3 本のうちの中央のピークは向井らによって斜長石と確認されていることから、600°C に加熱することで斜長石のスペクトルに類似する物質が形成されたと考えられる。

斜長石は一般的に地殻に含まれているもので、ケイ酸塩の鉱物である。ケイ酸塩の鉱物は、硝酸による分解において不溶性であることが知られている。したがって、600°Cで灰化した場合、(1)の硝酸抽出法においては見られたPuの減少の結果は、恐らくこれらの新しい難溶解性のフラクションが形成される際に、このPu減少分が取り込まれたことに依るのではないかと考えられた。それを検証するために、(1)濃硝酸(硝酸可溶性画分:ケイ酸塩は抽出されない)、(2)HNO₃-HF-HBO₃(硝酸可溶性画分+ケイ酸塩画分)さらに(3)HNO₃-HF-HClO₄-Fe(OH)₃(もしくは完全分解法)を用いて、550°Cで灰化したIAEAの標準土壌試料(IAEA-soil-6)の分析を行った。その結果を図4.2-13に示す。予想したように、濃硝酸抽出法で得られた²³⁹⁺²⁴⁰Pu濃度は推奨値(0.96-1.11 mBq/g)よりも明らかに低い0.58 mBq g⁻¹であった。HNO₃-HF-HBO₃法による分解では、HFがケイ酸塩鉱物を溶解することができ、形成されたケイ酸塩フラクションが加熱する間に溶解してくると考えられる。その結果、²³⁹⁺²⁴⁰Pu濃度(0.96 mBq/g)は報告値内に収まっている。さらに全分解法では、土壌に含まれる全物質が溶解し、Puの高い回収率が期待された。図4.2-13に示した結果は、推奨値と十分一致しており、²³⁹⁺²⁴⁰Pu濃度は3つの分解法の中で最大値であった。以上の結果から、高温度での灰化(500-600°C)を行ってから硝酸抽出する方法では難溶解性のケイ酸塩鉱物が生成し、濃硝酸溶液に不溶物として残ってしまう可能性があることを確認できた。

文献において濃硝酸抽出法のための灰化温度は非常に幅が大きい(400-600°C)ということ、さらに高温での有機物灰化処理を行うことが難溶解性フラクションを生成するということを考えて、本研究の結果から、灰化温度は450°C以下にコントロールした方がよいことを示している。本研究ではPuのみ検討したが、高温度灰化で難溶解性フラクションが形成されれば、土壌中の他の放射性核種もまた減少する原因となる。したがって、本研究の結果は土壌中の他の重要な放射性核種、例えばCs-137, Cs-135, Sr-90, Am-241等の分析においても考慮すべきであろう。

引用文献

- Bu, W. T., Ni, Y. Y., Guo, Q. J., Zheng, J. and Uchida, S. Pu isotopes in soils collected downwind from Lop Nor: regional fallout vs. global fallout. Sci. Rep. submitted. 2015.
- Child, D. P., Hotchkis, M. A. C., & Williams, M. L. (2008). High sensitivity analysis of plutonium isotopes in environmental samples using accelerator mass spectrometry (AMS). *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 23(5), 765-768.
- Hirose, K., Igarashi, Y., Aoyama, M., Kim, C. K., Kim, C. S., & Chang, B. W. (2003). Recent trends of plutonium fallout observed in Japan: plutonium as a proxy for desertification. *Journal of Environmental Monitoring*, 5(2), 302-307.
- Hrnecek, E., Jakopič, R., Wallner, A., & Steier, P. (2008). A combined method for the determination of the isotopic vector of plutonium isotopes in environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 276(3), 789-793.
- IAEA. (1984). Report on the Intercomparison Run IAEA-Soil-6: Radionuclides in Soil. IAEA/RL/111, IAEA, Vienna.
- Lehto, J., Vaaramaa, K., & Leskinen, A. (2013). ¹³⁷Cs, ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am in boreal forest soil

- and their transfer into wild mushrooms and berries. *Journal of Environmental Radioactivity*, 116, 124-132.
- McAninch, J. E., Hamilton, T. F., Brown, T. A., Jokela, T. A., Knezovich, J. P., Ognibene, T. J., & Vogel, J. S. (2000). Plutonium measurements by accelerator mass spectrometry at LLNL. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 172(1), 711-716.
- Mukai, H., Hatta, T., Kitazawa, H., Yamada, H., Yaita, T., & Kogure, T. (2014). Speciation of radioactive soil particles in the Fukushima contaminated area by IP autoradiography and microanalyses. *Environmental Science & Technology*, 48, 13053-13059.
- Muramatsu, Y., Rühm, W., Yoshida, S., Tagami, K., Uchida, S., & Wirth, E. (2000). Concentrations of ^{239}Pu and ^{240}Pu and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30-km zone. *Environmental Science & Technology*, 34(14), 2913-2917.
- Ohtsuka, Y., Takaku, Y., Kimura, J., Hisamatsu, S. I., & Inaba, J. (2005). Development of rapid plutonium analysis for environmental samples by isotope dilution/inductively coupled plasma mass spectrometry with on-line column. *Analytical Sciences*, 21(3), 205-208.
- Pszonicki, L., Hanna, A. N., Suschny, O. Report on intercomparison IAEA/Soil-6 of the determination of Cs-137, Pu-239, Ra-226 and Sr-90 in soil. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria 1984.
- Qiao, J., Hou, X., Roos, P., & Miró, M. (2011). Rapid isolation of plutonium in environmental solid samples using sequential injection anion exchange chromatography followed by detection with inductively coupled plasma mass spectrometry. *Analytica Chimica Acta*, 685(2), 111-119.
- Tavčar, P., Jakopič, R., & Benedik, L. (2005). Sequential determination of ^{241}Am , ^{237}Np , Pu radioisotopes and ^{90}Sr in soil and sediment samples. *Acta. Chim. Slov.* 52, 60.
- Xu, Y., Qiao, J., Hou, X., & Pan, S. (2013). Plutonium in Soils from Northeast China and Its Potential Application for Evaluation of Soil Erosion. *Scientific Reports*, 3:2506 doi: 10.1038/srep0356.
- Zheng, J., Wu, F., Yamada, M., Liao, H., Liu, C., & Wan, G. (2008). Global fallout Pu recorded in lacustrine sediments in Lake Hongfeng, SW China. *Environmental Pollution*, 152(2), 314-321.
- Zheng, J., Yamada, M., Wu, F., & Liao, H. (2009). Characterization of Pu concentration and its isotopic composition in soils of Gansu in northwestern China. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100(1), 71-75.

4.2.3. 米中 Pu 同位体の超高精度分析法開発

IAEA 472 Report には cereal 類のアクチニド元素の土壌-農作物間移行係数 (TF) データが報告されているが、土壌-米間移行係数データはない。フランスのデータ (Duffa et al., 2002) は、ワイルドタイプの米であり、そのため一般的な米への適用が困難と考えられた

ため、収録されなかった。現在、アクチノイド元素の土壌-米間移行係数は日本では得られていない。しかしながら、中国の文献および前述のフランスにおける米の TF に関する文献調査（詳しくは、H25 報告書 4.3.1 参照）結果から、 $^{239+240}\text{Pu}$ の TF 値の最大値は 2×10^{-3} である。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（ $0.07 - 4.31 \text{ mBq/g}$ ）（Muramatsu et al., 2003）を用いて、日本における米中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度は、 $1.5 \times 10^{-4} - 8.6 \times 10^{-3} \text{ mBq g}^{-1}$ の範囲であると計算することができる（最大 TF を仮定）。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}Pu および ^{240}Pu 濃度は、それぞれ、 $0.04 - 1.9 \text{ fg g}^{-1}$ および $0.01 - 0.5 \text{ fg g}^{-1}$ に相当すると計算できる。今年度本格稼動した、Aridus II/SF-ICP-MS (Element XR)における Pu 分析の機器検出限界は 0.04 fg g^{-1} である（詳しくは、4.2.1 参照、図 4.2-3）。この値は米中の Pu 同位体濃度と同程度である。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、濃縮分析法の更なる改良が求められる。

本調査において、今年度は米灰化後の灰試料中超微量 Pu 分析するために、試料の前処理濃縮と化学分離法を重点絞り、分析法開発調査を行った。

4.2.3.1 Aridus II-Element XR システムについて

本調査において、Aridus II/SF-ICP-MS (Element XR)分析システムを用いた。分析システムの操作条件および Pu 分析の感度、精度及び検出限界について、詳しくは、4.2.1 参照とされたい。

4.2.3.2. 測定試料

本調査において、福島第一原子炉発電所事故前に日本全国 5 県の水田（EP-SD-64 秋田；EP-SD-65 新潟；EP-SD-66 富山；EP-SD-67 岐阜；EP-SD-68 長崎）から採取の土壌（5 点）と米（5 点）を測定試料として用いた。Pu 分析のクオリティ・コントロールため、土壌標準物質試料 IAEA Soil-6 を用いた。

4.2.3.3. 試薬

実験に使用したすべての試薬（ HCl , HNO_3 , NaNO_2 , NH_4I , H_2O_2 , HBr , H_3BO_3 , NH_3 , FeCl_3 ）は、上述の実験でも用いたように分析用レベルである。イオン交換樹脂も同様に Bio-Rad 社製の 2 種類のイオン交換樹脂、AG 1X8 (100-200 mesh, Cl- form) と AG MP-1M (100-200 mesh, Cl- form), を用いた。試料には ^{242}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。水はすべて超純水 ($>18 \text{ M}\Omega \text{ cm}^{-1}$) である。

4.2.3.4. 結果と考察

米中の Pu 濃度は極めて低い一方で、分析の妨害となる多量の有機物を含むため、Pu 分離・精製に有効な化学分離法がなく、したがって質量分析法による米中の Pu 分析は行なわれていなかった（Zheng et al., 2013）。機器の検出限界（4.2.1.3 参照）と TF から予想される Pu の濃度（ 10^{-4} mBq/g レベル以下）を考慮して、まず 1 kg の玄米試料を対象として

分析法の開発を行なうことにした。最初の濃縮ステップとして、米 1 kg をマッフル炉で灰化した。その結果、約 15 g の灰が得られ、これで 75 倍に濃縮できた。

しかしながら、米はほとんどが炭水化物であり、電気炉で灰化後の灰には大量の黒色炭化物が含まれている。予備的な分解操作でこれらの炭化物は強い酸化剤である硝酸には容易に溶解せず、大部分は黒色の懸濁物として濃硝酸溶液中に分散することがわかった。この黒色懸濁物は続いて行なうイオン交換分離操作における Pu の分離と精製に影響し（恐らくは、イオン交換樹脂に吸着し、樹脂のイオン交換サイトを塞いでしまうと考えられる）、回収率低下を招く。そこで、灰化試料を硝酸で分解中に過酸化水素水（ H_2O_2 ）を添加して、この黒色炭化物の除去に効果があるかどうか検討した。その結果、15g の灰に対し、約 80 mL の H_2O_2 を添加すれば、透明な溶液が得られることがわかった。このように H_2O_2 を加えて前処理した試料溶液に対して、昨年度開発した 2 段階の陰イオン交換分離法（H25 報告書 4.2.2.5 参照）を用いて Pu の分離・精製を試みた。しかし、得られた化学収率は非常に低く約 10% であった。見かけ上全ての炭化物が分解してクリアな溶液が得られたものの、炭素由来のマトリックス効果が依然残っていることを示すものである。そこで別の共沈法として、水酸化鉄共沈法や水酸化カルシウム共沈法をマトリックス元素除去のために実施したが、化学収率は改善されなかった。どのような形で Pu の分離に炭素由来のマトリックスが影響しているのか不明であるが、Pu と有機物コロイドを生成したために共沈できなかった可能性がある。

そこで、化学収率に関して供試試料量の影響を検討した。試料として玄米の灰化試料 1, 3, 5 g を秤量し、それらに対して硝酸-過酸化水素水分解法を行ない、その後、2 段階陰イオン交換分離法を行なった。その結果を図 4.2-14 に示す。比較的高い化学収率（40-50%）が 1 g および 3 g の灰化試料に対して得られたが、一方、5 g の試料では化学収率は約 20% であった。以上の結果、硝酸-過酸化水素水分解と 2 段階陰イオン交換分離をベースにした分析法では、最大使用できる米の灰化試料は 3 g までであることを示している。

米の灰化試料中に存在する黒色炭化物を除去するために、さらに別の分解法を試みた。Maxwell et al. (2013) はアルカリ熔融法で分解する方法について検討しているが、この場合は多量の塩が含まれることになり、本法で開発した分析法が使えない可能性もある。そこで、本研究では、硝酸-過酸化水素水による湿式分解の後、さらに湿式分解の残渣について、マッフル炉を用いて 540°C で 6 時間加熱する乾式灰化法を組み合わせる方法である。図 4.2-15 に示したように、この湿式-乾式灰化を組み合わせた分解法を 3 回繰り返すことにより、黒色炭化物の色を無くすことができた。これは、黒色炭化物が本法により除去できたことを示している。なお、この湿式-乾式灰化処理の繰り返しが化学収率の改善に効果があるかどうかについては、引き続き調査が必要である。

4.2.3.5. 分析法の確立

以上の結果から、米中の超微量 Pu 同位体測定のため、以下の操作実験手順（図 4.2-16）を開発した：

まず、米の灰化試料 15 g を 5 等分して 3 g ずつ分取し、120 mL のテフロン容器（Saville Corporation, Minnesota, USA）に移した。各分割試料に 1 mL (0.2 pg mL^{-1}) の ^{242}Pu tracer を添加することで、1 試料 15g に対して、合計 1 pg の ^{242}Pu を回収率トレーサーとして加

えたことになる。各テフロン容器に、20 mL の濃硝酸と 10mL の H₂O₂ を加え、ホットプレート上で 140°C で約 30 分加熱して、揮発成分を除去した。その後、テフロン容器の蓋を閉めて、密閉し、少なくとも 4 時間以上加熱した。一旦冷却の後、テフロン容器の蓋を外し、分解溶液が透明になるまで H₂O₂ を加え、再度加熱した。冷却後、上澄み液をフィルターで濾過してテフロンビーカー（100 mL）に移した。分解用の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併せた。得られた濾液を蒸発乾固し、残渣を 15mL の濃硝酸（68%）に溶解して、超純水加えて硝酸濃度を 8 M に調整した。溶液量はこのときおよそ 30 mL である。Pu の化学形を 4 価に調整するために 1g の NaNO₂（5 mL の 20 % NaNO₂）を添加して、80°C で 30 分間加熱した。

以下の分析方法は、土壌に用いた方法（4.2.2.5（1）参照）と同じであるが、植物試料の分析法を示すため、繰り返し以下に操作を記載する。なお、下線部分は土壌分析法と異なる部分である。

AG 1X8 樹脂カラム（8mL）は使用前に 30 mL の 8 M HNO₃-0.2 M NaNO₂ 溶液で処理を行った。試料を導入後、50 mL の 8 M HNO₃ 溶液で U, Pb および Fe をカラムから洗い流した。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。最後に Pu を 50 mL の 0.1 M NH₄I-8.5 M HCl 溶液で溶離させた。溶離液は 100 mL のテフロンビーカーに採取し、ほぼ乾固するまで蒸発を行った。乾固物に 1 mL の王水を添加し、再びホットプレート上で蒸発乾固を行った。この操作を 2 回繰り返し、残存する有機物を分解し、かつ残っているヨウ素を除去した。次に 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-H₂O₂ 溶液（混合比：10 mL conc. HCl + 0.01 mL 30% H₂O₂）を添加し、40°C で約 30 分加熱した。

この試料溶液を二番目の AG MP-1M 樹脂カラムに流入した。AG MP-1M 樹脂カラムは試料溶液を流入する前に 8 mL の HCl-H₂O₂ 溶液で前処理を行っている。AG MP-1M 樹脂に試料溶液を流入した後、20 mL の HNO₃ で、最初に U を洗い出した。その後、カラムに残っている HNO₃ を洗い出し、さらに Th の除去のために 8 mL の 10 M HCl 溶液を流入した。Pu は 16 mL の HBr 溶液により溶離させて 30 mL のテフロンビーカーに採取した。ほぼ乾固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 の濃硝酸を添加し、さらに加熱した。再度乾固状態にしてから最終の残渣を 0.5 mL の 4% HNO₃ 溶液で溶解し、Aridus II/SF-ICP-MS 測定用の試料とした。

4.2.3.6. 土壌—米間移行係数（TF）の取得

今年度は 5 カ所の水田から採取した土壌の土壌試料中の Pu 同位体測定を行った（EP-SD-64 秋田；EP-SD-65 新潟；EP-SD-66 富山；EP-SD-67 岐阜；EP-SD-68 長崎）。土壌試料は H 25 年度開発した硝酸抽出法を用いて分析を行っている。²³⁹⁺²⁴⁰Pu 濃度と ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比の測定結果を表 4.2-3 に示す。

水田土壌中 ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 濃度は 0.234 から 0.885 mBq g⁻¹ の範囲であった。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、日本の水田土壌中の 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。その結果から、水田土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は $0.078\sim 1.03\text{ mBq g}^{-1}$ であった。これは、本研究で得られた $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と同じレベルであることを示している。なお、水田土壌中 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、 0.160 から 0.182 の範囲であった。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。また、本調査の H25 年度では、1969 から 1977 まで福島県と関東地方において採取された土壌試料 (80 点) 中の微量 Pu の測定および Pu 同位体の分析し、事故前のバックグラウンドデータを確立しており、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^{-1} の範囲であったが、今回得られた値と同程度であったと言える。

本調査において、今年度開発した米中 Pu 同位体の超高精度分析法を用いて、Pu の土壌-米間移行係数 (TF) の取得を開始した。今年度は新潟と岐阜の水田土壌と米中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度を測定した。その結果、新潟と岐阜で得られた TF 値はそれぞれ 4.53×10^{-5} と 3.08×10^{-5} であった。得られた TF と外国データとの比較を表 4.2-4 に示す。アメリカでは温室において米への移行実験を行い、TF として $9.0\times 10^{-5}\sim 3.6\times 10^{-4}$ を報告している。また、実際のフィールド調査による研究では、約 2×10^{-3} がフランスと中国から報告されている。本調査において得られた TF 値はこれらの値よりも約 2 桁低いことを示しているが、一方で IAEA-TRS-472 の穀類で報告されている値と同レベルであった。

今後、日本全国の土壌および米試料を分析して Pu の移行係数 (TF) データを蓄集し、日本の実環境に対応できるデータベースを確立する必要がある。

引用文献

- Duffa, C., Ph Renaud, and F. Goutelard. (2002). Activities and transfers of Pu and Am in rice samples from Camargue, France. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 252 (2): 247-248
- Kelley, J. M., Bond, L. A., and Beasley, T. M. (1999). Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np , *Sci. Total Environ.* 237/238, 483-500.
- Muramatsu, Y., Yoshida, S. and Tanaka, A. (2003). Determination of Pu concentration and its isotopic ratio in Japanese soils by HR-ICP-MS. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 255, 477-480.
- Maxwell, S.L., Culligan, B.K., Hutchison, J.B. (2013). Rapid fusion method for determination of plutonium isotopes in large rice samples. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 298, 1367-1374.
- 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.
- Zheng, J., Tagami, K., Takeda, S., Bu, W. T. (2013). The key role of atomic spectrometry in radiation protection. Critical review. *J. Analytical Atomic Spectrometry* 28, 1676-1699.

4. 3. 重要核種 Th の超高精度分析法開発

4.3.1. はじめに

地層処分に伴う生物圏での安全評価において、Th は重要核種である。放射性廃棄物の地層処分システムは地球規模で周期的に起こる気候変動の影響を受ける。Th の環境移行パラメータ・データは、IAEA-TRS-472 の気候帯別 TF の結果から、気候によって値が変動する可能性があると考えられる。今後、閉鎖後長期の安全性について現実的な安全評価を行うため、気候変動を考慮したデータベースを構築することが必要である。このデータベースを構築するにおいて、土壌-農作物試料の高精度の Th 分析法を要求される。

日本の土壌中 Th 濃度は $<1 - 100 \text{ mg kg}^{-1}$ の範囲である (Yamasaki et al., 2001; Yoshida et al., 1998)。また、農耕地土壌に着目すると内田らの報告では、日本の水田および畑土壌の Th 濃度は、それぞれ 5.4 mg kg^{-1} ($2.3 - 11 \text{ mg kg}^{-1}$) および 5.0 mg kg^{-1} ($1.2 - 12 \text{ mg kg}^{-1}$) である (Uchida et al. 2007a; Uchida et al. 2007b)。すでに ICP-MS による土壌中の Th 濃度測定は十分に確立されている。土壌試料に混合酸を加えて全分解し溶液化した後、Th は分離・濃縮を行なわなくても、希釈するだけで直接 ICP-MS で測定できる。天然の Th は存在比 100% が質量数 232 であり、この質量数には妨害となる元素は存在しない (Ostapczuk et al., 2010; Sahoo et al., 2011)。一方、植物中の濃度は非常に低く、土壌濃度と比較すると数オーダー低く、数 ng g^{-1} レベル未満となることもある (Markert 1996; Uchida et al. 2007a; Uchida et al. 2007b)。Th 濃度が低いことに加え、植物中でケイ酸塩と結合していると考えられるため、植物中の Th 濃度を精度良く測定することは困難である。一般に、植物試料の分解には、硝酸のみ、硝酸-過酸化水素の混合酸または王水を使った方法が使われている。しかしながらこれらの分解法では、ケイ酸塩に結合している Th を溶解できないため Th の回収率が低くなることがある (Feng et al., 1999)。そこで植物試料中のケイ酸塩に結合している Th を完全に溶解するために、我々は硝酸-フッ化水素溶液を用いたマイクロウェーブ分解法を確立した (4.3.2. 参照)。この試料の分解溶液を 1000 倍希釈で用いた場合、一般に広く用いられている四重極型 ICP-MS (Agilent 7500c, アジレントテクノロジー) で 1 ng g^{-1} (乾燥重量) の検出下限値を得た。このレベルは植物中の Th を数 ng g^{-1} 以上の濃度を精度良く測定できるものであるが、植物中の Th 濃度がさらに低い場合は測定できない。四重極型 ICP-MS で植物中の低い Th 濃度を測定するためには、Th の濃縮・分離が必要となる。しかし、本調査研究では、我が国の土壌-植物移行係数データベース構築を目的としており、多くの植物試料の元素をできるだけ多く測定する必要があるため、可能であれば濃縮や化学分離を必要としない、より实际的で迅速な分析法が求められる。そこで今年度は、植物試料中の低濃度 Th の迅速分析に SF-ICP-MS (Element XR) を用いることができるかどうか、検討を行った。

4.3.2. 試料の前処理

乾燥させた農作物試料を 30~50g 採取し、ミキサーで粉砕後、粉砕用のメノウ製容器に移し、遊星ボールミルにて粉砕を行った。粉砕した試料は 50mL のスクリーン管に入れ保存した。

(1) 農作物試料の全分解法

概略を以下に記す。

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、硝酸

を 10mL, フッ酸を 4mL 加えた。80°C において 10 時間加熱して有機物分解後, 過酸化水素を 1mL 添加する。分解容器をマイクロウェーブにセットし, 約 10 分加熱した。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 130°C にて蒸発乾固を行った。試料に硝酸 1mL と過酸化水素 0.5mL を添加して残渣を溶かした後, 再度乾固し, 最終的に 40% 硝酸を 1mL 加え 20mL ポリエチレン製容器に移し, 超純水を添加して全量 20mL とした。この試料母液の硝酸濃度は 2%, 元素濃度は, もとの農作物試料の約 1/40 である。また, 標準試料として灌木試料 (GBW) 及びトマトの葉試料 (1573a) を使用した。

(2) ICP-MS 等の測定試料の調整

ICP-MS 等の測定において, 2%硝酸を用いて, 試料母液を希釈倍率 1000 倍または 5000 倍で希釈した。測定装置は二つタイプの ICP-MS, すなわち, 四重極型 ICP-MS と高分解能 ICP-MS (SF-ICP-MS) を用いた。以下それぞれの装置設定条件を示す。

<四重極型 ICP-MS: Agilent, 7500c>

RF Power: 1.4 kW

プラズマガス: 15 L min⁻¹

キャリアーガス: 1.2 L min⁻¹

補助ガス: 0.9 L min⁻¹

ネブライザー: バビントンネブライザー

繰り返し測定回数: 5 回

内標準元素: Bi-209

測定元素: Th-232, Bi-209

<SF-ICP-MS: Element XR with Jet interface>

RF Power: 1.3 kW

プラズマガス: 16 L min⁻¹

キャリアーガス: 1.0 L min⁻¹

補助ガス: 0.85 L min⁻¹

ネブライザー: Conical concentric ネブライザー

低分解能モード: $m/\Delta m = 300$

繰り返し測定回数: Run x pass 15x5 回

内標準元素: Bi-209

測定元素: Th-232, Bi-209

4.3.3. 結果と考察

新規導入した SF-ICP-MS (Element XR)による Th 濃度測定に際し、測定感度を上げるためジェットインターフェイスを導入した。試料吸引速度が 0.15 mL min^{-1} の設定において、植物中の Th 濃度の検出下限値は 10 pg g^{-1} (乾燥重量) であった。したがって、試料溶液を 5000 倍希釈した溶液を使用することが可能であり、希釈することにより、プラズマに導入される共存マトリクス元素濃度も低く抑えることができるので、装置安定性を保つことができる。

図 4.3-1 は、Th 濃度範囲が $3\text{--}97 \text{ ng g}^{-1}$ の植物試料 (ほうレン草, ネギ) 中の Th 濃度測定に関し、四重極型 ICP-MS と SF-ICP-MS を比較したものである。1000 倍希釈溶液で測定した ICP-QMS の結果と 5000 倍希釈溶液で測定した SF-ICP-MS の結果は良く一致していた。したがって、四重極型 ICP-MS は植物中 Th 濃度が ng g^{-1} レベルであれば、十分適応できるものであることが分かる。

図 4.3-2 は超低濃度の植物試料を用いた分析結果である。2 つの植物 (ハクサイとネギ) を硝酸-フッ酸で分解後四重極型 ICP-MS で測定を行なったが、濃度が低いため Th のシグナルを検出できなかった。しかし、新しく確立した SF-ICP-MS 法では、5000 倍希釈して測定したところ、Th 濃度が 0.27 と 0.38 ng g^{-1} と定量され、7-20 %の精度で測定することができた。したがって、まずは四重極型 ICP-MS で計測を行い、より低濃度試料には SF-ICP-MS を組み合わせて使用することで、植物中の Th 濃度を迅速に、かつ広い濃度範囲 (ng g^{-1} 以下のレベルから数十 ng g^{-1} レベル) まで測定できる。本事業において、植物中の Th 濃度分析をルーチン的に行ない、Th の土壌-植物移行係数のデータを蓄積している。これらの測定結果については第 2 章に記載している。四重極型 ICP-MS による測定で検出できていなかったり、変動が大きい試料については、SF-ICP-MS で精度良く測定する必要がある。

引用文献

- Feng, X., Wu, S., Wharmby, A., Wittmeier, A. (1999). Microwave digestion of plant and grain standard reference materials in nitric and hydrofluoric acids for multi-elemental determination by inductively coupled plasma mass spectrometry. *J. Anal. At. Spectrom.*, 1999, 14, 939-946.
- Markert B. (1996). *Instrumental Element and Multi-Element Analysis of Plant Samples*. Wiley, Chichester.
- Ostapczuk, Z. P., Dederichs, H., Hobig, J., Lennartz, R., Zoriy, M. (2010). Biomonitoring of environmental pollution by thorium and uranium in selected regions of the Republic of Kazakhstan. *J. Environ. Radioact.*, 2010, 101, 414-420.
- Sahoo, S., Hosoda, M., Kamagata, S., Sorimachi, A., Ishikawa, T., Tokonami, S., Uchida, S. Thorium, uranium and rare earth elements concentration in weathered Japanese soil samples. *Progress Nucl. Sci. Technol.* 2011, 1, 416-419.
- Uchida, S., Tagami, K., Hirai, I. Soil-to-plant transfer factors of stable elements and naturally occurring radionuclides: (1) Upland Field Crops Collected in Japan, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2007a, 44, 628-640.
- Uchida, S., Tagami, K., Hirai, I. Soil-to-plant transfer factors of stable elements and naturally

occurring radionuclides: (2) Rice Collected in Japan, J. Nucl. Sci. Technol., 2007b, 44, 779-790.

Yamasaki, S., Takeda, A., Nanzyo, M., Taniyama, I., Nakai, M. (2001). Background levels of trace and ultra-trace elements in soils of Japan. Soil Sci. Plant Nutr., 2001, 47, 755-765.

Yoshida, S., Muramatsu, Y., Tagami, K., Uchida, S. Concentrations of lanthanide elements, Th and U in 77 Japanese surface soils. Environ. Int., 1998, 24, 275-286.

4. 4. 土壤中塩素の超高精度分析開発

4.4.1. はじめに

昨年度の文献調査の結果から、安定塩素（以下 Cl と表記）のデータを用いることで、塩素-36 の TF を推定できることが示唆された（放射線医学総合研究所，2014）。安定 Cl の分析法としては、信頼性の高い方法として中性子放射化分析が挙げられるが（結田 1978, Tsukada and Nakamura, 1998），今後原子炉の利用が困難になった場合，他の機器分析を用いた分析法についても検討する必要がある。その一つに ICP-発光分光装置が挙げられ，低い検出下限値が実現できる可能性があることから，塩素の高精度分析につながると考えられた。そこで今年度は ICP-発光分光分析装置（ICP-OES）を用い，土壤中の塩素分析のための分析条件の最適化を行うことを目的として，分析法の開発を行った。

4.4.2. ICP-発光分光分析装置（ICP-OES）による塩素分析条件について

ICP-OES は各元素特有の原子線およびイオン線を測定する装置であり，元素の量が増加すればこれらの光強度が直線的に増加する。塩素の測定波長は紫外領域にあり，134.824nm であることから，一般的な装置（180 nm 以上の観測領域）では測定することができないが，紫外領域を測定できる装置であれば，高精度に測定できる可能性がある。

今回，ICP-OES は JOBIN YVON 製 Activa-M を用い，塩素の定量下限値や分析条件について検討を行った。本装置は 130nm～測定が可能であり，400nm 以下の領域で高分解能であるため，他元素の干渉をほとんど受けないことが特徴である。ICP-OES はイオンクロマトグラフィーと異なり，塩濃度が高い状態においても液体試料を導入できるという点で，固体試料を分解した溶液中の塩素を測定するのに適している。しかしながら，本装置は計測窓にフッ化カルシウムを使っていないので，塩素（134.724 nm）の透過性が低いとされる。

塩素分析条件を設定するために，以下のことについて検討を行った。

(1) RF パワーの影響

RF パワーはプラズマ中の元素の励起を促す。高すぎると共存する他元素からの発光強度が増すため妨害となるが，塩素は波長域が低いため，影響を受けないと考えられる。そこで，RF パワーを通常の 900W に対し，1300W まで変化させ，900W 時に得られるカウント強度に対する感度の増減を求めた。測定時間は 5 秒とし，塩素溶液は 100 ppm を用いた。結果を図 4.4-1 に示す。RF パワーが増加すると増感効果が見られ，1300W において約 2 倍となった。一方，塩素を含まないブランク試料では塩素領域のカウント値が増える

ことがなかった。これらの結果から、塩素を高感度で測定するためには RF パワーを上げることが効果的であることがわかった。

(2) 測定時間の影響

ICP-OES 分析では、測定波長領域の両側のバックグラウンド領域のカウンタの変動を用いて測定領域内のネットカウンタを導出する。塩素領域は感度が低いことから、バックグラウンドの変動が大きいですが、しかし、測定時間を延ばすことで、バックグラウンド変動が抑えられる可能性がある。そこで、観測時間を通常設定されている 5 秒から最大 30 秒まで変化させて、測定感度が上がるかどうか検討した。その結果、図 4.4-2 に示すように、測定時間が延びるほど感度が上昇する結果を得たが、30 秒にしても顕著に増加するものではなかった。観測時間をこれ以上延ばすことで、複数の試料を測定している間に装置自身のドリフトが生じる可能性が出てしまうことから、30 秒が適正であると考えられた。

以上の結果から、本装置を用いて測定する場合に、RF パワー 1300W、30 秒観測が最適である。本条件において得られた検量線を図 4.4-3 に示す。1 時間で 3 回の繰り返しを行ったが、ドリフトは少なく、また高い直線性が得られていることがわかる。しかしながら、得られた検出下限値は 12-15 ppm であり、本装置を用いて低濃度分析を行うことは困難であると考えられた。

念のため、本装置を用いて、比較的塩素濃度の高い標準植物試料中の塩素分析を行った。試料は 300 mg を硝酸+過酸化水素で加熱分解し、10 mL に希釈ののち、測定前に 0.45 μ m フィルターで濾過した。測定結果を表 4.4-1 に示す。各測定はばらついたが、平均値は標準物質の certified value と一致した。この結果から、比較的塩素高濃度試料については ICP-OES を用いて高精度分析が行えるといえる。しかしながら、一般的に土壌中の塩素濃度は数十 ppm 程度と低いことから（結田，1978）、より高感度の分析装置で定量することが必要である。

4.4.3. 土壌試料の溶液化について

固体試料の溶液化に関し、昨年度水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)による加熱抽出について調査検討を行った。本報告では、検討対象である土壌について実測を試みた。ただし、市販されている土壌標準物質には Cl を定量したものはないため、TMAH の適用性について検討することができない。そこで、参考値が報告されている堆積物標準物質（JSd-1, JSd-2, JSd-3 および JLk-1）に着目した。方法は以前検討したものをを用いた（Tagami et al., 2006）。その結果、濃度が低いために JSd-2 と JSd-3 では測定できなかったが、JSd-1(参考値 68 mg/kg-dry)と JLk-1(参考値 190 mg/kg-dry)について、それぞれ 65 \pm 45 mg/kg-dry および 27 \pm 5 mg/kg-dry であり、特に JLk-1 とはかけ離れた値になった。TMAH は有機物を分解するためには適しているが、鉍物の構成成分として結晶中に含まれる Cl は溶解できず、したがって、堆積物のように有機物含量の少ない試料については、全 Cl を測定することができないことが原因と考えられた。

鉍物中の塩素分析については、関谷ら（2010）が 1000 $^{\circ}$ C 以上で 30 分間加熱し、揮散した Cl を純水にトラップし IC で測定する方法を報告している。そこで、同じようなシステ

ムである塩素分析計を用いて試料量 11-20 mg を用い、揮散温度として 1050°C、1 分間の加熱継続条件下で測定したところ、JSd-1 を参照にすると、JSd-2 は参考値 (28 mg/kg-dry) の 2 倍、JLk-1 は参考値の 6 割程度の値となり、岩石標準物質によって、1050°C で加熱しても揮散量が異なることがわかった。加熱しても鉍物外に放出されない Cl については、生物にはほとんど利用されないものと考えられるが、土壌試料の溶液化については、塩素を含まない試薬を使う工夫をすることで、より最適な分析条件が得られると考えられる。4.4.1 では、植物試料であるが、硝酸+過酸化水素を用いた抽出方法により塩素の測定を行うことができた。この方法では Br や I の測定が難しくなるが、塩素の測定に特化した方法として用いることができると考えられる。

4.4.4. 土壌中の塩素分析のための分析条件の最適化のまとめ

塩素分析のために ICP-OES を用いた分析条件の最適化を行った。その結果、RF パワーおよび測定時間を調整することで、感度が高くなることがわかった。その条件下において塩素の定量下限値を測定したところ、12-15 ppm であり、土壌中の塩素測定には使用困難であることが示唆された。予備実験として ICP-MS で測定する方法について検証をしており、現在のところ、検出下限値を 1/10 以下に減らすことができることを確認している。来年度は ICP-MS を用いる方法についての検討を行い、土壌試料中の塩素濃度定量を進める予定である。

4.4.5. 塩素の土壌の分析と TF データのためのデータベース化

本年度は国内土壌の塩素 (Cl) 濃度について文献調査による分析を試みた。また、これらのデータを用いて TF を求め、データベース化を行った。

土壌中濃度については、Yuita et al. (1982a, 1982b), Yuita (1983)により本州中部を中心とした濃度調査が行われており、また、Tsukada and Nakamura (1998), Tsukada et al. (2007), Tsukada and Takeda (2008)も青森県の農産物に対する移行係数を求める目的で定量を行っている。陸上の塩素の起源は一般に風送塩として海からもたらされ、沿岸に近い降水ほど塩素濃度が高いことが観察されている (Narita et al., 2001)。しかしながら結田 (1984) は土壌測定結果より、内陸で土壌中塩素濃度が高くなる結果は得られなかったとしている。さらに Tagami and Uchida (2006) は河川水中の塩素濃度測定の結果、内陸部から沿岸域に近づくほど、塩素濃度が高くなることを示している。これは、海塩起源の塩素は降水中で溶解性が高い状態で運ばれて陸地に降下するが、土壌に収着されにくいため、河川を通じて再び海に循環していることを示している。

土壌中の塩素濃度について、103 データを収集することができた。土壌中濃度は対数正規分布しており、幾何平均値として 99 mg/kg-dry (範囲: 12-420 mg/kg-dry) を得た。これらのデータには、森林地で採取されたものと、農耕地で採取されたものがある。そこでこれらと比較したところ (図 4.4-4), ANOVA テストでは有意差は見られなかった。表 4.4-2 に今回の土壌データの収集結果と併せて、岩石およびノルウェーで測定されたデータ (Kabata-Pendias, 2001) を比較のために示した。

TF については、農作物中の濃度データが必要であり、多くの青森県内の農作物データが Tsukada and Nakamura (1998) によって、また、白米についても Tsukada et al. (2007),

Tsukada and Takeda (2008)により報告されている。米については濃度が低いため多くのデータがないが、Tsukada and Takeda (2008)によれば、茎葉部中の濃度は白米中の濃度の27倍である。Yuita et al. (1982a, 1982b), Yuita (1983)は米の葉部の塩素濃度分析を行っていることから、茎葉部と白米濃度比27を用いて白米中の濃度を推定し、土壌中の濃度から白米のTFを推定した。その結果、全てのデータ数は33であり、幾何平均値としてTF=2.3(範囲:0.4-6.0)を得た。今後は実測によりさらにデータを蓄積していく予定である。

引用文献

- Kabata-Pendias, A. (2001). Trace Elements in Soils and Plants, 3rd Edition. CRC Press, Boca Raton.
- Narita, Y., Satoh, K., Hayashi, K., Iwase, T., Tanaka, S., Dokiya, Y., Hosoe, M., Hayashi, K. (2001). Long term trend of the chemical concentrations in Tokyo metropolitan area in Japan. Water Air Soil Pollution 13, 1649-1654.
- Tagami, K., Uchida, S. (2006). Concentrations of chlorine, bromine and iodine in Japanese rivers. Chemosphere 65, 2358-2365.
- Tagami, K. Uchida, S., Hirai, I., Tsukada, H., 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.
- 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.
- Tsukada, H., Hasegawa, H., Takeda, A., Hisamatsu, S. (2007). Concentrations of major and trace elements in polished rice and paddy soils collected in Aomori, Japan. J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry 273, 199-203.
- Tsukada, H., Takeda, A. (2008). Concentration of chlorine in rice plant components. J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry 387-390.
- Yuita, K., Nobusawa, Y., Shibuya, M., Aso, S. (1982a). Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. I. Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of the basin of the Miomote River. Soil Science and Plant Nutrition 28, 315-336.
- Yuita, K., Akabe, S., Shibuya, M., Aso, S. (1982b). Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. II. Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of the basin of the Nagara River. Soil Science and Plant Nutrition 28, 499-515.
- 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 Science and Plant Nutrition 29, 403-428.
- 関谷, 安斎, 村松, 松本, 戸丸 (2010). 加熱分離法による標準岩石中の Cl, Br, I 定量法の検討及び海底堆積物への応用. 日本地球学化学会年会講演要旨集 (第 57 回)
- 放射線医学総合研究所 (2014). 放射性核種生物圏移行評価高度開発 (平成 25 年度報告書) http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-19-1.pdf

結田 (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, 613-627

結田 (1984). 本州中央部の黒ボク土壌および植物中ヨウ素, 臭素および塩素含量. 日本土
壌肥料学会雑誌 55, 117-122.

4. 5. 重要核種 Pu, Am, Th および Cl の土壌-農作物の環境移行パラメータ文献調 査

4.5.1. はじめに

2010年にIAEAはTechnical Reports Series No. 472「Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments」を出版し (IAEA, 2010), 自然放射性核種および人工放射性核種の土壌-植物移行係数 (TF) を提供した。TRS-472のTFデータは様々なソースから引用されており, 最も信頼できるソースとしてはレビューが行われている学術誌, 次に, 科学誌を専門に扱う出版社から出版されている本, さらには学会プロシーディングスや研究所レポートであり, データの重複を避けるために Review paper は含まずにデータ蓄積を行ったものである。文献の最も新しい引用年は 2007年であるが, 時間的な制約もあり, とりまとめが最終段階に入っていた 2006-2007年のデータは十分にカバーできていない可能性がある。しかしながら, 前パラメータ集である IAEA-TRS-364 (1994) は 1992年以前のデータを収録したものであるが, それから 20年余りのデータを TRS-472は網羅しており, また, データは専門家によって厳密に選択されていることから, TRS-472は, 将来に渡って多くのモデルによる放射線影響評価で使用される重要なデータ集であると言える。

しかしながら, このデータ集も完全なものではない。TECDOC-1616中で TRS-472をとりまとめた研究者らが指摘しているように, TFデータ登録数はCsやSrといった数少ない元素については多くの報告値があるが, Th, PuやClといった元素については, データ登録数は統計処理できるほどの数はなく, さらにCu, Ag, NaやWのような元素では, 登録数は100以下になってしまう (IAEA, 2009)。本調査研究の目的の一つは, 放射性廃棄物処分の生物圏安全評価において重要な放射性核種の環境移行パラメータを求めることであるが, 特に国際的にも, 国内的にもデータ数が少なかったり, 気候により変動が認められるものについてはその原因究明をすることが重要であるとの考えから, データを蓄積しており, 得られたデータは将来, このような国際データベースに登録できるように準備しておく必要がある。また, 実測データだけではなく, 文献調査によって, 現在報告されているデータを逐次蓄積し, データ解析を行うことも重要である。

国際的なデータ集である TRS-472に登録されたデータ取扱最終年である 2007年以降も, TFに関する多くの研究が行われ, 新しいデータが報告されている。本調査では, これら新しく導出されたTFを収集し, IAEAが行った手法と同様のアプローチでデータを解析を行った。特にPu, Cl, AmそしてThについて, 2008年から2014年までに発表された文献から調査した新しいTFに関する要約と統計的な解析を行なった。

4.5.2. データ収集および統計解析

多くのパラメータが土壌-植物 TF に影響を与えるが、その主な例は、植物の種類、土壌の種類、放射性核種、気候そして栽培方法である。そこで、異なった放射性核種や土壌、植物を含む実験を基にした論文に書かれている TF を調査した。しかし、土壌の種類を特定することができない論文もあり、したがって、我々の統計解析においては植物分類だけを考慮し、すべて「all type」として取り扱った。さらに、アジアの食品構成において特別な役割であること (Uchida et al., 2007) を考慮し、米を穀類の分類から分けて、独立した項目として解析した。

IAEA TRS-472 (2010) がまとめた TF は、次のように定義されている。

TF=農作物中放射性核種濃度 (Bq/kg-dry) /土壌中放射性核種濃度 (Bq/kg-dry)

結果を生重量で報告しているデータについては、乾物重当たりにより再計算する必要がある。

それぞれの植物分類に対して、Th, Am, Pu および Cl の TF の解析を行なった。幾何平均 (GM) と算術平均 (AM), それらの不確実性を表す幾何標準偏差 (GSD) と標準偏差 (SD) も求めた。付随して最大と最小値の範囲とデータ数および引用文献も併記することとした。

4.5.3. IAEA TRS-472 との比較

結果を表 4.5-1 から表 4.5-4 に示す。文献から得られた新しいデータセットは TRS 472 の報告値とほぼ一致している。Th の場合、すべての植物タイプを考慮すると TF の範囲は 5.0×10^{-5} から 1.7 であり、一方 TRS 472 の範囲 ($10^{-6} - 10^0$) なので、良く一致していると言える。Am の場合は、すべての植物タイプに対する TF の範囲は $3.6 \times 10^{-6} - 5.0 \times 10^{-3}$ であり、TRS 472 の範囲内 ($10^{-7} - 10^{-1}$) であった。また、Pu の TF の範囲 ($10^{-5} - 10^{-3}$) は TRS 472 の範囲内 ($10^{-7} - 10^{-3}$) であった。Cl の場合は、新しく得られた TF の幾何平均値は TRS 472 の範囲 ($10^0 - 10^2$) とほぼ一致している。

Th の経根吸収は TRS 472 が出版された後も良く研究されており、最近の調査で 277 データが報告されている。表 4.5-1 に示されているように、2つのデータセットを詳細に比較すると、葉菜類、穀類、米および牧草の TF は IAEA の幾何平均値に良く一致している。ただし、気象条件や TF を求める実験条件等の影響のため、同じ採取場所で作物 (可食部) が異なれば、また、同じ作物でも場所が異なれば、1桁以上の違いが見られる。従って、ある一定の作物-土壌の組み合わせで1桁以内のTFの変動は一般的に見られる現象であると言える。Thの最大TF値は根菜類 (5.1×10^{-1}) と塊茎類 (5.5×10^{-1}) で得られた。これらは TRS 472 の中の相当する TF 値よりも3桁高い。特に高い値を報告しているレポートについて、分析法を確認したところ、主に Ge 半導体検出装置を使った分析であった。一方で、低い TF を報告しているのは ICP-MS 等の分析手法である。このような分析法の違いが本当に影響しているのかどうかについては、さらに複数のデータを収集して解析しなければならない。また、違いを与える要因としては、異なった水利条件、植物生育期間の違い、そして研究サイトの栽培方法の違いも考慮しなければならない (Asaduzzaman et al., 2014)。

Am, Pu および Ci の場合は、TF 値を報告している文献が少なかった。Am と Pu については、それぞれ 37 と 43 件の TF 値が報告されているが、Ci は 17 件のみであった（うち 5 件はマツの葉）。Eslava-Gomez and Brown (2013) は土壌 (loam, peat, sand) から作物 (キャベツ, 人参, ジャガイモ) への Sr, Cs, Pu および Am の TF 値を求める実験をイギリスでおこなっている。Pu と Am の結果は一般的に IAEA の値と一致していた。表 4.5-2 と表 4.5-3 に文献から得られた Am と Pu の TF 値と TRS 472 の TF 値を 5 つの植物分類について示した。これらを比較すると葉菜類 (Am と Pu) と非葉菜類 (Pu) を除いて、ほとんどの作物種で 1 桁の違いであった。

TRS 472 において、Ci の TF はいくつかの作物分類 (例えば家畜用トウモロコシ, 非葉菜類, 塊茎類および牧草) について報告がない。本調査では表 4.5-4 に示したように、2 つの参考文献があり、牧草への TF (幾何平均値=14) と樹木葉への TF (幾何平均値=4.4) があるが、これらについては ICRP 114 (2009) で報告された値であり、放射性核種の人への移行調査のために利用するパラメータとしては適切ではないかもしれない。さらに、塚田ら(2007, 2008)は土壌から白米への TF を求めており、算術平均値として 0.5 であった。この値は TRS 472 の穀類の分類で公表されているデータよりも一桁低い。

本調査結果と TRS 472 を視覚的に比較するために、Th, Am, および Pu の TF を図 4.5-1 から図 4.5-3 にプロットした。X 軸は植物分類を示し、斜線部分は TRS 472 のデータ範囲を示している。それぞれの点は個々の文献における算術平均を示す。

図 4.5.1 から分かるように、牧草, 葉菜類および非葉菜類の分類の Th-TF はほとんど IAEA のデータと一致している。一方、やや高い TF が根菜類, 塊茎類および穀類で観察された。IAEA のデータ範囲を超えた TF は、上述したように作物群以外の要因の影響によるものと考えられる。図 4.5.2 と図 4.5.3 から、本調査で得られた Am と Pu のほとんどが IAEA のデータ範囲を超えていることが分かる。これは TRS 472 の登録データ数が少ないことも要因ではないかと思われる。データ数が少ないほどその代表性を低下させる。図 4.5-3 において、ICRP (2009), Xu et al. (2009) および Li et al. (2011) から得られた牧草の TF 値は、TRS 472 の範囲よりもすべて大きいことから、やはりデータ数を充実させることが重要であることを示している。

TRS 472 の米の TF においては、調査した 4 つの元素の中で、Th だけが示されている。塩素は別のグループにより取りまとめられたが、その際に報告値が無かった。また、Pu および Am については、用いられている実験条件が平衡状態ではなかったり、米の種類が適切ではなかったとの判断がなされていることに依る。TRS-472 において、Th の米への TF として 2.2×10^{-5} から 3.0×10^{-2} の範囲が報告されており、その幾何平均値は 1.6×10^{-4} である。表 4.5-1 に示した本調査で得られた TF 値と比較すると、本調査で得られた TF の方が 2 桁ほど TRS 472 の TF よりも高く、その幾何平均値は 3.8×10^{-2} である。Th は環境中において難溶性の化学種で存在することから、TF は低く、TRS-472 でももっとも TF が高いとされる作物種である葉菜類でも 1.2×10^{-3} であることから、やはりそれよりも低くなるのが化学的に妥当であると考えられる。しかしながら、文献では 3.8×10^{-2} が得られ、葉菜類よりも一桁以上高かった。上述した通り、測定方法によって TF が異なる傾向があり、したがって、データの信頼性について議論する必要があるだろう。

Am と Pu の米への TF について、比較のために記載しておく。USA の Adriano et al. (1981)

は温室で米を育て、得られた Pu の土壌-米(白米か玄米は不明)の TF は幾何平均で 1.8×10^{-4} (範囲: 9.0×10^{-5} – 3.6×10^{-4}) であった。Zhang et al. (1989) は中国において核実験サイト周辺の 9 地点とコントロールとして 3 地点で集めた米の Pu 濃度を測定し、TF は 2×10^{-3} であった。さらに、フランスにおいて Duffa et al. (2002) は土壌中の ^{241}Am と $^{239,240}\text{Pu}$ を測定し、それに対応した Koral 米 (wild type の玄米と推定される) の濃度も測定し、Am と Pu の土壌-米 TF を求めた。これは超ウラン元素により汚染した水を灌漑して栽培されたものであるが、その結果、Pu と Am の土壌-米 TF としてそれぞれ $1.4 \times 10^{-3} \pm 0.7 \times 10^{-3}$ および $2.5 \times 10^{-3} \pm 1.2 \times 10^{-3}$ が得られた。以上から、米への Pu の TF は $10^{-4} - 10^{-3}$ であり、TRS 472 に報告されている穀類への幾何平均値 (9.5×10^{-6}) よりも 1 桁から 3 桁高い。ただし中国での研究は土壌の再浮遊や表面吸収の可能性があり、TF を過大評価しているかもしれない。また、フランスの実験は汚染した灌漑水を用いており、汚染土壌からの吸収実験とは異なる。しかし、本調査により、全体として、Am, Pu および Ci の土壌-米 TF はデータが少ないということが明確になった。

引用文献

- Adriano, D. C., McLeod, K. W., & Ciravolo, T. G. (1981). Plutonium, curium, and other radionuclide uptake by the rice plant from a naturally weathered, contaminated soil. *Soil Science*, 132 (1): 83-88
- Alharbi, A., & El-Taher, A. (2013). A Study on Transfer Factors of Radionuclides from Soil to plant. *Life Science Journal*, 10 (2), 532-539.
- Asaduzzaman, K., Khandaker, M. U., Amin, Y. M., Bradley, D. A., Mahat, R. H., & Nor, R. M. Soil-to-root vegetable transfer factors for ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K , and ^{88}Y in Malaysia. *Journal of environmental Radioactivity*, 135, 120-127.
- Aswood, M. S., Jaafar, M. S., & Bauk, S. (2013). Assessment of Radionuclide Transfer from Soil to Vegetables in Farms from Cameron Highlands and Penang, (Malaysia) Using Neutron Activation Analysis. *Applied Physics Research*, 5 (5), p85.
- Blanco Rodríguez, P., Vera Tomé, F., Lozano, J. C., & Pérez Fernández, M. A. (2010). Transfer of ^{238}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , and ^{210}Pb from soils to tree and shrub species in a Mediterranean area. *Applied Radiation and Isotopes*, 68 (6), 1154-1159.
- Černe, M., Smodiš, B., Štrok, M., & Jaćimović, R. (2010). Accumulation of ^{226}Ra , ^{238}U and ^{230}Th by wetland plants in a vicinity of U-mill tailings at Žirovski vrh (Slovenia). *Journal of Radioanalytical and Nuclear chemistry*, 286 (2), 323-327.
- Chakraborty, S. R., Azim, R., Rahman, A. R., & Sarker, R. (2013). Radioactivity Concentrations in Soil and Transfer Factors of Radionuclides from Soil to Grass and Plants in the Chittagong City of Bangladesh. *Journal of Physical Science*, 24 (1), 95-113.
- Dragović, S., Mihailović, N., & Gajić, B. (2010). Quantification of transfer of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs in mosses of a semi-natural ecosystem. *Journal of Environmental Radioactivity*, 101 (2), 159-164.
- Duffa, C., Ph Renaud, and F. Goutelard. (2002). Activities and transfers of Pu and Am in rice samples from Camargue, France. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 252 (2):

- Eslava-Gomez, A., & Brown, J. Determination of Root Uptake to Vegetables Grown in Soil Contaminated for Twenty-five Years. Health Protection Agency, Oxfordshire
- IAEA. (1994). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. Technical Report Series, TRS-364, IAEA, Vienna.
- IAEA. (2009). Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA Technical Document, TECDOC-1616, IAEA, Vienna
- IAEA. (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Report Series, TRS-472, IAEA, Vienna
- ICRP. (2009). Environmental Protection: Transfer Parameters for Reference Animals and Plants. ICRP Publication 114, Ann. ICRP 39 (6)
- Khan, H. M., Chaudhry, Z. S., Ismail, M., & Khan, K. (2010). Assessment of radionuclides, trace metals and radionuclide transfer from soil to food of Jhangar Valley (Pakistan) using gamma-ray spectrometry. *Water, Air, & Soil Pollution*, 213 (1-4), 353-362.
- Khan, H. M., Ismail, M., Khan, K., & Akhter, P. (2011). Measurement of radionuclides and gamma-ray dose rate in soil and transfer of radionuclides from soil to vegetation, vegetable of some Northern area of Pakistan using γ -ray spectrometry. *Water, Air, & Soil Pollution*, 219 (1-4), 129-142.
- Kritsanawanuwat, R., Sahoo, S. K., Arae, H., & Fukushi, M. (2014). Distribution of ^{238}U and ^{232}Th in selected soil and plant samples as well as soil to plant transfer factors around Southern Thailand. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1-7.
- Kumar, A., Singhal, R. K., Preetha, J., Rupali, K., Narayanan, U., Suresh, S., ... & Ranade, A. K. (2008). Impact of tropical ecosystem on the migrational behavior of K-40, Cs-137, Th-232 U-238 in perennial plants. *Water, Air, and Soil Pollution*, 192 (1-4), 293-302.
- Lehto, J., Vaaramaa, K., & Leskinen, A. (2013). ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in boreal forest soil and their transfer into wild mushrooms and berries. *Journal of Environmental Radioactivity*, 116, 124-132.
- Li, J., Baohua, H. A. N., & Binghui, M. A. (2011). Study on the Reference Plants for the Assessment of Radiation Impact on Non-Human Species in Southwest of China.
- Mheemeed, A. K., Najam, L. A., & Hussein, A. K. (2014). Transfer factors of ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th from soil to different types of local vegetables, radiation hazard indices and their annual doses. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 302 (1), 87-96.
- Mihaylova, V., Todorov, B., & Djingova, R. (2013). Determination of Uranium and Thorium in soils and plants by ICP-MS. Case study of Buhovo region. *Comptes Rendus De L Academie Bulgare Des Sciences*, 66 (4), 513-518.
- Oufni, L., Taj, S., Manaut, B., & Eddouks, M. (2011). Transfer of uranium and thorium from soil to different parts of medicinal plants using SSNTD. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 287 (2), 403-410.
- Pallavicini, N. (2011). Activity concentration and transfer factors of natural and artificial

- radionuclides in the Swedish counties of Uppsala and Jämtland. Swedish University of Agricultural Sciences, Sweden
- Popic, J. M., Salbu, B., Strand, T., & Skipperud, L. (2011). Assessment of radionuclide and metal contamination in a thorium rich area in Norway. *Journal of Environmental Monitoring*, 13 (6), 1730-1738.
- Saeed, M. A., Yusof, S. S., Hossain, I., Ahmed, R., Abdullah, H. Y., Shahid, M., & Ramli, A. T. (2012). Soil to rice transfer factor of the natural radionuclides in Malaysia. *Rom J Phys*, 57 (9-10), 1417-1424.
- Shanthi, G., Maniyan, C. G., Allan Gnana Raj, G., & Thampi Thanka Kumaran, J. (2009). Radioactivity in food crops from high-background radiation area in south west India. *Current Science*, 97 (9), 1331-1335.
- Smodiš, B., Štok, M., & Černe, M. (2012). Radioecology studies in the vicinity of a closed uranium mine. In *EPJ Web of Conferences* (Vol. 24, p. 06008). EDP Sciences.
- Štok, M., & Smodiš, B. (2013). Soil-to-plant transfer factors for natural radionuclides in grass in the vicinity of a former uranium mine. *Nuclear Engineering and Design*, 261, 279-284.
- Tsukada, H., Hasegawa, H., Takeda, A., Hisamatsu, S. (2007). Concentrations of major and trace elements in polished rice and paddy soils collected in Aomori, Japan. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 273, 199-203.
- Tsukada, H. and Takeda, A. (2008). Concentration of chlorine in rice plant components. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 278(2), 387-390.
- Uchida, S., Tagami, K., & Hirai, I. (2007). Soil-to-plant transfer factors of stable elements and naturally occurring radionuclides : (2) Rice collected in Japan. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 44(5): 779-790
- Xu, H., Jin, Y. R., Li, W. P., Tian, M., Zeng, K., Wang, W, X., Wang, Y. (2009) Uptake and transfer of radionuclides by some arid plants from a radioactive contaminated site.” *Progress Report on China Nuclear Science and Technology* 1: 271-280. (In Chinese).
- Zhang, J. J., Wei, J. G., Xu, H., Zou, W. L. (1989). The Plutonium (Pu) radiation level in food in the residential areas around the nuclear testing site in Xinjiang. *Research of Environmental Sciences*, 2(2):27 – 31 (In Chinese)
- Zhang, Z. Q., Chen, D. Y., Song, G., Yue, Y. M. (2011) Uptake of Radionuclides from Soil to Plant and the Discovery of ^{226}Ra , ^{232}Th Hyper-accumulator. *Environmental Science*, 32(4), 1159-1163 (In Chinese)

4. 6. まとめ

4.6.1 重要核種 Pu, Th および Cl の超高精度分析

4.6.1.1. Pu の超高精度分析

本年度はまず、昨年度導入した SF-ICP-MS をより高感度に使用するために、高効率導入装置 Aridus II と APEX-Q について、ウラン水素化物 ($^{238}\text{UH}^+$) の発生低減、感度の増加の程度、バックグラウンド、および検出下限値について検討するとともに、使用上問題

になるメモリー効果についても確認を行った。どちらも $^{238}\text{UH}^+$ の生成率はほぼ 2×10^{-5} 以下が得られ、良好であり、それぞれ 100 M/ppb と 60M/ppb に相当する高い感度が得られた。これらの結果は、SF-ICP-MS を通常の導入方法で測定したときの約 20~30 倍の感度を得られることを示しており、AMS と匹敵する測定能力であるといえる。Aridus II システムでより高い感度が得られたが、メモリー効果も大きく、したがって、試料によってこれらの導入装置を使い分けながら使用方法が測定効率を向上に有効である。なお、検出下限値は 0.043 fg mL^{-1} であり、Pu 分析に必要な試料溶液量は 0.125 mL であることから、実質の検出感度は 1 回の測定において 0.005 fg ということになる。

この Aridus II/SF-ICP-MS (with Jet-interface) 分析システムを用いた Pu 同位体分析の精度と確度を調べたところ、Element XR だけで得られた $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比の精度 (RSD %) は 20.5 %、確度は -3.3 %であったのに対し、新しく開発した分析システム (Aridus II/SF-ICP-MS with Jet-interface) では精度が 5.0 %、確度が 0.83 %であった。また超微量レベルの $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比測定における測定の長期安定性について、8 ヶ月間にわたるテストで測定された $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比の変動は、 $\pm 1\sigma$ 以内であり、長期間の安定性を確認できた。

次に、土壌試料の Pu 同位体測定に関連し、分析前に行う灰化处理 ($400\text{-}600^\circ\text{C}$) の影響について検討を行った。通常は灰化处理の後、硝酸抽出法で Pu を抽出してイオン交換法により分離・濃縮を行うが、灰化温度が上昇するほど Pu の定量結果が下がることを得た。これは灰化处理中に生成するケイ酸塩由来の物質等 (例えば斜長石) が Pu を取り込んでしまうために、硝酸抽出では十分 Pu を溶出できないためと考えられた。実際、ケイ酸塩を溶出する方法で抽出すると、Pu の定量結果は想定される値の範囲内になることを確認した。したがって、あまり高温での灰化处理を行わない方が、Pu 定量のためには必要であることがわかった。

今年度は、さらに玄米試料の Pu 定量を試みた。分析上問題となったのは、米試料に多く含まれる有機物である。米を 1 kg 灰化处理すると、75 g の灰を得ることができたが、減少した部分はほとんど有機物に由来する。このように多量の有機物を灰化する場合、完全に灰化しきれずに黒色炭化物として灰試料に残ってしまい、硝酸で抽出を行っても酸化しきれず、回収率の低下に繋がった。そこで、硝酸抽出後、残渣をマッフル炉で加熱・分解する操作を 3 回繰り返したところ、黒色が消えて十分灰化することができた。なお、灰試料を分析に用いる際、1, 3, 5 g を使って検討したところ、5 g 使用することで回収率が減少してしまっていたが、3 g では約 50% の回収率を得ることができた。灰試料としては 15 g 必要であるため、1 試料を 5 分割して分析を行うこととした。その結果、上述で開発した新測定システムを用いて、玄米中の Pu の定量を行い、また同時に採取した土壌試料も分析して、2 試料の移行係数 ($3.1\text{-}4.5 \times 10^{-5}$) を得ることができた。今後さらに分析を行って、我が国の Pu 移行係数の蓄積を行う必要がある。

4.6.1.2. Th の超高精度分析

一般に農作物中の Th 濃度は極めて低く、定量が困難である。一方で土壌中の濃度は測定法が確立されていることから、農作物中の濃度が精度良く測定できれば移行係数を蓄積することができる。Th の超高精度分析については、一般的に用いられる四重極型 ICP-MS では定量が困難となるケースがあったことから、昨年度導入した SF-ICP-MS システムを

適用する方法について検討した。この装置は検出下限値が十分低いために、試料を全分解し希釈することで、高精度な分析結果が得られることがわかった。本年度は、SF-ICP-MSシステムで測定する試料の調査を四重極型 ICP-MS で行って、定量結果を提供したが、低濃度試料について SF-ICP-MS によりさらにデータを蓄積する必要がある。

4.6.1.3. 塩素の超高精度分析

塩素分析の高精度化については、ICP-発光分光分析法を用いる方法について検討した。ICP-OESのうち、低波長を測定できる装置を用いると高感度で測定できる可能性があったため、装置条件として、RF パワーや測定時間の最適化について検討したところ、RF パワーを 1300W と測定時間を伸ばした方が感度が良くなる結果を得た。しかしながら用いた装置には低波長領域の透過率が十分ではないシステムであったため、低濃度試料を測定するための十分な感度を得ることができなかった。予備的な調査として、最新型の ICP-MS を用いると、ICP-OES よりも高感度で測定できることが分かったため、今後は ICP-MS を用いて定量を進める予定である。そのための試料前処理法について検討したが、植物試料で用いることができる TMAH 分解法では、堆積物試料では定量結果が低くなる結果であった。分解を行う条件として硝酸抽出を用いる方法が塩素分析には適切であることがわかった。土壌中塩素濃度分析については、日本の土壌中濃度についての文献調査を行い、幾何平均値として 99 mg/kg-dry (範囲：12-420 mg/kg-dry) を得た。また、濃度は土壌の利用形態に依存していなかったことから、農耕地土壌でも同程度の濃度であると考えられた。本年度の最適な分析方法の検討において、定量分析についてはほぼ決定できたため、今後はデータを蓄積していく。

4.6.2 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

TF について、文献調査により IAEA TRS-472 以降に採取されたもののうち、Th, Pu, Am および Cl についてデータを追加した。Th については 277 点、Pu と Am と Cl については、データは追加されていたものの、作物種毎の違いを考慮すると統計処理を行える程度にまで十分な数ではないことが明らかとなった。なお、Th データでは IAEA-TRS-472 に比べて明らかに高い値が報告されており、これが土壌、品種、気候、さらには分析法の違いに依存するのかどうかについては明確ではなかった。Th についてはデータがこれからも多く報告されると期待できることから、上述の点について注意しながらデータ整理と解析をすすめる。なお Pu や Cl は本調査によって実環境中のデータを収集しているところである。このようなデータを収集して我が国独自のデータベース構築を行うとともに、世界的にも数が少ないこれらのデータを今後国際的に提供していくことが重要ではないかと考えられる。

表 4.2-1 SF-ICP-MS (Element XR) と APEX-Q および Aridus II システム
における測定条件

SF-ICP-MS	
機器設定条件	
Forward power	1200 W
Nebulizer	Conical concentric and PFA Aspire
Sample cone	Nickel, 1.1 mm orifice diameter
Skimmer cone	Nickel, 0.8 mm orifice diameter or X-cone with Jet-interface
Torch	Fassel
Cool gas	16 l min ⁻¹
Auxiliary gas	0.85 l min ⁻¹
Sample gas (nebulizer gas)	0.97-1.00 l min ⁻¹ (optimized daily to highest intensity of ²³⁸ U ⁺ and lowest possible oxide formation rate)
データ取得条件	
<i>Low resolution (m/Δm = 300):</i>	
Acquisition mode	E-scan (peak jumping)
Monitored isotopes	²³⁸ U ⁺ , ²³⁹ Pu ⁺ , ²⁴⁰ Pu ⁺ , ²⁴¹ Pu ⁺ , ²⁴² Pu ⁺
No. of scans (runs x passes)	20 x 4
Mass window	10 %
Samples per peak	100
Sample time	10 ms for ²³⁸ U ⁺ ; 30 ms for ²⁴² Pu ⁺ ; 100 ms for ²³⁹ Pu ⁺ and ²⁴⁰ Pu ⁺
Integration type	Average
Total time of analysis	150 s
APEX-Q 設定条件	
Sample uptake rate	0.2 ml min ⁻¹ (with conical nebulizer)
Spray chamber temperature	140 °C
Condenser temperature	2 °C
Sweep gas (Ar)	3 l min ⁻¹
Additional gas (Ar)	0.1 l min ⁻¹
N ₂ gas	~ 10 ml min ⁻¹
Aridus II 設定条件	
Sample uptake rate	0.05 ml min ⁻¹ (with PFA Aspire nebulizer)
Spray chamber temperature	110 °C
Membrane oven temperature	160 °C
Sweep gas (Ar)	6.5 l min ⁻¹
N ₂ gas	~ 5 ml min ⁻¹

表 4.2-2 Aridus II/SF-ICP-MS による 1 回測定 (run × pass : 20 × 4) における
超微量 Pu 同位体の測定精度と確度

Analytical system	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu atom ratio		²³⁹ Pu conc. (fg mL ⁻¹)	Precision (%)	Accuracy (%)
	Measured	Certified			
A	0.234±0.048	0.242	100	20.5	-3.3
B	0.240±0.012	0.242	100	5.0	0.83

A: Element XR without Jet-interface. B: Aridus II/SF-ICP-MS with Jet-interface.

表 4.2-3 土壌試料中 Pu 同位体の濃度と ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比

試料番号	採取場所	²³⁹ Pu activity (mBq/g)	²⁴⁰ Pu activity (mBq/g)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu activity (mBq/g)	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu atom ratio
EP-SD-64	秋田	0.555 ± 0.015	0.330 ± 0.026	0.885 ± 0.030	0.162 ± 0.008
EP-SD-65	新潟	0.278 ± 0.009	0.170 ± 0.018	0.448 ± 0.020	0.166 ± 0.010
EP-SD-66	富山	0.220 ± 0.009	0.137 ± 0.006	0.357 ± 0.010	0.171 ± 0.008
EP-SD-67	岐阜	0.362 ± 0.015	0.242 ± 0.03	0.604 ± 0.031	0.182 ± 0.013
EP-SD-68	長崎	0.147 ± 0.006	0.087 ± 0.009	0.234 ± 0.011	0.160 ± 0.011

表 4.2-4 Pu の土壌-米間 TF のデータ

Sample	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu atom ratio	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu ac. Soil (mBq/g)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu act. Rice (x10 ⁻⁵) (mBq/g)	TF
EP-SD-65 新潟	0.166 ± 0.010	0.448 ± 0.020	2.04 ± 0.74	4.53 x 10 ⁻⁵
EP-SD-67 岐阜	0.182 ± 0.013	0.604 ± 0.031	1.85 ± 0.67	3.08 x 10 ⁻⁵
Zhang et al., 1989	---	---	5.6 - 7.9	2.0 x 10 ⁻³
Duffa et al., 2003	---	---	10 - 31	1.4 x 10 ⁻³
Adriano et al., 1981	---	---	1630 - 3150 (低濃度のため 正確ではない)	9.0x10 ⁻⁵ - 3.6x10 ⁻⁴ (²³⁸ Pu より)
IAA TRS-472, Cereal	---	---	---	幾何平均 9.5x10 ⁻⁵ 1.1x10 ⁻³ - 2.0x10 ⁻⁷

表 4.4-1 標準物質中の塩素濃度の ICP-OES による定量分析

Sample	Cl, mg/kg-dry
NIST Apple leaves (SRM1515)	Certified value 579±23
run-1	641 ± 99
run-2	566 ± 114
run-3	523 ± 69
run-4	584 ± 30
run-5	582 ± 46
Average	579 ± 42

表 4.4-2 土壌および岩石中の塩素濃度

種類	N	幾何平均 mg kg ⁻¹	最小 mg kg ⁻¹	最大 mg kg ⁻¹	Comment
日本全国土壌	103	99	12	420	(This study)
森林土壌	44	113	12	410	(This study)
農耕地土壌	59	90	23	420	(This study)
ノルウェー土壌	-	-	174	1806	Kabata-Pendias, 2001
火成岩	-	-	40	300	Kabata-Pendias, 2001
堆積岩	-	-	10	300	Kabata-Pendias, 2001

表 4.5-1 2008-2014 に発表された文献による Th の土壌-植物間移行係数

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS 472 GM	Ref.
Root crop	4	6.9×10^{-1}	6.8×10^{-1}	5.1×10^{-1}	2.1	2.8×10^{-1}	1.7	8.0×10^{-4}	Asaduzzaman et al., 2014
Tuber	2	6.3×10^{-1}	4.2×10^{-1}	5.5×10^{-1}	1.7	3.3×10^{-1}	9.2×10^{-1}	2.0×10^{-4}	Asaduzzaman et al., 2014
Leafy Vegetable	17	4.2×10^{-2}	5.3×10^{-2}	1.2×10^{-2}	5.1	1.0×10^{-3}	1.5×10^{-1}	1.2×10^{-3}	Alharbi et al., 2013; Krisanunuwat et al., 2014
Non-leafy Vegetable	48	2.4×10^{-1}	3.0×10^{-1}	3.0×10^{-2}	15	1.4×10^{-4}	9.0×10^{-1}	7.8×10^{-4}	Kumar et al., 2013; Blanco et al., 2010; Zhang et al., 2011; Shanthi et al., 2012; Aswood et al., 2013; Mheemeeed et al., 2014
Cereal (except rice)	5	7.6×10^{-2}	7.6×10^{-2}	8.0×10^{-3}	30	5.0×10^{-5}	1.7×10^{-1}	2.1×10^{-3}	Khan et al., 2010; Mihaylova et al., 2013
Rice	25	6.1×10^{-2}	4.2×10^{-2}	3.8×10^{-2}	3.6	3.0×10^{-3}	1.5×10^{-1}	2.1×10^{-3}	Krissannunuwat et al., 2014; Alharbi et al., 2013; Shanthi et al., 2012; Saeed et al., 2012
Grass	116	3.2×10^{-1}	2.9×10^{-1}	1.7×10^{-2}	4.5	3.0×10^{-3}	9.0×10^{-1}	4.2×10^{-2}	ICRP, 2009; Cerne et al., 2010; Dragonvic et al., 2010; Khan et al., 2011; Oufni et al., 2011; Pallavicini et al., 2011; Popic et al., 2011; Smodis et al., 2012; Chakraborty et al., 2013; Strok et al., 2013
Tree	10	1.6×10^{-1}	1.4×10^{-1}	6.8×10^{-2}	6.7	1.4×10^{-3}	1.0×10^{-1}		ICRP, 2009; Blanco et al., 2010

表 4.5-2 2008-2014 に発表された文献による Am の土壌-植物間移行係数

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS 472 GM	Ref.
Grass	23	1.1	2.2	7.5×10^{-1}	3.1			3.3×10^{-2}	ICRP, 2009
Leafy Vegetable	3	2.0×10^{-5}	1.8×10^{-5}	1.5×10^{-5}	2.1	3.6×10^{-6}	3.5×10^{-5}	2.7×10^{-4}	Eslava-Gomez et al., 2013
Non-leafy Vegetable	5	2.6×10^{-4}	1.8×10^{-4}	2.1×10^{-4}	3.0	9.0×10^{-4}	5.0×10^{-3}	3.6×10^{-4}	Lehto et al., 2013 ^a
Root crop	3	2.1×10^{-5}	1.8×10^{-5}	1.4×10^{-5}	2.7	6.9×10^{-6}	4.0×10^{-5}	6.7×10^{-4}	Eslava-Gomez et al., 2013
Tuber	3	1.1×10^{-5}	2.3×10^{-6}	1.0×10^{-5}	1.4	8.4×10^{-6}	1.3×10^{-5}	2.1×10^{-4}	Eslava-Gomez et al., 2013

a: aggregated transfer factor was used

表 4.5.3 2008-2014 に発表された文献による Pu の土壌-植物間移行係数

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS 472 GM	Ref.
Grass	29	1.0×10^{-1}	1.4×10^{-1}	1.7×10^{-3}	108	1.1×10^{-6}	3.3×10^{-1}	1.6×10^{-4}	ICRP, 2009; Xu et al., 2009; Li et al., 2011
Leafy Vegetable	3	1.9×10^{-5}	1.7×10^{-5}	1.5×10^{-5}	2.0	7.9×10^{-6}	1.1×10^{-5}	8.3×10^{-5}	Eslava-Gomez et al., 2013
Non-leafy Vegetable	5	1.3×10^{-4}	1.2×10^{-4}	8.8×10^{-5}	2.4	3.0×10^{-5}	3.0×10^{-3}	6.5×10^{-5}	Lehto et al., 2013 ^a
Root crop	3	2.2×10^{-5}	1.7×10^{-5}	1.6×10^{-5}	2.4	5.1×10^{-6}	3.9×10^{-5}	3.9×10^{-4}	Eslava-Gomez et al., 2013
Tuber	3	1.4×10^{-5}	3.1×10^{-6}	1.3×10^{-5}	1.2	1.1×10^{-5}	1.7×10^{-5}	1.1×10^{-4}	Eslava-Gomez et al., 2013

a: Aggregated transfer factor was used

表 4.5.4 2008-2014 に発表された文献による Cs の土壌-植物間移行係数

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS 472 GM	Ref.
Grass	8	2.7×10^1	1.2×10^1	1.4×10^1	1.1				ICRP, 2009
Pine tree	5	6	5.6	4.4	2.2				ICRP, 2009
Cereal	2	0.5	0.1			0.43	0.6	3.6	Tsukada, 2007, 2008

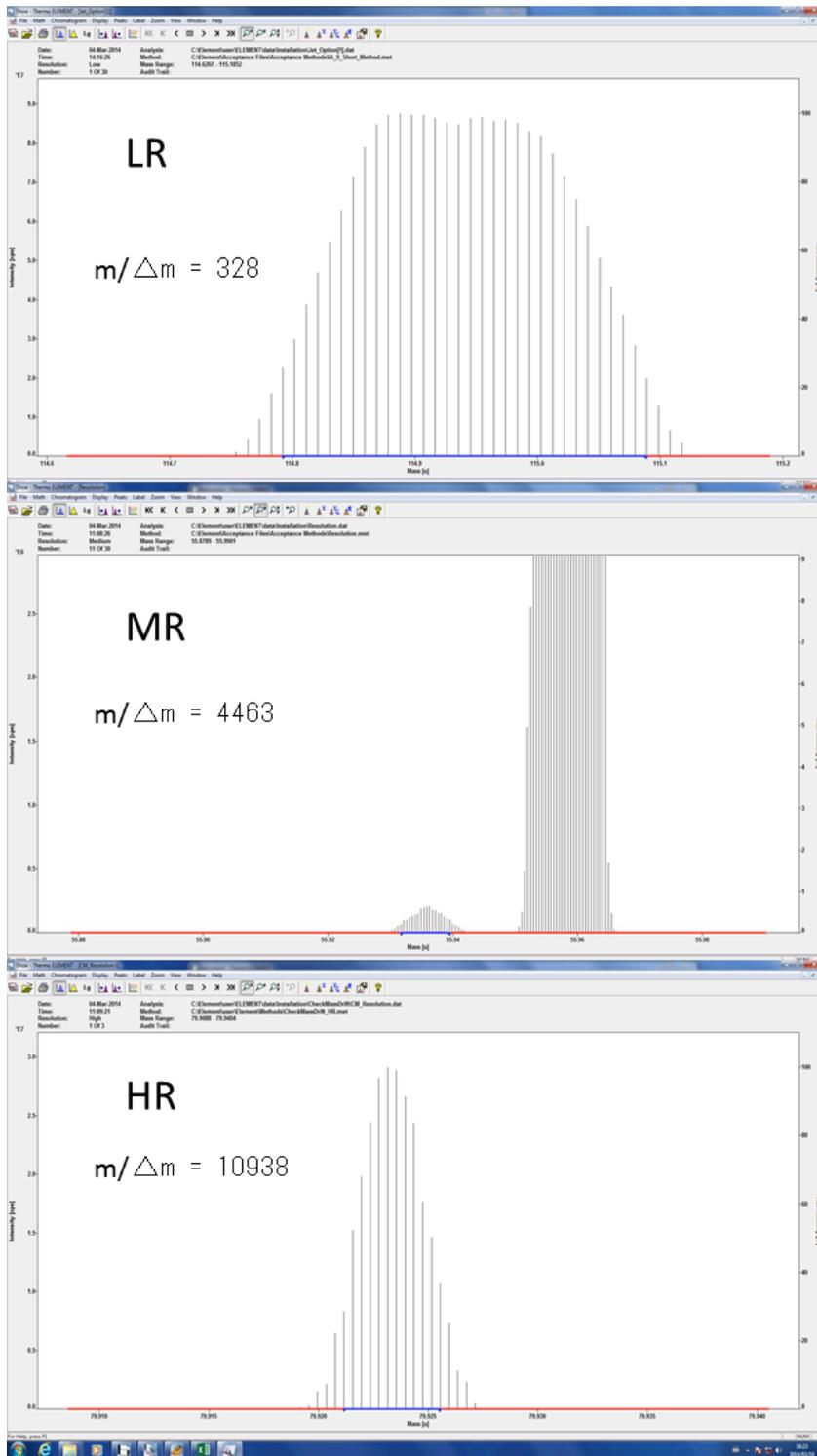


図. 4.2-1 SF-ICP-MS (Element XR) による分解能と感度
 LR: Low resolution; MR: Medium resolution; HR: High resolution

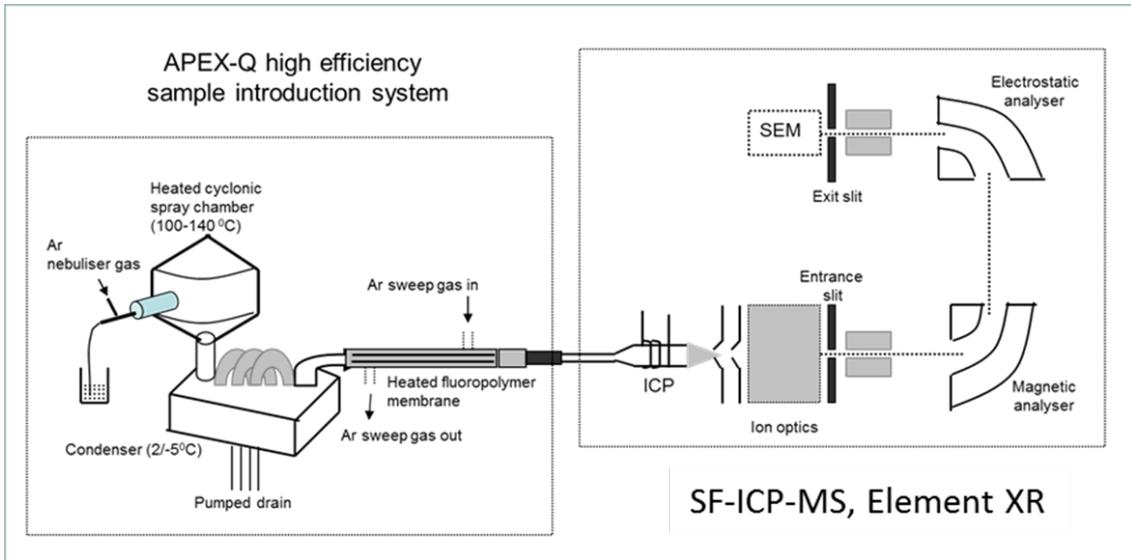


図 4.2-2 高効率試料導入システム (APEX-Q) と結合した SF-ICP-MS (Element XR) の概略図

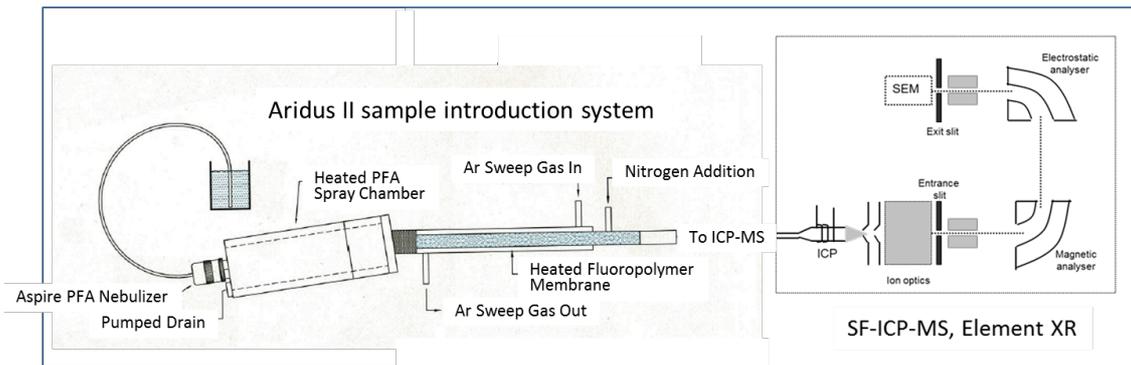


図 4.2-3 高効率試料導入システム (Aridus II) と結合した SF-ICP-MS (Element XR) の概略図

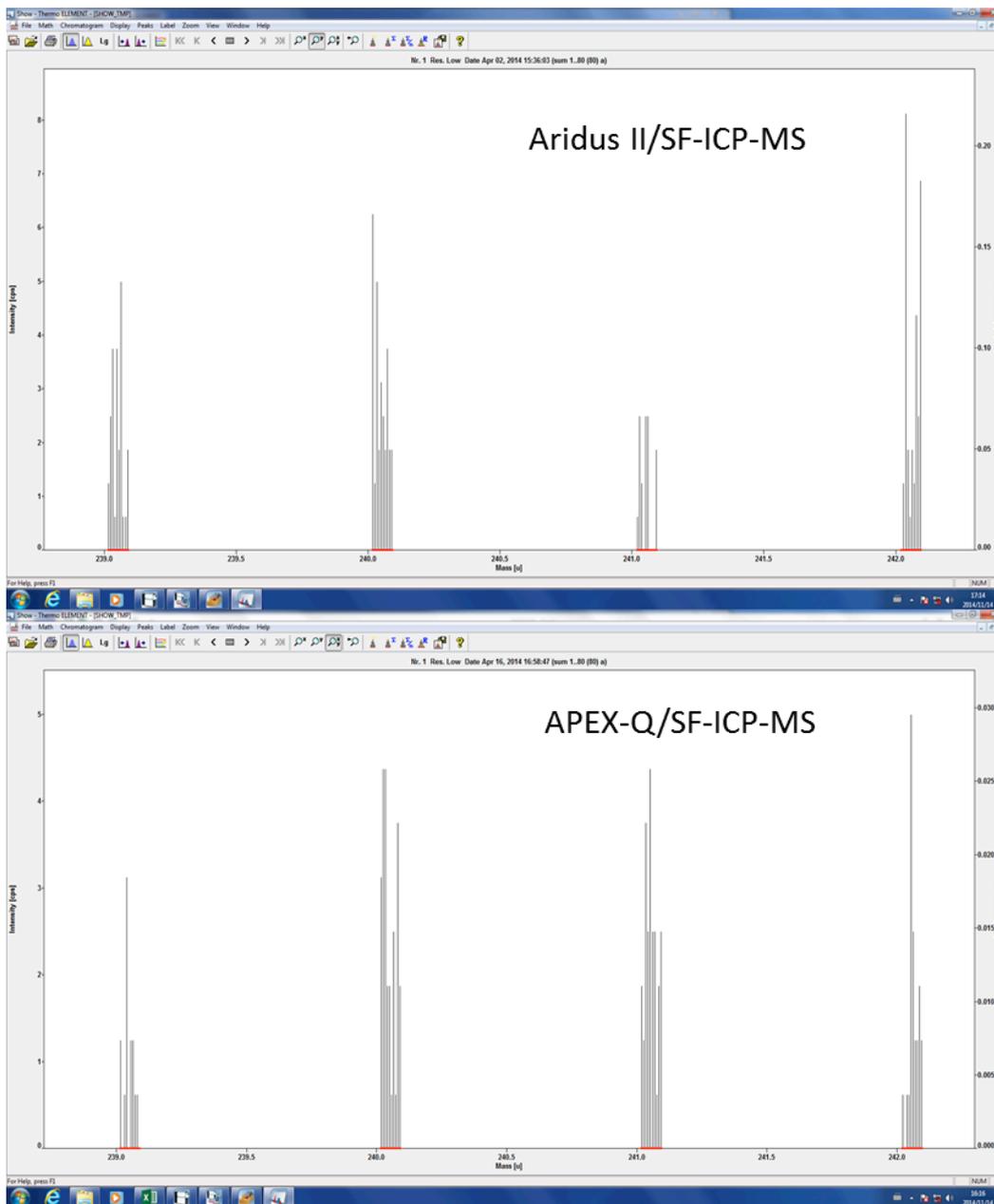


図 4.2-4 高効率試料導入システム（APEX-Q と Aridus II）を結合した SF-ICP-MS による 4%硝酸を用いたバックグラウンド・カウント

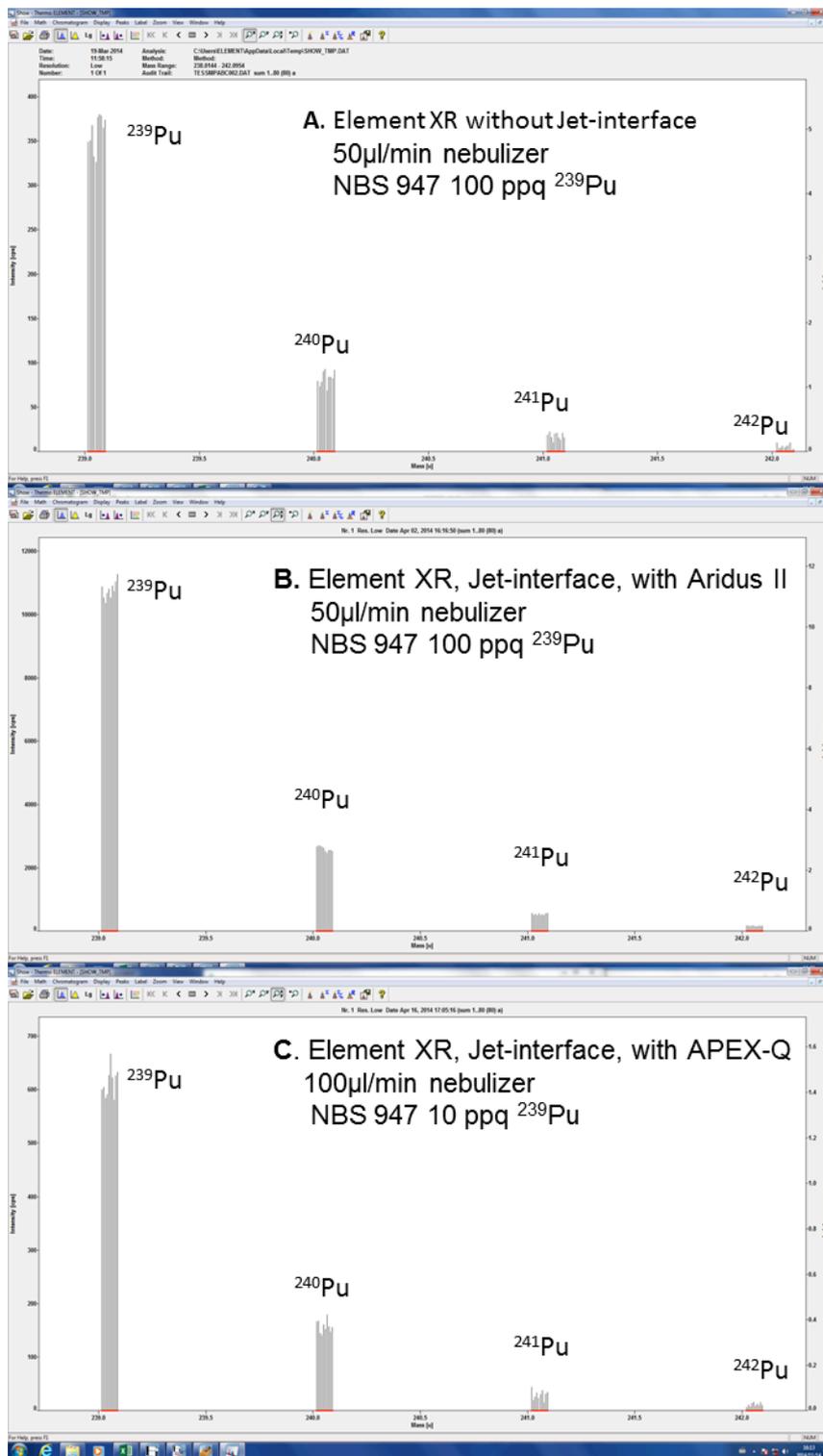


図 4.2-5 3種類 of 試料導入系による Element XR の NBS 947 測定スペクトル
(A) jet-interface なし, (B) Aridus II + Jet interface, (C) APEX-Q + Jet interface

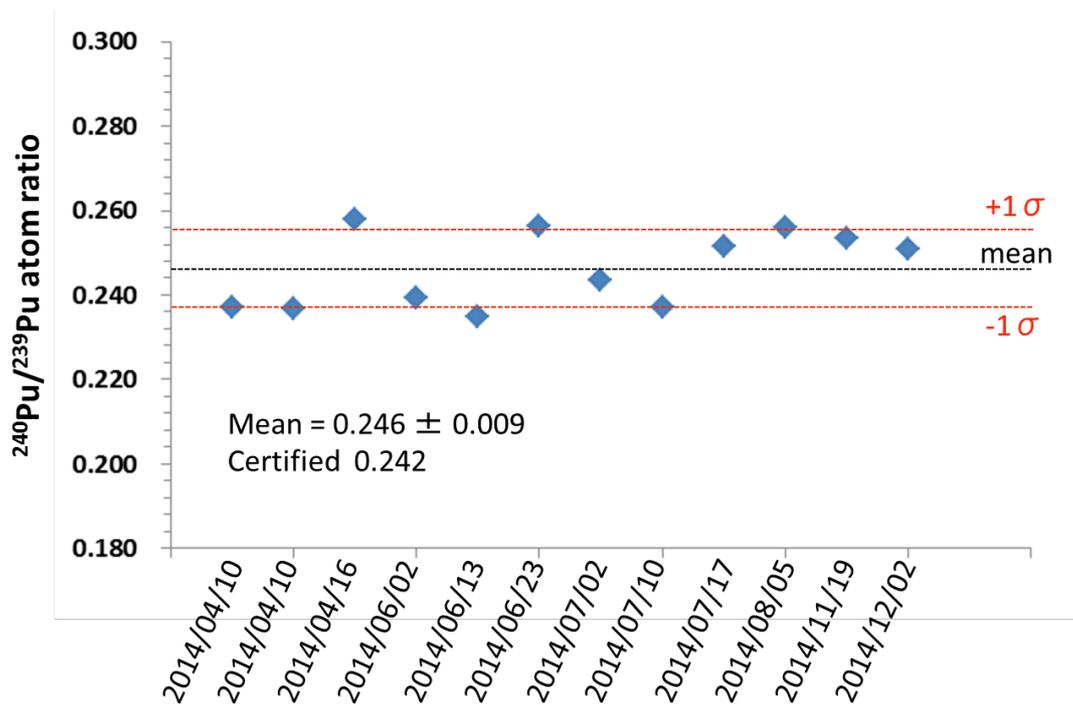


図 4.2-6 APEX-Q/SF-ICP-MS (Element XR)を用いた NBS-947 (11 ppq ^{239}Pu と 2.7 ppq ^{240}Pu) の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比測定における長期安定性 (April – December 2014)

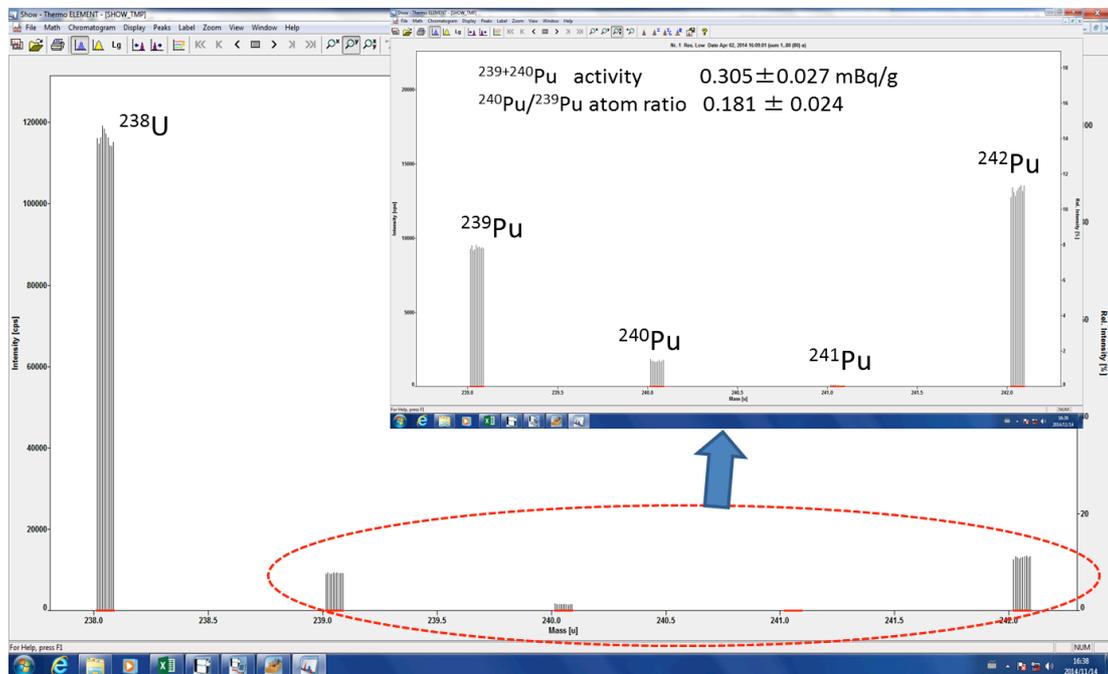


図 4.2-7 土壌試料のマススペクトルの例

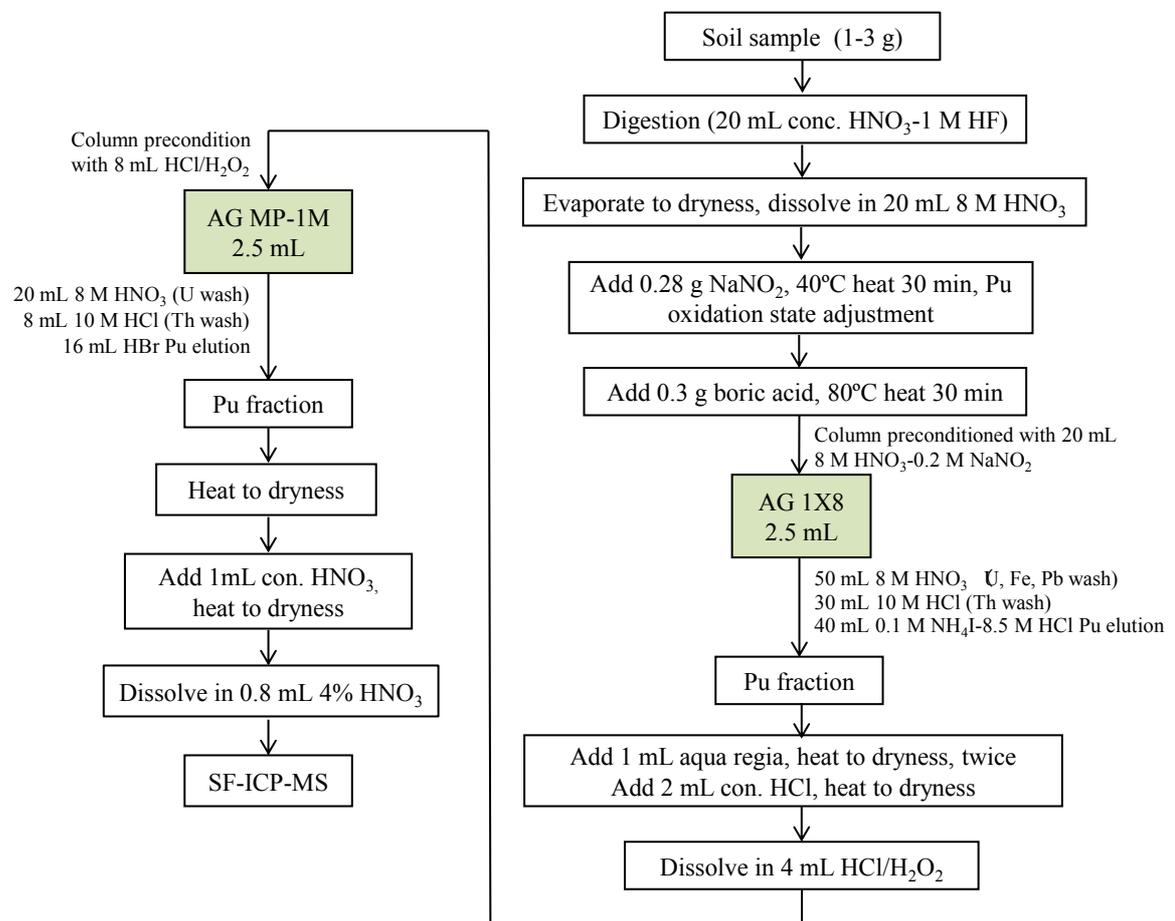


図 4.2-8 土壤試料中 Pu の定量のための HNO₃-HF 抽出分離法

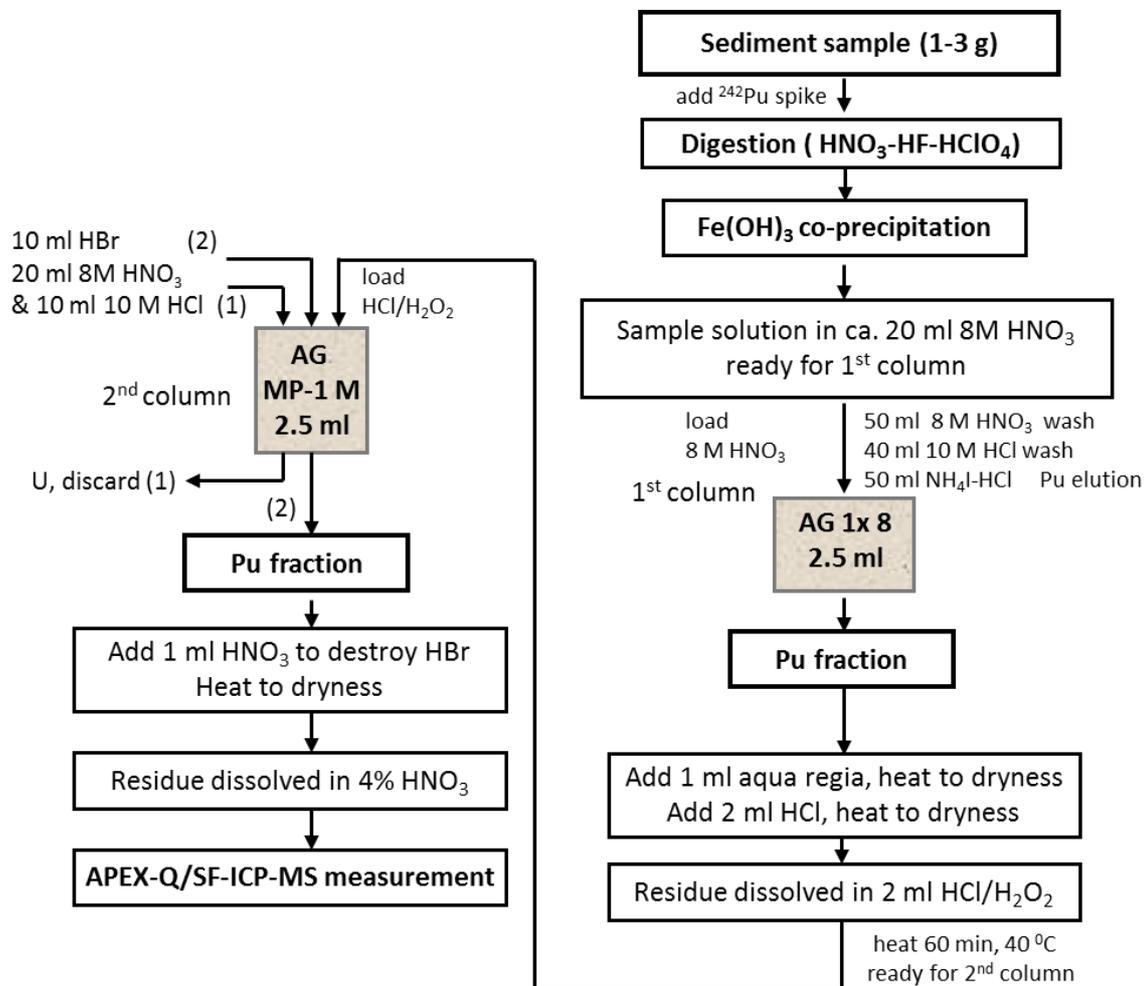


図 4.2-9 土壌試料中 Pu の定量のための HNO₃-HF-HClO₄ 全分解法

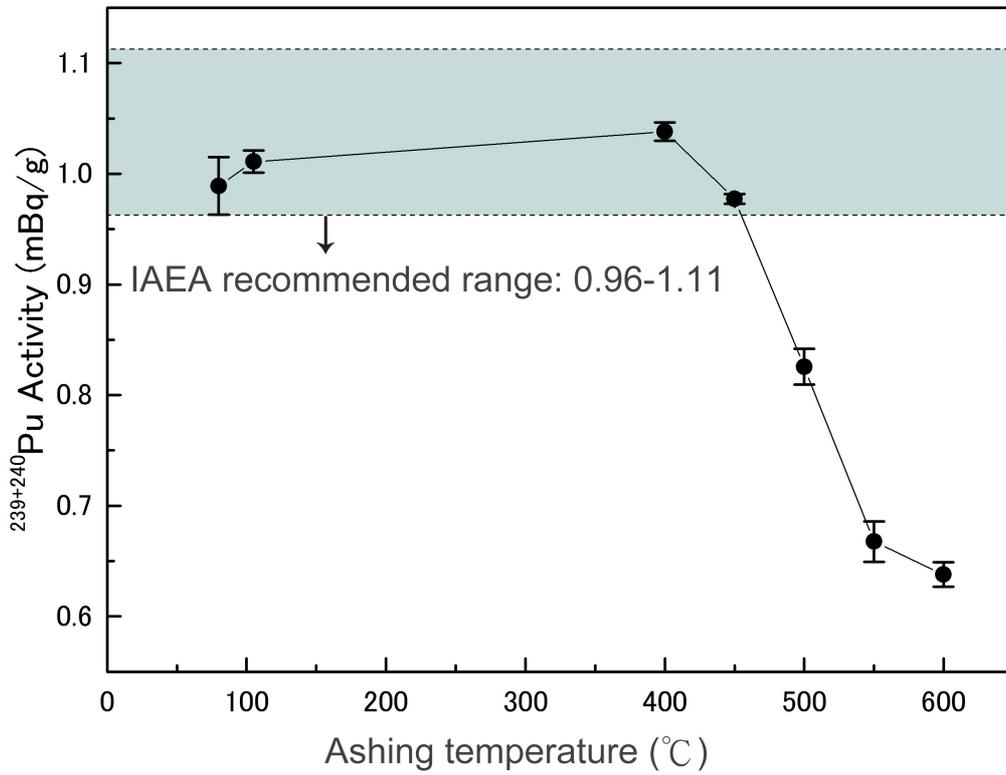


図 4.2-10 灰化温度を変化させたときの硝酸抽出法による IAEA-Soil-6 中 Pu 定量結果

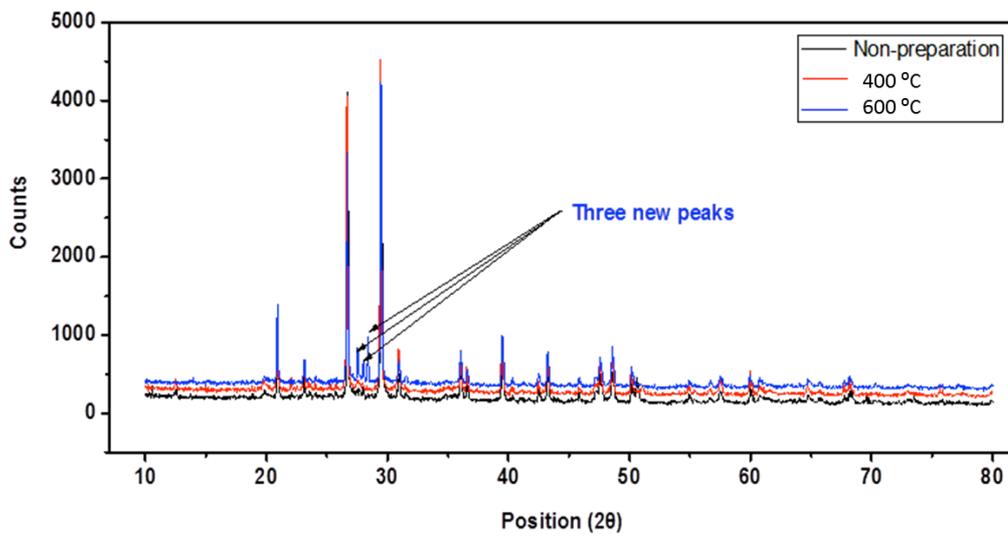


図 4.2-11 IAEA-Soil-6 を無処理、400°C 処理、600°C 処理したときの X 線回折スペクトル

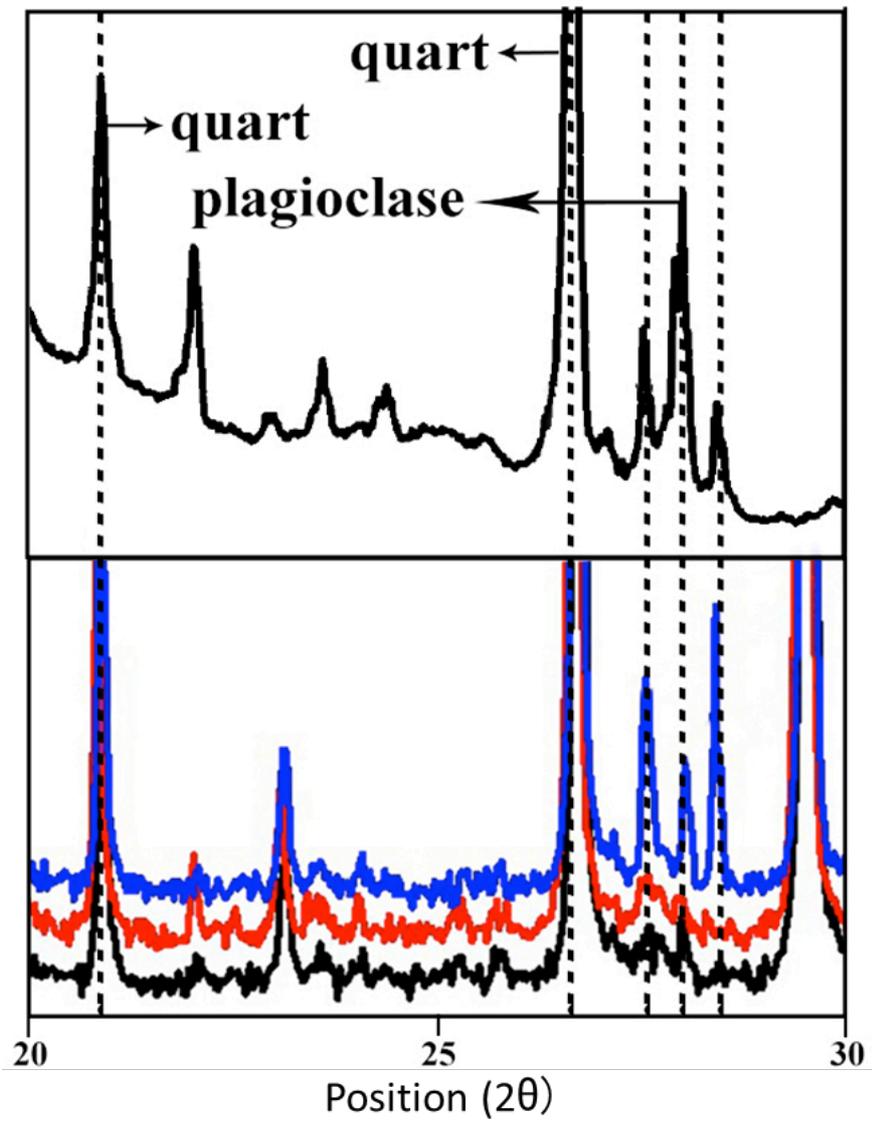


図 4.2-12 IAEA-soil-6 を 600°C で処理したときに発見された未知ピークの定性 (Mikai ら, 2014 との比較) との比較

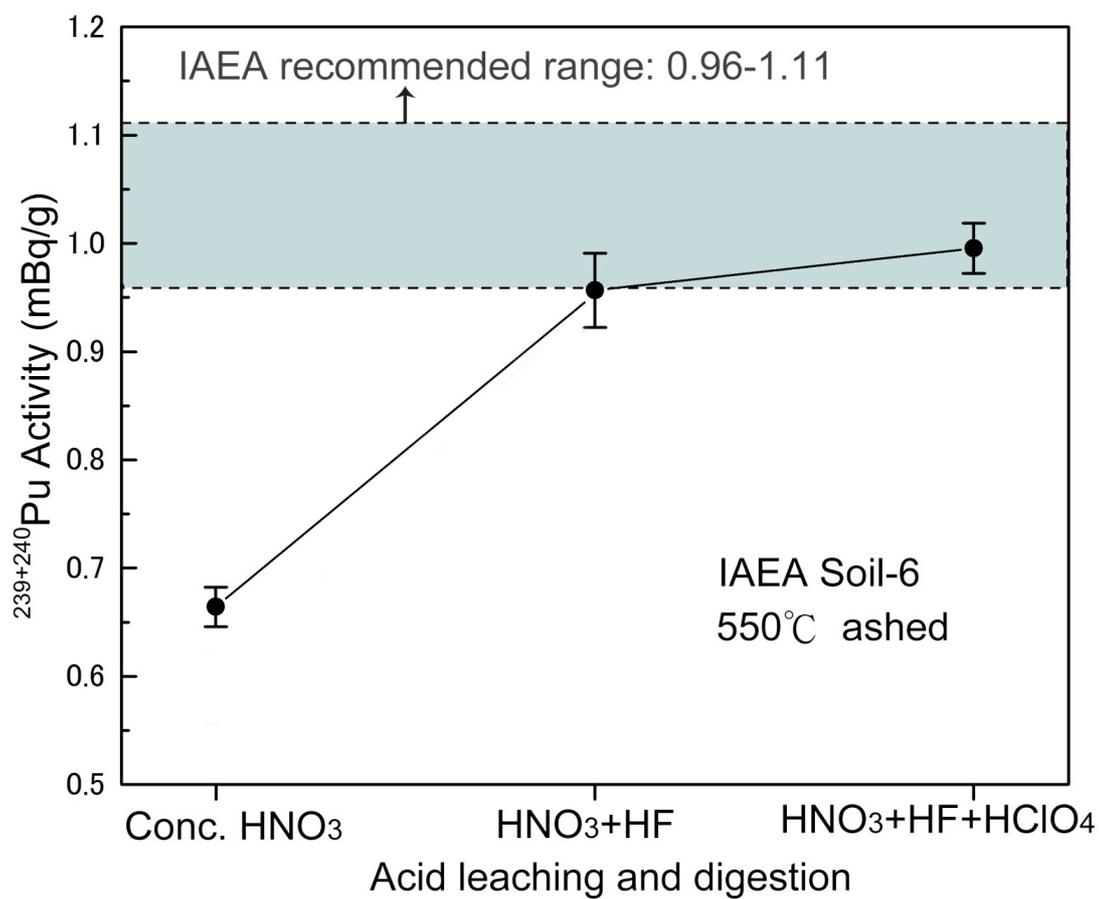


図 4.2-13 3種類の方法によって抽出または分解した 550°C 灰化 IAEA-soil-6 の Pu 濃度定量結果の比較

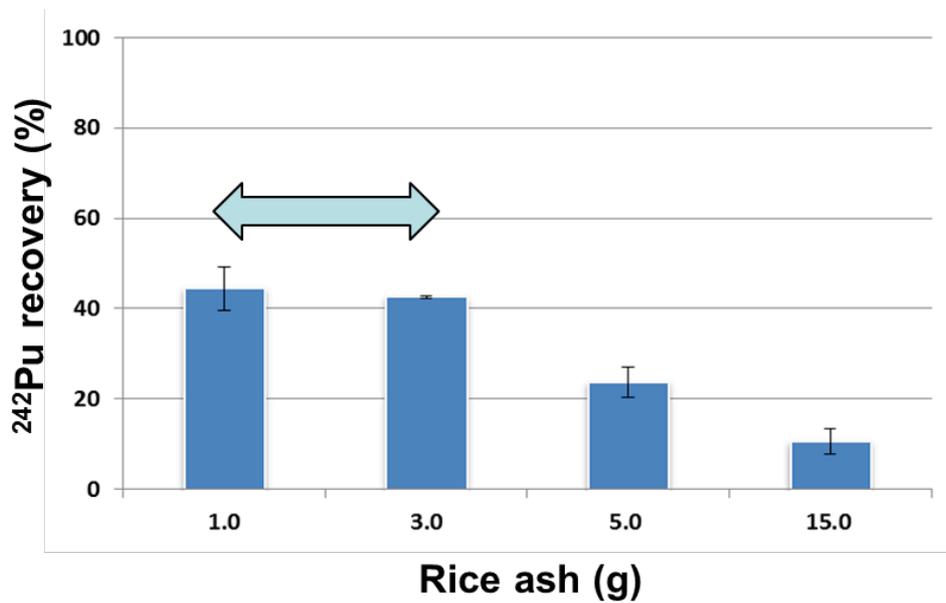


図 4.2-14 玄米供し試料量と Pu 回収率の関係

15 g brown rice ash, 50 ml HNO_3 -75 ml H_2O_2 (35%) wet-ash;
 Dryness, muffle oven 540 C
 dry-ash: lavender color (no charred black color was present)
After 2 times treatments



15 g brown rice ash, 50 ml HNO_3 - H_2O_2 (35%) wet-ash;
 Dryness, muffle oven 540 C
 dry-ash: lavender color (no charred black color was present)
After 3 times treatments

図 4.2-15 湿式および乾式分解による玄米灰中の黒色炭化物質の除去

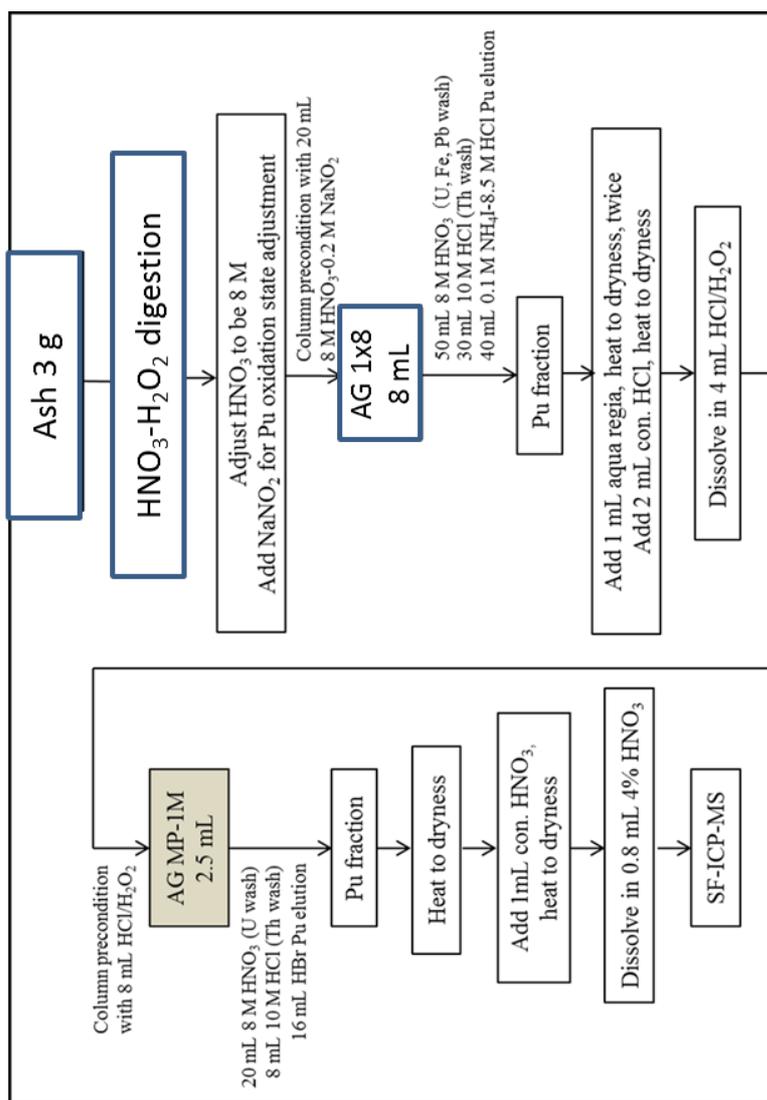
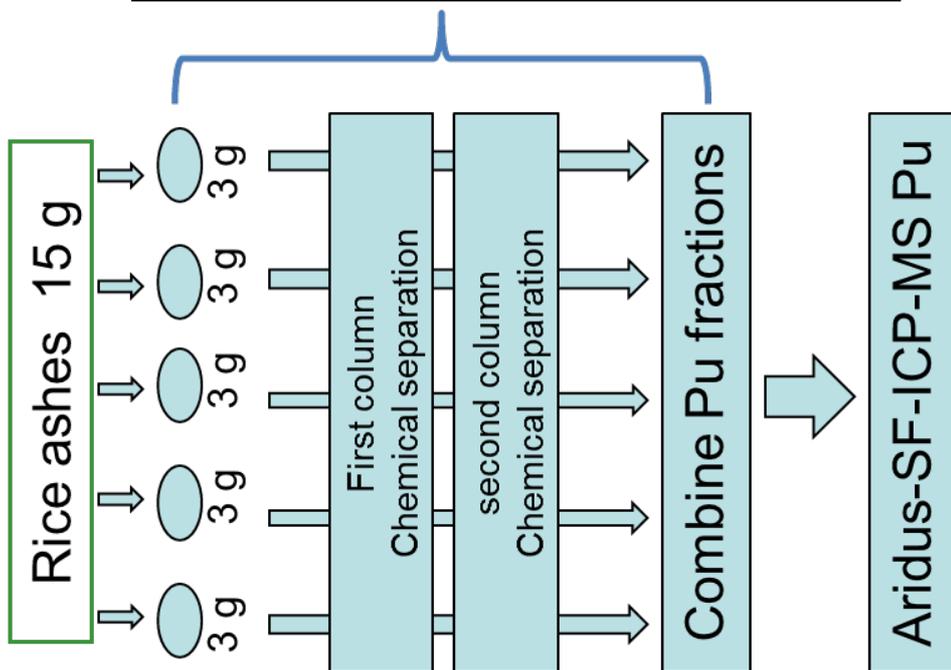


図 4.2-16 灰化米中の Pu 定量分析のための化学分析法開発

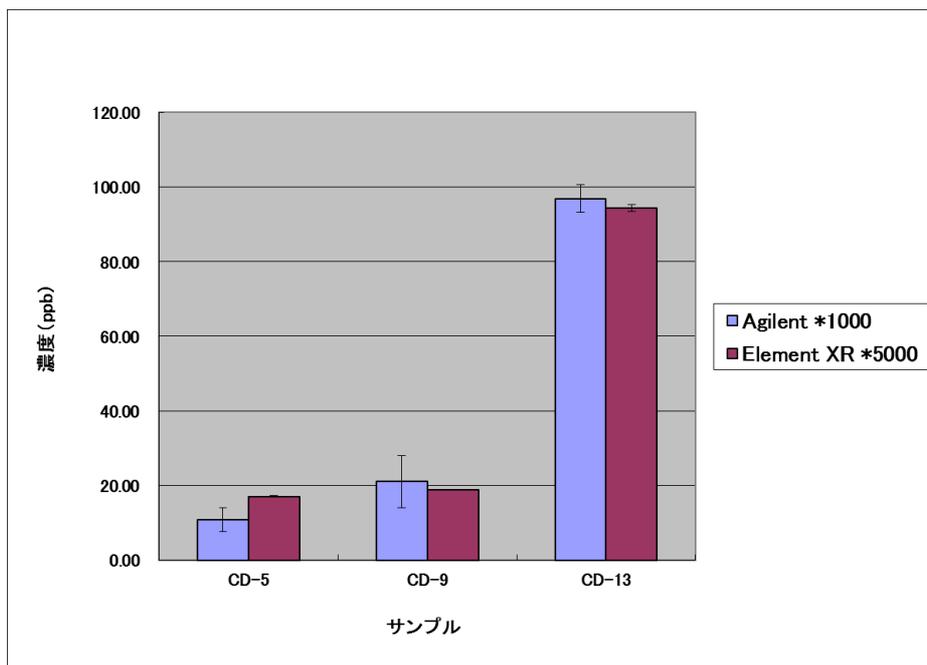


図 4.3-1 四重極型 ICP-MS と SF-ICP-MS による植物試料中 Th 定量結果の比較
 四重極型 ICP-MS では希釈倍率 1000 倍、SF-ICP-MS では 5000 倍で測定

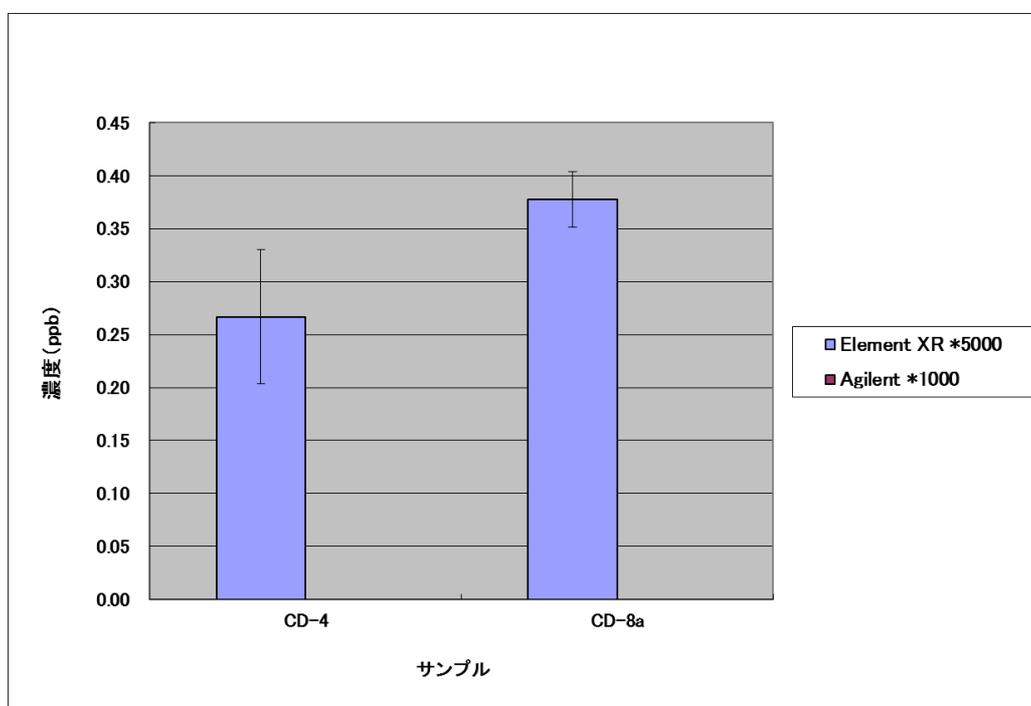


図 4.3-2 SF-ICP-MS による極低濃度の Th 濃度の植物試料の定量

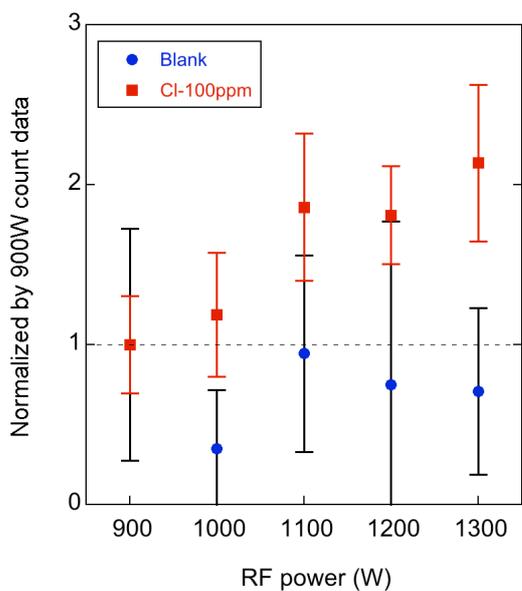


図 4.4.1 塩素の感度とRFパワーの関係 (5秒測定)

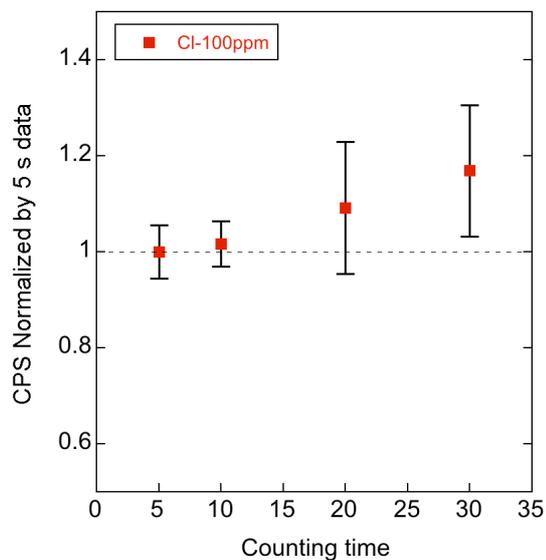


図 4.4.2 塩素の感度と測定時間の関係

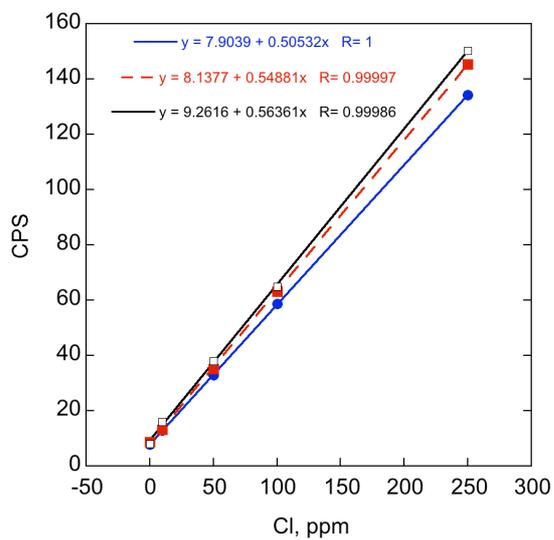


図 4.4.3 塩素の検量線

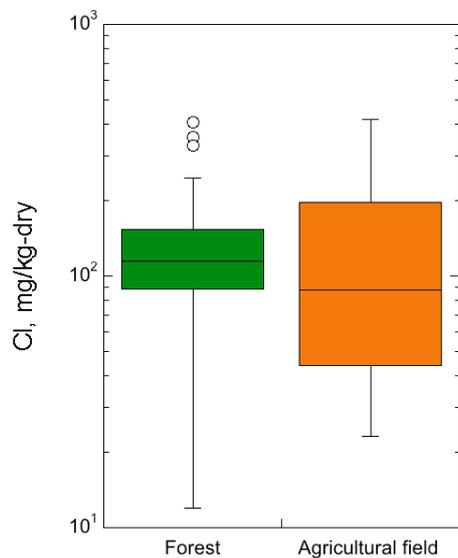


図 4.4.4 森林と農耕地土壌中の塩素濃度

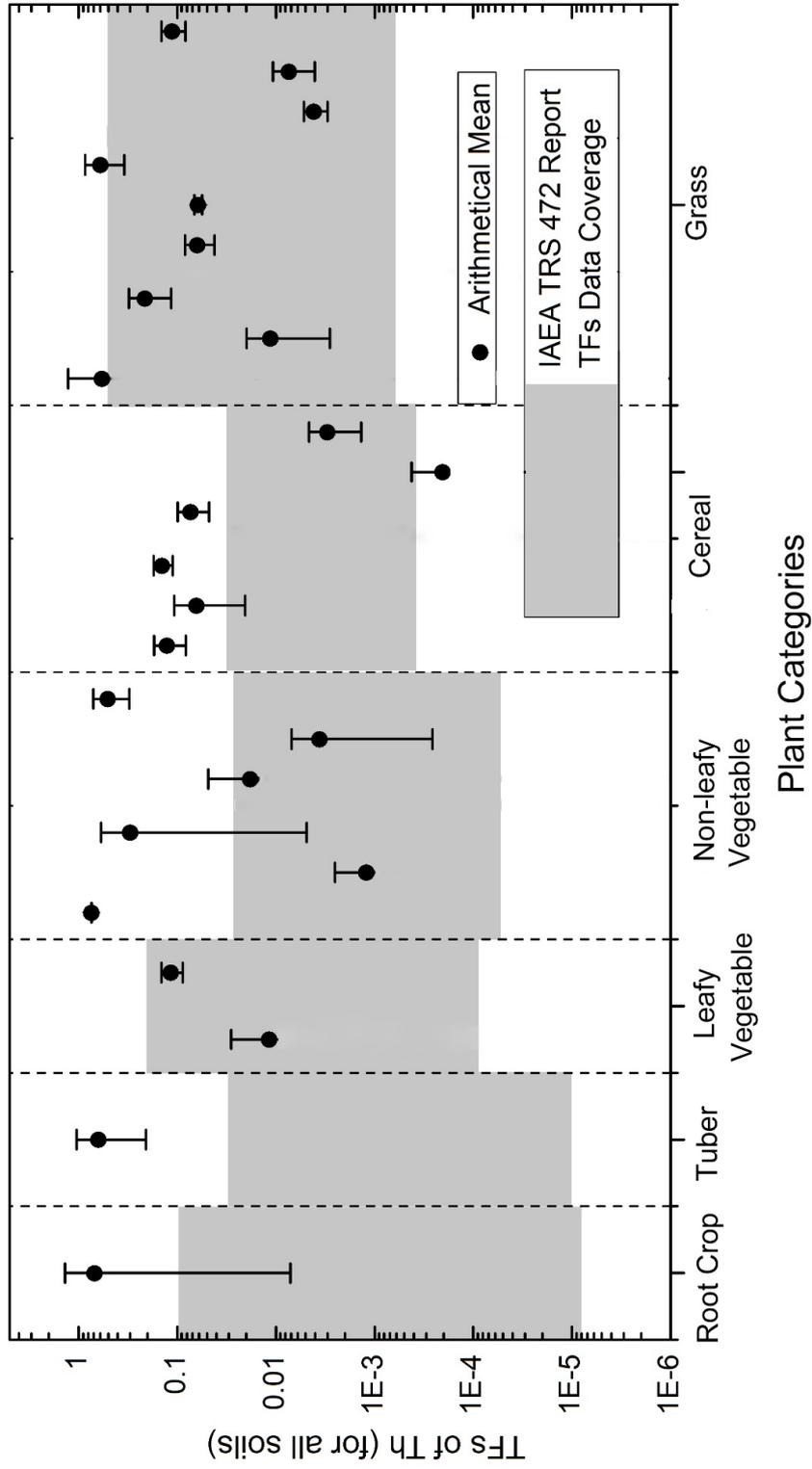


図 4.5-1 2008-2014 に発表された文献による Th の土壌-植物間移行係数データと TRS-472 データの比較

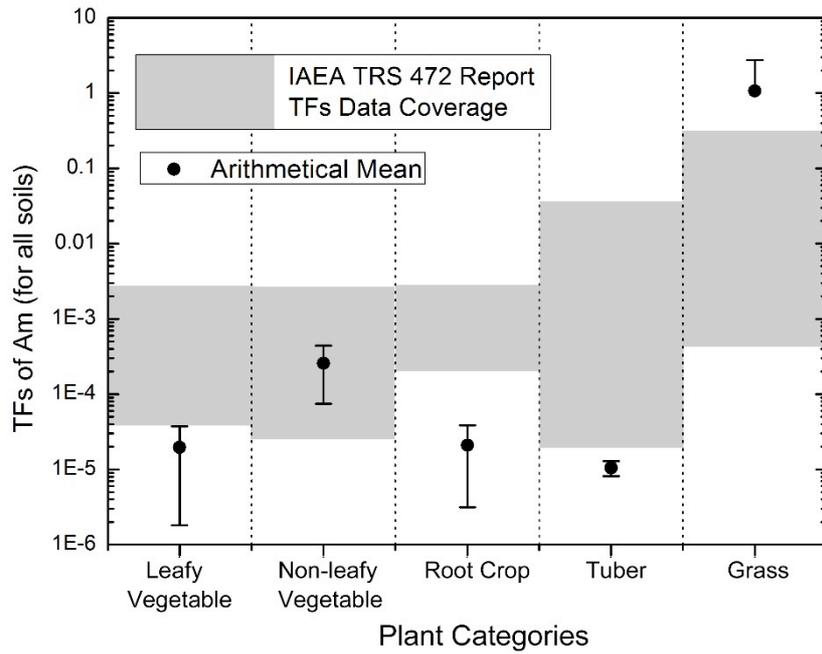


図 4.5-2 2008-2014 に発表された文献による Am の土壌-植物間移行係数データと TRS-472 データの比較

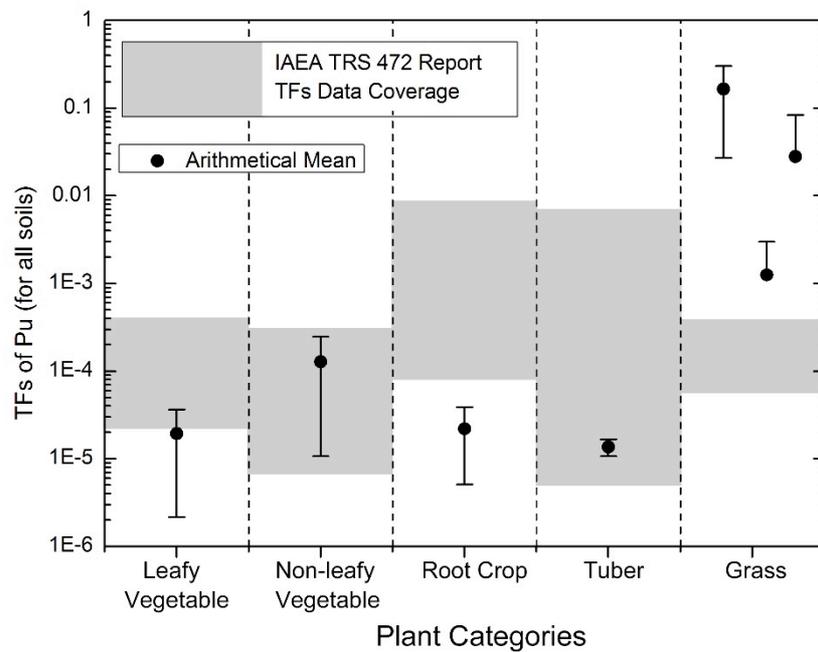


図 4.5-3 2008-2014 に発表された文献による Pu の土壌-植物間移行係数データと TRS-472 データの比較

第5章 まとめ

5.1. はじめに

原子力発電による電力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(Cl)は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価において重要な核種である。しかし、その測定は極めて高度な分析技術が要求されることから、核種移行モデルに使用でき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 Cl) 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

本課題は、生物圏の環境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}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 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、文献調査を行うとともに、実際に玄米およびジャガイモを採取し、データを収集した。文献調査では、環境半減期を減少速度の指標として寒冷地と温暖地におけるグローバルフォールアウトの土壌および作物中濃度変化から TF に係る検討を行った。その結果、土壌中の ^{137}Cs 濃度減少速度は温暖地の方が早く、一方で作物中濃度減少速度は寒冷地、温暖地で差が無かったことから、将来的には TF が寒冷地で低くなると予想された。しかしながら、昨年度の検討結果では、

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、国際的なデータと、国内の玄米 TF データから示唆されており、逆の傾向である。ただし本年得られた結果については、IAEA TRS-472 (2010) において報告されている温暖地と熱帯の Cs の TF データと同様、すなわち、熱帯の Cs の TF の方が温暖地よりも高い、という結果とは一致している。これらの結果を総合すると、Cs の TF は温暖地で最も低く、より寒冷もしくは温暖になると高くなる傾向がある可能性がある。また、⁹⁰Sr については、昨年度は、玄米の TF 文献調査の結果、温暖地域で 2 倍高く、差はわずかながら有意差があった。今年度はやはり温暖地域の方が高くなる結果が示唆されたことから、Sr のように土壌中を比較的動きやすい元素については、温暖地域における TF が高くなる可能性が示唆された。以上の結果から、実環境におけるデータを採取・蓄積しながら、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、さらに調査が必要である。

文献調査の結果で得られたことを明らかにするためには、統計処理が可能かつクオリティの揃ったデータセットが必要である。本年度はジャガイモ 10 試料(寒冷地 5, 温暖地 5), 玄米 10 試料(寒冷地 5, 温暖地 5) について土壌とともにサンプリングを行い、20 元素程度のデータを収集した。データ数が少ないことから、現段階では統計処理は行えないが、幾何平均値で比較すると、玄米は Si と Mn で TF がジャガイモよりも高く、K はジャガイモで高かった。それぞれの作物について、気温差による違いは、本年度測定した主要元素についてはほとんど無い可能性がある。詳細については、データ数を増やして統計処理を行い、また、放射性核種に関連する他の元素濃度を測定し TF を比較する必要がある。

さらに、本年度は、昨年収集した温暖地の葉菜類とその土壌試料中の希土類元素等の濃度データを追加し、TF をデータベースに追加した。これらのデータについては、過去に行った全国調査で得られた葉菜類の TF データと比較検討する必要がある。

環境移行パラメータ変動要因の解析として、本年度は土壌中における挙動が微生物活性の影響を受けやすい ¹⁴C について、放射線医学総合研究所で得られた酢酸態 ¹⁴C の Kd と約 80 項目の土壌に関連する独立変数項目の相関を調べた。その結果、全土壌試料を用いた場合、¹⁴C の Kd との相関係数が 0.5 を超える独立変数は Kd_Ni, Kd_Sb, Kd-IO₃ (4°C, 23°C), pH および水抽出された F と P の 7 項目であり、最も高い相関係数は 0.73 であった。液相中の炭酸飽和量に化学的に影響する pH と相関が見られたが、他の項目については化学的な説明を付すことが困難であった。また、水田土壌と畑土壌では相関が異なる項目があり、土地利用が ¹⁴C の土壌中挙動に影響していると考えられた。

さらに、東電福島第一原発事故後に観察される放射性 Cs の環境挙動を調査し、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試みた。本年度の調査結果から、植物や淡水魚では減少速度が緩やかになってきたことがわかった。このことは、これまでチェルノブイリ原発事故後に観察されてきたように、2つの指数関数で実効半減期を表す必要がある時期にさしかかってきており、徐々に放射性 Cs の環境中での移動性が低下しつつあることを示すものである。

事故後数年間は放射性 Cs の環境中での移動性が高いため、長期予測に必要な平衡状態における環境移行パラメータを実測によって得ることは困難であった。徐々に平衡状態にさしかかりつつあることを実測で確認しつつ、今後は放射性廃棄物に係る重要核種である ¹³⁵Cs の生物圏における適切な環境移行パラメータを収集するための調査をすることが必要である。

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¹⁴C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、全国各地より採取した水田土壌を用いて土壌呼吸量および微生物量の指標であるATP量と¹⁴Cガス化率の関係を明らかにした。また、今後の研究開発の基礎情報を得るために、温度変化と炭素の環境挙動と微生物活動の関係について文献調査を行った。さらに、大気から農作物への¹⁴C移行評価モデルの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。

最初に、分析時間の短縮および試料量と試薬量の減量を目指し、マイクロプレートリーダーを利用した土壌呼吸量の多試料同時分析法を開発した。昨年度開発した方法では、INT-フォルマザン抽出のためにメタノールが使用されたが、本年度はDMFとエタノールの混合液を用いた。これにより抽出効率が良くなると共に、劇物であるメタノールの使用量をゼロにすることができた。さらに、分析のための試料量も昨年度の方法では1試料当たり最低3 mL必要であったところ、200 μLまで減量することに成功した。96穴マイクロプレートを利用することで、最高96試料まで同時分析できるようになり、分析時間の短縮に結び付いた。本年度開発したこの方法を用いて全国各地の水田土壌の呼吸活性と¹⁴Cガス化率の関係を求めたところ、有意な相関は得られなかった。

本年度は微生物量の指標としてATP測定方法についても検討した。ハンドタイプのルミノメータおよび測定キットを用いた方法であり、簡便にATPが測定できることを確認した。土壌呼吸活性の測定に用いたプレートリーダーは発光測定にも対応することから、今後、マイクロプレートリーダーに対応した測定法を開発することにより多試料同時分析にも対応可能と思われる。ハンドタイプルミノメータを用いて、全国各地より採取した水田土壌の湛水7日目のATP量と¹⁴Cガス化率の関係を求めた。その結果、土壌呼吸活性と同様、ATP量と¹⁴Cガス化率との間に相関関係は認められなかった。

以上のように、土壌呼吸活性およびATP量は共に¹⁴Cガス化率との間に相関関係が認められなかったが、¹⁴Cのガス化に土壌微生物が関与していることは、これまでの本事業の成果より明らかである。本年度は、¹⁴Cのガス化率を¹⁴Cで標識された酢酸を用いて評価したが、土壌呼吸は酢酸に限らず有機物の分解をベースとする異化代謝系である。土壌中には酢酸以外にも呼吸の基質となる炭素源が多数存在するため、酢酸以外の分子を炭素源として呼吸する微生物が優占していたことが原因で相関が得られなかったのかもしれない。つまり、土壌呼吸活性は酢酸以外の有機物分解に依存していた可能性がある。したがって、統括的指標となる新たな環境移行パラメータを得るためには、多くの炭素源の資化性、特に地層処分サイトから生物圏に移行すると考えられる炭素源の資化性と¹⁴Cガス化率の関係を明らかにする必要があると考えられる。

温度変化と環境移行パラメータの関係については、温度変化と微生物活性と炭素フラックスについて述べられている文献調査を中心に情報収集を行った。その結果、温度変化による微生物群集構造や微生物機能に対する影響や、これらの影響が炭素フラックスに及ぼす効果は、地域によって異なることが分かった。また、これらの影響は微生物の種類や土壌有機物の存在形態に依存することが示唆された。微生物及び土壌有機物は多様で、それぞれの環境で異なるため、地層処分の安全評価のためには、我が国の土壌を用いてその土

壤に生息する微生物の網羅的解析および温度変化に対するこれら微生物集団の生態生理の反応の情報を収集することが必要である。

水稲全体モデルの精緻化のために行った文献調査では、土壌有機物分解速度を指標とする土壌から近傍大気への移行半減期および近傍大気と環境大気との交換半減期の値と切り替え時期について必要な情報の収取に努めた。調査の結果、土壌から近傍大気への移行半減期については Q_{10} (土壌呼吸の変化率) を利用し、季節変動を考慮したモデルに改良できる可能性が示された。そこで現行のモデルを精緻化するために 1 年を水稲生育期間 (4 月～9 月) とそれ以外の期間 (10 月～12 月および 1 月～3 月) とに分け、それぞれの期間において Q_{10} を反映した土壌-近傍大気移行半減期を求めた。その結果、従来のモデルでは 10 日として与えられていた水稲生育期間における土壌-近傍大気移行半減期が、6.1 日となった。同じく水稲を栽培していない期間、25 日として与えられていた土壌-近傍大気移行半減期は 67.0 日となった。近傍大気と環境大気の間に関する文献調査では、水稲の生長状態により近傍大気と環境大気間のガス交換量が異なり、群落が成熟した状態ではほとんどガス交換が行われていない可能性があることが分かった。これらの情報を基に、水稲の生育段階を 3 段階に分類し、それぞれの成長段階における近傍大気-環境大気移行半減期を再検討したところ、田植から栄養成長期の期間は 0.1 日-0.5 日、栄養成長期後期から生殖成長期の期間は 0.5 日-3 日、生殖成長後から収穫までの期間は 3 日から 17 日の値が得られた。新たに得られたこれらの情報を基に改良したモデルで解析を行ったところ、群落が成熟した後の近傍大気-環境大気移行半減期が水稲による ^{14}C 取り込みに強く影響することが分かった。これらは様々な地域で様々な植物による調査で得られた値を用いた結果であるため、今後は我が国の水稲栽培実測値に基づく値を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

本年度はまず、昨年度導入した SF-ICP-MS をより高感度に使用するために、高効率導入装置 Aridus II と APEX-Q について、ウラン水素化物 ($^{238}\text{UH}^+$) の発生低減、感度の増加の程度、バックグラウンド、および検出下限値について検討するとともに、使用上問題になるメモリー効果についても確認を行った。どちらも $^{238}\text{UH}^+$ の生成率はほぼ 2×10^{-5} 以下が得られ、良好であり、それぞれ 100 M/ppb と 60M/ppb に相当する高い感度が得られた。これらの結果は、SF-ICP-MS を通常の導入方法で測定したときの約 20～30 倍の感度を得られることを示しており、AMS と匹敵する測定能力であるといえる。Aridus II システムでより高い感度が得られたが、メモリー効果も大きく、したがって、試料によってこれらの導入装置を使い分けながら使用する方法が測定効率を向上に有効である。なお、検出下限値は 0.043 fg mL^{-1} であり、Pu 分析に必要な試料溶液量は 0.125 mL であることから、実質の検出感度は 1 回の測定において 0.005 fg ということになる。

この Aridus II/SF-ICP-MS (with Jet-interface) 分析システムを用いた Pu 同位体分析の精度と確度を調べたところ、Element XR だけで得られた $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比の精度 (RSD %) は 20.5 %, 確度は -3.3 % であったのに対し、新しく開発した分析システム (Aridus II/SF-ICP-MS with Jet-interface) では精度が 5.0 %, 確度が 0.83 % であった。また超微量レベルの $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比測定における測定の長期安定性について、8 ヶ月間にわたるテス

トで測定された $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{P}$ 原子比の変動は、 $\pm 1\sigma$ 以内であり、長期間の安定性を確認できた。

次に、土壌試料の Pu 同位体測定に関連し、分析前に行う灰化処理（400-600℃）の影響について検討を行った。通常は灰化処理の後、硝酸抽出法で Pu を抽出してイオン交換法により分離・濃縮を行うが、灰化温度が上昇するほど Pu の定量結果が下がることを得た。これは灰化処理中に生成するケイ酸塩由来の物質等（例えば斜長石）が Pu を取り込んでしまうために、硝酸抽出では十分 Pu を溶出できないためと考えられた。実際、ケイ酸塩を溶出する方法で抽出すると、Pu の定量結果は想定される値の範囲内になることを確認した。したがって、あまり高温での灰化処理を行わない方が、Pu 定量のためには必要であることがわかった。

今年度は、さらに玄米試料の Pu 定量を試みた。分析上問題となったのは、米試料に多く含まれる有機物である。米を 1 kg 灰化処理すると、75 g の灰を得ることができたが、減少した部分はほとんど有機物に由来する。このように多量の有機物を灰化する場合、完全に灰化しきれずに黒色炭化物として灰試料に残ってしまい、硝酸で抽出を行っても酸化しきれず、回収率の低下に繋がった。そこで、硝酸抽出後、残渣をマッフル炉で加熱・分解する操作を 3 回繰り返したところ、黒色が消えて十分灰化することができた。なお、灰試料を分析に用いる際、1, 3, 5 g を使って検討したところ、5 g 使用することで回収率が減少してしまっていたが、3 g では約 50% の回収率を得ることができた。灰試料としては 15 g 必要であるため、1 試料を 5 分割して分析を行うこととした。その結果、上述で開発した新測定システムを用いて、玄米中の Pu の定量を行い、また同時に採取した土壌試料も分析して、2 試料の移行係数 ($3.1\text{--}4.5 \times 10^{-5}$) を得ることができた。今後さらに分析を行って、我が国の Pu 移行係数の蓄積を行う必要がある。

一般に農作物中の Th 濃度は極めて低く、定量が困難である。一方で土壌中の濃度は測定法が確立されていることから、農作物中の濃度が精度良く測定できれば移行係数を蓄積することができる。Th の超高精度分析については、一般的に用いられる四重極型 ICP-MS では定量が困難となるケースがあったことから、昨年度導入した SF-ICP-MS システムを適用する方法について検討した。この装置は検出下限値が十分低いために、試料を全分解し希釈することで、高精度な分析結果が得られることがわかった。今後、低濃度試料については SF-ICP-MS システムによりさらにデータを蓄積する必要がある。

塩素分析の高精度化については、ICP-発光分光分析法を用いる方法について検討した。ICP-OES のうち、低波長を測定できる装置を用いると高感度で測定できる可能性があったため、装置条件として、RF パワーや測定時間の最適化について検討したところ、RF パワーを 1300W と測定時間を伸ばした方が感度が良くなる結果を得た。しかしながら用いた装置には低波長領域の透過率が十分ではないシステムであったため、低濃度試料を測定するための十分な感度を得ることができなかった。予備的な調査として、最新型の ICP-MS を用いると、ICP-OES よりも高感度で測定できることが分かったため、今後は ICP-MS を用いて定量を進めることを検討する必要がある。そのための試料前処理法についても検討したが、植物試料で用いることができる TMAH 分解法では、堆積物試料（塩素が定量された土壌標準物質がないため、堆積物標準物質使用）では定量結果が低くなる結果であった。分解を行う条件として硝酸抽出を用いる方法が塩素分析には適切であることがわかった。

日本の土壌中塩素濃度についての文献調査を行い、幾何平均値として 99 mg/kg-dry（範囲：12-420 mg/kg-dry）を得た。また、濃度は土壌の利用形態に依存していなかったことから、農耕地土壌でも同程度の濃度であると考えられた。本年度行った最適な分析方法の検討において、定量分析法についてはほぼ確立できたため、今後はデータを蓄積していく。

TF について、文献調査により IAEA TRS-472 以降に採取されたもののうち、Th, Pu, Am および Cl についてデータを追加した。Th については 277 点が報告されていた。Pu と Am と Cl については、データは追加されていたものの、作物種毎の違いを考慮すると統計処理を行える程度にまで十分な数ではないことが明らかとなった。Th データでは IAEA-TRS-472 に比べて明らかに高い値が報告されており、これが土壌、品種、気候、さらには分析法の違いに依存するのかどうかについては明確ではなかった。Th についてはデータがこれからも多く報告されると期待できることから、上述の点について注意しながらデータ整理と解析をすすめる予定である。なお、Pu と Cl は本調査によって実環境中のデータを収集しているところである。

このようなデータを収集して我が国独自のデータベース構築を行うとともに、世界的にも数が少ないこれらのデータを今後国際的に提供していくことが重要である。

平成26年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会

平成26年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会委員

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

坂口 綾 筑波大学 数理物質系化学域 准教授

颯田 尚哉 : 岩手大学農学部 教授

高橋 知之 : 京都大学原子炉実験所 准教授

武田 晃 (公財) 環境科学研究所環境影響研究部 副主任研究員

塚田 祥文 : 福島大学環境放射能研究所 教授

百島 則幸 : 九州大学アイソトープ総合センター 教授 (委員長)

平成26年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会 開催日時

第1回：平成26年10月6日～7日

第2回：平成27年2月2日～3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、白坂 純一氏、古賀 宏典氏および嵐 大輔氏の協力を得た。また、中国からの実習生である曹 立国氏は環境試料中のPuの濃縮・分離や分析をサポートしていただいた。

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
王 鍾堂
遠藤 いず貴
芦田 能美
京相 祐子
水谷 浩子