

平成27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28年3月

国立研究開発法人

放射線医学総合研究所

平成 27 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
引用文献	6
2. 2. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査	7
2.2.1. 根圏域温度と気温との関係	7
2.2.2. 気温と TF に関する文献調査	8
2.2.3. 気温と TF のデータ解析	10
2.2.4. TF に対する気温の影響調査のまとめ	11
引用文献	12
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	13
2.3.1. 玄米およびジャガイモ土壌-農作物間移行係数 (TF) データの取得	13
2.3.1.1. 採取場所の選択と採取方法	13
2.3.1.2. 土壌試料の前処理方法	13
2.3.1.3. 農作物試料の前処理方法	14
2.3.1.4. 土壌の物理化学的特性	14
2.3.1.5. 土壌中の安定元素の分析	16
2.3.1.6. 農作物中の安定元素の分析	18
2.3.1.7. その他の元素の定量	19
2.3.1.8. 分析結果および考察	19
2.3.2. 平成 26 年度に採取した試料のデータ追加	20
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	21
引用文献	21
2. 4. 環境移行パラメータ変動要因の解析	22
2.4.1. 葉菜類移行係数	22
2.4.1.1. データと対象とする変動要因	22
2.4.1.2. ウランとトリウム	23
2.4.1.3. 結球性・非結球性と気温条件による TF の比較	23
2.4.2. 葉菜類炭素移行係数	24
2.4.3. まとめ	25

引用文献	26
2. 5. 土壌-土壌溶液間分配係数に対する気温の影響調査	27
2.5.1. 土壌-土壌溶液間分配係数と温度について	27
2.5.2. 10°Cにおける土壌-土壌溶液間分配係数の実験方法	27
2.5.3. 10°Cにおける K_d - ^{137}Cs の測定結果	28
引用文献	28
2. 6. 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	29
2.6.1. 植物中の放射性 Cs 減少率の時間変化	29
2.6.1.1. 材料および測定方法	29
2.6.1.2. 植物中放射性 Cs の経時変化	30
2.6.2. 海水魚（底魚）中放射性 Cs の生態学的半減期	31
2.6.2.1. 海水魚中の ^{137}Cs 濃度と採取地域による影響（平衡時）	31
2.6.2.2. 海水魚中の ^{137}Cs 濃度の経時変化と生物学的半減期の影響	32
2.6.3. 淡水魚中の ^{137}Cs 濃度	33
2.6.3.1. 印旛沼の基本情報と周辺域の汚染状況	34
2.6.3.2. 印旛沼底質の汚染状況	34
2.6.3.3. 印旛沼で採取された淡水魚の ^{137}Cs 濃度	35
2.6.3.4. ^{137}Cs 蓄積に対するエサの寄与	37
2.6.3.5. 次世代への移行	37
2.6.4. 福島第一原発事故後の放射性 Cs の環境移行調査研究のまとめ	37
引用文献	38
2. 7. おわりに	41
2.7.1. TF に対する気温の影響に関する文献調査	41
2.7.2. 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）	41
2.7.3. 環境移行パラメータ（TF）の変動要因の解析	41
2.7.4. 寒冷条件下における K_d - ^{137}Cs の測定結果	42
2.7.5. 福島第一原発事故後の放射性 Cs の環境移行調査研究のまとめ	42
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	97
3. 1. はじめに	97
引用文献	98
3. 2. 微生物と環境移行パラメータの解析	100
3.2.1. 水田土壌微生物群集による炭素資化	100
3.2.1.1. 水田土壌の選定条件	100
3.2.1.2. 選定土壌の物理化学的特徴	101
3.2.1.3. 炭素資化性	104
3.2.2. 酢酸資化能力と ^{14}C ガス化率との関係	108
3.2.2.1. 酢酸に対する微生物活性	108
3.2.2.2. ^{14}C ガス化率との関係	108

3.2.2.3. 微生物活性に対する酢酸の効果	109
3.2.3. まとめ	111
引用文献	112
3. 3. 温度変化と微生物活動の関係についての調査	113
3.3.1. ¹⁴ C 標識酢酸の ¹⁴ C ガス化率に対する気温の効果	113
3.3.1.1. 実験手順	113
3.3.1.2. ¹⁴ C ガス発生に対する気温の効果（気温効果実験）	114
3.3.1.3. ¹⁴ C ガス再放出に対する気温の効果（再放出実験）	115
3.3.1.4. 統括的指標：気温変化に反応する微生物活動	115
3.3.2. 多様な炭素の資化性に対する気温の効果	116
3.3.2.1. 実験手順	116
3.3.2.2. AWCD に対する気温の効果	117
3.3.2.3. H' に対する気温の効果	117
3.3.2.4. 炭素資化性パターン' に対する気温の効果	117
3.3.3. まとめ	118
引用文献	118
3. 4. 水稲全体モデルのための微気象データの取得	119
3.4.1. 水稲各成長段階における葉面積指数（LAI）	119
3.4.1.1. LAI について	119
3.4.1.2. 水稲栽培	119
3.4.1.3. LAI, 草丈, 葉数, 分けつ数の測定方法	120
3.4.1.4. イネの生長	120
3.4.1.5. LAI と草丈の関係	121
3.4.2. 模擬水田における微気象観測	121
3.4.2.1. 模擬水田試験	121
3.4.2.2. イネ科草本植物群落試験	122
3.4.3. まとめ	125
引用文献	126
3. 5. 微生物活動を反映したモデルの構築	127
3.5.1. 水稲全体モデルに対する微生物による炭素の取り込みおよび分解の反映	127
3.5.1.1. 実験概要	127
3.5.1.2. 実験結果	128
3.5.1.3. 実験結果の反映	129
3.5.2. 水稲全体モデルに対する近傍大気と環境大気的气体交換効果の反映	132
3.5.2.1. 実験概要	133
3.5.2.2. 実験結果と結果分析	133
3.5.2.3. 近傍大気と環境大気の移行半減期	136
3.5.2.4. 観測結果に基づく水稲全体モデルへの反映の検討	137
3.5.3. 水稲全体モデルの改良および検証解析	139
3.5.3.1. 改良した水稲全体モデルの検証解析（基本解析）	139

3.5.3.2. 感度解析.....	140
3.5.3.3. 収穫期におけるイネ内 ^{14}C 量および解析結果のまとめ.....	144
3.5.4. まとめ.....	145
引用文献.....	145
3. 6. おわりに.....	146
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.....	227
4. 1. はじめに.....	227
4. 2. 重要核種 Am の超高精度分析法開発.....	228
4.2.1. 土壌試料中 Am 質量分析法について文献調査.....	228
4.2.1.1. Am 質量分析の試料前処理概述.....	230
4.2.1.2. Am の抽出と共沈澱濃縮.....	230
4.2.1.3. Am の化学分離.....	232
4.2.1.4. Am の質量分析.....	236
4.2.1.5. まとめ.....	237
引用文献.....	238
4.2.2. 高分解能質量分析装置(Element XR)の Am 分析性能調査.....	244
4.2.2.1. Aridus II-Element XR 分析装置概要.....	244
4.2.2.2. Am 分析のための分析条件の最適化.....	245
4.2.2.3. Am 分析の感度, 精度及び検出限界.....	245
引用文献.....	247
4.2.3. DGA 抽出樹脂による Am 分離法開発.....	247
4.2.3.1. はじめに.....	247
4.2.3.2. DGA 抽出樹脂による Am の吸着特性.....	247
4.2.3.3. DGA 抽出樹脂の妨害元素の吸着特性.....	249
4.2.3.4. Am の溶離条件の検討.....	249
4.2.3.5. UTEVA 抽出樹脂を用いた Pu と U の分離.....	250
4.2.3.6. まとめ.....	251
引用文献.....	251
4. 3. Pu の土壌-農作物の環境移行パラメータ.....	253
4.3.1. はじめに.....	253
4.3.2. 試料の前処理.....	253
4.3.2.1. 測定試料.....	253
4.3.2.2. 試薬.....	254
4.3.2.3. Pu の化学分離と分析.....	254
4.3.3. 結果および考察.....	255
4.3.3.1. 土壌サンプル中の Pu 汚染源の識別.....	255
4.3.3.2. 農作物中 Pu 濃度.....	256

4.3.3.3. Pu の土壌-米間移行移行係数	256
4.3.3.4. Pu の土壌-農作物間移行係数	257
引用文献	258
4. 4. 土壌中塩素の超高精度分析開発	260
4.4.1. はじめに	260
4.4.2. ICP-質量分析装置 (ICP-MS) による塩素分析条件について	260
4.4.3. 塩素分析のための土壌試料の溶液化について	262
4.4.4. 農作物および土壌試料中の塩素分析と TF	263
引用文献	263
4. 5. 文献調査による Pu, Am, Th および Cl の土壌-農作物の環境移行 パラメータ収集	265
4.5.1. はじめに	265
4.5.2. データ収集および統計解析	265
4.5.3. IAEA TRS-472 との比較	267
引用文献	267
4. 6. まとめ	271
4.6.1. Am および Cl の超高精度分析	271
4.6.1.1. Am の超高精度分析	271
4.6.1.2. 塩素の超高精度分析	271
4.6.2. 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集	272
 第5章 まとめ	 303
5. 1. はじめに	303
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	303
5.2.1. TF に対する気温の影響に関する文献調査	304
5.2.2. 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)	304
5.2.3. 環境移行パラメータ (TF) の変動要因の解析	304
5.2.4. 寒冷条件下における Kd- ¹³⁷ Cs の測定結果	305
5.2.5. 福島第一原発事故後の放射性 Cs の環境移行調査研究のまとめ	305
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	306
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	307
5.4.1. Am および Cl の超高精度分析	307
5.4.1.1. Am の超高精度分析	307
5.4.1.2. 塩素の超高精度分析	308
5.4.2. 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集	308

放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員	313
平成 27 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	314
謝辞	315

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	畑条件の土壌地温 (20 cm) と気温の 5 日間平均温度の変化	43
表 2.2-2	グローバルフォールアウト ^{137}Cs および ^{90}Sr の河川水中環境半減期 (T_{env})	43
表 2.2-3	グローバルフォールアウト ^{137}Cs の土壌および作物中環境半減期 (T_{env})	44
表 2.2-4	グローバルフォールアウト ^{90}Sr の土壌および作物中環境半減期 (T_{env})	44
表 2.3-1	採取地点, 土壌・作物採取日一覧	45
表 2.3-2	採取土壌の分類および仮比重一覧	46
表 2.3-3	試料コード一覧 (到着順)	47
表 2.3-4	土壌試料前処理状況および試料到着時水分含量	48
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	49
表 2.3-6	玄米の水分含量と精米歩合	49
表 2.3-7	試料到着時の状態 (1) 玄米	50
表 2.3-8	試料到着時の状態 (2) ジャガイモ	52
表 2.3-9	平成 27 年度に採取した土壌の物理化学的特性	54
表 2.3-10	平成 27 年度に採取した土壌試料中の元素濃度	55
表 2.3-11	平成 27 年度に採取した農作物試料中の元素濃度	57
表 2.3-12	平成 26 年度に採取した土壌試料中の元素濃度 (追加分析)	59
表 2.3-13	平成 26 年度に採取した農作物試料中の元素濃度 (追加分析)	63
表 2.3-14	平成 26 年度に採取した農作物試料の移行係数 (乾重ベース)	65
表 2.4-1	全葉菜試料の収穫期と移行係数	67
表 2.4-2	温暖条件下 (収穫前月気温 $>18^{\circ}\text{C}$) と寒冷条件下 (収穫前月気温 $<13^{\circ}\text{C}$) における葉菜類の移行係数	71
表 2.5-1	分析に用いた土壌試料の物理化学的特性	72
表 2.5-2	10°C における $\text{Kd-}^{137}\text{Cs}$ 測定の結果と平均の pH, EC および 23°C の $\text{Kd-}^{137}\text{Cs}$	73
表 2.6-1	植物中 ^{137}Cs 濃度の経時変化のフィッティングに使用したパラメータ値	74
表 2.6-2	捕獲した魚の全長と体重 (湿重量)	74
表 2.6-3	エサの ^{137}Cs 濃度に対する筋肉, 内臓, および骨中の ^{137}Cs 濃度比	74
表 2.6-4	コイ筋肉中の ^{137}Cs 濃度に対する卵の ^{137}Cs 濃度比	74
図 2.2-1	気温と地温の 1 年間における変動	75
図 2.2-2	2 つの測定地点における気温 (左) と地温 (右) の比較	76
図 2.2-3	各測定地点における気温と地温の相関	76
図 2.2-4	5 日間平均の気温と地温の差の年間変動 (畑条件)	76
図 2.2-5	北海道, 青森県および秋田県におけるグローバルフォールアウト ^{137}Cs の 降下物, 土壌, 葉菜類, および陸水中濃度の経年変化	77
図 2.2-6	高知県, 鹿児島県および沖縄県におけるグローバルフォールアウト ^{137}Cs の 降下物, 土壌, 葉菜類, および陸水中濃度の経年変化	78

図 2.2-7	北海道, 青森県および秋田県におけるグローバルフォールアウト ^{90}Sr の 降下物, 土壌, 葉菜類, および陸水中濃度の経年変化.....	79
図 2.2-8	高知県, 鹿児島県および沖縄県におけるグローバルフォールアウト ^{90}Sr の 降下物, 土壌, 葉菜類, および陸水中濃度の経年変化.....	80
図 2.2-9	比較的寒冷地 (北海道および秋田県) と比較的温暖地 (高知県および沖縄県) におけるグローバルフォールアウト ^{137}Cs と ^{90}Sr の葉菜類および根菜類 への見かけの移行係数の比較	81
図 2.3-1	平成 26-27 年度に採取した土壌-農作物試料の移行係数の寒冷地と温暖地 での比較.....	82
図 2.4-1	葉菜類採取 1 ヶ月前の月の平均気温を用いた分類による TF (幾何平均値) の元素毎の比較	83
図 2.4-2	葉菜類採取 1 ヶ月前の月の平均気温を用いた分類による TF (幾何平均値) の比較.....	83
図 2.4-3	葉菜類採取 1 ヶ月前の月の平均気温を用いた分類による Th と U の TF (幾何平均値) の比較.....	84
図 2.4-4	葉菜類の作物間の Th (左) と U (右) の移行係数の比較	84
図 2.4-5	結球性および非結球性葉菜類における温暖と寒冷条件栽培の 移行係数 (幾何平均値) の比較 (温暖 TF/寒冷 TF)	85
図 2.4-6	温暖および寒冷条件下における結球性と非結球性の葉菜類の 移行係数 (幾何平均値) の比較 (非結球 TF/結球 TF)	85
図 2.4-7	葉菜類, 白米, ジャガイモおよびそれらの耕作土壌試料中の $\delta^{13}\text{C}$ 値	86
図 2.4-8	葉菜類と土壌中の $\delta^{13}\text{C}$ 値の関係	86
図 2.5-1	10°C と 23°C における Kd-Cs の比較	87
図 2.6-1	用いた植物試料の写真	88
図 2.6-2	マメ科植物中の ^{137}Cs 濃度経時変化と指数関数フィッティング結果.....	88
図 2.6-3	カキ (展開葉) の ^{137}Cs 濃度経時変化と指数関数フィッティング結果.....	89
図 2.6-4	ベニカナメモチ (展開葉) の ^{137}Cs 濃度経時変化と指数関数フィッティング 結果	89
図 2.6-5	北海道 (H) および青森 (A) で採取された海水 (Cs-HA) とヒラメ (-HA), 鹿児島(K)と沖縄(O)で採取された海水 (Cs-KO) と鹿児島で採取されたヒラメ (-H) 中の ^{137}Cs 濃度の経年変化	90
図 2.6-6	遅い移行成分の生物学的半減期のみを変化させたときの魚体中 ^{137}Cs 濃度 の変化.....	90
図 2.6-7	福島県広野町および富岡町沖で採取されたシロメバル (可食部) の ^{137}Cs 濃度の経時変化	91
図 2.6-8	遅い成分の生物学的半減期を 58 日と 116 日に設定し, 1000 日目以降に餌中の 濃度を 1 Bq/kg に減少させたときの魚体中 ^{137}Cs 濃度の経時変化	91
図 2.6-9	遅い成分の生物学的半減期を 116 日と 231 日に設定した時の魚体中 ^{137}Cs 濃度の 経時変化.....	92
図 2.6-10	採取地点	92

図 2.6-11	土壌コア試料中の Cs-137 濃度	92
図 2.6-12	耳石による輪紋査定	93
図 2.6-13	各魚種の部位別 ^{137}Cs 濃度	94
図 2.6-14	^{137}Cs 濃度と体長, 湿重量, および推定年齢との関係	94
図 2.6-15	コイの推定年齢と ^{137}Cs 濃度との関係	95
図 2.6-16	耳石による推定年齢と全長および湿重量との関係	95

第 3 章 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

表 3.2-1	水田土壌選定条件	149
表 3.2-2	選定土壌の採取地および土壌タイプ	149
表 3.2-3	選定土壌の物理的特徴	149
表 3.2-4	選定土壌の化学的特徴	150
表 3.2-5	各ウェルに充填された炭素基質, 化学式および化学分類群 (その 1)	150
表 3.2-5	各ウェルに充填された炭素基質, 化学式および化学分類群 (その 2)	151
表 3.2-5	各ウェルに充填された炭素基質, 化学式および化学分類群 (その 3)	152
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P2, 1/15)	153
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P10, 2/15)	154
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P11, 3/15)	155
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P21, 4/15)	156
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P24, 5/15)	157
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P27, 6/15)	158
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P29, 7/15)	159
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P33, 8/15)	160
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P38, 9/15)	161
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P48, 10/15)	162
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P49, 11/15)	163
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P50, 12/15)	164
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P51, 13/15)	165
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P52, 14/15)	166
表 3.2-6	水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P62, 15/15)	167
表 3.2-7	各水田土壌試料における炭素資化性ランクと炭素資化性難易度ランク	168
表 3.2-8	培養 5 日目における各試料の AWCD と多様度指数	169
表 3.4-1	様々な植物種の LAI	169
表 3.4-2	各生育段階におけるイネの草丈と LAI	169
表 3.5-1	各相の濃度が平衡になった時の比率	170
表 3.5-2	大阪以北の主要都市の月平均気温	170
表 3.5-3	土壌微生物による ^{14}C の分解速度及び分解半減期	170
表 3.5-4	群落上部の風速別に見た群落頂部の上向き風速の発生頻度	171
表 3.5-5	千葉観測所におけるアメダス時別風速データ	171

表 3.5-6	水稻全体モデルにおける各設定パラメータ値	171
表 3.5-7	感度解析ケースのパラメーター一覧	172
図 3.2-1	供試土壌の粒径組成に基づく土性三角座標	173
図 3.2-2	粗粒砂, 細粒砂, シルトおよび粘土含有率によるクラスタリング	173
図 3.2-3	選定土壌の化学的特徴によるクラスタリング	174
図 3.2-4	炭素資化性試験の実験手順概要	174
図 3.2-5	15 水田土壌試料の AWCD 値の経時変化	175
図 3.2-6	GN2 MicroPlate 端における試料溶液の減少	175
図 3.2-7	AWCD と Shannon-Weaver 多様度指数との関係	175
図 3.2-8	主成分分析による炭素資化能の類似性	176
図 3.2-9	主成分分析による炭素の利用し易さ順位の類似性	176
図 3.2-10	酢酸資化性の経時変化	177
図 3.2-11	酢酸資化能 (発色量の最大値) と ^{14}C ガス化率との関係	177
図 3.2-12	微生物活性に対する酢酸の効果	178
図 3.3-1	^{14}C ガス化に対する気温効果と固相からの ^{14}C 再放出試験の概要	179
図 3.3-2	各培養日における気相, 液相, 固相中 ^{14}C 濃度	180
図 3.3-3	気温に対する $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量	181
図 3.3-4	$^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量と液相中の ^{14}C 量との関係	181
図 3.3-5	再放出実験における培養 7 日目の気相, 液相, および固相中の ^{14}C 濃度	182
図 3.3-6	気温効果試験で推定された固相 ^{14}C 量と気相, 液相および固相中の ^{14}C 量の関係	183
図 3.3-7	AWCD の経時変化	184
図 3.3-8	培養 5 日目における H'	184
図 3.3-9	各温度で培養した P2 の炭素資化性の類似性	185
図 3.3-10	P2 における各温度, 各培養日における炭素資化性の類似性	185
図 3.3-11	P11 における各温度, 各培養日における炭素資化性の類似性	186
図 3.4-1	育苗の様子	187
図 3.4-2	LAI の測定	187
図 3.4-3	水稻の草丈, 葉数, および分けつ数の推移	188
図 3.4-4	イネの生長段階	189
図 3.4-5	LAI と草丈の関係	189
図 3.4-6	水田模擬群落	190
図 3.4-7	模擬水田試験 1	190
図 3.4-8	微気象測定に用いた機器	191
図 3.4-9	模擬水田試験 2	191
図 3.4-10	試験 1 における鉛直方向の風の頻度	192
図 3.4-11	試験 1 における風速の別鉛直風向頻度	192
図 3.4-12	試験 2 における鉛直方向の風の頻度	193
図 3.4-13	試験 2 における風速の別鉛直風向頻度	193

図 3.4-14	日中と夜間における群落内外の CO ₂ 濃度の関係	194
図 3.4-15	イネ科草本植物の群落	194
図 3.4-16	イネ科草本植物の群落の LAI 測定準備	195
図 3.4-17	イネ科草本植物の高群落での微気象観測の概略と様子	195
図 3.4-18	イネ科草本植物の低群落における 10 分間の風の動き	196
図 3.4-19	イネ科草本植物の高群落における 10 分間の風の動き	196
図 3.4-20	イネ科草本植物の各測定場所での水平方向の平均風速	197
図 3.4-21	イネ科草本植物の各測定場所での鉛直方向の平均風速	197
図 3.4-22	ドライアイス試験の様子	197
図 3.5-1	水稻全体モデルの構成	198
図 3.5-2	10 日間連続培養実験の各相における ¹⁴ C 濃度の測定結果	199
図 3.5-3	初期培養から 7 日培養後の各相における ¹⁴ C 濃度の測定結果	200
図 3.5-4	初期培養から 7 日培養後の各相における ¹⁴ C 濃度の測定結果 (全培養温度)	201
図 3.5-5	土壌内微生物による ¹⁴ C 分解の濃度変化イメージ	202
図 3.5-6	各培養温度における 7 日間培養後の ¹⁴ C 分解量	202
図 3.5-7	固相濃度から算出した各培養温度における固相における ¹⁴ C 分解速度	203
図 3.5-8	気相濃度と液相濃度から算出した各培養温度における 固相における ¹⁴ C 分解速度	204
図 3.5-9	培養温度と分解半減期および分解速度との関係	205
図 3.5-10	10 日連続培養時の気相濃度と 7 日間培養時の気相濃度の関係	205
図 3.5-11	風速計設置位置のイメージ図	206
図 3.5-12	群落内外の水平方向の風速 (57cm 群落)	206
図 3.5-13	群落内外の水平方向の風速 (70cm 群落)	207
図 3.5-14	群落内外の鉛直方向の風速 (57cm 群落)	207
図 3.5-15	群落内外の水平方向の風速 (70cm 群落)	208
図 3.5-16	群落上部と群落頂部における鉛直方向の風速 (57cm 群落)	208
図 3.5-17	群落上部と群落頂部における鉛直方向の風速 (70cm 群落)	209
図 3.5-18	群落頂部における水平方向と鉛直方向の風速 (57cm 群落)	209
図 3.5-19	群落頂部における水平方向と鉛直方向の風速 (70cm 群落)	210
図 3.5-20	群落上部の水平方向と群落頂部の鉛直方向の風速 (57cm 群落)	210
図 3.5-21	群落上部の水平方向と群落頂部の鉛直方向の風速 (70cm 群落)	211
図 3.5-22	群落上部の水平方向風速とアメダス風速データの関係	211
図 3.5-23	2014 年と 2015 年の 4 月 1 日～9 月 30 日における AMeDAS (千葉観測所) 風速データの頻度分布	212
図 3.5-24	簡易計算による環境大気⇄近傍大気の移行半減期結果	212
図 3.5-25	基本解析における環境コンパートメント間の ¹⁴ C 移行量変化	213
図 3.5-26	基本解析における近傍大気—土壌 1 間の ¹⁴ C 移行量変化	214
図 3.5-27	基本解析におけるコンパートメント内 ¹⁴ C 存在量	215
図 3.5-28	感度解析 No.1 における移行量とコンパートメント内 ¹⁴ C 存在量	216
図 3.5-29	基本解析とケース No.1 における土壌 1 コンパートメント内 ¹⁴ C	

	存在量の比較	216
図 3.5-30	感度解析 No.2 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	217
図 3.5-31	ケース No.1 とケース No.2 における土壌 1 コンパートメント内 ^{14}C 存在量の比較	217
図 3.5-32	感度解析 No.3 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	218
図 3.5-33	感度解析 No.4 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	219
図 3.5-34	感度解析 No.5 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	220
図 3.5-35	感度解析 No.6 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	221
図 3.5-36	感度解析 No.7 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	222
図 3.5-37	感度解析 No.8 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	223
図 3.5-38	感度解析 No.9 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	224
図 3.5-39	感度解析 No.10 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量	225
図 3.5-40	ケース No.10 における環境コンパートメント間の ^{14}C 移行量	225
図 3.5-41	基本解析とケース No.10 における土壌 1 コンパートメント内 ^{14}C 存在量の比較	226
図 3.5-42	各解析ケースのイネの収穫時におけるイネ内 ^{14}C 存在量	226
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	質量分析による ^{241}Am 分析で妨害となる同重体元素およびマトリクス元素	273
表 4.2-2	文献において一般に用いられている様々な Am 抽出法の比較	273
表 4.2-3	文献で報告されている Am 共沈法の比較	274
表 4.2-4	文献で報告されている Am 分離法の比較	274
表 4.2-5	近年報告された質量分析による Am 分析法	275
表 4.2-6	SF-ICP-MS (Element XR) と Aridus II システムにおける測定条件	277
表 4.2-7	DGA-N 樹脂を用いた Am 測定のための分離法	278
表 4.3-1	Pu ソース毎の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の代表的数値	279
表 4.3-2	収集した土壌試料中の Pu 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比	279
表 4.3-3	作物中の ^{239}Pu 測定結果と Pu の土壌-農作物間移行係数	280
表 4.3-4	Pu の土壌-米間移行係数値の比較	280
表 4.4-1	塩素測定の装置検出下限値 (mg/L)	281
表 4.4-2	同時計測の Br と I の装置検出下限値 ($\mu\text{g/L}$)	281
表 4.4-3	硝酸抽出法および加熱気化法による堆積物中の塩素, 臭素および ヨウ素定量結果	281
表 4.4-4	TMAH-ICPMS 法による塩素, 臭素およびヨウ素定量結果	281
表 4.4-5	農作物および土壌中 Cl, Br, I 濃度と移行係数	282
表 4.5-1	2008 年から 2016 年にかけて文献に報告された Th の土壌-植物間移行係数	283
表 4.5-2	2008 年から 2016 年の文献に報告された Am の土壌-植物間移行係数	284
表 4.5-3	2008 年から 2016 年の文献に報告された Pu の土壌-植物間移行係数	285

図 4.2-1	我が国の土壌中微量および極微量元素の濃度範囲 (Yamasaki et al., 2001 のデータ引用)	286
図 4.2-2	環境試料中の Am 分析法のアウトライン	287
図 4.2-3	塩酸による TRU, DGA-N および DGA-B における Th (IV), U (IV), Am (III) および Pu (IV) の retention factor k' (Horwitz et al., 2015 から抜粋)	288
図 4.2-4	硝酸による TRU, DGA-N および DGA-B における Th (IV), U (IV), Am (III) および Pu (IV) の retention factor k' (Horwitz et al., 2015 から抜粋)	288
図 4.2-5	様々な濃度の硝酸および塩酸溶液による DGA-N 樹脂の妨害元素の 収着特性 (Pourmand and Dauphas, 2010 から抜粋)	289
図 4.2-6	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	290
図 4.2-7	試料導入装置 Aridus II を最適条件下でセットした場合の Am 感度 (^{243}Am , 1.07 pg/mL) に及ぼす RF パワーの効果	290
図 4.2-8	試料導入装置 Aridus II を最適条件下でセットした場合の Am 感度 (^{243}Am , 1.07 pg/mL) に及ぼす Ar ガス流量と窒素ガス流量の影響	291
図 4.2-9	Aridus II-Element XR 分析システムによる Am 標準溶液 (1 fg/mL と 5 fg/mL) の測定スペクトル	292
図 4.2-10	$^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比測定の精度に及ぼす Am 濃度の影響	293
図 4.2-11	Aridus II-Element XR システムと APEX-Q-Element 2 システムによる $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比測定の比較	294
図 4.2-12	DGA-B 樹脂に試料を負荷しマトリックス元素を様々な濃度の硝酸溶液で 洗浄を行った場合の Am の溶出	295
図 4.2-13	DGA-N 樹脂に試料を負荷しマトリックス元素を様々な濃度の硝酸溶液で 洗浄を行った場合の Am の溶出	295
図 4.2-14	DGA-B 樹脂から様々な濃度の硝酸溶液で洗浄した場合の妨害元素, U, Pb, Tl および Hg の洗浄効率	296
図 4.2-15	堆積物試料 (NIST-4357) を DGA-N 樹脂から 0.01 M の硝酸で Am を 溶離した場合の溶出曲線	296
図 4.2-16	NIST-4357 (堆積物標準物質) を用いたときの DGA-B レジンからの 0.01M HNO ₃ による Am 溶出曲線	297
図 4.2-17	塩酸および硝酸溶液による Am 溶離の際に回収率に及ぼすプレフィルターの 効果	297
図 4.2-18	DGA-B 樹脂を用いた Am 分離のために開発した方法	298
図 4.3-1	本研究における土壌および作物試料採取地点	298
図 4.3-2	Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較 ..	299
図 4.4-1	トリプル四重極 ICP-MS の模式図	300
図 4.4-2	ICP-MS (MS/MS + He) とイオンクロマトグラフィによる土壌溶液中の 塩素分析結果の比較	300
図 4.4-3	管状加熱気化装置	300
図 4.5-1	2008 年から 2016 年に報告された Th の土壌-農作物間移行係数と	

	IAEA TRS-472 に報告されている値との比較.....	301
図 4.5-2	2008 年から 2016 年に報告された Am の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較.....	302
図 4.5-3	2008 年から 2016 年に報告された Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較.....	302

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等により移動し、最終的に人間の生活環境を含む生物圏に到達する様々なシナリオを想定し、評価を行う必要がある。生物圏においても、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重要である。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 および塩素(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27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 農作物および土壌の採取：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。

ウ 上記試料は前処理の後、土壌および植物試料の元素分析(20元素程度)。

エ 上記分析結果に基づき、TFを導出しデータベースに追加した。なお、平成26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した。

② 変動要因の解析

水田土壌約20試料、畑土壌約20試料を用いて比較的低温条件下(10℃：我が国の亜寒

帯でのイネ作付け開始月平均気温程度)において, Cs-137 の土壌-土壌溶液間分配係数 (Kd) データの取得。

(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27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 水田土壌に生息する土壌微生物の炭素資化性データの収集。

イ 炭素資化性と低分子有機態 ^{14}C のガス化率との関係についての調査。

② 温度変化と微生物活動の関係についての調査

ア 土壌微生物群集の炭素資化性に対する温度効果についてデータの収集。

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 水稻栽培期間における葉面指数 (LAI) の測定。

イ 統括的指標を導入したモデルの試作。

(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27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27年度に引き続き, 超高精度分析法の開発を行う。

ア Am-241 については高分解能 ICP-MS を用い, 土壌中の超高精度質量分析法の開発。

イ Pu については, 農作物中の実用的な超高精度質量分析法の確立。

ウ Cl については ICP-質量分析装置による土壌中の塩素分析法の確立。

② 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

ア Pu, Th および Cl の土壌および農作物の分析を行い, TF データの蓄積。

イ 文献調査を進めるとともに, H25-H26年度に収集した TF データベースに, 本調査で求めたデータを追加。

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、我が国において、地殻変動としては隆起・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寒冷期へと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活圏安全評価に関する技術開発課題として、Geosphere-Biosphere Interfaceを含む生活圏モデルの開発が挙げられている(NUMO, 2011)。また、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(WG6)においてCommon framework for addressing environmental change in long term safety assessments of radioactive waste disposal facilities(放射性廃棄物処分施設の長期安全性評価における環境変遷に関わる取り組みの共通的な枠組み)が検討されている(IAEA, 2016)。本プロジェクトは2015年をもって終了し、2016年の春以降にTecdodの形で報告書が出版される予定である。直近のミーティング(2015年11月9-13日)において、研究結果として気候-CO₂モデルを用いた100万年後までのCO₂シナリオの開発と、CO₂とそれ以外の変動要因に関連づけた一般的な気候に関する記述を行い、数十万年程度までの連続的な気候変動を表現する方法が報告された。CO₂を用いた気候変動シナリオは第四紀学会でも紹介されており、現在は広く用いられている手法である。また、同WGにおいてPosiva社(フィンランドにおける使用済み核燃料の最終処分実施主体企業)のレファレンス環境モデリングのための気候変動についての報告があり、セーフティケース2020に用いられているタイムラインは、130年、1万年、12万年および100万年であり、連続事象ではなく、それぞれの期間において適切なモデルを利用するが、超長期において考慮される気候状況は気温、氷河期周期、および湛水条件であり、地球温暖化による気温・湿度上昇のケースと氷河期が考慮されるとのことである。このような国際的プロジェクトを通し、長期の安全評価において温暖化および寒冷化に対する考慮が引き続き重要であることが示されたといえる。

諸外国の中で高レベル放射性廃棄物処分計画が進められつつあるのは欧米諸国である(経済産業省資源エネルギー庁, 2016)。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ことが、FAOの統計からも分かる(FAO, 2015)。我が国では家畜の肉や乳製品等を摂取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必要である。

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、今年度も土壌-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。さらに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ている。計画では、1年目においては移行係数の高い葉菜類を中心にデータを収集したが、その後は主食である玄米と、温暖-寒冷地域で生産が可能なジャガイモに着目して収集を進めている。それぞれの作物を温暖地域と寒冷地域から試料を5検体ずつ4年間採取することで、最終的には、例えば温暖地域-玄米という条件のデータセットをそれぞれ20試料ずつ収集できることになる。これ

により、同じクオリティで採取されたデータセットを得る事ができるため、詳細な比較が出来るようになる。平成 27 年度は玄米およびジャガイモ収集 2 年目であり、各組み合わせについて 10 試料の採取を終了し、元素濃度を含む 20 項目程度の分析結果を得た。さらに平成 25 年度に採取した土壌-葉菜類の 20 セットについては、比較的温暖な地域で採取された結果とこれまでの全国データについて、統計処理を行い、有意差の有無について検討を行った。

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おいて重要核種であることから、安定元素やグローバルフォールアウト ^{137}Cs を用いた実環境試料分析並びに ^{137}Cs を用いたトレーサー実験により、環境移行パラメータデータが蓄積されている。これに加え、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 のデータも、実環境中で得られる貴重なデータである。そのため、これらのデータを環境移行パラメータに反映させるために、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。

引用文献

FAO (2016) FAOSTAT Food Balance. http://faostat3.fao.org/browse/FB/*/E (2016.2.19 アクセス)

IAEA (2016) Modelling and Data for Radiological Impact Assessments (MODARIA) WG6 Report.

<https://gnssn.iaea.org/RTWS/modaria/Shared%20Documents/MODARIA%20Working%20Groups/MODARIA%20Working%20Group%206%20-%20Waste%20Disposal%20Facilities/7th%20WG6%20Meeting%20%284th%20TM,%209-13%20November%202015%29/WG6%20Minutes%20-%204th%20MODARIA%20TM%20%28Final%29.pdf> (2016.2.19 アクセス)

NUMO (2011): 地層処分事業の安全確保 (2010 年度版) -確かな技術による安全な地層処分の実現のために-, NUMO-TR-11-01.

経済産業省資源エネルギー庁 (2016) 諸外国における高レベル放射性廃棄物の処分について (2015 年版). <http://www2.rwmc.or.jp/publications:hlwkj2015> (2016.2.19 アクセス)

2. 2. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査

2.2.1. 根圏域温度と気温の関係

気候帯により植生が変わることはよく知られているが、さらに作物成長には根圏域の温度が重要であると言われている。例えばイネでは、夏に冷害が発生する地域において、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）。また，地温が高いとリンゴの開花が早まる（鎌田，1992）など，多くの作物でも地温と作物生長の関係が明らかになっている。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。

昨年度は，2014年11-12月期における気温と地温の推移について検討し，地中温度（20 cm 深）は気温に比べて 0.946 倍であったことがわかったが，1年間におけるデータではなかった。そこで，データを蓄積し，2014年11月から2015年11月までの1年間について比較を行った。

(1) データ採取方法

データは2種類の方法で放医研敷地内において採取した。1つは常に針葉樹の影になる草地土壌を地温測定場所として選択し，日陰の状態における地温（根圏域を考慮し20 cm 深）とその直上の気温（木陰，地上0.5 m 位）の関係を明らかにすることとした。これを日陰条件と呼ぶ。もう1つは日中適時直射日光を受ける草地土壌を選択し，その地温（20 cm 深）と近傍の気温（直射日光を当てない，地上1.5 m 位）の関係を明らかにすることとした。後者は植生で遮られる畑と同様の条件であることから，畑条件と呼ぶ。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：日陰条件に使用，T&D，TR-71wf：畑条件に使用）により5分間隔でデータ収集を行った。途中，機器の不具合等によりデータが収集できなかった期間が1週間程度ある。日陰条件のデータは2014年11月25日から2015年11月19日，畑条件のデータは2014年11月19日から2015年11月19日まで収集した。

得られたデータは1日を6区分（0-4時，4-8時，8-12時，12-16時，16-20時，20-24時）とし，それぞれの区分内での平均温度を求め，各区分の中間時間（2，6，10，14，18，22時）における値として整理した。

(2) 気温と地温の変化の結果

図 2.2-1 には日陰条件と畑条件における気温と地温の変化を示した。1日の気温の変化は大きい幅を持っているが，地温はその幅が小さいことがわかる。また年間を通しての傾向として，気温の変化に対して地温が徐々に追従する形で反応していた。本調査は同じ敷地内で測定しているため，2つの測定地点間の気温に大差は生じないはずである。しかし，気温測定高さが異なることから，念のため0.5mと1.5m位で測定した気温データを比較したところ（図 2.2-2 左），両者間には高い相関が得られ，傾きもほぼ1であった。また，分散分析の結果，両者に有意差はなかったことから，両測定条件において気温は同じであったことが確認できた。

次に気温と地温の関係を，図 2.2-3 に示す。どちらの条件においても気温と地温は正の

相関が高いことがわかった。その関係は、

$$\text{日陰条件： 地温 (}^{\circ}\text{C)} = 1.2 + 0.86 \times \text{気温 (}^{\circ}\text{C)}$$

$$\text{畑条件： 地温 (}^{\circ}\text{C)} = 4.8 + 0.71 \times \text{気温 (}^{\circ}\text{C)}$$

であった。日陰条件に比べ、畑条件では地温の切片の値が高いことから、草地に直射日光が当たる条件においては、冬期においても地温が高く保たれていることを示唆している。そこで、異なる条件間の地温を比較したところ (図 2.2-2 右)、地温が低い期間 (すなわち気温が低い期間) において、日陰の土壌において地温が畑条件よりも低くなる傾向があるものの、地温が高い期間 (すなわち気温が高い期間) においては、地温は同程度であった。

約 1 年間の平均を比較すると、日陰の土壌はその直上の気温と ANOVA テストにより有意差 ($p < 0.001$) があつたが、地温は $15.0 \pm 7.6^{\circ}\text{C}$ 、気温は $15.9 \pm 8.3^{\circ}\text{C}$ であり、日陰の条件にあつても、気温をよく反映していることがわかった。一方、畑条件の土壌では、地温と気温に有意差はなく、地温は $16.5 \pm 6.6^{\circ}\text{C}$ 、気温は $16.5 \pm 8.4^{\circ}\text{C}$ であつた。これらの結果から、気温は地温によく反映されており、畑のように直射日光が当たる草地条件であれば、年間の平均的な地温と気温の値はよく一致するといえる。したがって、年間を通じた平均として考えると、地温の状況は、気温で代表できることがわかった。これにより、寒冷地と温暖地を気温によって区分することが妥当であることが示された。

ただし、上述したように、年間を通じた変化を見ると、気温に追従して地温が変化していることから、例えば低い気温から高い気温へ変化して行く季節、またその逆の状況において、地温と気温に差が生じた。これについて検討するために、畑条件の土壌地温と気温の 5 日間平均値を導出し、表 2.2-1 に示した。差分として、気温-地温データを図 2.2-4 に示したが、4 月から 7 月は気温が高く、また 11 月から 1 月までは地温が高くなることがわかる。栽培季節が短期間であり、かつこのような変動がある季節の場合には、必ずしも気温と地温は一致していないことになるが、その差は数 $^{\circ}\text{C}$ 程度と小さかつた。

2.2.2. 気温と TF に関する文献調査

本調査では、気温と土壌-植物間移行係数 (TF) の関係についての文献を用いて検討している。気温は土壌水分の上下方向の動きや生物活動の活性化に関係することから、土壌中の元素の易動性や植物の可給態量に、直接的または間接的に影響するファクターである。これまでの文献調査により、平成 25 年度では、Cs については気温が寒冷化することにより移行係数が 3 倍程度にまで上昇すること、また一方で温暖化により蒸発散量が増えることにより移行係数が増えることも示唆されたことを報告した。一方平成 26 年度の調査では、国内データにより、寒冷地域および温暖地域における Cs と Sr の減少速度から予測される長期的な TF を検討したところ、Cs、Sr とも、長期的には温暖地の方が寒冷地よりも高くなることが示唆された。我が国においては温暖地域における降雨量の多さが影響し、これまでの知見と異なる可能性がある。そこで本年度は、まず気温と植物生理についての論文を調査して基本的な情報を拡充するとともに、さらに我が国において得られた降雨量の影響について、河川水中のグローバルフォールアウト核種 ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度の変動に着目して検討を加えた。

まず、文献調査により以下の情報を抽出することができた。気温と植物中元素濃度の関

係性については、Jarrell と Beverly (1981)によれば、気温が下がることによって植物の生育が抑制されても、無機元素は吸収されるので、必然的に植物中の元素濃度が高まることが指摘されている。しかしながら、この現象について詳細なデータは示されていない。Box (1996)は、全球レベルでの気候と植物機能タイプの関係の分類を試みる中で、必須元素やその他の元素は気候の影響を受けることを指摘しているものの、データが不足しているためどのような効果があるかは今後の研究において必要であると報告している。

その後、Reich と Oleksyn (2004)によって、必須多量元素のうち N と P 濃度については、温度との負の相関が見られ、どちらの元素とも比較的気温が低い地域で植物中濃度が高く、気温が高くなるほど濃度が低くなることが示された。すなわち、気温が高い地域においては植物生育が盛んであることから、希釈効果を受けて濃度が低くなることが影響していると考えられる。また Mahajan と Tuteja (2005) はレビューの中で特に植物が凍結するほど気温が低い条件における遺伝子発現について示しているが、気温が低いことに抵抗性を示す植物は、不飽和脂肪酸やタンパク質を多く含むことを示唆している。その引き金になるのが Ca であり、気温が下がると Ca の取り込みが増え、凍結防止のためのタンパク質を合成する。Ca の取り込みを阻害すると、抵抗性が下がることが知られている (Monroy and Dhindsa, 1995)。すなわち、Ca チャンネルを通過する元素は、気温が下がることにより植物体に濃縮されること、また、不飽和脂肪酸やタンパク質に分配する元素が、細胞中のこれらの物質に保持されることが推定される。しかしながら、詳細なデータは報告されていない。これらの文献調査から、多量元素～微量元素については、気温の変化と濃度変動について指摘されているものの、実測値がほとんどないことがわかった。気温と放射性核種の植物移行の関係について明らかにするためには、実測データが必要である。

Jarrell と Beverly (1981) が指摘しているように、植物の元素吸収には土壌中における元素の易動性が影響する。すなわち、土壌溶液中の濃度が重要である。昨年度は土壌中の易動性については、植物中の濃度を指標とすることを考えた。特にグローバルフォールアウトである ^{137}Cs と ^{90}Sr (2010 年までのデータ使用) に着目し、土壌と農作物中のこれらの核種濃度情報について、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, 2016) から検索し、環境半減期として比較を行った。環境半減期については平成 26 年度報告書に記載しているため省略する。本年度は、陸水データを利用することにより、土壌から溶出した画分の検討を行った。なお、陸水の場合、グローバルフォールアウトの直接沈着の影響が考えられる。そこで、昨年度用いた年代範囲よりもさらに 2 年遅い 1982 年 1 月 1 日以降のデータを使用することとした。比較的寒冷地においては、北海道、青森県、岩手県および秋田県を分析対象とし、比較的温暖地においては、高知県、熊本県、宮崎県、鹿児島県および沖縄県を対象とした。河川中の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度の時間との関係を示すために図 2.2-5 に北海道、青森県、秋田県、図 2.2-6 に高知県、鹿児島県および沖縄県の ^{137}Cs データをまた、 ^{90}Sr については、寒冷地の結果を図 2.2-7, 温暖地の結果を図 2.2-8 に示す。ここでは、道県内のサンプリング地点に関わらず、すべてのデータを用いている。降水物、土壌および葉菜類のデータについても比較のために示した。比較的温暖地では陸水中の ^{137}Cs データが少ない。全体として、 ^{137}Cs と ^{90}Sr とも、土壌中の濃度減少と陸水中濃度減少の程度は同じような速度になっていたことがわかった。すなわち、土壌-陸水は 1982 年から 2010 年の間、ほぼ平衡状態であったことを示している。土壌中濃度 (Bq/kg) と比較すると、 ^{137}Cs の陸水中濃度 (Bq/L) は 2 桁程度低いのに対し、 ^{90}Sr 濃度 (Bq/L) は同程

度か、もしくは高かった。農耕地土壌のデータではあるが、 K_d の幾何平均値は畑土壌において Sr では 220 L/kg, Cs では 3900 L/kg (Ishikawa et al., 2008) であることから、本結果は土壌等への収着能の違いが現れていることを示唆している。

環境半減期の解析では、より正確な値を得るために、道県内の同じ測定地域において継続的に観測された濃度データを使用した。したがって、1つの県内において複数の環境半減期のデータが得られた。導出された環境半減期を表 2.2-2 に示す。 ^{137}Cs については、比較的温暖地におけるデータの連続性がなかったため導出することができなかったが、比較的寒冷地においては環境半減期が 26 年であった。この数値を昨年求めた土壌および農作物中の値のうち、今年度対象としている地域のみを抜粋した結果および駒村らのデータ (2006) と比較すると (表 2.2-3), 農作物中の環境半減期 34 年と近似していた。本結果は、放射性 Cs は土壌に長期間滞在するものの、易動性が高い画分については植物への吸収や河川への流入などの経路によって徐々に土壌から除去されていくことがわかる。

Sr については、比較的温暖地域で長い環境半減期が得られたが、寒冷地と温暖地では統計的な有意差は見られなかった。 Cs と同様に、昨年度検討した結果から対象とする道県のみを抜粋した結果 (表 2.2-4) と比較すると、寒冷地では、農作物に比べて土壌中濃度の環境半減期と近い値であった。したがって、土壌からの流出が陸水に反映されていると考えられるが、農作物の環境半減期より長いという結果は、作物に吸収されるよりも早く作土層から流亡している可能性を示唆している。同様のことが温暖地でも見られているものと考えられた。

昨年度報告したように、日本は降雨量が多く、その影響が放射性核種の移行に現れているものと考えられる。特に温暖地域における降雨量の想定については、世界的には気温の上昇と共に降雨量が減ることを考慮した移行係数の変動となっているが、これとは条件が異なっていることを示している。我が国における気候変動に対応した環境移行パラメータデータセットについては、実測値を蓄積する必要がある。

2.2.3. 気温と TF のデータ解析

陸水中濃度から、 ^{137}Cs は寒冷地および温暖地とも良く保持されており、一方で、 ^{90}Sr はどちらの地域においても徐々に減少していることが示された。そこで、再度 TF に着目し、寒冷地と温暖地のデータを比較することとした。本解析において TF を文献データから導出するにあたっては、葉菜類や根菜類等の農作物試料には土壌採取が伴っていないことから、農耕地土壌中濃度推定は以下のような条件で推測した。

- (1) 農作物が採取された市町村内において土壌が採取されていること (水田を除く)。
- (2) 土壌中濃度の経年変化が得られる場所とし、深度 0-5 または 0-20cm を対象とした。
- (3) 土壌中濃度の経年変化から指数関数でフィッティングを行った。
- (4) 得られた式を用いて、農作物採取日における土壌中濃度を推定した。

また、農作物中の ^{137}Cs および ^{90}Sr 濃度は Bq/kg-生で示されている。そこで、日本食品成分表 (2011) より、それぞれの農作物の代表的な水分含量を使って、Bq/kg-乾に換算した。なお、対象とした期間は 1980 年から 2010 年であり、30 年程度ではほとんど TF が変動しないことは昨年度報告した。

この条件で得られたデータ数には限りがあったが、寒冷地では北海道と秋田県、温暖地では高知県と沖縄県からデータを収集することができた。また、得られた TF は必ずしも

サンプリング地が一致しているわけではないため、見かけの TF と呼ぶ。以下に見かけの TF の結果を示す。

<寒冷地>

葉菜類 ^{137}Cs (n=14) : 幾何平均値 0.027 (0.010-0.18)

根菜類 ^{137}Cs (n= 9) : 幾何平均値 0.021 (0.009-0.042)

<温暖地>

葉菜類 ^{137}Cs (n=24) : 幾何平均値 0.028 (0.014-0.14)

根菜類 ^{137}Cs (n= 5) : 幾何平均値 0.019 (0.014-0.030)

<寒冷地>

葉菜類 ^{90}Sr (n=42) : 幾何平均値 0.14 (0.05-0.63)

根菜類 ^{90}Sr (n=41) : 幾何平均値 0.22 (0.03-0.58)

<温暖地>

葉菜類 ^{90}Sr (n= 7) : 幾何平均値 0.80 (0.10-2.1)

根菜類 ^{90}Sr (n= 8) : 幾何平均値 1.2 (0.46-2.2)

また箱ヒゲ図にプロットした結果を図 2.2-9 に示す。比較のために IAEA-TRS-472 (2010) に記載された葉菜類および根菜類の TF データ (幾何平均値) も記載した。 ^{137}Cs の見かけの TF は TRS-472 よりも低い結果であった。温暖地と寒冷地間の比較をしたところ (ANOVA テスト), 葉菜類, 根菜類とも, 温暖地と寒冷地で得られた結果に差がなかった。一方, ^{90}Sr の結果は寒冷地と温暖地で有意な差があり, 葉菜類, 根菜類とも温暖地で高くなった。これは陸水中 ^{90}Sr 濃度からも推測されるように, 降雨によって溶出した ^{90}Sr が多いことが要因ではないかと考えられるが, また一方で, 同族元素の Ca の土壌中濃度にも依存する可能性もある。以上の ^{137}Cs と ^{90}Sr の結果は, 寒冷化により元素濃度が高まる, すなわち TF が高くなると予測されていた結果とは異なっていた。

この解析で用いた TF は経験式から求められた土壌中濃度を用いた見かけの TF である。寒冷地と温暖地の TF を統計的に比較するためには, 農作物と, その収穫時の土壌をセットで採取・分析し, より確からしい TF を求める必要がある。さらに, 対象核種の安定元素だけではなく, 関連する諸項目のデータを収集してデータベース化し, 要因を明らかにして行く必要がある。

2.2.4. TF に対する気温の影響調査のまとめ

第 2.2.1.章において, 農作物の生育に地温が影響することが指摘されていることから, 気温と地温の関係を実測により明らかにした。年間を通した結果では, 農作物の根圏域となる地下 20cm における畑条件土壌の地温は, 気温とほぼ一致していた。日陰の状態においても気温と同様になることがわかった。これにより, 寒冷地と温暖地を気温によって区分することが妥当であることが示された。

さらに, 文献調査により, 作物の元素濃度と気温に関する情報を収集した。一部の多量元素の結果が直接気温に関わるデータとして示されたただけであったことから, 多量~微量元素については情報が不十分であることがわかった。なお, 気温が下がることによって植物の生育が抑制されても, 無機元素は吸収されるので, 必然的に植物中の元素濃度が高ま

ると予測されている。したがって、寒冷化により TF が高くなると予想された。

そこで、実測データによりこの傾向を我が国のグローバルフォールアウトのデータを用いて、昨年度に引き続き、TF の変動要因を明らかにするために、陸水中の濃度変化に着目した。その結果、陸水中の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度の経年変化は土壌の減少割合と類似していることがわかった。すなわち、土壌-陸水は 1982 年から 2010 年の間、ほぼ平衡状態であったことを示している。陸水中の濃度は、寒冷地および温暖地とも ^{90}Sr が ^{137}Cs よりも高い結果であった。

また、グローバルフォールアウトデータより、葉菜類および根菜類について、土壌中の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度を推測することにより見かけの TF を求めた。その結果、葉菜類、根菜類とも、温暖地と寒冷地で得られた結果に差がなかったが、 ^{90}Sr の結果は寒冷地と温暖地で有意な差があり、葉菜類、根菜類とも温暖地で高くなった。これは降水量が多いことと間接的に関連している可能性がある。詳細に検討するためには、農作物と、収穫時の土壌をセットで採取・分析し、データベースを作成する必要があることが示された。

引用文献

- 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 (2016). Modelling and Data for Radiological Impact Assessments (MODARIA) project. <http://www-ns.iaea.org/projects/modaria/default.asp?l=116> (2016.1.13 アクセス)
- 原子力規制庁 (2016). 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> (2016.1.13 アクセス)
- 山崎, 久保, 西尾, 石原監修 (2004). 農学大事典, 養賢堂.
- 鎌田 (1992). リンゴの開花日に及ぼす気象要因の影響. 園学雑 61, 17-24.
- 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. Radioanal. Nucl. Chem., 277, 433-439.
- Jarrell, W. M., Beverly, R. B. (1981) The dilution effect in plant nutrition studies. In Advances in Agronomy 34, 197- 224.
- Box, E. O. (1996) Plant functional types and climate at the global scale. J. Vegetation Sci. 7, 309-320.
- Reich, P. B., Oleksyn, J. (2004) Global patterns of plant leaf N and P in relation to temperature and latitude. PNAS 101, 11001-11006.
- Mahajan, S., Tuteja, N. (2005) Cold, salinity and drought stresses: An overview. Arch. Biochem. Biophys. 444, 139-158.
- Monroy, A. F., Dhindsa, R. S. (1995) Low-temperature signal transduction; induction of cold acclimation-specific genes of alfalfa by calcium at 25C. Plant Cess 7, 321-331.
- 駒村, 津村, 山口, 藤原, 木方, 小平 (2006). わが国の米, 小麦および土壌における ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度の長期モニタリングと変動解析. 農環研報 24, 1-21.
- 文部科学省科学技術・学術審議会資源調査分科会 (2011). 最新 日本食品成分表 2010 (医歯薬出版編).

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ついて、温暖地域において玄米とジャガイモ各 5 試料、寒冷地域において玄米とジャガイモ各 5 試料を収穫期に採取するとともに、採取された同じほ場の土壌を同時期に採取することにより、TF 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，本年度は沖縄県におけるジャガイモの収穫適期での採取ができなかったため，福岡県で試料を採取したが，その他は計画通りに採取が行えた。

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。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

上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 およびジャガイモ 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（玄米）と表 2.3-8（ジャガイモ）に写真と共に示す。

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の標準ふるいを通過させたものを風乾細土試料とし、室温で保管した。この試料から50g程度を分取し、ボールミルでさらに粉碎して微量元素測定用試料とした。

2.3.1.3. 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。痛んだ部分を取り除き、除いた部分を廃棄率として求め、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、2.5kgのうち0.5kg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。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。

凍結乾燥については、昨年度の経験から、ジャガイモについては3日で恒量に、玄米については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) 風乾土壌試料の含水率

土壌環境分析法（日本土壌肥料学会編）および土壌養分分析法（土壌養分測定法委員会編）に従って実施した。風乾土壌試料の適量を秤量瓶にはかりとり、105℃の送風乾燥機中で一晩（～16時間程度）乾燥し、乾燥後の重量を測定することで含水率を算定した。

(2) pH(H₂O)

土壌環境分析法（日本土壌肥料学会編）に従って、以下の手順により実施した。

試料20gに純水50mL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、pHメータ（東亜電波工業製 HM-40V）のガラス電極の薄膜部を静かに液中に浸し、30秒以上経過してpH計の表示が安定したのちpH値を読みとった。

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

土壌養分分析法（p. 208-211）および土壌環境分析法（p. 33-38）に記載されているセミマイクロ Schollenberger 法に従って、土壌浸出装置を準備し、以下のように行った。

洗浄液容器に 1 M 酢酸アンモニウム溶液 (pH=7) を 100 mL 入れた。脱脂綿およびセルロースパウダーを詰めたろ過層を作成し、浸透管底部を密栓した後、洗浄液容器より 1 M 酢酸アンモニウム溶液を 2/3 程度入れた。次に風乾試料を浸透管に気泡が入らないように落下沈降させて 7-8 cm の厚さとなるように充てんした。浸透管下端のコックを開け、1 M 酢酸アンモニウム溶液を洗浄液容器から 4-20 時間かけて滴下することで交換・吸着を行った。酢酸アンモニウム溶液滴下終了後、受け器に貯まった溶液を定容し、置換性 Ca および K の測定用試料溶液とした。

少量の 80 % エタノール (pH=7) で浸透管上部内壁およ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。引き続き浸出操作を行った。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。4-20 時間かけて滴下し、土壌中に保持されたアンモニウムイオンと置換した。この浸出液を 200 mL の全量フラスコに純水で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、イオンクロマトグラフ法により定量した。得られたアンモニウムイオン等を供試試料重量で割ることで、塩基性置換容量 (CEC) を求めた。

(4) 置換性 Ca および K

(3) 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したものから、一定量を取り、希硝酸 (1+9) で 50-100 倍希釈して液中の Ca を ICP 発光分光法、K をフレイム原子吸光法によりそれぞれ測定した。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機 種：OPTIMA 4300 DV (パーキンエルマー社)

測定元素：カルシウム

高周波出力：1.4 kW

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)：0.8 L/min

測定波長：317.933 nm

<原子吸光光度計操作条件>

機 種：AA-6200, AA-6300 (島津製作所製)

測定元素：カリウム

光 源：ホロカソードランプ

測定波長：766.5 nm

フレイム：C₂H₂ 2.3 L/min, Air 7.5 L/min

(5) 活性 Al, Fe (酸性シュウ酸塩溶解法)

風乾土壌試料 1.0 g を 250 mL のプラスチック容器に量りとり、シュウ酸アンモニウム+シュウ酸 (1:0.75) (pH3.0) を 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、3000 rpm, 10 分間遠心分離し上澄み液を得た。

上澄み液を希硝酸（1+9）で10倍に希釈し、ICP発光分析装置によりアルミニウムおよび鉄を測定した。

<ICP発光分析装置操作条件>

機種：OPTIMA 4300 DV（パーキンエルマー社製）

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定波長：396.153 nm（Al），238.204 nm（Fe）

（6）Al, Fe 総量

風乾土壌試料 0.5 g を PTFE 分解容器に量りとり，硝酸－過塩素酸－フッ化水素酸を添加後，酸循環分解装置（グラファイトブロック酸分解システム，アクタック社製）を用いて加熱分解を行った。希硝酸で加温したものを試験溶液とした。この試験溶液を希硝酸（1+9）で10倍に希釈し，ICP発光分析装置により各元素の測定を行った。測定条件は(5)と同様である。

上記(1)-(6)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 2.3-9 に示す。

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0.05～0.1 gを白金るつぼに量りとり，炭酸ナトリウム（試薬特級）を1 gと少量のホウ酸を加え，ガスバーナーで加熱溶解した。放冷後，希硝酸で中和したのち，50 mLに定容とした。得られた溶液は希硝酸（1+9）で100-200倍に希釈し，ICP発光分析装置によりSiを測定した。

<ICP発光分析装置操作条件>

機種：SPS3100（日立ハイテクサイエンス社製）

RFパワー：1.2 kW

プラズマガス(アルゴン)：16 L/min

補助ガス(アルゴン)：0.4 L/min

キャリアーガス(アルゴン)：0.45 L/min

測定波長：251.611 nm

(2) ホウ素

試料0.1 gを白金るつぼに量りとり，炭酸ナトリウム（試薬特級）を1-2 g加えて良く混合し，ガスバーナーで加熱溶解した。放冷後，希硝酸で中和したものを50 mLに定容した。得られた溶液は希硝酸（1+9）で2倍に希釈し，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>

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定波長：249.678 nm

(3) 水銀

底質調査方法(平成 13 年 3 月改正, 5.14.1.3 硝酸-塩化ナトリウム分解法*)に準拠し, 試料 1g をケルダールフラスコに秤取し, 硝酸 (1+1) 45mL と 20%塩化ナトリウム 5mL を加えて加熱した。放冷後, 残渣をろ別し 100mL に定容し分解液を得た。この分解液 20mL を三角フラスコに分取し, (1+1) 硫酸 5mL, 5%過マンガン酸カリウム溶液 5mL, 5%ペルオキシ二硫酸アンモニウム溶液 2.5mL (上記試薬は特級) を添加後, ホットプレート上で 2 時間加熱した。放冷後, 10%塩化ヒドロキシルアンモニウム溶液 (試薬特級) を 2mL 添加し 50mL に定容した液について, 還元気化-原子吸光法で水銀を測定した。(*平成 24 年 8 月改正版で本項は削除されているが, 今回は値付けされた標準試料で妥当な分析結果を得ている。)

<加熱気化原子吸光光度計操作条件>

機種：RA-3 (日本インスツルメンツ社製)

測定波長：253.7 nm

(4) Cr, P, Co, Ni, Cu, Zn, Sr, Cd

2.3.1.4. (6)の試験溶液を用いて, 希硝酸(1+9)で 2 倍に希釈して ICP 発光分析法, 10~100 倍に希釈して ICP 質量分析法でそれぞれ定量した。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, 銅および亜鉛は 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 4300 DV (パーキンエルマー社製)

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定波長：267.716 nm (Cr) , 327.393 nm (Cu) , 202.548 nm (Zn)

<ICP発光分析装置操作条件>

機種：SPS3100 (日立ハイテクサイエンス社製)

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定波長：213.618 nm (P) , 407.771 nm (Sr)

<ICP 質量分析装置操作条件>

機種：ELAN DRC II (パーキンエルマー社製)

RF パワー：1.5 kW

プラズマガス(アルゴン)：20 L/min

補助ガス(アルゴン)：1.0 L/min

ネブライザーガス(アルゴン)：0.92 L/min

測定質量数：59 (Co), 60 (Ni), 111 (Cd)

(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 2.3-10 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 0.5~1.0 g を白金るつぼに量りとり、バーナーで炭化後、550 °C で 2 時間灰化した。次に炭酸ナトリウム (少量のホウ酸を添加) を加えて良く混合した後、900 °C で 20 分間融解した。放冷後、希硝酸で中和したものを 50 mL に定容した。得られた溶液を希硝酸 (1+10) で 2-5 倍に希釈し、ICP 発光分析装置により Si の測定を行った。

<ICP発光分析装置操作条件>

機種：SPS3100 (日立ハイテクサイエンス社製)

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定波長：251.611 nm

(2) P, Fe, Ni, Cu, Zn, Cd

試料0.5 gをPTFE分解容器に量りとり、硝酸-過塩素酸-フッ化水素酸を添加後、酸循環分解装置を用いて加熱分解を行った。希硝酸で加温したものを試験溶液とした。この試験溶液を希硝酸(1+9)で2倍に希釈してICP発光分析法、10~100倍に希釈してICP質量分析法でそれぞれ定量した。

<ICP発光分析装置操作条件>

機種：OPTIMA 4300 DV (パーキンエルマー社製)

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定波長：238.204 nm (Fe) , 202.548 nm (Zn)

<ICP発光分析装置操作条件>

機種：SPS3100 (日立ハイテクサイエンス社製)

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定波長：213.618 nm (P)

<ICP 質量分析装置操作条件>

同機種による測定諸条件については上記と同じ

測定質量数：63 (Cu), 60 (Ni), 111 (Cd)

(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 2.3-11 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、 HNO_3 を 7 mL, HF を 7 mL 加えた (多摩化学工業, 分析用超高純度試薬 AA-100)。分解容器をマイクロウェーブ分解装置 (CEM 社製, MARS5) で約 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 (>18M Ω) 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分解装置にセットし、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。この試料母液の硝酸濃度は 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、希釈倍率および、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 2.3-9 および表 2.3-10 に、土壌の物理化学的特性と元素濃度の結果を示した。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。作物中元素

濃度についても、20 元素の濃度が得られ、その結果を表 2.3-11 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、平成 26 年度に得た TF と併せて、その幾何平均値をプロットした (図 2.3-1)。それぞれ 10 点ずつとデータ数が少ないことから、統計処理を行うことはできないが、玄米とジャガイモはそれぞれ特徴があり、両者を比較すると玄米ではイネ科では必須元素である Si の TF が高く、ジャガイモでは K の TF が高い。また、玄米とジャガイモのどちらの TF でも Sr および Ba が温暖地においてやや高い傾向が見られている。これは、図 2.2-9 にも示したが、温暖地において ^{90}Sr の移行係数がやや高いことと一致した。Sr と Ba, さらに Ba と Ra の TF は我が国の農耕地土壌においても相関が高いことが知られている (Tagami and Uchida, 2009)。したがって、比較的温暖地において Ra の TF が高くなる可能性が示唆された。しかし、前述したが、データ数を増やして統計処理を行わなければいけない。また、放射性核種に関連する他の元素濃度を測定し、TF を追加して比較して行く必要がある。

2.3.2. 平成 26 年度に採取した試料のデータ追加

上述の 2.3.1.7 に記載した方法により、平成 26 年度に採取した農作物および土壌試料各 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 ICP-MS で行っている ($n=4$)。また、炭素や窒素等の主要元素の挙動を調べるために、安定同位体比を元素分析計-安定同位体比測定装置 (EA-IRMS, Thermo Fisher Scientific) を用いて測定した。炭素および窒素の安定同位体には ^{13}C (1.07%) と ^{12}C (98.93%) および ^{15}N (0.368%) と ^{14}N (99.632%) がある。軽い元素ほどフラクシオネーションを起こしやすいものの、自然界における安定同位体比の変動はごくわずかである。変動をより把握しやすくするために、 ^{13}C の場合は、標準試料である Vienna peedee belemnite standard (VPDB) に対する同位体比 ($R_{\text{VPDB}} = 0.0112372$) の千分偏差として一般的に表記される ($\delta^{13}\text{C}$)。この $\delta^{13}\text{C}$ は次式で定義される (単位: ‰)。

$$\delta^{13}\text{C} (\text{‰}) = (R_{\text{sample}} - R_{\text{VPDB}}) / R_{\text{VPDB}} \times 1000$$

ここで、 R_{sample} と R_{VPDB} はそれぞれ、試料と VPDB の $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ を示す。同様の方法で $\delta^{15}\text{N}$ を求めることができる。これらのデータについては、各試料の 2 回ずつ測定を行い、平均値を求めた。

土壌分析の結果を表 2.3-12、作物分析の結果を表 2.3-13 に示す。土壌については濃度が高いこともあり、ほとんどの元素で定量できているが、希土類元素の一部については濃度が低く、一部の試料で定量できていない。しかしながら希土類元素の挙動は類似していることから、他の希土類元素のデータを得ることで補完することができるものと考えられる。農作物(玄米およびジャガイモ)は、すでに報告されているように (Uchida et al., 2007a, b), 葉菜類に比べて濃度が低かった。そのため定量値が得られない試料もあったことが分かる。特に廃棄物埋設処分において重要核種とされているものについては、今後、気温と移行係数の関係を統計的に調べる上で必要なデータセットになることから、より感度の高い分析法を用いて定量結果を得る必要があると考えられる。

今年度は、平成 26 年度に採取した農作物中の希土類元素を測定するという目的につい

ては定量下限以下のデータがあったものの全ての試料について達成することができた。さらに、これらのデータを用いて移行係数を導出しデータベースに追加している。平成 26 年度の結果については、表 2.3-14 に記載した。玄米およびジャガイモについてはこのように多くの元素の詳細データの収集がまだ不十分であり、引き続き試料採取およびデータの収集が必要である。

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

本年度は昨年度に引き続き、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を行い，土壌特性分析をするとともに，元素濃度定量を農作物および土壌それぞれについて 20 元素程度行い，濃度データを得た（表 2.3-9-2.3-11）。さらに，得られた濃度データを用い，農作物中濃度（乾重）／土壌中濃度（乾重）により TF を導出してデータベースに追加し，前年度のデータと併せて幾何平均値を算出し TF を比較した（図 2.3-1）。玄米とジャガイモのどちらの TF でも Sr および Ba が温暖地においてやや高い傾向が見られた。それぞれの条件でのデータ蓄積は 10 データずつであり，統計処理を行うためにはより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 TF データベースに蓄積することで，これらの情報が TF 変動要因の解析に役立つと期待されることから，これらについてのデータ採取も必要である。

今年度はまた，平成 26 年度に採取した土壌および作物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することができた。

引用文献

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).

Tagami, K., Uchida, S. (2009). Radium-226 transfer factor from soils to crops and its simple estimation method using uranium and barium concentrations. *Chemosphere* 77, 105-114.

Uchida, S., Tagami, K., Hirai, I. (2007a). Soil-to-Plant Transfer Factors of Stable Elements and Naturally Occurring Radionuclides (1): Upland Field Crops Collected in Japan. *J. Nucl. Sci. Technol.* 44, 628-640.

Uchida, S., Tagami, K., Hirai, I. (2007b). Soil-to-Plant Transfer Factors of Stable Elements and Naturally Occurring Radionuclides (2): Rice Collected in Japan. *J. Nucl. Sci. Technol.* 44, 779-790.

2. 4. 環境移行パラメータ変動要因の解析

2.4.1. 葉菜類移行係数

2.4.1.1. データと対象とする変動要因

平成 25 年度に収集した葉菜類の移行係数を平成 14-18 年度に行われた全国調査の結果と併せて解析し、環境移行パラメータ変動要因について検討した。まず、移行係数について取りまとめた結果を表 2.4-1 に示す。全て乾重ベースで記載した。いくつかの元素については IAEA-TRS-472 に記載されている放射性核種の TF データ（温帯地域）と併せて記載した。幾何平均値は TRS-472 とよく合っている。

変動要因を解析するにあたり、土壌の種類や濃度をファクターの一つとして考えることもできる。しかし、土壌特性を用いたいくつかの元素の TF に関する検討において（放射線医学総合研究所，2009），土壌特性だけでは精度良く TF を推定することが困難であることが示された。我が国の農耕地土壌はよく管理されているため土壌特性が TF に変動を与える要因にならないことを示している。

元素濃度に影響するのは作物種類，さらには部位であると考えられており，そのため IAEA-TRS-472 においても，葉菜類，根菜類，イモ類，豆類等に分類している。今回は葉菜類のうち形状（結球性／非結球性）による影響と，さらに，気温に着目した。気温については IAEA-TRS-472 に温帯，亜熱帯，熱帯における TF データが記載されており，それらを比較すると，Cs や Th といった重要核種の TF に違いがあることがわかった（放射線医学総合研究所，2013）。しかしながら，このような解析に当たってはデータの質が重要であり，温暖条件および寒冷条件で採取された試料を同じように分析したときの結果を比較する必要がある。そこで，このファクターについても着目し，検討を行うこととした。

温暖条件と寒冷条件を比較するにあたって，米の栽培とは異なるのは，葉菜類の栽培期間が発芽後 3 ヶ月程度と短いことが挙げられる。また，栽培は全国で同じような季節で行われている訳ではない。そこで，表 2.4-1 には，採取日も記載した。この採取日を遡る必要があるが，もっとも生長する採取 1 ヶ月前の気温を指標とすることとした。作物採取時期が 2002 年から 2014 年と幅があることから，ほぼ中間年である 2008 年の理科年表を用いて，採取月 1 ヶ月前の平均気温を調査し，同じく表に記載した。ここから，気温が 13°C 以下において栽培されたサンプルと，18°C 以上において栽培されたサンプルを抽出し，データの比較を行った。データ数は，温暖条件は n=14，寒冷条件も n=14 であり，平均気温は前者で 21°C，後方で 11°C となり，10°C の開きがあった。対象元素は Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Gd, Pb, Th, U の 37 元素である。

それぞれの気温条件における TF の累積度数分布を調べたところ，分布形状は対数正規分布に近似できたため，TF データを対数変換して元素毎に解析を行った。表 2.4-2 に比較したデータの情報（データ数，幾何平均値 [GM]，幾何標準偏差 [GSD]と TF 範囲）をまとめて記載した。なお，幾何平均値については，元素毎に比較した結果を図 2.4-1 に示す。データを用いて t-検定により解析を行ったところ，全ての元素で有意差がなかったことがわかった。すなわち，IAEA-TRS-472 のデータを用いて予測された TF 挙動とは異なり，葉菜類については，気温帯によって移行係数には差が生じず，変動要因とならない可能性が高い。また，図 2.4-2 には，両者の TF を比較した結果を示したが，良く一致していることがわかった。

2.4.1.2. ウランとトリウム

葉菜類 TF について詳細に検討するために、重要核種である U と Th についての解析を進めた。気温については、すでに 2.4.1.1 で述べたが、さらに中間期温帯 (13-18°C) のデータも加えて図 2.4-3 に示す。これらのデータを用いて ANOVA による解析を行ったところ、U および Th とともに採取 1 ヶ月前気温による分類による TF には有意差がないという結果を得た。したがって、葉菜類に対しては気温が変動要因となっている訳ではないことが改めて示された。

農作物の種類による TF の差を検討するために、種類別の移行係数を取りまとめて図 2.4-4 に示した。Th は作物種間で差が見られなかったが、U はハウレンソウで有意に高い結果が得られた。すなわち、作物種が変動要因となっている可能性がある。特に、U のデータから、結球性の葉菜類 (キャベツ、ハクサイ、レタス) に比べ、非結球性のネギやハウレンソウで TF が高くなる傾向にあった。

2.4.1.3. 結球性・非結球性と気温条件による TF の比較

Th および U の TF の結果から、他の元素についても結球性・非結球性によって TF 値に差が生じるかどうか検討する必要がある。ここでは、結球性・非結球性の葉菜類をさらに温暖もしくは寒冷条件で栽培されたかどうかの分類も加えて考察を加えた。なお、このように選択を狭めて行くとそれぞれの分類に入るデータ数も小さくなることに注意が必要である。下記のようなデータ数が得られた。

(Cool-Head: CH) 寒冷条件-結球性葉菜類のデータ数 : 9

(Cool-Leaf: CL) 寒冷条件-非結球性葉菜類のデータ数 : 5

(Warm-Head: WH) 温暖条件-結球性葉菜類のデータ数 : 7

(Warm-Leaf: WL) 温暖条件-非結球性葉菜類のデータ数 : 7

この抽出結果から統計処理を行うために十分なデータ数がないことから、それぞれの分類での各元素の幾何平均値を代表させることにした。

まず、結球性・非結球性の葉菜類それぞれについて、各元素の温暖条件 TF/寒冷条件 TF すなわち、結球性葉菜類 (WH/CH) と非結球性葉菜類の (WL/CL) について比較した。比が 1 よりも高ければ、温暖条件の TF が寒冷条件よりも高いことを示している。これについて、結球性・非結球性葉菜類で同じような傾向が見られるかどうか検討した。結果を図 2.4-5 に示したが、結球性・非結球性葉菜類とも、ほとんどの元素は 1 前後、または、葉菜類の性状によっては傾向が見られなかったが、一方、どちらの性状でも、Cu で温暖条件の TF が高い傾向が見られたが、逆に希土類元素と Th では温暖条件において TF が低い傾向を示した。葉菜類の TF-Sr は特に温暖条件で高くなる傾向は見られなかった。

次に、温暖条件、または寒冷条件で栽培された葉菜類について、非結球 TF/結球 TF を求めた (温暖では WL/WH, 寒冷では CL/CH)。この比が 1 よりも高ければ非結球性の葉菜類の TF が高いこと、また、どちらの気温条件でも同じ傾向が見られれば、気温による影響が低いことを示すことになる。結果を図 2.4-6 に示す。いくつかの元素で、結球性・非結球性で差がないものがあるが、ほとんどの元素で非結球性の葉菜類の TF が高くなっていること、またその傾向は、温暖条件下で栽培したものと寒冷条件下で栽培したものは同じ傾向であったことが分かった。特に Al, Si, 希土類元素で非結球性の葉菜類 TF が高く

なる傾向が示された。

2.4.2. 葉菜類炭素移行係数

炭素の安定同位体は C-14 のアナログとして重要であるが、移行係数を求めるさいには、土壌中炭素濃度と植物中炭素濃度の比を用いることは、植物炭素の起源が大気 CO₂ であることから不適切であることはこれまでも示してきた。そこで、炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$, ‰) に着目して移行係数を導出する方法を開発しこれまでも報告してきている (田上ら, 2009)。昨年度はジャガイモの移行係数が導出できるか検討したが、土壌とジャガイモ間の $\delta^{13}\text{C}$ 値に相関がみられず、したがって、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判定された。今年度は平成 25 年度に採取された葉菜類とそれらが採取された土壌に着目し、 $\delta^{13}\text{C}$ から移行係数を求められるか検討を試みた。

植物の光合成による炭素同化作用において、炭素同位体分別が生じる。植物が土壌および大気起源の炭素を使用していると考えると、次式が成り立つ。

$$\delta C_{\text{crop}} = (\delta C_{\text{air}} + F_{\text{C13}}) \cdot (1 - X_i/100) + (\delta C_{\text{soil}} + F_{\text{C13}}) \cdot X_i/100$$

δC_{crop} : 植物中 $\delta^{13}\text{C}$ (測定値)

δC_{air} : 大気中 $\delta^{13}\text{C}$ (= -8‰),

δC_{soil} : 土壌中 $\delta^{13}\text{C}$ (測定値)

F_{C13} : ^{13}C 同位体分別 (C3 植物: -20 to -18‰),

X_i : 植物中の土壌炭素起源炭素の割合(%)

これにより、 X_i を求めることができる。

葉菜類 42 試料は真空凍結乾燥したものであり、土壌は風乾土壌である。それぞれボールミルで粉砕し微粉末とした。微粉末試料量は農作物 2mg, 土壌 10 mg をスズ製容器に封入し、IRMS (ThermoFisher scientific) で測定した。測定は 1 試料あたり 2 回行った。

葉菜類と土壌の $\delta^{13}\text{C}$ 値の結果を、これまで測定した白米およびジャガイモの結果と比較したものを図 2.4-7 に示した。葉菜類試料はすべて C3 植物である。その $\delta^{13}\text{C}$ 値の幾何平均値は -27.3‰, 土壌は -21.3‰ であった。葉菜類の結果は、大気からの寄与が 100% である場合で説明できる範囲であった。すなわち、現在の大气中 $\delta^{13}\text{C}$ 値は -8‰ であり、C3 植物の F_{C13} を用いて計算すると、-26-28‰ が全て大気寄与の場合の光合成による $\delta^{13}\text{C}$ 値であるが、幾何平均値はこの範囲であった。ただし葉菜類の $\delta^{13}\text{C}$ に幅があるのは、2.4.1 で検

討したように、作物種に影響を受けている可能性がある。

次に、葉菜類試料と土壌試料の間の $\delta^{13}\text{C}$ 値の相関について調べたところ、t-検定により弱い負の相関が見られた（図 2.4-8）。しかし、昨年のジャガイモでは相関が得られず、また、白米では弱い正の相関があったことから、作物と土壌の炭素の安定同位体比 $\delta^{13}\text{C}$ 値に明確な相関はないといえる。このことは、土壌起源炭素の作物への移行は植物全体の炭素量に比べてわずかであることを示唆している。

そこで、統計的なアプローチを試みた。農作物中の $\delta^{13}\text{C}$ の分布に対し、土壌中の $\delta^{13}\text{C}$ から寄与があると仮定する。その際、土壌起源の炭素は光合成により固定されると考えられることから、土壌起源炭素の同位体比からさらに ^{13}C 同位体分別が起こる。このようにして土壌から同化された炭素の植物体中の寄与率が、農作物中の $\delta^{13}\text{C}$ の分布に適合する範囲を求める。一般に同位体分別は-20~-18‰である。今回中央値の-19‰を仮に想定したときに、葉菜類の炭素の 6.3%が土壌炭素によること（寄与率 6.3%）が妥当であるとの結果が得られた。この結果から、植物中に含まれる土壌起源炭素濃度を求め、さらに土壌中炭素濃度で割ることにより、移行係数を求めた、その結果、移行係数（幾何平均値）として 0.8 が得られた。この移行係数は、Sheppard ら（1991）がトレーサー実験により求めたダイコンへの移行係数（0.16-1.5）の範囲であった。放医研では（2011）室内トレーサー実験によりコマツナへの移行係数を求めており、0.6-3.3 であることから、統計的手法で得られた今回の結果は妥当な数値であるといえる。なお、米への移行係数は同じ主要で導出すると 0.17 であり、葉菜類の方が高い。作物種によって差があることが示唆された。

なお今回検討した結果は安定同位体を用いて得られたものである。 ^{13}C で見られたように、 ^{14}C もフラクシオネーション起こすが、 ^{12}C に対する分別は約 98% であることから、安定同位体と ^{14}C の挙動はほぼ同じであり、したがって、この移行係数は ^{14}C に対しても有効である。同様の手法を温暖地や寒冷地での試料に当てはめることができるが、本法による TF の導出は統計的な手法であるため、データ数の確保が重要である。

2.4.3 まとめ

環境移行パラメータ変動要因を解析するにあたり、本年度は移行係数に着目し、Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Gd, Pb, Th, U の 37 元素について検討を行った。ここで使用する葉菜類の TF データを表 2.4-1 に示した。

葉菜類については、栽培期間が短いこと、季節によって栽培時の気温が大きく変動することから、単純に栽培地の年間平均気温による分類をせず、栽培時の平均気温が重要と考え、収穫月の前月の平均気温を用いて分類を試みた。これにより、気温 13°C 未満の栽培条件（寒冷条件、平均 11°C）と 18°C 以上の栽培条件（温暖条件、平均 21°C）に 14 データずつを抽出することができた。両者間の温度差は平均で 10°C であった。これらの葉菜類の TF は、温度の違いによって差が生じることはなかった。したがって、データの質を統一した結果、葉菜類の移行係数については温度の影響が見られないと言える。

次に、葉菜類の種類について、Th と U に着目してキャベツ、ハクサイ、レタス、ホウレンソウ、ネギについて ANOVA により解析したところ、Th ではこれらの葉菜類の間に差が見られなかったが、U では結球性の葉菜類よりも非結球性の葉菜類で TF が高くなる結果を得た。特にホウレンソウは有意に高い結果（ $p < 0.05$ ）であった。すなわち、作物の

種類によって変動が大きくなっていることが明らかになった。そこで、葉菜類を結球性・非結球性に分類し、改めて温暖条件と寒冷条件の影響を確認したところ、それぞれの分類において温暖条件の TF が寒冷条件の TF よりも低い傾向にあったのは希土類元素であり、一方、温暖条件で TF が高まるのは Cu であったが、その他の元素については明確な傾向は見られなかった。また、温暖条件、または寒冷条件に分類し、その中で結球性・非結球性の葉菜類を比較したところ、どちらの気温条件においても非結球性の葉菜類は結球性の葉菜類よりも TF が高くなる傾向にあり、特に Al, Si, 希土類元素で顕著であることがわかった。すなわち、作物種が TF の変動要因であることがわかった。

なお、炭素の TF については、単純に土壌と農作物中濃度を比較することが困難であるため、炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) を指標として TF の検討をした。その結果、全ての葉菜類中炭素が大気起源であっても十分説明は付く $\delta^{13}\text{C}$ 値の範囲であったことから、TF は限りなく 0 に近い可能性がある。さらに統計的に土壌炭素由来の植物中炭素を $\delta^{13}\text{C}$ 値の分布により求めたところ、TF として 0.8 が得られ、この値はこれまでトレーサー実験により得られた値の範囲内であることがわかった。ただし、米よりも TF が高いため、作物種による差が生じた可能性が示唆された。

以上の結果、葉菜類の TF には栽培時温度の影響よりも作物種（結球性・非結球性）の影響の方がより大きいことがわかった。しかしながら、より長期間栽培される米やジャガイモについて同様のことが言えるのかどうか明確ではない。これらの作物についてさらにデータを蓄積し、統計解析を行うことで、TF に変動を与える要因を明確にして行く必要がある。

引用文献

- Sheppard, M.I., Sheppard, S.C., Amiro, B.D. (1991). Mobility and plant uptake of inorganic ^{14}C and ^{14}C -labeled PCB in soils of high and low retention. *Health Phys.* 61, 481-492.
- 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率及び炭素移行係数の推定. *Radioisotopes* 58, 641-648.
- 放射線医学総合研究所 (2009). 平成 20 年度放射性廃棄物共通技術調査費等事業「放射性核種生物圏移行評価高度化調査」報告書. (内田滋夫 編). 2009.3.
- 放射線医学総合研究所 (2011). 平成 22 年度放射性廃棄物共通技術調査費等事業「放射性核種生物圏移行評価高度化調査」報告書. (内田滋夫 編). 2011.3.
- 放射線医学総合研究所 (2014). 平成 25 年度放射性廃棄物共通技術調査費等事業「放射性核種生物圏移行評価高度化開発」報告書. (内田滋夫 編). 2014.3.
- 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)
- 平成 20 年理科年表 (国立天文台編) (2008) 丸善.

2. 5. 土壌-土壌溶液間分配係数に対する気温の影響調査

2.5.1. 土壌-土壌溶液間分配係数と温度について

これまでに、ヨウ素の土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) が温度に影響されるという結果が報告されている (Ishikawa et al., 2013)。この報告によると、ヨウ素の K_d は土壌の微生物活動の影響を受けるが、低温条件にすることにより間接的に微生物活性を押さえることで K_d に違いが生じる、という事である。炭素の K_d も土壌の微生物活動の影響を受けることから、 K_d - ^{14}C も温度の影響を受ける可能性がある。平成 25 年度と平成 26 年度ではこれらの核種の K_d について温度に着目しつつ影響を与える要因について解析を行った (放射線医学総合研究所, 2014, 2015)。他の核種における温度の影響についてはほとんど検討されていないが、Harter と Naidu (2001)は土壌溶液中のイオン強度, 陽イオン, 陰イオンおよび有機結合の量, pH および総金属濃度が主要因としつつも, その他に影響を与える因子として圧力, 温度, 固液比および供し土壌の採取と保存状況を指摘している。一般に気温 (20-25°C) における実験室で K_d は得られているが, ヨウ素や炭素といった非金属元素ではなく, 金属元素の場合, 温度を変えた時に K_d 値が変わるのかどうかは明確ではない。そこで, Cs を対象として検討を行うこととした。Cs は土壌粒子に収着されやすいが, 有機質土壌の場合には K_d が低くなる等の影響を受ける (Rigol et al., 1998; Nakamaru et al., 2007; Bellenger and Staunton, 2008) ことから, 温度の違いにより有機質が消費されて減少する等の変動により, 間接的に K_d 値が変動を受ける可能性がある。

今年度は有機物含量に大きな変動を与えない低温条件 (10°C) において, 水田土壌 20 試料, 畑土壌 20 試料について K_d を求め, 過去に 23°C で得られた結果と比較した。10°C における K_d 値は 23°C と大きく異ならないと想定したもので, 今後, より高温条件 (30°C を想定) において K_d を求める際の対象とすることを目的としている。

2.5.2. 10°Cにおける土壌-土壌溶液間分配係数の実験方法

実験に用いた土壌試料は放医研において室温で保存した水田土壌および畑土壌各 20 試料, 計 40 試料である。これらの土壌試料は採取後, 風乾し, $\phi=2$ mm の篩を通したものである。これらの試料の物理化学的特性を表 2.5-1 に示す。

土壌試料 1 g を 30 mL のポリプロピレン容器に分取し, 10°C に冷やした超純水 (Milli-Q) を 10 mL 加えて, 10°C に設定した振とう機を用いて 120 rpm で 24 時間予備振とうを行った。その後, 試料を冷やしたまま ^{137}Cs ($CsCl$) を 1 試料当たり 4 kBq (50 μ L) 添加した。再び振とう機を用いて 10°C, 120 rpm で 7 日間振とうした。

振とう終了後, 遠心機 (日立 HIMAC CT5L) を用いて 3000 rpm で 10 分間分離し, 上澄み液を $\phi=0.45$ μ m の PTFE フィルターに通し, 得られた溶液を 3mL 分取して NaI (TI) オートウェルシンチレーションカウンター (アロカ, ARC-380) により 20 分カウントした (3 回繰り返す)。同様に土壌を添加しないスタンダード溶液を用意し, 同じ条件でカウントした。

K_d 値は以下の式により算出した :

$$K_d = \frac{(C_i - C_l)}{C_l} \cdot \frac{W_l}{W_s}$$

ここで、 C_i (Bq/L)は添加初期 ^{137}Cs 濃度、 C_f (Bq/L)は7日間振とう後の試料溶液中 ^{137}Cs 濃度、 W_f は溶液量 (L)、 W_s は乾燥土壌重量である。 C_i (Bq/L)および C_f (Bq/L)はそれぞれスタンダード溶液と試料溶液のネット cpm/mL で代用できる。

フィルターを通した溶液を用いて、pH と EC をコンパクトメーター (HORIBA, LAQUA twin シリーズ) で測定した。

各土壌試料について3検体作成し、それぞれについて K_d を導出した。

2.5.3. 10°Cにおける K_d - ^{137}Cs の測定結果

3回の繰り返し分析結果を表 2.5-2 に示す。pH と EC については、3検体の平均値を示した。各試料の平均の K_d と表 2.5-1 に示した物理化学特性 (pH, EC, 総炭素, silt, clay) とは相関は見られなかった。

10°Cおよび23°Cで得られた K_d の累積度数分布および K_d 値の比較を図 2.5-1 に示した。仮定した通り、10°Cで得られた K_d 値は23°Cと有意差がなかった。また、土壌試料を水田土壌と畑土壌に分けても同様に有意差なしの判定であった。したがって、 K_d -Cs は低温条件では変化せず、ヨウ素で見られたような微生物活性の直接的な影響はないと言える。

一方、より高温条件では、微生物活性が高まり、有機物分解等が促進されると考えられる。したがって、例えば30°Cにおける K_d を測定することで、 K_d -Cs への温度の影響の有無を明らかにすることができると考えられる。この際、有機物分解が進むことで、より細かい粒径の有機物が発生する可能性があるため、Cs 収着サイトの有機物によるマスキング効果が考えられる。諸条件を考慮すると、このような高温条件の実験においては、トレーサー添加量やフィルターの取扱等に注意が必要であると思われる。

引用文献

- Bellenger, J.-P., Staunton, S. (2008) Adsorption and desorption of ^{85}Sr and ^{137}Cs on reference minerals, with and without inorganic and organic surface coatings. *J. Environ. Radioactiv.* 99, 831-840.
- Harter, R.D., Naidu, R. (2001) An assessment of environmental and solution parameter impact on trace-metal sorption by soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 65, 597-612.
- Ishikawa, N., Tagami, K., Uchida, S. (2013) Effect of biological activity due to different temperatures on iodide partitioning in solid, liquid, and gas phases in Japanese agricultural soils. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295, 1763-1768.
- Nakamaru Y., Ishikawa, N., Tagami, K., Uchida, S. (2007). Role of soil organic matter in the mobility of radiocesium in agricultural soils common in Japan. *Coll. Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects* 306, 111-117.
- Rigol, A., Vidal, M., Rauret, G., Shand, C.A., Cheshire, M.V. (1998) Competition of organic and mineral phases in radiocesium partitioning in organic soils of Scotland and the area near Chernobyl. *Environ. Sci. Technol.* 32, 663-669.

2. 6. 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

実環境中における放射性セシウムの動態解明は、長期環境影響評価において重要核種である ^{135}Cs (物理的半減期: 2.3×10^6 y) に関する環境移行パラメータに反映させることができる。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 のデータは貴重であるが、特に平衡状態におけるデータが重要であることから、平衡に達するまでの確認のために、種々の環境試料中の放射性セシウムの濃度変化を測定している。本年度行った研究成果について以下に報告する。

2.6.1. 植物中の放射性 Cs 減少率の時間変化

原発事故により大気中に放出された放射性 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、大気経路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経路であるが、ウェザリングによる樹体表面からの流出することから、その後は経根吸収が放射性 Cs の主たる移行経路となる。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、徐々に減少していき、数年経過の後に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 (平衡状態)、植物への移行量がおおよそ推定できるようになる。

2011 年から 2013 年までは植物体内に吸収された ^{137}Cs の減少速度を 1 つの指数関数でほぼ近似したが (例えば Tagami and Uchida, 2015), 過去のチェルノブイリ原発事故後の経験から (Antonopoulos-Domis et al, 1996; Smith et al., 2000; Unlü et al, 1995), 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ことを考慮し、2014 年の観察結果について昨年度は考察を進めた。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、2 つの指数関数を用いた近似式の適用性を検討した。

2.6.1.1. 材料および測定方法

放医研敷地内に生育している植物を調査対象とした。草本植物として、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, 常緑樹としてベニカナメモチについて検討を加えた。用いた植物の写真を図 2.6-1 に示す。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。植物試料は、採取後 1 時間以内に直ちに実験室に持ち帰り、生重量を測定後、洗浄・無処理の 2 つの試料を作成した (ただし、両者間に濃度差がないため、すべて減少率算出のための試料として取り扱う)。各試料は 80°C にて乾燥、粉碎ののち、U8 容器に詰めて Ge 半導体検出器 (Seiko EG&G Ortec) により 10,000 秒から 150,000 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 の結果を示すこととする。なお、2011 年 3 月 11 日から 50 日未満においては、植物体への直接沈着の影響がある (展開葉の場合には、出芽してから成熟に達するまでの間に直接沈着を受けている) ことから、それらの測定データは使用しない。

2 つの指数関数を組み合わせて表すことから、以下の式により震災後からの経過日数 t 日における植物中の濃度 (Y_t) を推定する。

$$Y_t = A \cdot \exp(-\lambda_a \cdot t) + B \cdot \exp(-\lambda_b \cdot t) \quad \dots\dots\dots(1)$$

速い移行成分の定数: A

遅い移行成分の定数: B

速い移行成分の減衰率: λ_a (実効半減期 $T_{\text{eff}} = \ln(2)/\lambda_a$)

遅い移行成分の減衰率: λ_b (実効半減期 $T_{\text{eff}} = \ln(2)/\lambda_b$)

実際の作業としては、2014-2015年の値を用いて遅い移行成分を導出し、その差し引き分から速い移行成分のフィッティングを行った。

2.6.1.2. 植物中放射性 Cs の経時変化

上記方法によって得られたマメ科植物、カキ、およびベニカナメモチの実測値データとフィッティングによって得られた結果を図 2.6-2 から図 2.6-4 にそれぞれ示す。本フィッティングに用いた速い移行成分と遅い移行成分のパラメータを表 2.6-1 にまとめて記した。

マメ科の速い実効半減期は 0.47 年と木本植物の結果よりも遅かった、木本植物と異なって経根吸収が主であること、すなわち、土壤中の可給態量の変化の指標とすることができるので、この結果は、速やかに可給態量が減少していったことを示唆している。また、遅い移行成分の実効半減期が 13.4 年と、これまでにグローバルフォールアウト ^{137}Cs を用いて得られた米や小麦等の T_{eff} (駒村ら, 2006)、さらには昨年度報告した農作物の T_{eff} と一致しており、したがって、すでに平衡に達していると考えて良いと言える。今後得られる農作物等のデータを蓄積することにより、平衡時の実環境中における TF-Cs データの数が増加すると期待できる。

落葉樹のカキおよび常緑樹のベニカナメモチについて、速い移行成分の半減期はどちらも 0.44 年と一致した。初期濃度については、常緑樹のベニカナメモチでカキよりも 1 割程度高いが、最も降下物量が多かった 3 月に萌芽していなかったカキに対し、すでに展開葉があったベニカナメモチで大きく値が違わなかったことは、葉以外の地上部からの経皮吸収が大きかった可能性を示唆している。遅い移行成分については、カキよりもベニカナメモチでやや遅い結果であるが、図からもわかるように、マメ科植物ほど完全には平衡に達していない。この半減期について、樹木の根圏域にはまだ原発事故由来の放射性 Cs が十分に到達していないため、経根吸収経路からの吸収量は多くないことが想定されることから、現在も、樹木に樹木内に残存している ^{137}Cs が減少している速さを示していると考えられる。

現段階で実効半減期が 2-5 年に達していることから、直接沈着-吸収により蓄積された放射性 Cs が樹木から排出され、経根吸収により供給され、平衡に到達するまでには長時間必要と推定される。今回得られた実効半減期から、今よりも樹木中濃度が 1/10 にまで変化するまでには、8-16 年程度かかる。しかし、すでにこの 2 種類の木本植物葉中の ^{137}Cs 濃度はマメ科植物よりも低くなっている。したがって、土壤中の ^{137}Cs が根圏域に到達した場合には、草本植物と同程度にまで濃度が高まると考えられる。引き続き調査分析を進めて、パラメータ値を導出するための資料として利用できるようにデータセットを整備する必要がある。

2.6.2. 海水魚（底魚）中放射性 Cs の生態学的半減期

2.6.2.1. 海水魚中の ^{137}Cs 濃度と採取地域による影響（平衡時）

平衡時における海水から海水魚への Cs の濃縮係数（concentration ratio : CR）については、安定同位体（白坂ら, 2013）、およびグローバルフォールアウト ^{137}Cs のデータ（Tagami and Uchida, 2013）から導出されており、安定同位体と ^{137}Cs では差がないことが示されている。また、海藻、甲殻類、貝類、魚類についても、同様の CR が得られている。ただし、笠松（1999）が指摘しているように、栄養段階が高くなると ^{137}Cs の CR が高くなる傾向が示されており、同じ浮魚でも栄養段階の高い肉食性の大型魚とプランクトン食の小型魚では差が生じることがわかっている。ただし、この生態系濃縮は有機水銀や PCB などと異なり、栄養段階によって桁で濃度が高まるというものではない。なお、同じ魚種・大きさであっても、生息地域によって CR が変わることがある。笠松（1996）はホッケに着目し、 ^{137}Cs 濃度を新潟沖と北海道岩内沖で比較した際、明らかに新潟沖で高くなる結果を見いだした。これらの海域の海水中 ^{137}Cs 濃度は差がなかった。したがって、濃度の違いの要因はホッケの餌にあり、餌の種類が違う可能性を指摘しているが、小型魚や動物プランクトンの発生量と頻度を考慮しても明確な結果は得られていない。

そこで、他の魚の種類でも同様のことが観察されるか検討を行った。用いたデータは原子力規制庁（2016）のデータベースである。寒冷な海域（北海道もしくは青森）と温暖な海域（鹿児島もしくは沖縄）を対象に検索を行ったところ、両方の海域において採取される魚はヒラメしかなかった。そこでヒラメについて比較した結果を図 2.6-5 に示す。海水の結果も同様に示したが、この2つの海域における ^{137}Cs はほぼ一致していることがわかる。一方、ヒラメについては若干の差が生じている。実効半減期の結果から、北海道もしくは青森で採取されたヒラメの方が、鹿児島で採取されたよりも 1.1 倍濃度が高いことがわかった。この違いは、笠松（1996）が指摘したような食餌の違いも考えられるが、同著にまとめられているように、水温が 10°C 異なると生物学的半減期が 2 倍近くになることも影響している可能性がある。

生物学的半減期が変わることで魚体中の ^{137}Cs 濃度に影響を及ぼすかどうかを、モデル計算により比較した。ここでは、体重の同じ魚に同じ濃度の食餌を毎日摂取させ、生物学的半減期の長期成分のみを変化させたと仮定したときの魚中の放射性 Cs 濃度を比較した。用いたパラメータは笠松（1996）が使用したものと同一である。

まず、魚による放射性核種の取り込み量（I）は以下の式で表される。

$$I = Wrb(C_1f_1 + C_2f_2 + \dots + C_if_i)$$

W: 体重 (kg)

r: 摂餌量 (体重に対する割合), 0.03

b: 吸収率, 0.85

C_i : i 餌種の ^{137}Cs 濃度

f_i : i 餌種の胃内重量に占める割合

この式では、複数の餌を考慮しているが、本比較においては生物学的半減期の影響のみを比較するため、ここでは1種類の餌とし、魚の体重は増えないと仮定した。

次に、平衡時のある t 日における魚体中 ^{137}Cs 濃度 R_t について、排出のパラメータである生物学的半減期は2つの指数関数（速い成分と遅い成分）を用い、次式により求めることができる。

$$R_t = A_1 R_{t-1} \cdot \exp(-k_1 t) + A_2 R_{t-1} \cdot \exp(-k_2 t) + A_1 I (1 - \exp(-k_1 t)) / k_1 + A_2 I (1 - \exp(-k_2 t)) / k_2 \quad \dots(1)$$

速い移行成分の割合： A_1 , 5%,

遅い移行成分の割合： A_2 , 95%

速い移行成分の排出速度： k_1 , 0.06（生物学的半減期 T_b に変換すると 12 日）

遅い移行成分の排出速度： k_2 , 0.006（ $T_b = 116$ 日）

なお、実験で求められた遅い移行成分の生物学的半減期は 50 日前後である (Beresford et al., 2015) ことから、遅い移行成分の排出速度は、笠松 (1996) のモデルに使われた値の 2 倍の 0.012 ($T_b = 58$ 日) も考慮する必要がある。餌中の濃度を 10Bq/kg と仮定し、遅い移行成分の排出速度を変えた場合のモデル計算結果を図 2.6-6 に示す。生物学的半減期が長い方が、生物中の濃度は上昇することがわかる。この結果は、水温の違いが魚体中放射性セシウム濃度に影響する可能性を示唆している。

2.6.2.2. 海水魚中の ^{137}Cs 濃度の経時変化と生物学的半減期の影響

福島第一原子力発電所事故以降、4 年を経過して海水中の ^{137}Cs 濃度の値は徐々に事故以前の値に戻りつつある。しかしながら、未だに底生魚の一部で放射性セシウムが検出されることが報告されている (厚生労働省, 2016)。例としてシロメバルの食品モニタリングデータを図 2.6-7 に示す (富岡町および広野町で水揚げされたもののみ)。2011 年 3 月 11 日から 1300 日以降から徐々に検出下限値以下の報告もされているが、検出される事例が見受けられる。Tateda ら (2015) は食物連鎖の高位にいる底生魚について、食物連鎖が影響していることを考慮し、モデル計算を行ってヒラメ中の濃度を推定し、フィッティングが良く合っていることを示した。しかし、フィッティングに用いている期間は短く、2015 年までのデータは考慮されていない。そこで、現在観察されている状況を再現するために、これまでの知見により、いくつかの仮定を以下のように置いて、(1)式によりモデル計算を試みた。

- ・ 海水からの寄与: CR を 33 (Tagami and Uchida, 2013) とすると、海水中濃度が 0.01 Bq/L 前後であることを考慮すると、魚体への海水からの寄与は 0.33 Bq/kg となる。この値は測定された値に比べて十分低いいため、海水からの寄与は無視できる。
- ・ 餌からの寄与: 餌となる生物中の ^{137}Cs 濃度も 400 日を過ぎたころから検出下限以下 (通常 10 Bq/kg 以下) であり、また餌生物の海水からの Cs の CR は魚と同等であることから、仮に 1 Bq/kg とする。

- ・ 生物学的半減期はこれまで実験室で得られた値も考慮し、前述の 58 日とその 2 倍の 116 日とした。
- ・ 常に同じ濃度の餌 (10 Bq/kg) を摂取してほぼ平衡になった 1000 日目以降に、餌中の濃度を上述した 1 Bq/kg に設定した。
- ・ 他の条件は前述と同様である。

計算結果を図 2.6-8 に示す。餌の濃度が減った場合、すぐに魚体中の濃度も減少し、実験室で得られた値に近い半減期 58 日の条件では 300 日程度、また半減期が 116 日の場合でも 500 日程度で濃度がほぼ平衡に達した。この結果は、図 2.6-7 に示した 400 日以降の結果と比較すると、急激に減少しすぎていることがわかる。

最近の報告では、これまで遅い成分の生物学的半減期が 50 日前後と考えられてきたことに対し、実験により 270 日近い値であることも報告されている (Matsumoto et al., 2015)。すなわち、より長期の第 3 成分が存在する可能性が示唆されたことになる。そこで、生物学的半減期を 116 日の倍の 231 日に設定しなおし、116 日と比較した結果を図 2.6-9 に示す。この結果は、半減期を 231 日に設定したほうが、より現状に合っており、したがって、長期成分が存在する可能性がある。より細かくフィッティングするためには、より長期間のフィールドデータを入れる必要がある。しかし、近年の食品モニタリングデータは検出下限値以下の数値がほとんどであることから、移行経路解明という側面からのデータ収集が望ましい。

さらに、シロメバル以外にも長期成分をもつ魚種があることを想定し、2011 年 3 月 11 日から 400 日目以降のデータを東京電力によるモニタリング結果 (2016) を用いて検討した。その結果、平均的な生物学的半減期としてアイナメ : 220 日、コモンカスベ 315 日、ヒラメ 279 日等の結果を得ることができた。これらの長期成分は、実験室では長期飼育が困難なためなかなか観察することができない。今回の検討により、生物学的半減期には長期の成分があることがわかった。

2.6.3. 淡水魚中の ^{137}Cs 濃度

福島第一原発事故により生活圏に放射性 Cs が放出され、様々な環境が汚染された。陸水環境も例外ではない。風や降雨により陸域に蓄積した放射性 Cs の一部は河川へと運ばれ、最終的には海へ流れ出る。湖沼はこの流出過程に存在する。河川において放射性 Cs は主に懸濁物質とともに存在しており (Tsuji et al. 2014)、湖沼はこれら懸濁物質が蓄積しやすい場所でもある。湖沼に生息する生物は、したがって、放射性 Cs に暴露される機会が多く、体内に蓄積している可能性がある。特に、魚は湖沼生態系において栄養段階が高く、放射性 Cs で汚染された生き物を多量にそして継続的に食べていると考えられるため、蓄積量も多いと推測される。また、魚はヒトの被ばく経路の重要な媒体でもある。

Kurita et al. (2015) は、東北および関東沖に生息するヒラメの放射性 Cs 濃度を 2011 年から測定しており、事故後 3 年では放射性 Cs 濃度が平衡に達していない可能性を示唆しているが、事故後 5 年が経過しようとする現在、湖沼生態系における放射性 Cs 濃度は平衡状態に近づきつつあることが、食品モニタリングデータからも推定できる (厚生労働省 2016)。平衡状態での移行パラメータを得るためには、したがって、これからのデータ収集が重要となる。昨年度は食品モニタリングデータを用いて非平衡状態から平衡状態に達

する状況にあるのかどうか検討を加えた。しかし実測が必要であることから、本年度から千葉県北西部にある印旛沼において魚のモニタリングを開始した。ここでは、本年度捕獲した魚の¹³⁷Cs濃度について報告する。

2.6.3.1. 印旛沼の基本情報と周辺域の汚染状況

印旛沼は利根川水系に属する湖沼であり、印旛沼流域水循環健全化会議（2016）によれば、平成25年4月1日現在の基本情報は以下の通りである。

面積：11.55 km²、貯水量：1970 万 m³、周囲：26.4 km、平均水深 1.7 m（最大 2.5 m）、滞留時間：約 22 日、流域面積：541.1 km²

印旛沼を構成する西印旛沼と北印旛沼は印旛沼捷水路で結ばれている。印旛沼は水道用水の他、農業用水、工業用水として利用されている。また、コイ、フナ、ウナギ、モツゴなどを対象に、内水面漁業も行われている。

周辺域の放射性 Cs（¹³⁴⁺¹³⁷Cs）汚染状況であるが、放射線量等分布マップ拡大サイト（文部科学省, 2011）によると、2011 年 11 月 5 日の時点において、およそ 30k Bq/m² 以下であった。2011 年 10 月には環境省が（環境省 2011）、2012 年以降は千葉県が印旛沼の水中¹³⁷Cs濃度を定期的に測定している（千葉県 2012）。いずれの調査においても¹³⁷Csの濃度は 1 Bq/L 未満であった。

2.6.3.2. 印旛沼底質の汚染状況

印旛沼底質の汚染状況を調査するために、2015 年 4 月 24 日、北印旛沼の 2 地点で採取した土壌柱（土壌コア）を用いて¹³⁷Csの鉛直濃度分布を分析した。それぞれ採取した地点を図 2.6-10 に示す。夏季、印旛沼ではオニビシ（*Trapa natans var. japonica*）が繁殖するが、地点 1 はオニビシ群落内、そして地点 2 は群落外の地点であった。土壌コア採取時にはオニビシはまだ繁茂していなかった。土壌コアの採取は、東邦大学の鏡味麻衣子准教授に協力していただいた。

採取した土壌コアは直ちに放射線医学総合研究所に持ち帰り、表層は 2 cm、それ以降は 1 cm の切片に切断した。切断した土壌コア切片は 80℃の乾燥機内で乾燥し、ねじ口 U 型容器（関谷理化株式会社）に封入し、試料に含まれる¹³⁷Csをゲルマニウム半導体検出器で分析した。測定は 1 試料につき 85,000 秒以上行い、定量には 662 keV のガンマ線ピークを用いた。半減期補正は土壌コアの採取日を基準に行った。分析に用いたゲルマニウム半導体検出器であるが、効率校正およびエネルギー校正は放射能標準ガンマ体積線源（日本アイソトープ協会）を用いて行い、測定精度は放射能分析用土壌認証標準物質（JSAC0473, 日本分析化学会）を用いて確認した。

土壌コアの¹³⁷Cs鉛直濃度分布を図 2.5-11 に示す。地点 1 における¹³⁷Cs濃度のピークは、3-4 cm と 5-6 cm の深度で観察された。特に 5-6 cm のピークは唯一オニビシ群落外における濃度よりも高い値となった。6 cm 以深では¹³⁷Cs濃度が深度とともに減少し、17 cm 以下では検出下限値（4.4 Bq/kg-dry）以下となった。地点 2 において、¹³⁷Cs濃度のピークは 6-7 cm の土壌コア切片で得られた。地点 1 と同様、7 cm 以深において¹³⁷Cs濃度は深度とともに急激に減少した。地点 1 のコアと異なり、¹³⁷Csが検出できた下限深度は 25 cm と深くまで¹³⁷Csが移行していることが分かった。

上述のように、同日採取かつ距離的にも数百メートル程度しか離れていないにもかかわらず、オニビシ群落内外で ^{137}Cs の鉛直分布が異なった。群落内の濃度が群落外より高くなるのは 5-6 cm の深度のみで、それ以外の深度では群落外における ^{137}Cs 濃度が高くなった。この結果は、オニビシ群落が ^{137}Cs 鉛直濃度分布に影響していることを示唆している。オニビシは一年草であり冬季には枯れる。実際、土壌コア試料を採取したときもオニビシは繁茂しておらず、したがって、福島第一原発事故が発生した 3 月においてもオニビシは繁茂していなかったと考えられる。このことから、事故直後、各採取地点の ^{137}Cs による汚染状況は同様であったが、その後のオニビシの成長が各地点の ^{137}Cs 鉛直濃度分布に影響した可能性がある。オニビシ群落には消波効果による底泥巻上げ抑制、水流に対する抗力による流速の低減効果があることが知られている（天野 2007）。

さらに、オニビシは水中根から栄養塩を吸収することが知られており、繁茂期における群落内の湖水中全窒素濃度は群落外と比較して低くなる（立本ら, 1995）。逆に、衰退期には枯死したオニビシから窒素成分が溶出し、群落内の全窒素濃度が高くなる。以上のようなオニビシ群落の特徴から、事故後、河川から流入する懸濁態の ^{137}Cs はオニビシが繁茂している季節には群落内に流入し難いと推測される。一方、溶存態として群落内に流入した ^{137}Cs は水中根から植物体内に取り込まれると考えられる。印旛沼では繁茂したオニビシは刈り取られ系外に除かれるが、これによりオニビシ内に取り込まれた ^{137}Cs も同時に系外へと取り除かれることとなる。以上の理由から、群落内における ^{137}Cs 濃度は群落外よりも低くなったと考えられる。冬季において水中に残ったオニビシは枯死するので、一部の ^{137}Cs は植物体から溶出するが、植物体に残った ^{137}Cs は主に群落内の湖底で分解され、最終的には底泥の一部となると考えられる。底泥の巻き上げも群落内と比較すると抑制されているため、群落外と比較してより底質面に近い深度で ^{137}Cs 濃度のピークが得られたと考えられる。また、群落内の 5-6 cm の深度で見られた ^{137}Cs 濃度のピークは、枯死したオニビシの分解過程で生じた可能性がある。

2.6.3.3. 印旛沼で採取された淡水魚の ^{137}Cs 濃度

魚の生息場所は魚種により異なる。例えば、印旛沼でよく捕獲されるコイやフナは流れが少なく濁っていて、さらに水草が茂った条件を好む。肉食性のオオクチバスは障害物の近くを好み、アメリカナマズは回遊性がある。このことから、オニビシ群落内外における ^{137}Cs 濃度の違いは、群落内外に生息する魚に対する ^{137}Cs 汚染状況の違いを説明する貴重な情報となることが期待される。

そこで、2015 年 9 月 29 日から 12 月 14 日までの期間に、北印旛沼において 11 匹の魚を捕獲した。捕獲した魚の魚種、全長、生重、および各部位における ^{137}Cs 濃度の測定、さらに耳石輪紋査定による年齢推定を行った。魚の捕獲には、東邦大学の風呂田利夫名誉教授にご協力いただいた。捕獲した魚は冷蔵の状態で放医研まで運び、頭部、筋肉、骨、内臓、その他の部位に切り分けた。その他の部位については、皮、鱗、骨、および筋肉など、様々な部位が異なる割合で含まれるため、分析対象から除いた。骨に関しては、生の状態では骨と肉を分けることが難しいため、80°C で湯浴したのち、ブラシを用いて骨から肉をそぎ落とした。各部位は、頭部を除き凍結乾燥した。乾燥試料は、粉碎機（ラボミルサープラス、大阪ケミカル）で粉碎し、ねじロ U 型容器（U8、関谷理化株式会社）に封入した。試料中の ^{137}Cs の測定は、ゲルマニウム半導体検出器を用いて、土壌コアと同様

の手順で行った。頭部試料は耳石による年齢査定に用いた。

捕獲した魚の魚種、全長、湿重、および推定年齢の結果を表 2.6-2 に示す。また輪紋査定に用いた耳石の写真を図 2.6-12 に示す。カムルチおよび 11 月 8 日に捕獲したアメリカナマズは、他の魚と比較すると推定年齢に対し全長が長く湿体重も重い。つまり、これらの魚種は他の魚種と比較して多量のエサを消費している可能性がある。一方、12 月 14 日に捕獲したアメリカナマズの推定年齢は、11 月 8 日に捕獲したアメリカナマズより高いが、全長は短く湿体重は軽い結果となった。印旛沼の環境において全長 60 cm、湿体重 2 kg 程度がアメリカナマズの成長の最大値の可能性がある。

各魚種の部位別 ^{137}Cs 濃度を図 2.6-13 に示す。 ^{137}Cs 濃度に曝露された期間は同じであるにも係わらず、筋肉中の ^{137}Cs 濃度は、魚種ごとにも明確な違いが見られた。カムルチが最も濃度が高く、続いてアメリカナマズ、コイ、そしてフナの順に濃度が低くなった。魚種により濃度が異なった理由として、次の 3 つが考えられる：1) 摂食量、2) エサの種類、および 3) 腸管吸収率、である。推定年齢と全長および湿体重の値から考察されたように、カムルチやアメリカナマズは、コイやフナと比較してエサの摂食量が多いと考えられ、多量のエサを摂食することで筋肉中の ^{137}Cs 濃度が高くなったと考えられる。エサの違いにも注意する必要がある。カムルチとアメリカナマズは肉食魚で、小魚や甲殻類、カエルなどを摂食することが知られている。実際、今回捕獲したアメリカナマズの内臓からはスジエビや小魚（モツゴおよびブルーギルの稚魚）が回収できた。一方、コイやフナは雑食性であり、小魚や甲殻類の他、イトミミズや水草などを摂食する。このような食性の違いが筋肉中の ^{137}Cs 濃度に影響したと考えられる。さらに、消化器官の違いが腸管吸収率に影響し、筋肉中の ^{137}Cs 濃度に差が現れたかもしれない。コイやフナは胃が無いため、摂食したエサは体内に蓄積されることなく、腸管を通過し排泄される。胃を持つ魚（有胃魚）と胃を持たない魚（無胃魚）ではミネラルの吸収率が異なることが知られている（大越, 2007）ことから、 ^{137}Cs も有胃魚と無胃魚では吸収率が異なると考えられる。その違いが、筋肉中の ^{137}Cs 濃度が比較的低い値となった原因の一つであると考えられる。この考えを立証するには、カムルチやアメリカナマズ以外の胃を有する魚種と、コイやフナなど胃を持たない魚との濃度を比較し、腸管吸収率の違いを詳細に検討する必要がある。

生息場所の違いも ^{137}Cs 濃度に差が生じる要因のひとつである。例えば、底生魚は他の魚と比較しての ^{137}Cs 濃度が高いことが報告されている（Povinec and Hirose, 2015）。印旛沼は水深が 1.7 m 程度に調整されているために、何れの魚も ^{137}Cs が蓄積している沼底に接する機会が多いと考えられる。そのため、魚の ^{137}Cs 濃度に対する生息場所による違いは大きくないであろう。オニビシ帯の内外で底質の鉛直濃度分布が異なるが（図 2.6-11）、どちらの位置においても底質表層に最も多く ^{137}Cs が蓄積しており、従って、たとえ主生息地がオニビシ帯の内と外の違いがあつたとしても、筋肉中の ^{137}Cs 濃度に対する影響は小さいと考えられる。

前述したように、本調査では、いろいろな部位を測定したが、筋肉以外にも内臓や骨からも ^{137}Cs が検出された。ただし、いずれの魚種も筋肉中の ^{137}Cs 濃度が最も高く、次に内臓で、骨は筋肉中の濃度の約 1/100 であった。以上の結果は、淡水魚においても ^{137}Cs は筋肉に蓄積しやすいことを示している。

筋肉中の ^{137}Cs 濃度を決定する要因を検討するために、捕獲した全ての魚のデータを用いて ^{137}Cs 濃度と全長、湿重量、および推定年齢との関係を調べた（図 2.6-13）。筋肉

中の ^{137}Cs 濃度は全長および湿重量とは有意な正の相関関係が得られたが、推定年齢とは相関関係が得られなかった。この結果は、魚種に関係なく全長や湿重量に依存して ^{137}Cs 濃度が高くなる可能性を示唆している。全長と ^{137}Cs 濃度の間に得られた回帰直線からは、全長約 27 cm 以下の魚については筋肉中 ^{137}Cs 濃度が検出下限以下となり、湿重量と ^{137}Cs 濃度の関係からは、湿重量約 22 g 以下の魚において ^{137}Cs 濃度が検出下限以下となる。本調査で得られた回帰直線から ^{137}Cs 濃度を推定する場合、全長の場合 28 cm 以上、湿重量の場合 23 g 以上の魚である必要がある。全長 28 cm 以上と湿重量 23 g 以上の魚という条件を考えると、印旛沼では比較的大型といえる全長 28cm という条件よりも、湿重量 23 g 以上の方が回帰式を適用できる範囲が広いため、濃度の推定において湿重量はより汎用性が高いといえる。

図 2.6-14 では捕獲した全ての魚のデータを用いて推定年齢と ^{137}Cs 濃度の関係を示した。魚の成長は、種によって異なるため、魚種ごとにこの関係を調べる必要がある。そこで、最も捕獲数が多かったコイを対象に ^{137}Cs 濃度と推定年齢との関係を調べたが、有意な相関関係は得られなかった（図 2.6-15）。つまり、必ずしも推定年齢が高い魚が ^{137}Cs を多く蓄積しているのではないことが分かった。通常、魚の全長は年齢と共に長くなり、湿重量は重くなるのだが、捕獲したコイではそのような関係は認められなかった（図 2.6-16）。捕獲したコイの推定年齢は耳石の解析結果より 10 才以上であり、成魚といえる。そして、いずれのコイも全長が 50 cm 程度であった。以上のことから、印旛沼の環境では 50 cm 程度が成長の最大値で、高位の捕食者となっている可能性がある。より小さなコイを捕獲し、年齢と全長および湿重量との関係から成長曲線を得ることにより、年齢と ^{137}Cs 濃度の関係を示すパラメータが得られることが期待される。

2.6.3.4. ^{137}Cs 蓄積に対するエサの寄与

12 月 14 日に捕獲したアメリカナマズの消化器官からスジエビおよび小魚（モツゴおよびブルーギルの稚魚）が採取できた。そこで、これらエサの濃度に対する筋肉中の ^{137}Cs 濃度比を求めた（表 2.6-3）。小魚およびスジエビの平均 ^{137}Cs 濃度は 38 Bq/kg-dry であり、アメリカナマズの筋肉中の濃度との比は 4.4 であった。一方、内臓や骨はそれぞれ 0.32 と 0.15 であり、エサの濃度よりも低いことが確認できた。魚種によっては筋肉よりも内臓が珍重され食されることがあるが、この結果は筋肉が基準値より低ければ、内臓も基準値より低いことを示している。

2.6.3.5. 次世代への移行

12 月 14 日に捕獲したコイは抱卵していた。そこで、コイの筋肉中の ^{137}Cs 濃度に対する卵の ^{137}Cs 濃度を比較した（表 2.6-4）。卵と筋肉の ^{137}Cs 濃度比は 0.27 であり、親が蓄積した ^{137}Cs の 3 割程度が次世代へ引き継がれることが分かった。

2.6.4 福島第一原発事故後の放射性 Cs の環境移行調査研究のまとめ

福島第一原発事故により環境中に放出された放射性セシウムの環境移行に関し、実環境試料中のデータ収集を行うことにより、環境移行パラメータを得ることを目的として調査研究を行ってきている。放出から 4 年以上経過していることから、徐々に平衡状態に近づきつつあり、その情報を整理し、長期的に利用できる平衡時のパラメータを収集できる状

況の把握に務めている。これまで、植物、野生動物および魚介類について報告してきた。本年度も引き続き調査を行い、植物、海水魚（底生魚）および淡水魚に関わるデータを報告している。

植物については、減少速度が緩やかになってきていることから、速い移行成分と遅い移行成分の二成分の指数関数フィッティングをあてはめることを検討した。2014-2015年の¹³⁷Cs濃度変化から、遅い移行成分を抽出し、さらに速い移行成分のパラメータ値を得た。その結果、マメ科植物では、すでに平衡に達していることが示された。今後は草本植物については移行係数等のデータ収集が可能であることを示している。木本植物では、落葉樹と常緑樹から、それぞれカキとベニカナメモチのデータを用いてフィッティングを試み、初期の減少速度が類似していること、また、遅い移行成分の実効半減期が2.4-4.8年であり、草本類と異なり、樹体内から排出される速度（遅い移行成分）を導きだすことができた。

海水魚については、生物学的半減期に着目して2点の検討を行った。まずは観察水域として北海道-青森、および鹿児島-沖縄において海水中のグローバルフォールアウト¹³⁷Cs濃度に差がないにも関わらず、ヒラメ中の濃度に差が生じたことについてモデル計算により考察を加えた。餌の違いが影響している可能性については、本調査では検討できなかったが、水温の違いにより生物学的半減期が異なることに着目して分析を行った。その結果、海水温が低い場合には濃度が高まる結果となり、観察結果と一致した。次に上記モデルを利用し、福島第一原発事故後の福島沖水域での底生魚の¹³⁷Cs濃度減少率が、実験室レベルよりも遅くなることについて検討を加えた。その結果、食物連鎖も影響している可能性があるが、魚からの排出が極めて遅い成分がある可能性を明らかにした。

淡水魚では、海水魚よりも¹³⁷Csを濃縮する機構を持つことから、実効半減期が長くなっていることが指摘されている。また、生物濃縮も重要なファクターであることから、食品モニタリング等の文献では得ることのできない生態系における地位を窒素安定同位体比により明らかにしておくことが重要であることから、新たに印旛沼において測定を開始した。徐々にデータを蓄積しつつあるが、魚の種類が豊富であることや、魚の種類のみならず年齢も重要なファクターになることから、耳石を用いた年齢特定も試みている。これらの周辺情報を整理することで、平衡状態においていろいろな生態学的地位にある魚の濃縮係数を蓄積して行くことができるようになる。

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.
- Beresford, N.A., Beaugelin-Seiller, K., Burgos, J., Cujic, M., Fesenko, S., Kryshev, A., Pachal, N., Real, A., Su, B.S., Tagami, K., Vives I Batlle, J., Vives-Lynch, S., Wells, C.; Wood, M.D. (2015). Radionuclide biological half-life values for terrestrial and aquatic wildlife. *J. Environ. Radioactiv.* 150, 270-276.
- Kurita, Y., Shigenobu, Y., Sakuma, T., Ito, S. (2015). Radiocesium contamination histories of Japanese flounder (*Paralichthys olivaceus*) after the 2011 Fukushima Nuclear Power Plant Accident. In *Impacts of the Fukushima Nuclear Accident on fish and fishing grounds*, Nakata,

- K.; Sugisaki, H., Eds. Springer Japan: Tokyo, 2015; pp 139-151.
- Matsumoto, A.; Shigeoka, Y.; Arakawa, H.; Hirakawa, N.; Morioka, Y.; Mizuno, T. (2015). Biological half-life of radioactive cesium in Japanese rockfish *Sebastes cheni* contaminated by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. *J. Environ. Radioactiv.* 150, 68-74.
- Povinec, P. P., Hirose, K., Fukushima radionuclides in the NW Pacific, and assessment of doses for Japanese and world population from ingestion of seafood. *Scientific reports* 2015, 5, 9016.
- 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. (2013). Marine and freshwater concentration ratios ($CR_{\text{wo-water}}$): review of Japanese data. *J. Environ. Radioactiv.* 126, 420-426.
- Tagami, K. Uchida, S. (2015). Effective half-lives of ^{137}Cs from persimmon tree tissue parts in Japan after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactiv.* 141, 8-13.
- Tateda, T., Tsumune, D., Tsubono, T., Aono, T., Kanda, J., Ishimaru T. (2015). Radiocesium biokinetics in olive flounder inhabiting the Fukushima accident-affected Pacific coastal waters of eastern Japan. *J. Environ. Radioactiv.* 147, 130-141.
- Tsuji, H., Yasutaka, T., Kawabe, Y., Onishi, T., Komai, T. (2014) Distribution of dissolved and particulate radiocesium concentrations along rivers and the relations between radiocesium concentration and deposition after the nuclear power plant accident in Fukushima. *Water research* 60, 15-27
- Unlü, M.Y., Topcoglu, S., Küçükcezzar, 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.
- 天野(2007). 湖沼における水質・生態系保全の評価手法に関する研究. 土木技術資料. 印旛沼流域水循環健全化会議 (2016) いんばぬま情報広場. <http://inba-numa.com/> (2016.1.6 アクセス)
- 大越(2007). 魚粉の品質を左右する灰分とリン含量. In 海のミネラル学: 生物との関わりと利用. 成山堂書店; pp 54-57.
- 笠松 (1996). 最近の放射性セシウムの濃度変化から示唆された新潟沖ホッケの摂餌生物変化の可能性について. *水産海洋研究* 60, 227-236.
- 笠松 (1999). 海産生物と放射能 -特に海産魚中の ^{137}Cs 濃度に影響を与える要因について-. *Radioisotopes* 48, 266-282.
- 環境省 (2016). 千葉県内の公共用水域における放射性物質モニタリングの測定結果について. <http://www.env.go.jp/press/press.php?serial=14612> (2016.1.6 アクセス)
- 厚生労働省 (2016). 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> (2016.1.15 アクセス)
- 駒村, 津村, 山口, 藤原, 木方, 小平 (2006). わが国の米, 小麦および土壌における ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度の長期モニタリングと変動解析. *農環研報* 24, 1-21.
- 白坂, 鍵谷, 鄭, 青野, 高田, 田上, 内田 (2013). 日本沿岸域の海産生物における安定 Cs の濃縮係数: 放射性 Cs との比較. 第 50 回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集.
- 立本, 栗原, 小泉, 相川, 生嶋 (1995) 西印旛沼における浮葉植物, オニビシ群落内外の

水質の比較. 水環境学会誌 18 (10), 803－807.

千葉県 海水, 砂浜, 河川等に係る放射性物質調査について.
<https://www.pref.chiba.lg.jp/suiho/h23touhoku/kaisui/index.html> (2016.1.6 アクセス)

東京電力(2016)福島第一原子力発電所周辺の放射性物質の分析結果. 魚介類の分析結果.
<http://www.tepco.co.jp/decommision/planaction/monitoring/index-j.html> (2016.1.15 アクセス)

放射線医学総合研究所 (2015). 平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査費等事業「放射性核種生物圏移行評価高度化開発」報告書. (内田滋夫 編). 2015.3.

文部科学省(2016)放射線量等分布マップ拡大サイト. <http://ramap.jaea.go.jp/map/>(2016.1.5 アクセス)

2. 7. おわりに

本章で報告した調査研究の目的は、環境移行パラメータ (TF, Kd) に及ぼす気温等の影響評価を行うこと、もし変動の影響を受けるのであれば、それを考慮したデータベースを構築することである。そのためには質の揃ったデータセットが必要であることから、土壌-農作物試料収集を行い、元素分析・定量し、TF データを蓄積している。また、Cs の Kd について、温度を考慮した検討を本年度より開始した。さらに本章では、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。

2.7.1. TF に対する気温の影響に関する文献調査

文献調査により、作物の元素濃度と気温に関する情報を収集した。その結果、一部の多量元素でのみ定性的に評価されており、その他の元素については推定の範囲であることから、データの蓄積が必要であることがわかった。そこで、実測値の例として入手可能な我が国のグローバルフォールアウトのデータを用いて、陸水中の濃度変化に着目して解析を行った。陸水中の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度の経年変化は土壌の減少割合と類似していることから、土壌-陸水は 1982 年から 2010 年の間、ほぼ平衡状態であったことがわかった。この期間において土壌中濃度を推定し、葉菜と根菜の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度データと併せて見かけの TF を求めた。その結果、 ^{137}Cs は温暖地と寒冷地で得られた結果に差がなかったが、 ^{90}Sr は寒冷地と温暖地で有意な差があり、葉菜類、根菜類とも温暖地で高くなった。これは降水量が多いことと間接的に関連している可能性が示された。なお、文献から、植物の生育には地上部と根圏域の温度が影響していることから、根圏域の地温と気温の関係について実測を行い、1 年間のデータを収集した。1 年を通した結果では、気温と地温が良く一致することから、寒冷地と温暖地を気温によって区分することが妥当であることが示された。

2.7.2. 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)

本年度は昨年度に引き続き、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、20 元素程度の濃度データを得た。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、前年度のデータと併せて TF を比較したところ、温暖地域と寒冷地域で採取された両作物の TF に対する気温差の影響は明確ではなかった。ただし、それぞれの条件でのデータ蓄積は 10 データずつであり、統計処理を行うためにはより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 TF データベースに蓄積することで、これらの情報が TF 変動要因の解析に役立つと期待されることから、これらについてのデータ採取も必要である。

2.7.3 環境移行パラメータ (TF) の変動要因の解析

本年度は移行係数に着目し、Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Gd, Pb, Th, U の 37 元素について検討を行った。葉菜類については、栽培期間が短いこと、季節によって栽培時の気温が大きく変動することから、単純に栽培地の年間平均気温による分類をせず、栽培時の平均気温が重要と考え、収穫月の前月の平均気温を用いて分類を試みた。栽培期間温度が寒冷条

件（平均 11°C）と温暖条件（平均 21°C）に 14 データずつを得ることができ、統計解析を行ったところ、全ての元素で有意差が認められなかった。そこで、Th と U について葉菜類でも作物種別に検定したところ、U で有意差が確認され、その結果から、結球性・非結球性の分類についてさらに検討を行った。その結果、この分類においても栽培条件による影響よりも、作物種（結球性・非結球性）によって TF が影響を受けることが明らかになった。特に非結球性で TF が高くなることがわかった。しかしながら、より長期間栽培される米やジャガイモについて同様の結果が得られるかどうかは不明であるため、さらにデータを蓄積して統計解析を行い、TF に変動を与える要因を明確にして行く必要がある。

2.7.4. 寒冷条件下における K_d - ^{137}Cs の測定結果

本年度は有機物含量に変動を与えない低温条件（10°C）において、水田土壌 20 試料、畑土壌 20 試料について K_d を求め、過去に 23°C で得られた結果と比較した。その結果、10°C で得られた K_d 値は 23°C と有意差がなかった。また、土壌試料を水田土壌と畑土壌に分けても同様に有意差なしの判定であった。したがって、 K_d -Cs は低温条件では変化せず、ヨウ素で見られたような微生物活性の直接的な影響はないと言える。

2.7.5 福島第一原発事故後の放射性 Cs の環境移行調査研究のまとめ

福島第一原発事故により環境中に放出された放射性セシウムの環境移行に関し、実環境試料中のデータ収集を行うことにより、環境移行パラメータを得ることを目的として調査研究を行った。今回は植物、海水魚（底生魚）および淡水魚に関わるデータを報告した。

植物については、減少速度が緩やかになってきていることから、速い成分と遅い成分の二成分の指数関数フィッティングを試みた。その結果、マメ科の草本植物では、すでにほぼ平衡に達していることが示され、草本植物については TF データ収集が可能であることが示されたが、木本植物では平衡に達していないことがわかった。

海水魚については、生物学的半減期に着目して水温の違いの影響をモデル計算により検討した結果、海水温が低い場合には Cs 濃度が高まる結果となった。次に福島第一原発事故後の福島沖水域での底生魚の ^{137}Cs 濃度減少率が、実験室レベルよりも遅くなることについて検討を加えた。その結果、食物連鎖も影響している可能性があるが、魚からの排出が極めて遅い成分がある可能性を明らかにした。

淡水魚では、海水魚よりも ^{137}Cs を濃縮する機構があること、生物濃縮も重要なファクターであることから、新たに印旛沼において測定を開始し、安定同位体比を食物連鎖の指標に用いつつ徐々にデータを蓄積進めているが、年間を通した変動や魚の年齢についての情報も追加する必要があることから、調査の継続が必要である。

以上のような検討を行うことで、長期的な環境安全評価を行う上で必要な環境移行パラメータの収集を行い、周辺情報と併せてデータベース化することによって、いろいろな環境条件における情報を蓄積することができる。TF や K_d データ収集は未だ不十分でありしたがって今後さらにフィールドでのサンプリングと定量分析を行いながら、我が国の環境移行パラメータデータベースを構築する必要がある。

表 2.2-1 畑条件の土壌地温（20 cm）と気温の 5 日間平均温度の変化

	5 days average		5 days average		5 days average			
	Air	Soil	Air	Soil	Air	Soil		
2014/11/6	15.3	16.9	2015/3/16	12.0	10.2	2015/7/24	28.7	25.7
2014/11/11	14.2	16.2	2015/3/21	10.6	11.7	2015/7/29	29.7	26.4
2014/11/16	11.4	14.5	2015/3/26	7.8	11.2	2015/8/3	30.7	27.9
2014/11/21	11.2	13.6	2015/3/31	14.2	13.3	2015/8/8	28.8	27.7
2014/11/26	11.6	13.3	2015/4/5	12.2	13.0	2015/8/13	28.2	27.2
2014/12/1	12.5	13.6	2015/4/10	9.1	10.6	2015/8/18	26.9	26.4
2014/12/6	7.0	11.4	2015/4/15	14.2	12.4	2015/8/23	25.2	25.8
2014/12/11	7.8	10.6	2015/4/20	16.8	14.1	2015/8/28	21.8	23.3
2014/12/16	4.6	9.0	2015/4/25	18.6	15.8	2015/9/2	25.6	24.1
2014/12/21	6.9	8.5	2015/4/30	20.1	17.7	2015/9/7	23.6	23.9
2014/12/26	4.8	7.9	2015/5/5	20.0	18.4	2015/9/12	23.7	23.5
2014/12/31	4.9	7.4	2015/5/10	19.6	18.1	2015/9/17	21.6	22.2
2015/1/5	6.3	7.1	2015/5/15	22.1	19.5	2015/9/22	21.9	22.2
2015/1/10	6.1	7.5	2015/5/20	21.2	19.7	2015/9/27	21.4	21.6
2015/1/15	6.7	7.9	2015/5/25	22.3	19.8	2015/10/2	21.6	21.6
2015/1/20	5.2	7.3	2015/5/30	23.5	20.7	2015/10/7	18.6	19.8
2015/1/25	7.5	7.9	2015/6/4	21.2	20.4	2015/10/12	19.3	20.1
2015/1/30	4.0	7.1	2015/6/9	22.2	20.1	2015/10/17	18.2	19.5
2015/2/4	4.0	6.5	2015/6/14	23.9	21.4	2015/10/22	18.0	19.1
2015/2/9	4.2	6.2	2015/6/19	21.7	20.9	2015/10/27	17.8	18.8
2015/2/14	5.8	7.1	2015/6/24	23.9	21.6	2015/11/1	14.5	17.4
2015/2/19	4.9	6.7	2015/6/29	22.6	21.4	2015/11/6	16.5	17.3
2015/2/24	9.2	8.7	2015/7/4	21.7	21.6	2015/11/11	15.2	17.3
2015/3/1	7.5	8.4	2015/7/9	23.5	21.7	2015/11/16	16.7	17.1
2015/3/6	8.3	8.7	2015/7/14	28.3	24.5	2015/11/21	13.4	16.0
2015/3/11	8.1	8.6	2015/7/19	28.5	25.3	2015/11/26	10.0	13.8

表 2.2-2 グローバルフォールアウト ^{137}Cs および ^{90}Sr の河川水中環境半減期 (T_{env})

	都道府県	利用形態	T_{eff}, y	T_{env}, y
^{137}Cs	北海道, 青森県, 秋田県	蛇口水, 淡水	13 (9-17)	26 (13-41)
^{90}Sr	北海道, 青森県, 秋田県, 岩手県	蛇口水, 淡水, 河川水, 湖沼水	19 (12-25)	73 (21-217)
^{90}Sr	高知県, 宮崎県, 鹿児島県, 沖縄県	蛇口水, 河川水	26 (11-45)	179 (17-288*)

*8 カ所中 4 カ所において物理学的半減期よりも長い実効半減期であったため、環境半減期としては物理学的半減期の 10 倍を昨年度と同様に採用した。

表 2.2-3 グローバルフォールアウト ^{137}Cs の土壌および作物中環境半減期 (T_{env})

都道府県	利用形態	T_{eff}, y	T_{env}, y	
北海道, 岩手県, 秋田県	未攪乱土, 畑地	21 (16-25)	84 (34-144)	昨年度報告書
北海道, 岩手県, 秋田県	水田, 畑地	13 (8-22)	-	駒村ら
北海道, 青森県, 岩手県, 秋田県	アスパラガス, ハクサイ, ジャガイモ, ダイコン, ニンジン, キャベツ	14 (6-30)	34 (7-302)	昨年度報告書
熊本県, 宮崎県, 鹿児島県, 沖縄県	未攪乱土, 畑地	13 (11-18)	25 (16-48)	昨年度報告書
(福岡県)	水田, 畑地	18 (14-24)		駒村ら
高知県, 宮崎県, 鹿児島県	サツマイモ, ダイコン, ホウレンソウ	14 (4-25)	36 (4-159)	昨年度報告書

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

都道府県	利用形態	T_{eff}, y	T_{env}, y	
北海道, 岩手県, 秋田県	未攪乱土, 畑地	16 (9-34*)	52 (13-287)	昨年度報告書
北海道, 岩手県, 秋田県	水田, 畑地	9 (6-12)	-	駒村ら
北海道, 青森県, 岩手県, 秋田県	ダイコン, ホウレンソウ, アスパラガス, キャベツ, ハクサイ, デントコーン	9 (5-24)	14 (6-143)	昨年度報告書
高知県, 熊本県, 宮崎県, 沖縄県	未攪乱土, 畑地	15 (11-21)	33 (17-79)	昨年度報告書
(福岡県)	水田, 畑地	6 (5.9-6.2)	-	駒村ら
高知県, 宮崎県, 鹿児島県, 沖縄県	ダイコン, ホウレンソウ, サツマイモ, ハクサイ	10 (6-13)	16 (7-41)	昨年度報告書

* 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2.3-1 採取地点，土壤・作物採取日一覧

	都道府県名	市町村名	土地利用	土壤採取日	作物採取日	作物	品種名
1	北海道①	札幌市豊平区	水田	10/16	9/16	水稲	ななつぼし
2	北海道②	上川郡比布町	水田	11/2	9/11	水稲	ななつぼし
3	北海道①	河東郡士幌町	畑地	8/21	8/21	ジャガイモ	トヨシロ
4	北海道②	斜里郡小清水町	畑地	8/24	8/24	ジャガイモ	アーリースターチ
5	青森県	つがる市	水田	10/13	10/5	水稲	まっしぐら
6	青森県	むつ市	畑地	7/27	7/24	ジャガイモ	きたあかり
7	秋田県	南秋田郡八郎潟町	水田	10/8	10/8	水稲	あきたこまち
8	秋田県	秋田市	畑地	7/21	7/21	ジャガイモ	メイクイン
9	岩手県	九戸郡軽米町	水田	10/7	10/7	水稲	いわてっこ
10	岩手県	陸前高田市	畑地	7/15	7/15	ジャガイモ	メイクイン
11	高知県	四万十市	水田	8/17	8/12	水稲	コシヒカリ
12	高知県	安芸郡田野町	畑地	6/10	6/10	ジャガイモ	出島
13	福岡県	筑後市	畑地	6/16	6/16	ジャガイモ	メイクイン
14	熊本県	菊池郡菊陽町	水田	10/14	10/11	水稲	ヒノヒカリ
15	熊本県	球磨郡あさぎり町	畑地	6/17	6/17	ジャガイモ	メイクイン
16	宮崎県	西都市	水田	8/4	7/27	水稲	コシヒカリ
17	宮崎県	東諸県郡綾町	畑地	6/12	6/12	ジャガイモ	メイクイン
18	鹿児島県	曾於郡大崎町	水田	8/14	8/6	水稲	イクヒカリ
19	鹿児島県	鹿屋市	畑地	6/10	6/10	ジャガイモ	トヨシロ
20	沖縄県	名護市	水田	7/3	7/1	水稲	ひとめぼれ

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①	水田	火山放出物未熟土	湿性火山放出物未熟土	典型	0.66
2	北海道②	水田	灰色低地土	普通灰色低地土	礫質	1.14
3	北海道①	畑地	褐色低地土	普通褐色低地土	中粒質	0.68
4	北海道②	畑地	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.69
5	青森県	水田	グライ低地土	表層灰色グライ低地土	細粒質	0.81
6	青森県	畑地	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.77
7	秋田県	水田	グライ低地土	還元型グライ低地土	粗粒質	0.88
8	秋田県	畑地	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	0.95
9	岩手県	水田	多湿黒ボク土	下層低地多湿黒ボク土	典型	0.87
10	岩手県	畑地	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.81
11	高知県	水田	低地水田土	灰色化低地水田土	細粒質	0.99
12	高知県	畑地	黄色土	山地黄色土	細粒質	0.84
13	福岡県	畑地	低地水田土	灰色化低地水田土	細粒質	0.95
14	熊本県	水田	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	腐植質	0.86
15	熊本県	畑地	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	0.64
16	宮崎県	水田	低地水田土	灰色化低地水田土	中粒質	1.41
17	宮崎県	畑地	灰色低地土	普通灰色低地土	礫質	0.75
18	鹿児島県	水田	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	1.18
19	鹿児島県	畑地	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.58
20	沖縄県	水田	黄色土	台地黄色土	細粒質	1.30

表2.3-3 試料コード一覧 (到着順)

	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①	水田	EPII-SD-19	水稲	EPII-CF-19
2	北海道②	水田	EPII-SD-20	水稲	EPII-CF-20
3	北海道①	畑地	EFII-SD-39	ジャガイモ	EFII-CF-39
4	北海道②	畑地	EFII-SD-40	ジャガイモ	EFII-CF-40
5	青森県	水田	EPII-SD-17	水稲	EPII-CF-17
6	青森県	畑地	EFII-SD-38	ジャガイモ	EFII-CF-38
7	秋田県	水田	EPII-SD-15	水稲	EPII-CF-15
8	秋田県	畑地	EFII-SD-37	ジャガイモ	EFII-CF-37
9	岩手県	水田	EP-II-SD-16	水稲	EP-II-CF-16
10	岩手県	畑地	EFII-SD-36	ジャガイモ	EFII-CF-36
11	高知県	水田	EPII-SD-13	水稲	EPII-CF-13
12	高知県	畑地	EFII-SD-31	ジャガイモ	EFII-CF-31
13	福岡県	畑地	EFII-SD-34	ジャガイモ	EFII-CF-34
14	熊本県	水田	EPII-SD-18	水稲	EPII-CF-18
15	熊本県	畑地	EFII-SD-35	ジャガイモ	EFII-CF-35
16	宮崎県	水田	EPII-SD-12	水稲	EPII-CF-12
17	宮崎県	畑地	EFII-SD-33	ジャガイモ	EFII-CF-33
18	鹿児島県	水田	EPII-SD-14	水稲	EPII-CF-14
19	鹿児島県	畑地	EFII-SD-32	ジャガイモ	EFII-CF-32
20	沖縄県	水田	EPII-SD-11	水稲	EPII-CF-11

表2.3-4 土壤試料前処理状況および試料到着時水分含量

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-31	高知県	畑地	0.5%	21%	24.3%
EFII-SD-32	鹿児島県	畑地	0.5%	33%	5.1%
EFII-SD-33	宮崎県	畑地	1.5%	26%	8.0%
EFII-SD-34	福岡県	畑地	2.0%	30%	21.4%
EFII-SD-35	熊本県	畑地	9.2%	34%	8.7%
EFII-SD-36	岩手県	畑地	13.5%	16%	7.6%
EFII-SD-37	秋田県	畑地	1.7%	16%	3.2%
EFII-SD-38	青森県	畑地	0.5%	26%	21.5%
EFII-SD-39	北海道①	畑地	2.3%	26%	0.7%
EFII-SD-40	北海道②	畑地	1.0%	25%	2.3%
EPII-SD-11	沖縄県	水田	1.3%	22%	21.4%
EPII-SD-12	宮崎県	水田	1.7%	23%	16.1%
EPII-SD-13	高知県	水田	2.7%	29%	21.1%
EPII-SD-14	鹿児島県	水田	0.2%	27%	2.5%
EPII-SD-15	秋田県	水田	6.2%	36%	2.6%
EPII-SD-16	岩手県	水田	6.2%	38%	3.0%
EPII-SD-17	青森県	水田	5.9%	42%	10.3%
EPII-SD-18	熊本県	水田	0.5%	43%	7.3%
EPII-SD-19	北海道①	水田	1.6%	49%	2.2%
EPII-SD-20	北海道②	水田	2.0%	30%	10.5%

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
EFII-SD-31	高知県	ジャガイモ	7.1%	81.2%
EFII-SD-32	鹿児島県	ジャガイモ	8.2%	80.0%
EFII-SD-33	宮崎県	ジャガイモ	0.3%	80.5%
EFII-SD-34	福岡県	ジャガイモ	2.4%	79.1%
EFII-SD-35	熊本県	ジャガイモ	1.4%	81.3%
EFII-SD-36	岩手県	ジャガイモ	4.9%	79.9%
EFII-SD-37	秋田県	ジャガイモ	0.8%	79.3%
EFII-SD-38	青森県	ジャガイモ	16.5%	79.7%
EFII-SD-39	北海道①	ジャガイモ	5.4%	77.0%
EFII-SD-40	北海道②	ジャガイモ	0.6%	76.9%

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-SD-11	沖縄県	玄米	9.3%	90.3%
EPII-SD-12	宮崎県	玄米	10.3%	90.2%
EPII-SD-13	高知県	玄米	10.4%	90.4%
EPII-SD-14	鹿児島県	玄米	9.7%	91.3%
EPII-SD-15	秋田県	玄米	9.5%	91.2%
EPII-SD-16	岩手県	玄米	9.3%	92.0%
EPII-SD-17	青森県	玄米	9.4%	90.5%
EPII-SD-18	熊本県	玄米	9.3%	91.8%
EPII-SD-19	北海道①	玄米	8.9%	90.9%
EPII-SD-20	北海道②	玄米	11.3%	90.8%

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
11	沖縄 2015.7.6 2015.9.8 (上段：土壌到着日, 下段：作物到着日)		
12	宮崎 2015.8.7 2015.8.7		
13	高知 2015.8.20 2015.8.19		
14	鹿児島 2015.8.20 2015.8.20		
15	秋田 2015.10.13 2015.10.13		

番号		土壌	作物
16	岩手 2015.10.13 2015.10.21		
17	青森 2015.10.14 2015.10.14		
18	熊本 2015.10.16 2015.10.16		
19	北海道 1 2015.10.17 2015.10.26		
20	北海道 2 2015.11.4 2015.11.4		

表 2.3-8 試料到着時の状態 (2) ジャガイモ

番号		土壌	作物
31	高知 2015.6.12 2015.6.12	 A clear plastic bag containing dark brown soil. A white label is attached with the text "27 高知 土壌 ジャガイモ".	 A cardboard box containing a white mesh bag filled with small, round, reddish-brown potatoes. A white label is attached with the text "27 高知 土壌 ジャガイモ".
32	鹿児島 2015.6.12 2015.6.12	 A clear plastic bag containing dark soil. A white label is attached with the text "27 鹿児島 土壌 ジャガイモ".	 A cardboard box containing a blue mesh bag filled with small, round, reddish-brown potatoes. A white label is attached with the text "27 鹿児島 土壌 ジャガイモ".
33	宮崎 2015.6.15 2015.6.15	 A clear plastic bag containing dark soil. A white label is attached with the text "27 宮崎 土壌 ジャガイモ".	 A cardboard box containing a blue mesh bag filled with small, round, reddish-brown potatoes and a clear plastic bag of soil. A white label is attached with the text "27 宮崎 土壌 ジャガイモ".
34	福岡 2015.6.18 2015.6.18	 A clear plastic bag containing dark soil, placed on a cardboard box. A white label is attached with the text "27 福岡 土壌 ジャガイモ".	 A blue mesh bag filled with small, round, reddish-brown potatoes, placed on a white surface. A white label is attached with the text "27 福岡 土壌 ジャガイモ".
35	熊本 2015.6.19 2015.6.19	 A clear plastic bag containing dark soil, placed on a newspaper. A white label is attached with the text "27 熊本 土壌 ジャガイモ".	 A blue mesh bag filled with small, round, reddish-brown potatoes, placed on a cardboard box. A white label is attached with the text "27 熊本 土壌 ジャガイモ".

番号		土壌	作物
36	岩手 2015.7.17 2015.7.17		
37	秋田 2015.7.27 2015.7.27		
38	青森 2015.7.28 2015.7.28		
39	北海道 1 2015.8.26 2015.8.26		
40	北海道 2 2015.8.27 2015.8.27		

表 2.3-9 平成 27 年度に採取した土壌の物理化学的特性

検体No.	pH (H ₂ O)	塩基置換容量 meq/100g-dry	置換性Ca mg/100g-dry	置換性K mg/100g-dry	活性Al g/kg-dry	活性Fe g/kg-dry	総Al g/kg-dry	総Fe g/kg-dry
EFII-SD-31	6.2	17.3	513	57.9	2.9	4.2	55.2	33.5
	6.2	17.4	481	58.5	3.0	4.4	44.3	32.7
Avg.	6.2	17.4	497	58.2	3.0	4.3	49.7	33.1
EFII-SD-32	5.3	24.2	190	27.8	33.8	11.0	54.8	41.0
	5.3	23.9	190	27.4	34.4	11.0	51.3	40.6
Avg.	5.3	24.1	190	27.6	34.1	11.0	53.1	40.8
EFII-SD-33	4.7	9.8	140	9.5	16.1	6.0	51.8	35.5
	4.8	10.2	143	9.7	16.7	6.2	45.6	34.9
Avg.	4.8	10.0	141	9.6	16.4	6.1	48.7	35.2
EFII-SD-34	5.4	18.1	357	63.6	2.8	4.6	42.4	33.1
	5.4	18.4	374	65.1	2.7	4.4	49.2	33.2
Avg.	5.4	18.3	366	64.3	2.7	4.5	45.8	33.2
EFII-SD-35	7.2	23.1	310	55.9	31.8	12.5	40.9	34.7
	7.1	22.6	318	56.3	31.3	12.4	51.8	36.6
Avg.	7.1	22.9	314	56.1	31.5	12.4	46.4	35.7
EFII-SD-36	5.9	23.1	371	36.0	14.4	8.8	66.3	55.1
	5.8	22.6	357	35.2	14.7	8.9	65.8	51.9
Avg.	5.9	22.9	364	35.6	14.5	8.8	66.0	53.5
EFII-SD-37	5.7	13.8	191	46.3	5.6	5.8	53.5	32.3
	5.8	14.4	219	49.8	5.8	5.9	42.0	30.2
Avg.	5.7	14.1	205	48.1	5.7	5.8	47.8	31.2
EFII-SD-38	6.0	22.8	201	72.0	22.4	16.3	58.9	52.3
	6.1	22.6	201	71.0	22.0	16.4	61.0	53.4
Avg.	6.0	22.7	201	71.5	22.2	16.4	59.9	52.8
EFII-SD-39	5.2	17.5	208	31.5	38.4	11.5	68.0	53.2
	5.1	17.4	210	32.1	38.7	11.4	64.7	52.4
Avg.	5.1	17.5	209	31.8	38.5	11.4	66.3	52.8
EFII-SD-40	5.7	13.9	137	28.8	21.7	8.7	58.1	45.0
	5.7	13.8	124	27.9	22.1	8.8	56.2	44.6
Avg.	5.7	13.9	130	28.4	21.9	8.7	57.2	44.8
EPII-SD-11	6.1	5.9	117	6.8	0.9	3.5	42.5	35.3
	6.1	6.0	124	6.9	0.8	3.5	44.2	36.6
Avg.	6.1	6.0	121	6.9	0.8	3.5	43.3	35.9
EPII-SD-12	5.8	5.6	85	11.3	2.1	2.9	35.6	25.8
	5.8	5.9	85	11.4	2.0	3.0	39.1	25.6
Avg.	5.8	5.8	85	11.3	2.1	3.0	37.3	25.7
EPII-SD-13	6.1	8.0	57	14.8	1.7	6.0	47.3	29.5
	6.1	8.0	56	14.7	1.6	5.9	45.7	30.0
Avg.	6.1	8.0	56	14.8	1.7	5.9	46.5	29.8
EPII-SD-14	5.4	7.8	33	7.3	5.9	1.8	48.1	21.3
	5.4	7.8	33	7.4	6.0	1.9	67.0	22.5
Avg.	5.4	7.8	33	7.4	5.9	1.8	57.5	21.9
EPII-SD-15	5.0	21.0	180	32.5	2.9	10.8	60.7	38.3
	5.0	20.8	190	33.7	2.9	10.7	48.3	38.3
Avg.	5.0	20.9	185	33.1	2.9	10.7	54.5	38.3
EPII-SD-16	5.1	19.2	258	15.4	16.1	6.4	56.2	43.6
	5.1	19.0	292	15.1	15.4	6.0	39.1	43.9
Avg.	5.1	19.1	275	15.2	15.7	6.2	47.7	43.8
EPII-SD-17	5.1	14.2	119	14.5	2.7	5.2	57.1	33.1
	5.1	14.9	116	14.7	2.7	5.2	51.5	34.0
Avg.	5.1	14.6	118	14.6	2.7	5.2	54.3	33.5
EPII-SD-18	5.5	35.3	406	51.8	43.3	21.2	35.9	54.4
	5.5	34.4	444	53.8	43.8	21.3	31.6	58.7
Avg.	5.5	34.9	425	52.8	43.5	21.2	33.8	56.5
EPII-SD-19	5.4	23.5	212	38.2	3.8	5.4	34	28.9
	5.4	23.1	214	36.9	4.0	5.6	27	27.7
Avg.	5.4	23.3	213	37.5	3.9	5.5	30	28.3
EPII-SD-20	6.3	12.0	133	12.7	1.8	6.2	30.8	38.9
	6.2	12.2	139	13.6	2.1	6.8	39.6	40.7
Avg.	6.3	12.1	136	13.2	1.9	6.5	35.2	39.8

表 2.3-10 平成 27 年度に採取した土壌試料中の元素濃度

検体No.	B	C	N	Na	Mg	Si	P	K	Ca	V	Cr
	mg/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-SD-31	33.2	42	3.4	3.6	1.4	274	2.6	7.7	10.4	61	44.1
	34.1	41	3.3	3.7	2.0	291	2.3	7.9	10.5	62	42.5
Avg.	33.6	42	3.3	3.6	1.7	282	2.4	7.8	10.5	62	43.3
EFII-SD-32	15.8	73	5.1	13.4	5.5	219	6.1	7.0	19.0	101	18.7
	15.2	70	4.7	14.2	6.0	216	6.1	6.5	22.2	99	16.2
Avg.	15.5	72	4.9	13.8	5.8	218	6.1	6.7	20.6	100	17.4
EFII-SD-33	49.8	21	2.6	9.7	2.7	282	2.3	10.9	7.3	94	52.9
	49.8	22	2.5	9.8	3.2	285	2.2	10.2	7.1	93	51.5
Avg.	49.8	21	2.5	9.8	3.0	283	2.3	10.6	7.2	94	52.2
EFII-SD-34	26.5	26	2.4	9.0	2.5	287	2.0	9.7	10.9	80	68.9
	27.8	26	2.2	8.9	4.2	280	2.0	10.0	9.1	76	71.6
Avg.	27.1	26	2.3	9.0	3.4	284	2.0	9.8	10.0	78	70.2
EFII-SD-35	52.6	54	4.7	7.5	0.9	222	3.2	10.9	6.5	63	40.6
	54.1	54	4.4	7.5	0.9	224	3.4	10.3	5.4	63	40.8
Avg.	53.4	54	4.5	7.5	0.9	223	3.3	10.6	6.0	63	40.7
EFII-SD-36	48.1	48	4.2	9.7	4.9	234	3.8	3.7	10.3	116	55.6
	48.2	46	3.9	9.4	5.6	244	3.8	4.1	9.6	109	72.5
Avg.	48.2	47	4.1	9.6	5.2	239	3.8	3.9	9.9	113	64.1
EFII-SD-37	19.0	29	2.6	16.1	8.2	269	2.1	15.1	14.4	75	32.5
	21.4	26	2.2	16.3	6.7	293	2.2	13.6	13.8	71	31.6
Avg.	20.2	28	2.4	16.2	7.4	281	2.1	14.3	14.1	73	32.0
EFII-SD-38	34.6	42	3.6	7.6	3.1	226	2.8	11.5	5.0	114	72.3
	36.2	41	3.3	7.8	3.1	226	2.9	9.8	3.9	111	73.5
Avg.	35.4	41	3.4	7.7	3.1	226	2.8	10.6	4.4	113	72.9
EFII-SD-39	33.7	30	2.9	10.7	10.1	218	2.4	9.7	13.9	139	38.9
	36.0	30	2.8	11.1	8.9	222	2.1	9.1	15.5	137	38.0
Avg.	34.8	30	2.8	10.9	9.5	220	2.3	9.4	14.7	138	38.5
EFII-SD-40	19.4	37	3.4	18.6	10.0	246	3.1	4.8	28.2	97	11.4
	17.8	36	3.1	19.1	9.8	242	3.0	4.2	29.5	94	11.3
Avg.	18.6	37	3.2	18.9	9.9	244	3.1	4.5	28.8	95	11.3
EPII-SD-11	28.4	11	1.3	0.8	2.1	322	1.2	9.9	2.2	86	78.7
	21.5	11	1.4	0.6	2.0	317	1.3	8.2	1.4	84	80.8
Avg.	25.0	11	1.3	0.7	2.1	320	1.3	9.0	1.8	85	79.7
EPII-SD-12	66.9	13	1.8	12.2	2.5	270	1.8	15.3	3.2	69	95.4
	74.1	14	2.0	13.6	2.8	276	1.9	14.4	3.8	70	89.2
Avg.	70.5	14	1.9	12.9	2.6	273	1.9	14.9	3.5	70	92.3
EPII-SD-13	72.6	17	1.9	12.4	1.7	292	0.8	16.3	2.4	66	62.2
	65.0	17	2.0	13.6	1.7	289	0.8	12.9	2.2	64	65.4
Avg.	68.8	17	2.0	13.0	1.7	291	0.8	14.6	2.3	65	63.8
EPII-SD-14	19.3	20	1.9	19.0	5.0	271	2.1	15.1	13.7	65	22.4
	21.4	21	2.1	19.8	4.3	270	2.2	13.7	18.0	65	23.1
Avg.	20.3	20	2.0	19.4	4.6	270	2.2	14.4	15.9	65	22.7
EPII-SD-15	9.7	26	2.4	13.3	10.7	236	0.9	7.3	15.7	108	107
	7.8	24	2.4	14.0	9.3	240	0.9	6.6	19.3	107	106
Avg.	8.7	25	2.4	13.6	10.0	238	0.9	6.9	17.5	108	107
EPII-SD-16	20.8	45	3.7	13.8	11.3	217	2.6	7.9	25.1	118	25.6
	21.3	45	3.8	14.6	9.5	220	2.6	7.9	31.6	118	25.4
Avg.	21.0	45	3.7	14.2	10.4	218	2.6	7.9	28.4	118	25.5
EPII-SD-17	16.5	49	4.0	14.8	5.3	245	1.5	11.2	9.3	85	32.6
	11.8	48	4.1	15.0	3.8	232	1.6	8.4	10.8	84	32.5
Avg.	14.2	49	4.1	14.9	4.6	239	1.6	9.8	10.0	84	32.5
EPII-SD-18	20.6	66	4.7	5.8	2.2	166	3.3	4.5	12.6	161	33.1
	14.5	66	4.7	6.4	2.4	174	3.4	4.8	19.6	163	34.6
Avg.	17.6	66	4.7	6.1	2.3	170	3.4	4.6	16.1	162	33.8
EPII-SD-19	52.6	65	5.1	15.1	7.3	245	2.7	11.3	16.5	80	34.3
	45.8	64	5.2	15.6	6.1	247	2.7	9.2	19.3	82	31.6
Avg.	49.2	64	5.1	15.4	6.7	246	2.7	10.2	17.9	81	32.9
EPII-SD-20	33.6	18	2.0	14.7	9.4	256	1.5	14.1	15.0	126	72.0
	23.7	18	2.1	16.3	8.0	260	1.4	13.2	18.9	130	72.3
Avg.	28.6	18	2.0	15.5	8.7	258	1.5	13.7	16.9	128	72.2

(つづき)

検体No.	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	Zn*	Sr	Ba	Hg	Cd
	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-SD-31	704	9.3	19.4	39.8	131	129	61	191	0.09	0.38
	737	9.0	16.9	38.7	129	148	61	214	0.09	0.38
Avg.	721	9.1	18.2	39.3	130	139	61	203	0.09	0.38
EFII-SD-32	955	12.0	8.8	44.7	127	129	121	142	0.04	0.45
	989	12.2	7.7	42.4	117	135	119	132	0.06	0.43
Avg.	972	12.1	8.2	43.5	122	132	120	137	0.05	0.44
EFII-SD-33	337	12.5	22.6	31.3	94	88	72	157	0.06	0.25
	377	12.3	19.3	29.1	92	98	80	153	0.06	0.24
Avg.	357	12.4	21.0	30.2	93	93	76	155	0.06	0.24
EFII-SD-34	922	13.8	29	33.7	124	106	89	149	0.22	0.68
	971	13.8	23	36.5	130	116	89	173	0.28	0.65
Avg.	947	13.8	26	35.1	127	111	89	161	0.25	0.66
EFII-SD-35	1257	10.5	18.8	36.1	140	124	56	153	0.16	0.45
	1195	10.5	20.2	37.7	142	139	65	116	0.15	0.45
Avg.	1226	10.5	19.5	36.9	141	132	60	134	0.15	0.45
EFII-SD-36	1276	17.9	26.8	50.2	152	144	192	89	0.12	0.61
	1289	18.6	25.2	51.6	175	157	206	98	0.15	0.63
Avg.	1282	18.2	26.0	50.9	164	150	199	94	0.14	0.62
EFII-SD-37	788	10.3	18.0	19.6	109	127	154	420	0.08	0.31
	778	10.8	15.3	20.3	103	139	150	331	0.07	0.32
Avg.	783	10.6	16.7	20.0	106	133	152	375	0.07	0.32
EFII-SD-38	738	17.2	34.9	34.0	108	115	84	192	0.15	0.50
	944	17.8	32.3	32.7	109	129	89	169	0.15	0.54
Avg.	841	17.5	33.6	33.3	108	122	86	181	0.15	0.52
EFII-SD-39	789	16.7	19.5	47.5	107	99	136	306	0.12	0.40
	889	16.8	18.3	45.5	104	109	131	291	0.11	0.43
Avg.	839	16.7	18.9	46.5	105	104	134	298	0.12	0.41
EFII-SD-40	1297	10.1	6.9	25.2	104	90	175	216	0.07	0.41
	1294	10.2	7.1	21.7	86	98	179	214	0.07	0.41
Avg.	1295	10.1	7.0	23.5	95	94	177	215	0.07	0.41
EPII-SD-11	320	6.2	18.4	17.1	42	48	25	231	0.02	0.16
	308	5.8	19.6	15.6	46	47	25	205	0.02	0.16
Avg.	314	6.0	19.0	16.3	44	47	25	218	0.02	0.16
EPII-SD-12	488	9.4	27.8	33.5	104	91	85	215	0.16	0.36
	534	9.0	27.6	31.4	100	90	83	201	0.16	0.36
Avg.	511	9.2	27.7	32.4	102	91	84	208	0.16	0.36
EPII-SD-13	464	12.6	26.1	37.5	80	77	96	152	0.28	0.26
	460	12.3	27.2	37.4	83	74	99	105	0.30	0.28
Avg.	462	12.4	26.6	37.4	81	76	97	128	0.29	0.27
EPII-SD-14	455	5.5	5.3	11.4	65	54	141	444	0.06	0.35
	452	5.5	5.3	11.4	67	57	138	374	0.06	0.32
Avg.	454	5.5	5.3	11.4	66	55	140	409	0.06	0.33
EPII-SD-15	546	16.6	33.6	20.5	110	95	172	189	0.06	0.43
	544	16.1	34.8	19.8	110	90	171	174	0.06	0.41
Avg.	545	16.4	34.2	20.2	110	92	172	181	0.06	0.42
EPII-SD-16	1025	14.0	11.6	28.7	86	108	184	293	0.05	0.50
	1029	14.3	11.9	28.2	86	101	191	312	0.05	0.44
Avg.	1027	14.1	11.8	28.5	86	104	188	303	0.05	0.47
EPII-SD-17	510	11.9	16.8	39.9	107	127	147	241	0.13	0.58
	497	10.9	17.2	36.5	104	117	148	178	0.13	0.58
Avg.	504	11.4	17.0	38.2	105	122	148	210	0.13	0.58
EPII-SD-18	1311	24.1	19.8	105.6	71	81	190	167	0.08	0.53
	1314	22.4	19.8	99.1	75	84	201	175	0.08	0.53
Avg.	1313	23.2	19.8	102.4	73	82	195	171	0.08	0.53
EPII-SD-19	599	9.0	16.0	27.7	81	89	146	458	0.10	0.37
	611	8.9	15.7	27.1	78	84	146	385	0.10	0.40
Avg.	605	8.9	15.9	27.4	79	86	146	422	0.10	0.39
EPII-SD-20	755	16.5	29.9	31.8	100	95	188	488	0.20	0.30
	799	15.8	29.5	30.4	100	91	193	439	0.18	0.26
Avg.	777	16.1	29.7	31.1	100	93	190	464	0.19	0.28

*異なる実施時期間でのデータの確認を行い、良い一致が見られた。

表 2.3-11 平成 27 年度に採取した農作物試料中の元素濃度

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-31	13	379	16.2	21	0.7	2.6	5.1	3417	25.7	314
	25	376	15.1	26	1.1	3.4	5.0	3591	25.7	324
Avg.	19	378	15.7	24	0.9	3.0	5.1	3504	25.7	319
EFII-CF-32	17	408	12.6	25	0.8	5.7	6.1	1959	20.5	196
	10	407	12.0	32	1.2	6.4	7.8	1664	19.5	202
Avg.	13	408	12.3	28	1.0	6.1	7.0	1812	20.0	199
EFII-CF-33	8	399	11.2	10	0.7	8.3	10.3	2524	18.6	222
	17	396	9.7	19	1.0	9.3	11.8	2470	17.0	228
Avg.	13	397	10.5	15	0.8	8.8	11.1	2497	17.8	225
EFII-CF-34	15	397	14.7	5	0.7	14.8	39.0	3424	21.5	524
	9	402	14.5	13	1.1	18.7	33.6	3383	20.7	530
Avg.	12	399	14.6	9	0.9	16.7	36.3	3404	21.1	527
EFII-CF-35	7	408	15.1	n.d.	0.7	4.5	7.5	2187	19.6	214
	13	390	13.5	11	1.0	4.9	6.6	2104	19.2	213
Avg.	10	399	14.3	11	0.8	4.7	7.1	2146	19.4	214
EFII-CF-36	12	415	15.7	10	0.7	4.3	8.3	2201	19.0	243
	7	397	13.9	6	1.0	4.8	7.2	2140	17.8	242
Avg.	9	406	14.8	8	0.8	4.5	7.8	2171	18.4	242
EFII-CF-37	7	408	12.1	52	0.7	12.3	20.3	1762	21.3	147
	13	405	11.5	63	1.1	15.4	21.3	1824	20.0	150
Avg.	10	407	11.8	58	0.9	13.9	20.8	1793	20.6	148
EFII-CF-38	11	408	16.0	31	0.7	15.7	28.6	1948	20.1	193
	8	405	14.2	32	1.0	22.1	30.0	1849	19.3	182
Avg.	9	407	15.1	31	0.8	18.9	29.3	1899	19.7	188
EFII-CF-39	6	408	14.3	17	0.8	12.9	28.0	1555	18.9	174
	11	410	13.0	31	1.4	21.4	27.1	1595	20.4	203
Avg.	9	409	13.7	24	1.1	17.1	27.5	1575	19.6	189
EFII-CF-40	9	402	12.4	25	0.8	5.2	7.3	2627	20.1	100
	7	413	11.5	28	1.2	3.9	7.3	2574	18.6	101
Avg.	8	407	12.0	26	1.0	4.6	7.3	2601	19.4	100
EPII-CF-11	2	423	10.5	36	1.0	0.6	216	3008	3.2	99
	1	421	11.4	31	1.5	1.4	215	3946	2.3	102
Avg.	1	422	10.9	33	1.2	1.0	216	3477	2.7	101
EPII-CF-12	0	425	9.3	16	1.0	5.8	1029	3107	2.8	93
	1	424	14.6	20	1.6	8.5	906	3482	2.2	98
Avg.	1	424	11.9	18	1.3	7.2	968	3295	2.5	96
EPII-CF-13	1	424	10.7	29	1.0	4.9	195	3089	2.6	89
	1	422	11.3	29	1.5	4.9	166	3125	1.9	80
Avg.	1	423	11.0	29	1.2	4.9	181	3107	2.3	85
EPII-CF-14	0	422	9.6	23	1.0	3.5	146	3319	2.9	96
	1	423	12.6	19	1.5	3.6	140	3352	2.1	98
Avg.	1	423	11.1	21	1.3	3.5	143	3336	2.5	97
EPII-CF-15	n.d.	419	9.0	28	1.0	4.4	127	2644	2.6	89
	n.d.	416	11.8	27	1.5	3.7	127	2950	1.8	79
Avg.		418	10.4	27	1.2	4.0	127	2797	2.2	84
EPII-CF-16	n.d.	414	7.7	8	0.9	1.0	56	2769	2.6	80
	n.d.	416	11.4	11	1.3	1.9	49	2903	1.9	82
Avg.		415	9.6	10	1.1	1.5	52	2836	2.2	81
EPII-CF-17	n.d.	419	7.5	5	0.9	2.9	276	2726	2.4	99
	n.d.	413	11.7	13	1.3	3.5	268	2792	1.7	102
Avg.		416	9.6	9	1.1	3.2	272	2759	2.0	100
EPII-CF-18	n.d.	417	10.5	4	1.0	4.1	237	2803	2.5	68
	n.d.	416	10.6	8	1.5	2.2	228	2904	1.8	70
Avg.		417	10.6	6	1.2	3.1	232	2854	2.2	69
EPII-CF-19	n.d.	419	8.5	4	0.9	3.9	160	2679	2.8	83
	n.d.	412	10.7	10	1.4	3.5	164	2821	2.1	87
Avg.		416	9.6	7	1.2	3.7	162	2750	2.5	85
EPII-CF-20	n.d.	402	6.4	4	0.8	4.5	94	3154	3.0	82
	n.d.	418	10.9	7	1.3	2.3	126	3188	2.3	83
Avg.		410	8.6	5	1.0	3.4	110	3171	2.6	82

(つづき)

試料コード	V*	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	Rb*	Sr	Cd	Ba
	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dru	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-CF-31		8.3	24.8	0.14	5.91	15.8		0.68	0.032	0.92
		10.3	23.3	0.09	6.12	14.6		0.50	0.030	0.30
Avg.	0.14	9.3	24.1	0.11	6.01	15.2	9.0	0.59	0.031	0.61
EFII-CF-32		8.9	15.0	0.11	2.91	15.0		0.35	0.051	0.33
		10.7	15.7	0.20	2.95	15.2		0.18	0.040	0.11
Avg.	0.05	9.8	15.4	0.16	2.93	15.1	19.2	0.27	0.046	0.22
EFII-CF-33		6.2	15.5	0.11	4.63	12.6		1.11	0.050	2.65
		8.4	16.5	0.07	4.57	11.5		0.79	0.041	0.86
Avg.	0.11	7.3	16.0	0.09	4.60	12.1	15.3	0.95	0.046	1.76
EFII-CF-34		8.3	25.6	0.10	3.91	15.8		0.74	0.093	0.65
		10.2	26.2	0.08	3.72	16.2		0.52	0.087	0.25
Avg.	0.16	9.3	25.9	0.09	3.82	16.0	5.4	0.63	0.090	0.45
EFII-CF-35		7.7	16.3	0.05	5.13	16.0		0.41	0.077	1.22
		9.7	19.2	0.13	5.01	16.7		0.27	0.069	0.39
Avg.	0.08	8.7	17.8	0.09	5.07	16.3	20.6	0.34	0.073	0.81
EFII-CF-36		8.6	19.3	0.05	2.77	12.8		0.55	0.147	0.60
		10.1	19.2	0.02	2.65	12.6		0.33	0.128	0.17
Avg.	0.07	9.4	19.3	0.03	2.71	12.7	15.3	0.44	0.138	0.39
EFII-CF-37		8.0	18.4	0.06	3.40	13.9		0.25	0.052	0.35
		9.9	18.4	0.08	3.39	13.6		0.14	0.058	0.11
Avg.	0.10	8.9	18.4	0.07	3.39	13.8	115.6	0.20	0.055	0.23
EFII-CF-38		6.0	15.9	0.17	5.87	17.9		0.44	0.083	1.24
		8.4	15.6	0.16	5.50	18.2		0.25	0.073	0.40
Avg.	0.08	7.2	15.7	0.17	5.69	18.1	11.0	0.34	0.078	0.82
EFII-CF-39		9.1	19.3	0.02	4.02	11.5		0.73	0.054	0.66
		11.7	19.2	0.03	4.09	10.9		0.62	0.057	0.24
Avg.	0.12	10.4	19.2	0.03	4.05	11.2	34.9	0.67	0.056	0.45
EFII-CF-40		8.7	16.5	0.02	5.55	12.5		0.19	0.033	0.17
		10.2	16.5	0.05	5.07	11.6		0.05	0.022	0.05
Avg.	0.05	9.5	16.5	0.03	5.31	12.1	21.8	0.12	0.028	0.11
EPII-CF-11		34.1	9.9	0.13	4.52	23.7		0.24	0.021	0.59
		30.1	9.5	0.11	4.44	22.9		0.06	0.027	0.16
Avg.	n.d.	32.1	9.7	0.12	4.48	23.3	3.3	0.15	0.024	0.38
EPII-CF-12		41.3	19.7	0.31	4.27	26.0		0.17	0.026	0.75
		36.4	18.1	0.37	4.21	25.4		0.02	0.028	0.22
Avg.	n.d.	38.8	18.9	0.34	4.24	25.7	4.7	0.10	0.027	0.49
EPII-CF-13		36.9	11.6	0.25	2.32	22.1		0.23	0.008	0.54
		32.8	11.7	0.16	2.19	22.4		0.03	0.009	0.13
Avg.	n.d.	34.8	11.7	0.20	2.26	22.3	7.5	0.13	0.009	0.33
EPII-CF-14		23.4	10.6	0.13	2.42	24.8		0.18	0.023	0.40
		21.8	11.2	0.13	2.26	25.2		n.d.	0.028	0.11
Avg.	n.d.	22.6	10.9	0.13	2.34	25.0	9.4	0.18	0.026	0.25
EPII-CF-15		41.1	10.5	0.59	3.47	23.6		0.16	0.057	0.50
		35.9	9.6	0.52	3.55	23.1		n.d.	0.053	0.15
Avg.	n.d.	38.5	10.1	0.55	3.51	23.3	3.0	0.16	0.055	0.33
EPII-CF-16		30.5	7.4	n.d.	1.88	19.0		0.20	0.017	0.43
		28.3	7.1	n.d.	1.79	19.0		0.03	0.016	0.11
Avg.	n.d.	29.4	7.2		1.84	19.0	3.8	0.11	0.017	0.27
EPII-CF-17		35.3	9.8	0.19	3.68	22.4		0.12	0.106	0.32
		32.9	10.2	0.15	3.28	23.8		n.d.	0.098	0.09
Avg.	n.d.	34.1	10.0	0.17	3.48	23.1	8.4	0.12	0.102	0.21
EPII-CF-18		49.1	11.8	0.02	3.85	22.8		0.15	0.021	0.10
		42.8	10.9	0.07	3.88	23.6		n.d.	0.023	0.06
Avg.	n.d.	45.9	11.4	0.05	3.87	23.2	9.9	0.15	0.022	0.08
EPII-CF-19		25.6	7.3	0.10	2.42	19.2		0.10	0.016	0.09
		23.7	7.4	0.08	2.18	18.9		n.d.	0.026	0.02
Avg.	n.d.	24.6	7.4	0.09	2.30	19.0	5.6	0.10	0.021	0.05
EPII-CF-20		34.0	7.6	0.06	3.04	18.9		0.13	0.025	0.06
		31.2	7.7	0.07	2.80	18.6		n.d.	0.018	0.03
Avg.	n.d.	32.6	7.6	0.07	2.92	18.7	10.6	0.13	0.022	0.04

* 5 回繰り返し測定した平均値

表 2-3-12 平成 26 年度に採取した土壌試料中の元素濃度（追加分析）

検体No.	7 Li	9 Be	$\delta^{13}C$	$\delta^{15}N$	27 Al	45 Sc	47 Ti	51 V	52 Cr	55 Mn	59 Co	60 Ni
	mg/kg-dry	mg/kg-dry	permil	permil	g/kg-dry	mg/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	g/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-SD-21	10.1	n.d.	-18.5	7.7	63	15.9	4.3	126	13	1.00	10.7	4
	10.4	n.d.	-18.4	7.5	68	16.7	4.2	124	12	1.01	10.5	3
	Avg. 10.2		-18.5	7.6	65	16.3	4.3	125	13	1.00	10.6	3
EFII-SD-22	13.5	n.d.	-20.3	7.6	59	13.1	4.1	105	9	0.90	8.0	2
	15.4	n.d.	-20.4	7.1	58	13.7	4.4	107	10	0.98	8.7	2
	Avg. 14.5		-20.3	7.4	58	13.4	4.2	106	9	0.94	8.3	2
EFII-SD-23	21.0	n.d.	-21.6	7.3	70	16.0	3.4	119	16	0.97	12.2	8
	22.0	n.d.	-21.6	7.0	70	15.9	3.2	113	17	0.96	11.9	9
	Avg. 21.5		-21.6	7.2	70	16.0	3.3	116	17	0.97	12.0	8
EFII-SD-24	12.8	n.d.	-24.5	3.4	90	46.8	3.6	296	633	1.27	51.9	183
	12.6	n.d.	-24.1	1.0	87	45.4	3.5	290	634	1.29	53.3	186
	Avg. 12.7		-24.3	2.2	89	46.1	3.6	293	634	1.28	52.6	184
EFII-SD-25	26.7	n.d.	-20.1	8.1	64	13.8	5.4	137	36	1.09	14.5	19
	24.8	n.d.	-20.0	7.9	66	14.6	5.5	139	40	1.14	14.8	19
	Avg. 25.8		-20.0	8.0	65	14.2	5.5	138	38	1.12	14.6	19
EFII-SD-26	17.4	n.d.	-24.7	6.3	58	9.9	2.9	45	24	0.96	5.8	9
	16.6	n.d.	-24.5	5.8	57	10.2	2.8	42	25	0.97	6.0	9
	Avg. 17.0		-24.6	6.1	58	10.0	2.8	43	25	0.96	5.9	9
EFII-SD-27	15.7	n.d.	-27.4	2.2	70	11.9	3.9	87	29	0.73	9.0	11
	16.0	n.d.	-27.3	2.3	68	11.5	3.8	81	29	0.74	8.6	11
	Avg. 15.8		-27.4	2.3	69	11.7	3.9	84	29	0.74	8.8	11
EFII-SD-28	9.4	n.d.	-20.8	5.9	92	22.5	5.9	111	29	1.33	10.1	7
	8.1	n.d.	-20.7	6.1	88	22.0	5.9	110	24	1.31	10.1	7
	Avg. 8.7		-20.8	6.0	90	22.2	5.9	110	26	1.32	10.1	7
EFII-SD-29	38.7	n.d.	-22.7	5.6	62	10.9	5.5	121	62	0.90	14.5	29
	38.1	n.d.	-22.7	5.5	80	14.4	5.4	119	63	0.92	14.4	30
	Avg. 38.4		-22.7	5.6	71	12.7	5.5	120	63	0.91	14.5	29
EFII-SD-30	28.6	n.d.	-25.1	6.3	74	12.9	4.6	99	35	1.15	10.3	14
	27.5	n.d.	-25.0	5.9	68	11.8	4.5	93	36	1.12	9.9	14
	Avg. 28.0		-25.0	6.1	71	12.3	4.6	96	35	1.13	10.1	14
EPII-SD-1	7.4	1.1	-24.5	5.8	72	8.8	2.7	45	12	0.55	4.2	2
	6.8	0.9	-24.9	5.1	89	10.9	2.5	44	13	0.61	4.2	2
	Avg. 7.1	1.0	-24.7	5.5	81	9.8	2.6	44	12	0.58	4.2	2
EPII-SD-2	7.4	0.9	-23.9	3.2	90	12.1	3.0	45	23	0.45	3.8	4
	7.5	0.7	-24.1	2.7	88	11.8	2.7	42	20	0.44	3.8	4
	Avg. 7.4	0.8	-24.0	3.0	89	11.9	2.8	43	21	0.45	3.8	4
EPII-SD-3	9.0	1.0	-25.0	3.2	79	12.0	5.6	91	97	0.52	12.5	50
	8.6	0.6	-25.2	2.8	75	11.3	5.4	88	95	0.53	12.2	49
	Avg. 8.8	0.8	-25.1	3.0	77	11.6	5.5	89	96	0.52	12.4	50
EPII-SD-4	4.7	0.7	-28.1	1.4	69	15.5	4.5	122	47	0.75	12.4	20
	4.6	0.7	-28.2	0.9	68	15.1	4.5	122	46	0.75	12.5	20
	Avg. 4.6	0.7	-28.1	1.1	68	15.3	4.5	122	47	0.75	12.5	20
EPII-SD-5	5.7	0.3	-28.0	1.5	62	12.5	3.9	105	66	0.41	9.9	28
	5.5	0.0	-28.0	1.2	65	12.6	3.9	102	64	0.40	9.9	29
	Avg. 5.6	0.2	-28.0	1.3	63	12.6	3.9	103	65	0.41	9.9	28
EPII-SD-6	4.8	0.4	-26.3	1.6	71	14.0	3.3	71	48	0.64	7.9	16
	4.7	0.2	-26.3	1.6	69	13.3	3.3	70	48	0.64	7.8	17
	Avg. 4.7	0.3	-26.3	1.6	70	13.6	3.3	71	48	0.64	7.8	17
EPII-SD-7	3.4	0.9	-26.7	1.2	80	15.1	4.1	99	19	1.87	8.5	6
	3.3	N.D.	-26.5	0.6	77	15.5	4.0	97	19	1.90	8.5	7
	Avg. 3.3	0.9	-26.6	0.9	78	15.3	4.1	98	19	1.89	8.5	7
EPII-SD-8	5.6	0.7	-23.6	3.3	56	7.3	5.2	100	41	0.54	9.5	15
	5.4	0.4	-23.6	3.0	60	8.6	5.1	100	39	0.52	9.3	14
	Avg. 5.5	0.5	-23.6	3.1	58	7.9	5.1	100	40	0.53	9.4	14
EPII-SD-9	6.7	1.2	-27.4	3.4	117	22.7	6.9	174	106	0.79	16.5	32
	6.6	0.9	-27.5	3.2	76	16.4	6.7	166	84	0.52	15.4	32
	Avg. 6.7	1.0	-27.4	3.3	97	19.6	6.8	170	95	0.65	16.0	32
EPII-SD-10	6.0	0.5	-26.3	2.3	80	17.4	3.8	115	85	0.97	8.8	10
	5.9	0.9	-26.4	2.3	78	16.7	3.8	116	84	0.96	9.0	10
	Avg. 5.9	0.7	-26.4	2.3	79	17.1	3.8	116	85	0.97	8.9	10

(つづき)

検体No.	66 Zn	71 Ga	75 As	78 Se	85 Rb	88 Sr	89 Y	90 Zr	93 Nb	95 Mo	111 Cd	118 Sn
	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-SD-21	42	152	3.7	4.5	n.d.	53	17.9	103	4.7	0.1	1.6	0.7
	44	153	4.3	3.8	n.d.	55	18.4	105	4.7	0.1	1.2	0.6
Avg.	43	153	4.0	4.1		54	18.1	104	4.7	0.1	1.4	0.6
EFII-SD-22	40	141	3.2	1.8	n.d.	57	16.6	107	4.6	0.1	1.4	0.6
	55	162	4.0	3.3	n.d.	54	20.0	124	5.3	0.4	1.9	1.0
Avg.	48	151	3.6	2.6		55	18.3	116	5.0	0.2	1.7	0.8
EFII-SD-23	72	157	3.8	3.4	2.1	115	17.5	108	4.7	0.4	1.1	0.6
	62	152	3.7	2.6	4.0	121	17.3	104	4.5	0.3	1.2	0.6
Avg.	67	155	3.8	3.0	3.1	118	17.4	106	4.6	0.4	1.1	0.6
EFII-SD-24	52	131	n.d.	0.5	n.d.	1.1	16.1	15	1.1	n.d.	0.1	n.d.
	50	132	n.d.	1.0	n.d.	0.8	16.4	14	1.0	n.d.	0.3	n.d.
Avg.	51	131		0.7		0.9	16.2	14	1.1		0.2	
EFII-SD-25	69	189	10.0	8.3	n.d.	28	21.8	164	9.9	0.8	4.2	2.9
	71	192	10.7	9.8	n.d.	31	23.3	168	10.1	0.8	4.3	2.7
Avg.	70	191	10.4	9.1		29	22.6	166	10.0	0.8	4.2	2.8
EFII-SD-26	93	119	15.1	3.4	20.7	61	19.0	86	5.2	2.1	4.2	1.1
	86	120	15.5	3.2	23.9	64	19.8	84	5.0	2.1	4.3	1.0
Avg.	90	119	15.3	3.3	22.3	62	19.4	85	5.1	2.1	4.3	1.1
EFII-SD-27	45	141	4.8	n.d.	20.2	186	18.1	85	6.8	0.1	1.1	0.7
	59	138	3.8	n.d.	22.8	184	18.5	84	6.6	0.0	1.0	0.6
Avg.	52	140	4.3		21.5	185	18.3	85	6.7	0.1	1.0	0.6
EFII-SD-28	75	182	6.6	2.9	2.0	176	26.5	128	7.9	0.2	2.2	0.6
	73	181	6.1	3.7	0.8	177	26.3	114	7.4	0.1	2.3	0.6
Avg.	74	181	6.4	3.3	1.4	176	26.4	121	7.7	0.1	2.3	0.6
EFII-SD-29	69	201	15.5	5.3	19.5	13	11.3	141	12.0	0.9	2.1	2.1
	72	205	15.1	6.6	40.5	24	16.6	141	12.1	1.0	1.9	2.1
Avg.	70	203	15.3	5.9	30.0	18	14.0	141	12.1	1.0	2.0	2.1
EFII-SD-30	66	177	15.5	5.9	22.5	65	17.7	132	10.0	0.8	1.8	1.5
	62	181	15.0	3.9	18.3	58	17.4	133	9.7	0.9	2.4	1.6
Avg.	64	179	15.3	4.9	20.4	62	17.6	132	9.9	0.9	2.1	1.6
EPII-SD-1	46	183	3.4	1.2	24.0	83	13.0	127	8.3	n.d.	1.2	1.7
	45	183	3.8	1.4	43.0	114	19.6	122	8.1	0.1	0.7	1.7
Avg.	45	183	3.6	1.3	33.5	98	16.3	124	8.2	0.1	0.9	1.7
EPII-SD-2	51	166	4.2	2.0	58.6	123	21.2	115	7.3	0.2	1.3	1.7
	51	163	4.2	1.5	59.4	123	21.2	115	7.2	0.3	1.2	1.8
Avg.	51	164	4.2	1.7	59.0	123	21.2	115	7.2	0.2	1.3	1.8
EPII-SD-3	102	165	5.2	2.9	56.8	83	18.9	140	16.8	n.d.	2.8	5.0
	89	166	4.8	2.9	55.8	78	18.3	137	16.3	n.d.	2.5	3.0
Avg.	95	166	5.0	2.9	56.3	81	18.6	139	16.6		2.7	4.0
EPII-SD-4	71	157	5.1	2.3	5.0	151	22.3	138	10.6	0.1	1.9	1.5
	66	154	5.0	2.0	6.8	153	21.2	137	10.5	0.1	1.6	1.4
Avg.	69	155	5.0	2.1	5.9	152	21.8	137	10.5	0.1	1.8	1.4
EPII-SD-5	52	151	11.1	2.2	8.1	76	15.9	103	7.1	0.1	1.3	1.2
	53	154	11.1	2.2	13.5	76	16.4	97	7.0	0.1	1.0	1.2
Avg.	52	152	11.1	2.2	10.8	76	16.1	100	7.1	0.1	1.1	1.2
EPII-SD-6	85	142	10.3	8.3	16.1	51	24.3	109	6.4	2.1	4.4	1.4
	81	144	10.8	6.7	14.8	49	21.3	107	6.3	2.1	4.0	1.3
Avg.	83	143	10.6	7.5	15.4	50	22.8	108	6.3	2.1	4.2	1.4
EPII-SD-7	87	176	12.5	4.1	0.8	120	20.7	153	12.0	1.1	3.8	1.9
	79	175	12.6	4.7	1.9	120	21.1	152	12.0	1.1	3.4	1.9
Avg.	83	176	12.6	4.4	1.4	120	20.9	152	12.0	1.1	3.6	1.9
EPII-SD-8	88	185	8.5	5.5	9.8	23	10.2	137	11.3	0.3	2.3	2.1
	83	182	8.0	5.2	17.8	31	11.4	133	11.0	0.3	2.4	2.0
Avg.	86	183	8.3	5.3	13.8	27	10.8	135	11.1	0.3	2.4	2.1
EPII-SD-9	113	225	5.6	3.2	26.2	249	30.4	204	12.5	n.d.	3.9	3.3
	93	222	4.8	3.9	13.1	174	19.8	204	12.1	0.0	4.2	4.0
Avg.	103	224	5.2	3.5	19.6	211	25.1	204	12.3	0.0	4.0	3.7
EPII-SD-10	83	175	4.3	3.9	23.8	142	24.2	145	8.4	0.4	2.3	1.7
	81	177	4.5	4.2	19.3	139	23.9	146	8.4	0.4	2.1	1.7
Avg.	82	176	4.4	4.0	21.6	140	24.0	146	8.4	0.4	2.2	1.7

(つづき)

検体No.	121 Sb mg/kg-dry	133 Cs mg/kg-dry	137 Ba mg/kg-dry	139 La mg/kg-dry	140 Ce mg/kg-dry	141 Pr mg/kg-dry	146 Nd mg/kg-dry	147 Sm mg/kg-dry	153 Eu mg/kg-dry	157 Gd mg/kg-dry	159 Tb mg/kg-dry	163 Dy mg/kg-dry
EFII-SD-21	n.d.	n.d.	102	10.9	23	2.7	13.3	2.8	0.02	3.1	n.d.	3.1
	n.d.	n.d.	113	11.2	25	2.8	14.1	2.9	0.03	3.3	n.d.	3.2
Avg.			107	11.0	24	2.7	13.7	2.8	0.02	3.2		3.2
EFII-SD-22	n.d.	0.4	116	10.4	19	2.4	12.1	2.4	n.d.	2.9	n.d.	2.7
	n.d.	0.6	124	13.2	20	3.4	15.6	3.2	0.05	3.6	n.d.	3.4
Avg.		0.5	120	11.8	20	2.9	13.8	2.8	0.05	3.3		3.1
EFII-SD-23	n.d.	1.2	206	12.0	28	2.8	13.5	2.7	n.d.	3.0	n.d.	2.9
	n.d.	1.3	213	12.1	28	2.7	13.4	2.6	n.d.	3.0	n.d.	2.9
Avg.		1.3	210	12.0	28	2.8	13.5	2.7		3.0		2.9
EFII-SD-24	n.d.	n.d.	7	1.0	4	0.1	3.6	1.0	n.d.	1.8	n.d.	2.5
	n.d.	n.d.	7	1.0	4	0.1	3.7	1.0	n.d.	1.8	n.d.	2.6
Avg.			7	1.0	4	0.1	3.6	1.0		1.8		2.5
EFII-SD-25	0.3	1.7	168	19.1	33	5.0	22.6	4.2	0.31	4.6	0.04	3.9
	0.3	1.8	184	19.7	34	5.3	24.3	4.7	0.39	4.9	0.09	4.3
Avg.	0.3	1.8	176	19.4	34	5.2	23.5	4.4	0.35	4.8	0.07	4.1
EFII-SD-26	0.3	1.3	325	12.0	29	2.7	13.3	2.7	n.d.	3.3	n.d.	3.1
	0.4	1.4	351	11.8	29	2.8	13.8	2.8	n.d.	3.3	n.d.	3.3
Avg.	0.4	1.4	338	11.9	29	2.7	13.5	2.8		3.3		3.2
EFII-SD-27	n.d.	1.9	450	12.8	31	3.0	14.7	2.9	0.25	3.4	n.d.	3.0
	n.d.	1.9	456	13.5	32	3.0	14.6	3.0	0.21	3.4	n.d.	3.1
Avg.		1.9	453	13.1	31	3.0	14.7	3.0	0.23	3.4		3.1
EFII-SD-28	n.d.	n.d.	159	12.7	28	3.0	15.3	3.5	0.32	4.3	0.09	4.3
	n.d.	n.d.	161	12.4	27	3.1	15.5	3.5	0.30	4.2	0.06	4.4
Avg.			160	12.5	28	3.0	15.4	3.5	0.31	4.2	0.08	4.4
EFII-SD-29	0.7	4.2	212	11.4	29	2.6	12.3	2.2	n.d.	2.4	n.d.	2.2
	0.7	5.0	292	16.0	42	4.0	17.6	3.4	0.04	3.6	n.d.	3.3
Avg.	0.7	4.6	252	13.7	36	3.3	14.9	2.8	0.04	3.0		2.7
EFII-SD-30	0.7	4.2	358	14.1	31	3.2	15.1	3.1	0.04	3.3	n.d.	3.3
	0.7	4.2	340	13.7	31	3.3	15.3	3.0	n.d.	3.4	n.d.	3.3
Avg.	0.7	4.2	349	13.9	31	3.2	15.2	3.0	0.04	3.3		3.3
EPII-SD-1	0.4	5.1	305	10.9	25	2.5	10.8	2.4	0.30	2.6	0.13	2.4
	0.3	5.9	402	19.3	41	4.4	17.6	3.8	0.53	4.1	0.31	3.6
Avg.	0.4	5.5	353	15.1	33	3.5	14.2	3.1	0.42	3.4	0.22	3.0
EPII-SD-2	0.3	4.5	387	21.0	43	4.6	18.4	3.9	0.59	4.4	0.35	3.7
	0.3	4.7	390	20.2	42	4.5	17.9	3.9	0.60	4.3	0.35	3.7
Avg.	0.3	4.6	389	20.6	43	4.6	18.2	3.9	0.59	4.3	0.35	3.7
EPII-SD-3	0.7	3.9	364	25.5	58	5.7	22.2	4.5	0.73	4.8	0.35	3.5
	0.7	3.9	369	23.2	57	5.5	20.8	4.4	0.66	4.4	0.32	3.3
Avg.	0.7	3.9	366	24.3	58	5.6	21.5	4.4	0.70	4.6	0.34	3.4
EPII-SD-4	0.4	2.1	374	17.6	42	4.5	19.2	4.4	0.73	4.7	0.42	4.1
	0.3	2.3	375	15.3	38	4.1	17.9	4.1	0.71	4.4	0.39	3.9
Avg.	0.4	2.2	375	16.4	40	4.3	18.6	4.3	0.72	4.5	0.40	4.0
EPII-SD-5	0.9	2.3	266	10.4	25	2.8	12.5	3.0	0.46	3.2	0.22	2.9
	0.9	2.7	311	11.5	26	3.2	13.8	3.3	0.48	3.3	0.24	3.2
Avg.	0.9	2.5	288	10.9	26	3.0	13.2	3.2	0.47	3.3	0.23	3.0
EPII-SD-6	0.7	1.8	319	13.8	34	3.5	15.8	3.9	0.60	4.3	0.40	4.0
	0.7	1.8	309	11.9	33	3.1	13.9	3.4	0.46	3.9	0.33	3.7
Avg.	0.7	1.8	314	12.9	34	3.3	14.8	3.7	0.53	4.1	0.36	3.9
EPII-SD-7	0.7	0.6	250	12.2	32	3.2	14.5	3.7	0.56	4.2	0.37	3.9
	0.8	0.7	269	12.3	33	3.3	14.9	3.7	0.57	4.2	0.40	4.0
Avg.	0.8	0.7	259	12.2	33	3.3	14.7	3.7	0.57	4.2	0.38	3.9
EPII-SD-8	0.9	1.8	144	8.5	21	1.9	8.5	1.9	0.04	2.1	0.02	1.8
	0.9	2.3	191	10.7	24	2.4	10.3	2.5	0.12	2.3	0.07	2.0
Avg.	0.9	2.1	168	9.6	22	2.1	9.4	2.2	0.08	2.2	0.05	1.9
EPII-SD-9	0.6	4.4	495	26.3	59	7.2	30.7	6.9	1.55	7.0	0.75	5.7
	0.6	3.1	383	17.9	45	5.3	23.1	5.2	1.02	5.1	0.45	4.1
Avg.	0.6	3.7	439	22.1	52	6.3	26.9	6.0	1.28	6.1	0.60	4.9
EPII-SD-10	0.3	2.7	328	17.5	39	4.6	19.4	4.4	0.77	4.8	0.47	4.2
	0.3	2.6	316	16.8	39	4.5	19.3	4.4	0.75	4.6	0.45	4.2
Avg.	0.3	2.6	322	17.2	39	4.5	19.3	4.4	0.76	4.7	0.46	4.2

(つづき)

検体No.	165 Ho	166 Er	169 Tm	172 Yb	175 Lu	178 Hf	182 W	205 Tl	208 Pb	232 Th	238 U
	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-SD-21	0.16	1.9	n.d.	1.8	n.d.	2.8	1.4	1.8	13	42	13
	0.15	2.0	n.d.	1.8	n.d.	2.9	1.3	1.9	13	43	14
	Avg.	0.15	1.9	1.8	2.9	1.4	1.8	13	42	13	
EFII-SD-22	0.08	1.7	n.d.	1.7	n.d.	3.0	1.6	1.7	12	42	13
	0.24	2.2	n.d.	2.1	n.d.	3.5	1.6	2.3	15	55	14
	Avg.	0.16	2.0	1.9	3.3	1.6	2.0	13	49	14	
EFII-SD-23	0.10	1.8	n.d.	1.8	n.d.	3.0	1.6	2.3	13	52	16
	0.08	1.8	n.d.	1.8	n.d.	3.0	1.5	2.4	13	52	16
	Avg.	0.09	1.8	1.8	3.0	1.6	2.4	13	52	16	
EFII-SD-24	0.09	1.8	n.d.	1.7	n.d.	0.6	0.6	n.d.	n.d.	2	2
	0.09	1.8	n.d.	1.8	n.d.	0.6	0.5	n.d.	n.d.	2	2
	Avg.	0.09	1.8	1.7	0.6	0.5	2	2			
EFII-SD-25	0.29	2.4	n.d.	2.2	n.d.	4.5	2.5	5.0	25	67	25
	0.37	2.6	n.d.	2.3	n.d.	4.7	2.4	5.2	26	73	27
	Avg.	0.33	2.5	2.3	4.6	2.4	5.1	26	70	26	
EFII-SD-26	0.15	1.9	n.d.	1.9	n.d.	2.5	1.6	2.7	34	37	23
	0.20	2.0	n.d.	2.0	n.d.	2.6	1.6	2.8	35	38	23
	Avg.	0.18	2.0	2.0	2.5	1.6	2.7	35	37	23	
EFII-SD-27	0.13	1.9	n.d.	1.9	n.d.	2.6	1.7	3.2	16	54	21
	0.13	1.9	n.d.	1.9	n.d.	2.5	1.6	3.0	16	56	20
	Avg.	0.13	1.9	1.9	2.6	1.6	3.1	16	55	21	
EFII-SD-28	0.41	2.7	n.d.	2.5	n.d.	3.2	1.4	0.4	12	31	14
	0.41	2.7	n.d.	2.5	n.d.	3.2	1.3	0.3	12	31	13
	Avg.	0.41	2.7	2.5	3.2	1.3	0.4	12	31	14	
EFII-SD-29	n.d.	1.4	n.d.	1.4	n.d.	4.0	3.3	4.7	29	55	27
	0.16	2.0	n.d.	1.9	n.d.	4.1	3.4	5.2	30	81	31
	Avg.	0.16	1.7	1.7	4.1	3.3	5.0	29	68	29	
EFII-SD-30	0.16	2.0	n.d.	1.9	n.d.	3.7	3.1	3.2	26	59	20
	0.16	2.0	n.d.	1.8	n.d.	4.0	3.2	3.5	26	59	20
	Avg.	0.16	2.0	1.8	3.8	3.1	3.4	26	59	20	
EPII-SD-1	0.26	1.6	n.d.	1.8	n.d.	3.8	2.8	5.0	21	63	19
	0.49	2.4	0.07	2.5	0.08	4.0	2.6	5.4	22	90	21
	Avg.	0.38	2.0	0.07	2.1	0.08	3.9	2.7	5.2	21	76
EPII-SD-2	0.51	2.4	0.06	2.5	0.06	3.8	2.6	3.8	21	88	25
	0.54	2.4	0.09	2.6	0.08	3.7	2.5	3.9	21	86	25
	Avg.	0.52	2.4	0.07	2.5	0.07	3.7	2.5	3.9	21	87
EPII-SD-3	0.41	2.1	0.01	2.0	n.d.	3.9	3.9	4.0	29	82	32
	0.39	2.0	0.00	2.0	n.d.	4.1	3.8	4.2	30	74	32
	Avg.	0.40	2.0	0.01	2.0	4.0	3.8	4.1	30	78	32
EPII-SD-4	0.59	2.6	0.10	2.6	0.09	3.9	2.5	4.2	16	76	22
	0.54	2.5	0.08	2.5	0.07	3.9	2.4	4.6	15	67	21
	Avg.	0.56	2.6	0.09	2.6	0.08	3.9	2.4	4.4	15	72
EPII-SD-5	0.35	1.9	0.00	2.0	n.d.	3.0	2.7	2.8	18	42	20
	0.41	2.0	0.01	2.0	0.00	3.0	2.7	2.9	18	44	21
	Avg.	0.38	1.9	0.00	2.0	0.00	3.0	2.7	2.8	18	43
EPII-SD-6	0.60	2.7	0.10	2.7	0.10	3.4	2.2	3.2	23	42	37
	0.52	2.5	0.09	2.5	0.09	3.3	2.1	3.2	22	37	37
	Avg.	0.56	2.6	0.10	2.6	0.09	3.3	2.2	3.2	22	40
EPII-SD-7	0.53	2.4	0.06	2.3	0.06	4.0	2.5	1.6	21	36	19
	0.58	2.6	0.08	2.5	0.06	4.2	2.4	2.0	22	37	19
	Avg.	0.55	2.5	0.07	2.4	0.06	4.1	2.5	1.8	22	37
EPII-SD-8	0.11	1.3	n.d.	1.4	n.d.	4.1	3.5	3.7	35	24	21
	0.17	1.3	n.d.	1.4	n.d.	4.0	3.4	4.0	35	30	21
	Avg.	0.14	1.3	1.4	4.0	3.5	3.9	35	27	21	
EPII-SD-9	0.89	3.5	0.19	3.3	0.19	5.6	2.9	4.6	23	98	31
	0.57	2.5	0.06	2.3	0.04	5.9	2.9	4.4	23	76	31
	Avg.	0.73	3.0	0.13	2.8	0.12	5.7	2.9	4.5	23	87
EPII-SD-10	0.62	2.7	0.12	2.7	0.11	4.3	3.1	3.6	18	63	21
	0.61	2.7	0.10	2.7	0.10	4.3	3.0	3.6	18	60	21
	Avg.	0.62	2.7	0.11	2.7	0.11	4.3	3.0	3.6	18	62

表 2-3-13 平成 26 年度に採取した農作物試料中の元素濃度（追加分析）

	7 Li	9 Be	$\delta^{13}\text{C}$	$\delta^{15}\text{N}$	27 Al	45 Sc	47 Ti	51 V	52 Cr	55 Mn	59 Co
試料コード	mg/kg-dry	mg/kg-dry	permil	permil	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-CF-21	0.040	n.d.	-28.1	3.9	1.2	0.009	0.8	0.05	0.04	5.5	0.04
EFII-CF-22	0.018	n.d.	-28.0	2.0	1.1	0.022	1.6	0.28	0.03	6.1	0.05
EFII-CF-23	0.034	n.d.	-28.4	0.0	2.5	0.008	1.0	0.06	n.d.	7.3	0.09
EFII-CF-24	n.d.	n.d.	-28.1	2.2	0.9	0.005	0.9	n.d.	0.03	6.3	0.19
EFII-CF-25	n.d.	n.d.	-26.8	2.4	5.7	0.017	0.5	n.d.	0.04	4.8	0.05
EFII-CF-26	n.d.	n.d.	-26.8	-2.6	7.7	0.023	1.3	n.d.	0.05	5.5	0.03
EFII-CF-27	n.d.	n.d.	-28.6	-1.1	10.4	0.027	0.9	n.d.	0.07	5.9	0.07
EFII-CF-28	n.d.	n.d.	-28.0	-3.8	1.1	0.002	0.8	n.d.	n.d.	5.0	0.02
EFII-CF-29	n.d.	n.d.	-26.9	-3.5	1.8	0.009	0.9	0.04	n.d.	8.0	0.08
EFII-CF-30	0.011	n.d.	-27.5	1.5	1.1	0.007	0.8	0.03	0.02	7.4	0.21
EPII-CF-1	n.d.	n.d.	-27.7	6.0	5.8	0.016	2.5	0.004	0.09	32	0.02
EPII-CF-2	0.020	0.007	-27.8	10.3	2.3	0.016	1.6	0.009	0.28	22	0.01
EPII-CF-3	0.007	n.d.	-27.9	6.1	9.8	0.012	2.2	0.005	0.08	25	0.01
EPII-CF-4	0.018	0.005	-28.3	2.7	0.6	0.012	1.6	0.005	0.07	29	0.01
EPII-CF-5	n.d.	n.d.	-28.5	3.0	2.6	0.007	2.0	0.004	0.08	33	0.01
EPII-CF-6	0.011	n.d.	-28.2	3.0	1.3	0.008	1.4	0.003	0.05	37	0.01
EPII-CF-7	n.d.	n.d.	-27.7	2.9	0.8	0.009	1.4	0.003	0.05	70	0.02
EPII-CF-8	0.013	n.d.	-27.6	3.6	4.6	0.012	1.7	0.006	0.06	28	0.01
EPII-CF-9	n.d.	n.d.	-27.7	4.2	1.2	n.d.	1.4	n.d.	0.02	27	0.01
EPII-CF-10	n.d.	n.d.	-28.3	2.4	6.6	0.013	2.0	0.008	0.17	24	0.02
	71 Ga	75 As	78 Se	85 Rb	88 Sr	89 Y	90 Zr	93 Nb	95 Mo	118 Sn	121 Sb
試料コード	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-CF-21	0.005	0.003	0.003	11	0.12	0.007	0.019	0.031	0.27	0.019	0.009
EFII-CF-22	0.042	n.d.	0.011	15	0.12	0.018	0.034	0.016	0.24	0.010	0.006
EFII-CF-23	0.008	0.004	0.009	20	0.24	0.007	0.013	0.020	0.19	0.018	0.012
EFII-CF-24	n.d.	n.d.	0.011	11	0.44	0.030	n.d.	n.d.	0.02	n.d.	n.d.
EFII-CF-25	n.d.	0.023	0.009	18	0.43	n.d.	n.d.	0.010	0.74	n.d.	n.d.
EFII-CF-26	n.d.	0.036	0.012	15	0.68	n.d.	n.d.	n.d.	0.53	n.d.	n.d.
EFII-CF-27	n.d.	0.049	0.008	33	1.15	n.d.	n.d.	n.d.	0.42	n.d.	n.d.
EFII-CF-28	n.d.	n.d.	0.010	19	0.50	n.d.	n.d.	n.d.	0.34	n.d.	0.016
EFII-CF-29	0.007	0.002	0.013	10	0.86	0.009	0.008	0.010	0.05	n.d.	n.d.
EFII-CF-30	0.007	0.003	0.008	9	0.53	0.004	0.007	n.d.	0.26	n.d.	n.d.
EPII-CF-1	n.d.	0.115	0.015	7.9	0.43	0.003	0.016	0.012	1.20	0.019	n.d.
EPII-CF-2	n.d.	0.070	0.021	4.7	0.19	0.007	0.016	0.033	1.03	0.017	0.018
EPII-CF-3	0.003	0.074	0.041	3.4	0.19	0.003	0.021	0.007	1.05	0.028	n.d.
EPII-CF-4	n.d.	0.062	0.010	7.0	0.14	0.003	0.015	0.024	0.53	0.013	0.005
EPII-CF-5	n.d.	0.084	0.017	3.6	0.11	0.002	0.009	0.005	0.64	0.013	n.d.
EPII-CF-6	n.d.	0.132	0.044	4.6	0.05	n.d.	0.005	0.016	1.41	0.013	0.002
EPII-CF-7	n.d.	0.040	0.053	6.3	0.18	n.d.	0.004	0.002	0.40	0.010	n.d.
EPII-CF-8	0.002	0.150	0.030	3.3	0.09	0.004	0.013	0.016	0.69	0.019	0.003
EPII-CF-9	n.d.	0.033	0.010	8.3	0.27	n.d.	0.004	n.d.	0.69	n.d.	n.d.
EPII-CF-10	0.002	0.032	0.009	17.0	0.05	0.009	0.026	0.019	0.70	0.022	0.003

(つづき)

	133 Cs	137 Ba	139 La	140 Ce	141 Pr	146 Nd	147 Sm	153 Eu	157 Gd	159 Tb	163 Dy
試料コード	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-CF-21	0.097	0.38	0.004	0.004	0.003	0.005	0.008	0.009	0.009	0.012	0.011
EFII-CF-22	0.096	0.22	0.004	0.004	0.002	0.002	0.002	0.002	n.d.	0.001	n.d.
EFII-CF-23	0.047	0.51	0.004	0.003	0.002	0.004	0.051	0.051	0.041	0.033	0.031
EFII-CF-24	0.005	0.82	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-25	0.069	0.34	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-26	0.008	0.22	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-27	0.043	1.21	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-28	0.065	0.49	0.002	0.003	0.003	0.003	0.004	0.003	0.001	0.002	n.d.
EFII-CF-29	0.013	3.51	0.007	0.008	0.001	0.005	0.001	0.001	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-30	0.024	0.90	n.d.	n.d.	0.002	0.040	0.049	0.036	0.028	0.022	0.019
EPII-CF-1	0.016	1.35	0.002	0.003	0.002	0.003	0.002	0.001	0.002	0.001	0.001
EPII-CF-2	0.068	1.35	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
EPII-CF-3	0.002	0.71	0.004	0.008	0.002	0.005	0.003	0.002	0.002	0.002	0.002
EPII-CF-4	0.008	0.17	0.002	0.002	0.004	0.004	0.004	0.004	0.003	0.003	0.003
EPII-CF-5	0.003	0.34	0.001	0.002	0.003	0.003	0.002	0.002	0.003	0.002	0.002
EPII-CF-6	0.006	0.47	n.d.	0.000	0.001	0.002	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
EPII-CF-7	0.004	0.74	n.d.	n.d.	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
EPII-CF-8	0.003	0.99	0.003	0.004	0.004	0.005	0.004	0.004	0.004	0.004	0.004
EPII-CF-9	0.003	0.57	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
EPII-CF-10	0.082	0.22	0.003	0.004	0.003	0.004	0.003	0.003	0.002	0.002	0.002
	165 Ho	166 Er	169 Tm	172 Yb	175 Lu	178 Hf	182 W	205 Tl	208 Pb	232 Th	238 U
試料コード	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry	mg/kg-dry
EFII-CF-21	0.012	0.012	0.012	0.012	0.012	0.019	0.39	0.094	0.008	0.0016	0.0004
EFII-CF-22	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.12	0.036	0.014	n.d.	n.d.
EFII-CF-23	0.033	0.031	0.027	0.023	0.019	0.019	0.31	0.094	0.010	0.0014	0.0007
EFII-CF-24	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.10	0.003	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-25	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.23	0.027	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-26	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.006	0.10	0.005	0.003	n.d.	n.d.
EFII-CF-27	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.19	0.011	n.d.	n.d.	n.d.
EFII-CF-28	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.07	0.036	0.005	n.d.	n.d.
EFII-CF-29	n.d.	n.d.	0.004	0.009	0.012	0.018	0.17	0.013	0.013	0.0011	0.0005
EFII-CF-30	0.018	0.017	0.017	0.015	0.013	0.013	0.07	0.008	n.d.	0.0007	0.0003
EPII-CF-1	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.002	n.d.	n.d.	0.012	0.0010	0.0006
EPII-CF-2	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.028	0.0018	0.0011
EPII-CF-3	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	n.d.	n.d.	0.028	0.0017	0.0006
EPII-CF-4	0.004	0.003	0.003	0.004	0.003	0.008	n.d.	n.d.	0.010	0.0009	0.0005
EPII-CF-5	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.003	n.d.	n.d.	0.008	0.0007	0.0005
EPII-CF-6	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.002	n.d.	n.d.	0.021	0.0007	n.d.
EPII-CF-7	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.002	n.d.	n.d.	0.014	0.0005	0.0005
EPII-CF-8	0.004	0.003	0.003	0.004	0.004	0.005	n.d.	n.d.	0.020	0.0010	0.0007
EPII-CF-9	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	0.006	0.0004	n.d.
EPII-CF-10	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.006	n.d.	n.d.	0.011	0.0010	0.0004

表 2-3-14 平成 26 年度に採取した農作物試料の移行係数（乾重ベース）

試料コード	Li	Na	Mg	Al	K	Ca	Sc	Ti	Cr	Mn	Co
EFII-CF-21	3.9E-3	1.2E-2	1.3E-1	1.9E-5	3.2E+0	7.3E-3	4.8E-4	1.8E-4	2.8E-3	7.5E-3	2.9E-3
EFII-CF-22	1.3E-3	1.0E-2	1.5E-1	1.8E-5	2.4E+0	7.0E-3	1.2E-3	3.7E-4	2.1E-3	7.3E-3	4.1E-3
EFII-CF-23	1.6E-3	6.1E-3	9.3E-2	3.6E-5	1.5E+0	4.9E-3	5.3E-4	3.0E-4	-	9.0E-3	6.3E-3
EFII-CF-24	-	8.4E-3	2.3E-2	1.0E-5	1.1E+1	5.1E-3	8.9E-5	2.6E-4	4.3E-5	5.8E-3	3.5E-3
EFII-CF-25	-	2.3E-2	2.5E-1	8.7E-5	2.1E+0	1.8E-2	1.0E-3	9.7E-5	9.4E-4	5.8E-3	2.9E-3
EFII-CF-26	-	1.2E-2	1.6E-1	1.3E-4	1.7E+0	3.8E-2	2.3E-3	4.5E-4	1.8E-3	7.3E-3	3.8E-3
EFII-CF-27	-	7.7E-3	1.2E-1	1.5E-4	1.1E+0	1.0E-2	2.0E-3	2.3E-4	2.0E-3	1.0E-2	5.9E-3
EFII-CF-28	-	8.6E-3	5.7E-2	1.2E-5	3.2E+0	7.1E-3	9.3E-5	1.3E-4	-	5.0E-3	1.5E-3
EFII-CF-29	-	2.3E-2	2.0E-1	2.6E-5	1.6E+0	8.2E-2	7.2E-4	1.7E-4	-	1.0E-2	3.9E-3
EFII-CF-30	3.8E-4	1.1E-2	1.7E-1	1.5E-5	1.4E+0	1.9E-2	5.4E-4	1.8E-4	4.2E-4	7.6E-3	1.6E-2
EPII-CF-1	-	5.7E-3	4.2E-1	7.4E-5	2.4E-1	9.5E-3	1.7E-3	9.4E-4	5.4E-3	5.7E-2	3.7E-3
EPII-CF-2	2.6E-3	5.8E-3	2.7E-1	3.0E-5	2.0E-1	1.1E-2	1.3E-3	5.8E-4	1.0E-2	5.1E-2	2.1E-3
EPII-CF-3	7.8E-4	7.6E-3	1.2E-1	1.3E-4	1.4E-1	2.4E-2	9.5E-4	4.0E-4	6.2E-4	4.7E-2	5.6E-4
EPII-CF-4	3.9E-3	5.8E-3	1.7E-1	7.2E-6	1.9E-1	6.0E-3	7.7E-4	3.5E-4	1.3E-3	3.9E-2	6.8E-4
EPII-CF-5	-	5.5E-3	2.7E-1	3.3E-5	2.2E-1	1.4E-2	5.2E-4	5.1E-4	1.0E-3	8.1E-2	7.5E-4
EPII-CF-6	2.3E-3	9.4E-3	2.1E-1	1.9E-5	2.4E-1	2.6E-2	5.6E-4	4.3E-4	8.0E-4	5.8E-2	6.0E-4
EPII-CF-7	-	5.5E-3	2.5E-1	9.4E-6	4.7E-1	7.5E-3	5.5E-4	3.3E-4	2.1E-3	3.7E-2	1.3E-3
EPII-CF-8	2.3E-3	8.1E-3	2.4E-1	5.2E-5	1.5E-1	3.1E-2	1.5E-3	3.2E-4	1.2E-3	4.9E-2	5.0E-4
EPII-CF-9	-	6.5E-3	1.5E-1	1.1E-5	2.7E-1	7.4E-3	-	2.0E-4	1.9E-4	4.6E-2	3.6E-4
EPII-CF-10	-	4.6E-3	1.7E-1	7.6E-5	1.8E-1	5.6E-3	6.9E-4	5.3E-4	1.6E-3	2.5E-2	1.1E-3
試料コード	Ni	Cu	Zn	As	Se	Rb	Sr	Zr	Nb	Mo	Cd
EFII-CF-21	1.8E-2	2.0E-1	1.5E-1	7.3E-4	4.7E-3	1.1E+0	2.2E-3	1.9E-4	6.7E-3	2.5E-1	4.4E-1
EFII-CF-22	7.4E-3	8.0E-2	1.2E-1	-	2.6E-2	1.1E+0	2.2E-3	3.0E-4	3.3E-3	2.1E-1	8.7E-2
EFII-CF-23	4.5E-2	1.5E-1	1.8E-1	1.2E-3	1.7E-2	6.5E+0	2.0E-3	1.3E-4	4.3E-3	5.3E-1	6.1E-1
EFII-CF-24	7.6E-3	4.3E-2	1.1E-1	-	4.8E-2	4.0E+0	4.8E-1	-	-	9.4E-2	8.0E-1
EFII-CF-25	1.2E-3	6.7E-2	1.3E-1	2.2E-3	8.4E-3	1.4E+0	1.5E-2	-	1.0E-3	4.8E-1	2.2E-1
EFII-CF-26	1.8E-2	1.6E-1	1.4E-1	2.4E-3	2.4E-2	6.8E-1	1.1E-2	-	-	2.5E-1	3.4E-1
EFII-CF-27	2.5E-2	3.2E-1	1.5E-1	1.1E-2	5.4E-2	8.3E-1	6.2E-3	-	-	4.7E-1	1.2E+0
EFII-CF-28	1.3E-2	1.3E-1	1.3E-1	-	1.9E-2	1.0E+0	2.8E-3	-	-	3.2E-1	4.8E-1
EFII-CF-29	4.3E-3	2.4E-1	1.3E-1	1.0E-4	1.7E-2	3.2E-1	4.7E-2	5.7E-5	8.5E-4	4.8E-2	1.4E+0
EFII-CF-30	2.4E-2	1.5E-1	1.2E-1	1.7E-4	1.2E-2	4.5E-1	8.5E-3	5.7E-5	-	3.0E-1	4.4E-1
EPII-CF-1	1.2E-2	2.6E-1	4.2E-1	3.2E-2	9.2E-2	2.3E-1	4.4E-3	1.3E-4	1.5E-3	8.0E+0	9.6E-2
EPII-CF-2	3.5E-2	2.1E-1	3.7E-1	1.7E-2	1.1E-1	7.9E-2	1.5E-3	1.4E-4	4.5E-3	4.6E+0	4.4E-1
EPII-CF-3	1.0E-2	1.2E-1	1.9E-1	1.5E-2	1.2E-1	5.3E-2	2.3E-3	1.5E-4	4.2E-4	1.7E+0	3.6E-1
EPII-CF-4	6.3E-3	3.9E-2	2.0E-1	1.2E-2	4.5E-2	1.2E+0	9.0E-4	1.1E-4	2.3E-3	4.3E+0	8.8E-2
EPII-CF-5	7.4E-3	1.3E-1	2.7E-1	7.6E-3	5.3E-2	1.9E-1	1.4E-3	9.0E-5	7.4E-4	6.6E-1	2.7E-1
EPII-CF-6	1.8E-2	1.3E-1	2.0E-1	1.2E-2	6.1E-2	1.6E-1	1.1E-3	4.7E-5	2.6E-3	5.1E-1	2.9E-1
EPII-CF-7	2.0E-2	1.8E-1	1.7E-1	3.2E-3	1.5E-1	5.8E-1	1.5E-3	2.6E-5	1.4E-4	2.2E-1	2.4E-2
EPII-CF-8	4.0E-3	7.8E-2	1.5E-1	1.8E-2	6.2E-2	2.4E-1	3.2E-3	9.4E-5	1.4E-3	2.4E+0	1.7E-2
EPII-CF-9	3.4E-3	6.7E-2	1.7E-1	6.4E-3	4.2E-2	2.2E-1	1.3E-3	2.1E-5	-	7.8E-1	1.2E-1
EPII-CF-10	6.1E-3	2.7E-2	2.0E-1	7.3E-3	2.5E-2	4.9E-1	3.4E-4	1.8E-4	2.2E-3	5.3E-1	1.1E-2

(つづき)

試料コード	Cs	Ba	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy
EFII-CF-21	5.6E-2	3.5E-3	3.0E-4	1.5E-4	7.2E-4	3.5E-4	2.2E-3	9.9E-3	2.5E-3	1.9E-2	2.9E-3
EFII-CF-22	3.9E-2	1.7E-3	3.0E-4	1.5E-4	6.4E-4	1.4E-4	5.6E-4	2.7E-3	-	2.4E-3	-
EFII-CF-23	3.7E-2	2.8E-3	3.3E-4	1.1E-4	8.5E-4	2.6E-4	1.9E-2	-	1.4E-2	-	1.1E-2
EFII-CF-24	5.7E-2	3.3E-2	-	-	-	-	-	-	-	-	-
EFII-CF-25	2.1E-2	2.2E-3	-	-	-	-	-	-	-	-	-
EFII-CF-26	6.0E-3	7.9E-4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
EFII-CF-27	1.2E-2	3.3E-3	-	-	-	-	-	-	-	-	-
EFII-CF-28	5.1E-2	3.1E-3	1.6E-4	7.9E-5	6.5E-4	1.9E-4	9.1E-4	2.9E-3	2.7E-4	2.2E-3	-
EFII-CF-29	2.8E-3	1.6E-2	5.4E-4	2.2E-4	2.2E-4	3.5E-4	2.9E-4	2.3E-2	-	-	-
EFII-CF-30	5.7E-3	2.9E-3	-	-	7.5E-4	2.6E-3	1.6E-2	9.7E-1	8.5E-3	-	5.9E-3
EPII-CF-1	2.9E-3	4.6E-3	1.2E-4	8.6E-5	5.7E-4	2.0E-4	5.1E-4	3.3E-3	5.2E-4	5.6E-3	3.8E-4
EPII-CF-2	1.5E-2	4.0E-3	-	-	-	-	-	-	-	-	-
EPII-CF-3	4.6E-4	2.4E-3	1.5E-4	1.2E-4	4.2E-4	2.3E-4	6.0E-4	1.8E-3	5.3E-4	2.9E-3	5.8E-4
EPII-CF-4	3.7E-3	6.5E-4	1.3E-4	5.5E-5	8.9E-4	2.1E-4	8.9E-4	5.1E-3	7.6E-4	8.4E-3	8.2E-4
EPII-CF-5	9.4E-4	1.3E-3	1.1E-4	5.6E-5	8.1E-4	2.2E-4	7.7E-4	3.0E-3	8.6E-4	4.7E-3	7.6E-4
EPII-CF-6	2.0E-3	1.9E-3	-	5.3E-6	3.1E-4	9.2E-5	2.9E-4	1.2E-3	2.7E-4	1.5E-3	2.2E-4
EPII-CF-7	2.2E-3	3.3E-3	-	-	3.5E-4	7.5E-5	3.6E-4	1.3E-3	3.2E-4	1.8E-3	2.8E-4
EPII-CF-8	1.7E-3	6.8E-3	3.1E-4	1.7E-4	1.8E-3	5.4E-4	1.9E-3	-	1.7E-3	-	2.0E-3
EPII-CF-9	6.2E-4	1.7E-3	-	-	-	-	-	-	-	-	-
EPII-CF-10	2.1E-2	7.8E-4	1.3E-4	7.4E-5	6.1E-4	1.7E-4	6.1E-4	2.3E-3	5.1E-4	3.0E-3	4.8E-4
試料コード	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Hf	W	Tl	Pb	Th	U
EFII-CF-21	1.5E-2	5.1E-3	3.2E-2	5.3E-3	2.7E-2	5.7E-3	1.2E-1	2.7E-1	5.7E-4	3.5E-4	2.7E-4
EFII-CF-22	-	-	-	-	-	-	5.1E-2	1.1E-1	9.3E-4	-	-
EFII-CF-23	3.7E-1	1.8E-2	-	1.3E-2	-	6.4E-3	2.0E-1	4.0E-2	7.6E-4	2.4E-4	4.0E-4
EFII-CF-24	-	-	-	-	-	-	6.8E-2	3.3E-1	-	-	-
EFII-CF-25	-	-	-	-	-	-	7.4E-2	4.3E-2	-	-	-
EFII-CF-26	-	-	-	-	-	2.2E-3	6.2E-2	1.7E-3	9.0E-5	-	-
EFII-CF-27	-	-	-	-	-	-	8.8E-2	2.7E-2	-	-	-
EFII-CF-28	-	-	-	-	-	-	2.9E-2	2.2E-1	4.0E-4	-	-
EFII-CF-29	-	-	-	5.5E-3	-	4.3E-3	5.0E-2	2.7E-3	4.3E-4	1.5E-4	1.6E-4
EFII-CF-30	1.1E-1	8.6E-3	-	8.3E-3	-	3.3E-3	2.1E-2	2.2E-3	-	1.1E-4	1.2E-4
EPII-CF-1	2.8E-3	3.8E-4	1.2E-2	5.6E-4	1.1E-2	4.6E-4	-	-	5.7E-4	1.1E-4	3.0E-4
EPII-CF-2	-	-	-	-	-	-	-	-	1.3E-3	1.8E-4	3.9E-4
EPII-CF-3	2.4E-3	7.5E-4	5.2E-3	1.1E-3	5.2E-3	5.9E-4	-	-	9.5E-4	2.1E-4	1.9E-4
EPII-CF-4	6.3E-3	1.2E-3	3.4E-2	1.4E-3	4.1E-2	2.1E-3	-	-	6.6E-4	1.1E-4	2.1E-4
EPII-CF-5	3.5E-3	9.9E-4	6.8E-3	1.2E-3	7.5E-3	9.9E-4	-	-	4.3E-4	1.5E-4	2.1E-4
EPII-CF-6	1.1E-3	2.1E-4	1.5E-3	4.2E-4	2.0E-3	6.2E-4	-	-	9.4E-4	1.5E-4	-
EPII-CF-7	1.3E-3	2.9E-4	1.9E-3	4.9E-4	2.8E-3	4.7E-4	-	-	6.5E-4	1.2E-4	2.5E-4
EPII-CF-8	2.6E-2	2.5E-3	-	2.8E-3	-	1.3E-3	-	-	5.8E-4	3.9E-4	3.0E-4
EPII-CF-9	-	-	-	-	-	-	-	-	2.6E-4	3.4E-5	-
EPII-CF-10	2.1E-3	5.8E-4	4.0E-3	6.9E-4	3.9E-3	1.4E-3	-	-	6.0E-4	1.4E-4	1.5E-4

表 2.4-1 全葉菜試料の収穫期と移行係数

種類	試料コード	採取都道府県	収穫期	収穫期1ヶ月前の気温	年間平均気温	Na	Mg	Al	Si
ネギ	EF-CF- 2a	岩手	2002/10/10	18.3	10	6.2E-3	1.3E-1	5.0E-4	5.0E-4
キャベツ	EF-CF- 3	宮城	2002/10/8	20.4	12.1	5.1E-2	2.6E-1	6.6E-5	6.7E-5
キャベツ	EF-CF- 4	群馬	2002/10/22	21.9	14.2	2.3E-2	1.2E-1	2.1E-4	1.5E-4
ハクサイ	EF-CF- 5	茨城	2002/12/24	10.2	13.4	4.0E-1	8.2E-2	5.0E-4	6.9E-4
キャベツ	EF-CF- 6	新潟	2002/11/29	16.0	13.5	1.7E-2	1.7E-1	1.1E-4	1.5E-4
ネギ	EF-CF- 7a	富山	2002/12/12	10.4	13.7	9.7E-3	6.2E-1	4.7E-3	3.4E-3
ハクサイ	EF-CF- 8	京都	2002/12/2	11.9	15.6	4.6E-2	2.7E-1	7.1E-5	7.4E-5
ニンジン葉	EF-CF- 9a	三重	2002/12/9	12.3	15.5	2.7E-1	2.2E-1	1.6E-2	9.7E-3
ダイコン葉	EF-CF- 10a	山口	2002/11/28	18.8	16.2	9.0E-1	2.8E-1	2.6E-3	2.7E-3
ホウレンソウ	EF-CF- 11	福岡	2002/11/14	18.7	16.6	4.8E-1	1.5E+0	3.2E-3	2.3E-3
レタス	EF-CF- 19	長野	2003/8/6	23.6	11.7	6.2E-2	2.4E-1	2.2E-4	5.8E-4
レタス	EF-CF- 26	香川	2003/12/8	13.0	16.1	3.7E-2	3.6E-1	4.0E-4	7.0E-4
キャベツ	EF-CF- 33	千葉	2004/11/30	18.6	15.3	5.1E-2	4.3E-1	2.6E-4	3.0E-4
ネギ	EF-CF- 35a	神奈川	2004/12/10	12.7	15.5	2.2E-2	1.1E-1	6.4E-3	4.7E-3
ネギ	EF-CF- 36a	新潟	2004/10/5	22.0	13.5	4.6E-3	3.6E-1	1.2E-3	6.9E-4
野沢菜	EF-CF- 38	長野	2004/11/4	13.5	11.7	2.7E-2	3.6E-1	2.5E-3	3.4E-3
キャベツ	EF-CF- 41	島根	2004/11/19	16.4	14.6	4.1E-2	2.8E-1	9.9E-5	4.5E-5
ハクサイ	EF-CF- 50	群馬	2005/12/9	10.5	14.2	1.6E-2	1.0E-1	2.1E-4	3.2E-4
ハクサイ	EF-CF- 52	山梨	2005/7/28	21.6	14.3	5.3E-2	3.3E-1	6.3E-5	2.4E-4
ホウレンソウ	EF-CF- 54	静岡	2005/12/20	13.8	16.3	6.9E-1	4.4E-1	5.5E-4	1.4E-3
キャベツ	EF-CF- 55	滋賀	2005/10/24	22.7	15.5	3.7E-2	3.4E-1	2.0E-4	1.6E-4
キャベツ	EF-CF- 57	岡山	2005/12/9	12.1	15.8	2.9E-2	4.6E-1	5.9E-5	3.2E-5
ネギ	EFII-CF- 1	高知	2013/12/4	13.4	16.6	2.0E-2	1.5E-1	2.5E-4	2.3E-5
ハクサイ	EFII-CF- 2	高知	2013/12/4	13.4	16.6	2.0E-2	5.1E-2	2.9E-4	4.3E-5
キャベツ	EFII-CF- 3	熊本	2013/12/4	12.7	16.5	8.8E-2	3.2E-1	1.4E-4	2.4E-5
ハクサイ	EFII-CF- 4	熊本	2013/12/4	12.7	16.5	7.0E-2	5.0E-1	8.1E-5	5.9E-5
ホウレンソウ	EFII-CF- 5	熊本	2013/12/5	12.7	16.5	6.6E-2	2.1E+0	3.0E-3	1.1E-3
レタス	EFII-CF- 6	熊本	2013/12/5	12.7	16.5	7.6E-2	3.3E-1	2.2E-4	1.4E-4
キャベツ	EFII-CF- 7	鹿児島	2013/12/12	15.6	18.3	3.7E-2	2.5E-1	2.3E-4	6.6E-5
ネギ	EFII-CF- 8a	鹿児島	2013/12/12	15.6	18.3	2.0E-3	9.5E-2	4.5E-4	7.4E-5
ホウレンソウ	EFII-CF- 9	鹿児島	2013/12/12	15.6	18.3	2.1E-2	8.0E-1	4.2E-3	5.7E-3
ホウレンソウ	EFII-CF- 10	宮崎	2013/12/12	14.3	17.2	2.0E-2	7.5E-1	3.8E-3	2.0E-3
キャベツ	EFII-CF- 11	沖縄	2013/12/24	21.7	22	8.1E-2	1.7E-1	2.1E-4	1.3E-5
ネギ	EFII-CF- 12	沖縄	2013/12/25	21.7	22	7.2E-2	3.4E-1	2.1E-3	6.7E-4
ホウレンソウ	EFII-CF- 13	沖縄	2013/12/25	21.7	22	6.6E-1	8.9E-1	1.3E-2	4.3E-3
チンゲンサイ	EFII-CF- 14	沖縄	2013/12/24	21.7	22	7.1E-1	2.6E-1	5.4E-3	1.9E-3
キャベツ	EFII-CF- 15	宮崎	2013/12/25	14.3	17.2	1.9E-2	1.5E-1	1.7E-4	3.3E-5
ネギ	EFII-CF- 16a	宮崎	2013/12/25	14.3	17.2	1.1E-3	9.2E-2	1.2E-3	1.4E-5
ハクサイ	EFII-CF- 17	宮崎	2013/12/25	14.3	17.2	1.2E-1	1.7E-1	6.6E-4	1.5E-4
キャベツ	EFII-CF- 18	高知	2014/1/14	8.2	16.6	6.5E-2	2.1E-1	1.3E-4	
タカナ	EFII-CF- 19	高知	2014/1/28	8.2	16.6	3.0E-2	1.4E+0	9.0E-4	7.2E-4
ハクサイ	EFII-CF- 20	鹿児島	2014/1/28	10.4	18.3	5.9E-2	2.1E-1	2.7E-4	6.9E-5
GM						4.6E-2	2.8E-1	5.4E-4	3.1E-4
min						1.1E-3	5.1E-2	5.9E-5	1.3E-5
max						9.0E-1	2.1E+0	1.6E-2	9.7E-3
max/min						852	41	270	731
TRS-472						3.0E-2	-	-	-

TRS-472 について

- : データの記載自体が無い。

(つづき)

試料コード	P	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni
EF-CF- 2a	7.5E-1	7.2E+0	9.4E-2	4.7E-4	1.4E-3	6.3E-4	7.2E-3	1.4E-2	9.3E-4	1.5E-3	3.1E-2
EF-CF- 3	4.4E+0	1.9E+0	4.8E-1	2.3E-4		5.9E-4	3.1E-2	1.8E-2	9.4E-4	5.6E-3	1.6E-1
EF-CF- 4	9.6E-1	3.8E+0	2.7E-1	1.9E-4		3.3E-4	2.1E-2	2.1E-2	7.6E-4	5.8E-3	3.8E-2
EF-CF- 5	3.7E+0	9.0E+0	9.7E-1	5.2E-4	1.4E-3	4.4E-4	5.6E-3	6.0E-3	5.9E-4	2.2E-3	9.0E-3
EF-CF- 6	3.8E+0	1.3E+0	4.9E-1	2.5E-4		3.5E-4	4.8E-3	1.3E-2	3.0E-4	1.9E-3	5.1E-2
EF-CF- 7a	1.8E+0	1.7E+0	1.4E+0	7.5E-3	6.5E-3	6.8E-3	1.6E-2	4.2E-1	6.5E-3	3.7E-2	9.7E-2
EF-CF- 8	4.5E+0	2.2E+0	1.4E+0	4.1E-4			5.1E-3	1.4E-2	8.9E-4	4.5E-3	7.3E-2
EF-CF- 9a	1.3E+0	2.7E+0	4.6E-1	1.9E-2	1.9E-2	2.1E-2	5.1E-2	4.3E-2	1.6E-2	2.5E-2	8.8E-2
EF-CF- 10a	1.2E+0	7.4E-1	5.5E+0	3.9E-3	4.0E-3	3.2E-3	7.2E-3	7.3E-2	3.2E-3	8.0E-3	1.6E-2
EF-CF- 11	3.8E+0	3.3E+0	9.1E-1	4.3E-3	6.8E-3	4.6E-3	9.5E-3	4.1E-2	4.6E-3	1.4E-2	6.5E-2
EF-CF- 19	1.0E+0	6.2E+0	6.2E-1		3.3E-4	1.2E-4	2.7E-3	2.8E-2	6.6E-4	2.6E-3	1.3E-2
EF-CF- 26	2.2E+0	2.5E+0	3.1E-1		8.6E-4	1.9E-4	1.1E-3	7.5E-2	2.7E-3	9.6E-3	4.0E-2
EF-CF- 33	1.4E+0	2.5E+0	9.2E-1	3.1E-3	9.1E-4	4.8E-4	1.1E-3	2.2E-2	1.2E-3	3.9E-3	1.3E-2
EF-CF- 35a	1.3E+0	5.7E+0	3.6E-1	6.7E-3	6.9E-3	6.3E-3	1.1E-2	1.6E-2	5.8E-3	6.8E-3	9.1E-3
EF-CF- 36a	1.3E+0	2.3E+0	9.9E-1	2.9E-3	1.2E-3	1.1E-3	4.1E-2	3.0E-2	1.8E-3	5.0E-3	6.0E-2
EF-CF- 38	3.0E+0	3.8E+0	6.8E-1	4.2E-3	3.5E-3	2.9E-3	8.6E-3	3.0E-2	3.2E-3	8.0E-3	1.0E-1
EF-CF- 41	6.4E+0	1.4E+0	7.6E-1		4.3E-4	1.5E-4	5.0E-3	1.2E-1	8.4E-4	3.9E-2	1.6E-1
EF-CF- 50	3.0E+0	7.6E+0	2.7E-1	5.7E-3	7.1E-4	2.0E-4	1.5E-3	1.0E-2	7.6E-4	2.5E-3	9.1E-3
EF-CF- 52	2.0E+0	5.5E+0	2.2E+0	1.3E-2	2.1E-4	3.1E-5	3.4E-3	2.4E-2	6.7E-4	4.9E-3	7.8E-3
EF-CF- 54	1.8E+0	2.0E+1	6.0E-1	4.8E-3	1.0E-3	8.3E-4	2.1E-3	1.2E-2	1.3E-3	3.9E-3	9.4E-3
EF-CF- 55	3.3E+0	1.0E+0	1.5E+0	1.5E-2	7.0E-4	3.4E-4	1.1E-3	2.3E-2	1.4E-3	3.7E-3	6.5E-2
EF-CF- 57	1.0E+0	1.1E+0	3.1E-1	1.2E-2	6.6E-4	2.4E-4	5.9E-4	6.0E-2	1.6E-3	8.4E-3	2.0E-2
EFII-CF- 1	2.7E+0	2.4E+0	9.5E-1	3.2E-3	4.8E-4	2.1E-4	3.0E-3	2.2E-2	7.8E-4	5.3E-2	7.8E-2
EFII-CF- 2	1.4E+0	2.8E+0	3.5E-1	2.7E-3	4.8E-4	1.5E-4	2.3E-3	7.6E-3	6.6E-4	4.5E-3	4.1E-3
EFII-CF- 3	6.8E-1	5.0E+0	7.6E-1	2.2E-3	2.3E-4	1.2E-4	2.8E-2	1.1E-2	7.7E-4	3.5E-3	7.2E-2
EFII-CF- 4	1.1E+0	4.8E+0	7.5E-1	1.3E-3	2.5E-4	6.1E-4	4.6E-1	1.7E-2	5.6E-4	1.3E-2	4.3E-1
EFII-CF- 5	1.3E+0	1.4E+1	5.4E-1	3.6E-3	1.9E-3	9.2E-4	1.3E-2	7.8E-2	2.7E-3	1.8E-1	7.1E-1
EFII-CF- 6	5.4E-1	9.9E+0	3.4E-1	1.0E-3	5.0E-4	3.6E-4	2.8E-3	4.4E-2	9.1E-4	4.0E-2	2.3E-1
EFII-CF- 7	8.1E-1	4.7E+0	4.1E-1	2.2E-3	4.1E-4	6.9E-4	2.4E-2	2.1E-2	7.0E-4	4.0E-3	6.3E-2
EFII-CF- 8a	7.4E-1	2.5E+0	1.2E-1	1.2E-3	3.0E-4	6.2E-4	7.7E-3	6.2E-3	3.6E-4	1.5E-3	4.1E-1
EFII-CF- 9	2.3E+0	1.6E+1	3.6E-1	5.0E-3	2.7E-3	1.6E-3	4.7E-2	2.8E-2	8.1E-3	3.1E-2	5.1E-1
EFII-CF- 10	1.2E+0	1.5E+1	4.1E-1	6.7E-3	2.1E-3	2.4E-3	2.2E-2	2.8E-2	3.8E-3	2.4E-2	2.4E-1
EFII-CF- 11	3.2E+0	2.0E+0	3.3E-1	5.6E-3	5.0E-4	1.6E-3	3.2E-3	3.5E-2	1.0E-3	1.7E-2	2.9E-2
EFII-CF- 12	6.1E+0	3.0E+0	8.7E-1	7.1E-3	1.6E-3	2.0E-3	4.7E-3	2.3E-2	2.0E-3	1.7E-2	2.4E-2
EFII-CF- 13	5.5E+0	5.9E+0	3.7E-1	9.9E-3	6.1E-3	6.1E-3	1.4E-2	6.8E-2	6.4E-3	1.2E-1	2.8E-1
EFII-CF- 14	6.7E+0	4.8E+0	1.4E+0	1.2E-2	3.2E-3	3.2E-3	7.9E-3	5.0E-2	3.0E-3	3.0E-2	3.0E-2
EFII-CF- 15	8.5E-1	4.4E+0	2.4E-1	9.9E-3	5.7E-4	7.9E-4	1.1E-2	1.8E-2	9.3E-4	8.6E-3	5.3E-2
EFII-CF- 16a	5.9E-1	2.7E+0	1.4E-1	7.5E-3	3.3E-4	7.0E-4	1.4E-2	7.1E-3	4.1E-4	1.5E-3	1.1E-1
EFII-CF- 17	1.6E+0	5.6E+0	3.6E-1	4.7E-3	1.3E-3	6.3E-4	8.9E-3	1.9E-2	1.1E-3	2.3E-2	8.2E-2
EFII-CF- 18	1.8E+0	3.4E+0	2.1E+0	1.8E-2	6.6E-4	7.4E-4	1.8E-3	2.7E-2	1.0E-3	8.0E-3	1.1E-2
EFII-CF- 19	2.4E+0	2.0E+0	2.3E+0	1.0E-2	1.1E-3	6.9E-4	5.5E-3	2.6E-2	1.8E-3	8.7E-3	2.8E-2
EFII-CF- 20	1.4E+0	6.8E+0	4.4E-1	4.1E-3	6.1E-4	1.8E-4	2.2E-3	2.3E-2	8.3E-4	1.8E-2	2.1E-1
GM	1.8E+0	3.8E+0	5.8E-1	3.4E-3	1.1E-3	7.2E-4	7.1E-3	2.5E-2	1.4E-3	9.2E-3	5.3E-2
min	5.4E-1	7.4E-1	9.4E-2	1.9E-4	2.1E-4	3.1E-5	5.9E-4	6.0E-3	3.0E-4	1.5E-3	4.1E-3
max	6.7E+0	2.0E+1	5.5E+0	1.9E-2	1.9E-2	2.1E-2	4.6E-1	4.2E-1	1.6E-2	1.8E-1	7.1E-1
max/min	12	28	59	96	92	673	778	70	54	119	174
TRS-472	1.0E+0	1.3E+0	No Data	-	-	-	1.0E-3	4.1E-1	1.0E-3	1.7E-1	No Data

TRS-472 について

No Data : 他の作物については記載があるが、葉菜類のデータがないことを示す。

- : データの記載自体が無い。

(つづき)

試料コード	Cu	Zn	Se	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Cd	Sn
EF-CF- 2a	1.6E-1	3.5E-1	1.2E-2	1.2E+0	5.0E-2	6.1E-4	4.4E-4	7.2E-4	1.3E-1	1.1E-1	5.7E-3
EF-CF- 3	1.0E-1	1.3E-1	1.8E-1	7.7E-1	1.4E-1	5.2E-4	3.7E-4	2.4E-4	5.3E-1	1.9E-1	1.0E-3
EF-CF- 4	4.3E-2	2.8E-1	8.8E-3	4.0E-1	7.3E-2	3.4E-4	7.4E-4	1.2E-3	1.9E-1	1.3E-1	2.3E-3
EF-CF- 5	3.1E-2	3.1E-1	3.0E-1	2.2E+0	8.1E-1	1.2E-3	5.4E-4	1.3E-3	4.6E-1	3.1E-1	2.8E-2
EF-CF- 6	4.9E-2	1.4E-1	1.5E-2	8.3E-2	1.7E-1	1.7E-3	1.7E-4	2.0E-4	7.9E-2	2.2E-1	1.9E-3
EF-CF- 7a	3.9E-1	3.6E-1	6.6E-2	3.1E-1	2.5E-1	1.2E-2	2.3E-3	3.8E-3	1.8E-1	1.2E+0	1.4E-2
EF-CF- 8	9.0E-2	2.8E-1	4.6E-2	9.6E-2	3.6E-1	1.1E-3	1.2E-4	1.4E-4	4.2E-1	8.6E-1	9.5E-4
EF-CF- 9a	2.9E-1	1.5E-1	6.0E-2	1.6E-1	1.0E-1	2.7E-2	3.5E-3	1.6E-2	1.4E+0	2.4E+0	1.2E-1
EF-CF- 10a	3.6E-1	2.2E-1	3.8E-2	1.7E-1	9.7E-1	4.3E-3	1.7E-3	2.9E-3	3.1E-1	9.0E-1	4.5E-2
EF-CF- 11	3.8E+0	1.3E+0	1.4E-2	5.4E-1	1.6E-1	4.0E-3	1.6E-3	3.2E-3	5.5E-1	2.6E+0	5.7E-1
EF-CF- 19	2.4E-1	1.9E-1	8.3E-3	1.4E+0	6.0E-1	8.1E-4	9.0E-4	3.3E-4	4.5E-2	4.5E-1	5.5E-3
EF-CF- 26	2.8E-1	3.6E-1	1.7E-2	8.1E-2	1.2E-1	6.3E-4	2.4E-4	6.7E-4	1.2E-1	6.8E-1	1.4E-1
EF-CF- 33	5.1E-2	1.7E-1	1.3E-2	3.7E-1	1.0E+0	9.6E-4	5.9E-4	1.3E-3	3.2E+0	8.2E-2	8.3E-3
EF-CF- 35a	4.8E-2	2.2E-1	5.5E-2	7.2E-1	1.6E-1	7.2E-3	9.0E-3	8.1E-3	6.5E+0	1.8E-1	2.1E-2
EF-CF- 36a	3.6E-1	3.6E-1	4.6E-2	8.3E-1	4.4E-1	3.2E-3	1.4E-3	2.0E-3	2.2E-1	4.4E-1	8.2E-3
EF-CF- 38	5.8E-2	3.9E-1	6.6E-2	1.1E+0	2.8E-1	4.3E-3	1.8E-3	4.4E-3	2.4E+0	4.2E-1	2.1E-2
EF-CF- 41	7.7E-2	4.0E-1	3.6E-2	2.6E-1	1.1E-1	8.6E-3	9.7E-5	1.8E-4	3.6E-2	8.2E-1	2.7E-3
EF-CF- 50	2.1E-1	2.6E-1	4.5E-2	4.5E+0	2.8E-1	9.0E-4	9.3E-4	2.3E-3	1.5E+0	3.9E-1	2.6E-2
EF-CF- 52	3.7E-2	2.8E-1	1.5E-2	1.8E+0	7.6E-1	3.2E-3	1.4E-4	2.3E-4	4.7E-1	2.6E-1	3.8E-3
EF-CF- 54	7.7E-2	6.2E-1	4.1E-2	7.0E+0	4.3E-1	7.2E-3	1.5E-3	4.8E-3	1.2E-1	7.6E-1	2.9E-2
EF-CF- 55	6.3E-2	1.9E-1	2.1E-2	1.3E-1	3.5E-1	7.3E-4	2.0E-4	4.7E-4	1.9E+0	1.5E-1	1.6E-3
EF-CF- 57	3.9E-2	1.7E-1	1.1E-2	6.2E-2	7.3E-2	1.6E-4	2.0E-4	7.3E-4	6.9E-1	4.0E-2	9.7E-4
EFII-CF- 1	5.3E-2	3.4E-1	3.6E-2	6.1E-2	2.9E-2	2.4E-3	7.7E-4	9.6E-3	4.9E-2	1.8E-1	5.4E-2
EFII-CF- 2	2.8E-2	1.4E-1	1.2E-1	2.2E-1	1.7E-1	1.5E-3	5.7E-4	5.5E-3	7.1E-1	3.2E-1	2.2E-2
EFII-CF- 3	8.4E-4	1.7E-1	4.1E-2	1.4E+0	2.7E-1	1.7E-3	4.2E-4	6.7E-3	1.4E-1	7.7E-2	2.0E-2
EFII-CF- 4	6.1E-2	2.1E-1	4.2E-2	8.5E-1	2.0E-1	1.3E-3	4.4E-4	8.2E-3	3.1E-1	3.6E-2	4.0E-2
EFII-CF- 5	6.3E-2	6.8E-1	3.8E-2	2.5E+0	2.6E-1	3.1E-3	1.6E-3	9.7E-3	1.7E-1	1.7E+0	3.3E-2
EFII-CF- 6	5.1E-2	4.1E-1	3.8E-2	1.1E+1	1.9E-1	1.6E-3	1.2E-3	8.7E-3		2.7E-1	2.2E-2
EFII-CF- 7		2.3E-1	5.5E-2	3.5E+0	1.3E-1	2.7E-3	7.6E-4	1.4E-2	3.1E-1	2.2E-2	2.6E-2
EFII-CF- 8a	2.4E-2	2.6E-1	4.2E-2	2.3E+0	6.1E-2	1.5E-3	7.4E-4	1.4E-2	2.0E-2	3.0E-2	5.5E-2
EFII-CF- 9	3.1E-1	9.3E-1	4.2E-2	8.7E+0	1.9E-1	5.3E-3	2.9E-3	9.1E-3	8.5E-1	1.5E+0	3.5E-2
EFII-CF- 10	1.1E-1	7.8E-1	6.6E-2	2.1E+0	9.2E-2	2.5E-3	1.9E-3	1.1E-2	8.0E-1	1.1E+0	3.7E-2
EFII-CF- 11	7.2E-2	2.7E-1	1.6E-1	5.8E-2	1.7E-1	1.3E-3	7.8E-4	3.1E-3	1.5E+0	5.5E-1	2.5E-2
EFII-CF- 12	2.1E-1	3.8E-1	1.6E-1	2.6E-1	7.5E-1	3.2E-3	1.7E-3	4.1E-3	1.3E+0	1.8E-1	1.8E-2
EFII-CF- 13	3.6E-1	4.3E-1	4.6E-1	3.7E-1	4.4E-1	7.9E-3	5.4E-3	8.8E-3	1.8E+0	3.4E+0	2.3E-2
EFII-CF- 14	1.9E-1	3.9E-1	5.2E-1	6.2E-1	1.7E+0	4.2E-3	2.2E-3	2.8E-3	3.3E+0	2.3E+0	2.6E-2
EFII-CF- 15	4.6E-2	3.1E-1	4.0E-2	1.9E+0	8.7E-2	1.6E-3	8.4E-4	1.7E-4	2.3E-1	4.0E-2	4.7E-2
EFII-CF- 16a	6.9E-2	2.2E-1	2.4E-2	4.3E-1	5.4E-2	1.3E-3	7.9E-4	1.5E-4	1.9E-1	5.8E-2	4.9E-2
EFII-CF- 17	6.0E-2	3.5E-1	9.5E-2	3.4E+0	1.8E-1	1.3E-3	9.3E-4	1.5E-3	1.0E+0	5.5E-1	6.5E-2
EFII-CF- 18	4.4E-2	2.1E-1	1.4E-1	6.7E-1	3.2E-1	4.4E-3	9.4E-4	7.3E-4	6.7E-1	1.1E-1	3.3E-2
EFII-CF- 19	1.1E-1	3.2E-1	1.9E-1	1.4E-1	3.0E+0	5.9E-3	8.0E-4	8.5E-4	4.7E+0	3.0E-1	3.5E-2
EFII-CF- 20	6.7E-2	3.7E-1	8.4E-2	3.4E+0	2.3E-1	1.3E-3	8.3E-4	7.3E-4	2.3E-1	4.7E-1	6.0E-2
GM	8.9E-2	3.0E-1	4.8E-2	6.5E-1	2.3E-1	2.1E-3	8.2E-4	1.9E-3	4.3E-1	3.1E-1	1.8E-2
min	8.4E-4	1.3E-1	8.3E-3	5.8E-2	2.9E-2	1.6E-4	9.7E-5	1.4E-4	2.0E-2	2.2E-2	9.5E-4
max	3.8E+0	1.3E+0	5.2E-1	1.1E+1	3.0E+0	2.7E-2	9.0E-3	1.6E-2	6.5E+0	3.4E+0	5.7E-1
max/min	4492	9	62	183	106	175	93	114	321	151	604
TRS-472	-	-	-	6.2E-1	7.6E-1	-	2.0E-3	1.4E-2	5.1E-1	No Data	-

TRS-472 について

No Data : 他の作物については記載があるが、葉菜類のデータがないことを示す。

- : データの記載自体が無い。

(つづき)

試料コード	Sb	Cs	Ba	La	Ce	Sm	Eu	Gd	Pb	Th	U
EF-CF- 2a	3.4E-3	1.0E-2	1.1E-2	8.5E-4	7.0E-4		5.2E-4	5.6E-4	5.7E-3	8.1E-4	8.8E-4
EF-CF- 3	8.1E-3	7.7E-2	1.1E-2	1.0E-3	5.0E-4	2.2E-4		3.5E-4	4.7E-4		
EF-CF- 4	9.8E-4	1.8E-2	4.3E-2	9.5E-4	3.4E-4				8.9E-4	2.2E-4	
EF-CF- 5	4.3E-3	2.5E-2	8.4E-2	3.8E-3	1.4E-3	1.2E-3	1.2E-3	1.1E-3	7.5E-3	1.5E-3	1.5E-3
EF-CF- 6	6.7E-3	1.0E-3	2.8E-2	2.6E-3	1.7E-3	1.1E-3	1.4E-3	1.5E-3	5.2E-3	9.9E-5	
EF-CF- 7a	4.8E-2	1.0E-2	4.5E-2	1.5E-2	1.1E-2	9.1E-3	9.8E-3	1.0E-2	1.2E-2	7.1E-3	8.5E-3
EF-CF- 8	7.0E-3	1.7E-3	4.0E-2	1.2E-3	1.6E-4	4.4E-4	1.1E-3	7.4E-4	1.4E-3		
EF-CF- 9a	8.2E-2	3.2E-2	9.3E-2	3.5E-2	2.6E-2	2.6E-2	2.4E-2	2.5E-2	6.0E-2	2.7E-2	2.8E-2
EF-CF- 10a	1.3E-2	9.3E-3	6.1E-2	7.2E-3	3.6E-3	4.0E-3	5.2E-3	4.3E-3	4.3E-2	3.9E-3	2.8E-3
EF-CF- 11	1.3E-2	4.7E-3	1.0E-1	4.0E-3	3.6E-3	3.5E-3	4.0E-3	3.7E-3	7.0E-3	4.1E-3	3.8E-3
EF-CF- 19	1.3E-2	4.5E-3	2.6E-2	1.5E-3	7.9E-4	4.3E-4	1.0E-3	4.5E-4	2.3E-3	2.3E-4	1.1E-4
EF-CF- 26	3.4E-2	2.6E-3	4.8E-3	8.3E-4	6.5E-4	4.6E-4	7.9E-4	4.8E-4	2.7E-3	3.6E-4	3.0E-4
EF-CF- 33	3.1E-3	6.9E-4	4.0E-2	8.0E-4	3.7E-4	5.4E-4	3.0E-3	6.1E-4	4.9E-3	4.3E-4	3.6E-4
EF-CF- 35a	4.6E-2	1.3E-2	6.7E-2	8.7E-3	7.6E-3	8.2E-3	9.8E-3	8.3E-3	1.2E-2	9.6E-3	1.0E-2
EF-CF- 36a	1.7E-2	5.4E-3	1.2E-1	4.4E-3	2.7E-3	2.2E-3	6.6E-3	2.5E-3	2.9E-3	1.4E-3	1.2E-3
EF-CF- 38	2.3E-2	6.6E-3	6.1E-2	5.8E-3	4.2E-3	4.5E-3	9.0E-3	4.5E-3	5.8E-3	5.1E-3	6.1E-3
EF-CF- 41	8.7E-3	5.5E-3	4.4E-3	1.8E-2	8.7E-3	8.3E-3	8.4E-3	1.1E-2	7.7E-4	1.8E-4	7.6E-5
EF-CF- 50	1.1E-2	2.5E-3	4.4E-2	1.3E-3	8.1E-4	6.1E-4	2.7E-3	5.9E-4	7.4E-3	1.3E-3	8.8E-4
EF-CF- 52	2.7E-2	1.1E-2	9.2E-2	1.6E-2	1.0E-3	2.4E-3	1.1E-2	2.5E-3	1.5E-3	4.2E-4	1.3E-4
EF-CF- 54	8.1E-3	4.7E-2	1.5E-2	1.3E-2	3.6E-3	4.8E-3	5.4E-3	5.6E-3	1.2E-2	4.5E-3	1.6E-3
EF-CF- 55	5.5E-2	2.3E-3	1.7E-2	9.3E-4	5.5E-4	6.2E-4	1.9E-3	6.6E-4	1.4E-3	6.1E-4	4.5E-4
EF-CF- 57	4.6E-3	3.3E-4	1.6E-3	1.1E-4	9.1E-5	8.1E-5	2.8E-4	8.7E-5	3.0E-4	9.8E-5	7.0E-5
EFII-CF- 1	9.0E-2	8.9E-3	1.2E-3	2.9E-3	9.6E-4	3.7E-3	2.4E-2	5.7E-3	2.2E-3	4.1E-4	4.1E-4
EFII-CF- 2	4.7E-2	8.4E-3	2.5E-2	2.3E-3	5.1E-4	2.4E-3	1.9E-2	3.7E-3	5.9E-3	2.3E-4	1.7E-4
EFII-CF- 3	3.5E-2	1.8E-2	7.3E-2	4.3E-3	8.3E-4	2.6E-3	2.5E-2	4.4E-3	3.6E-3	3.9E-5	1.3E-4
EFII-CF- 4	4.6E-2	2.4E-2	3.8E-2	2.5E-3	5.8E-4	1.5E-3	1.4E-2	2.9E-3	1.1E-2	1.7E-4	7.1E-5
EFII-CF- 5	6.8E-2	2.0E-2	4.1E-2	4.6E-3	3.0E-3	5.7E-3	2.3E-2	7.7E-3	8.7E-3	2.7E-4	1.6E-3
EFII-CF- 6	5.2E-2	4.1E-2	5.0E-2	3.9E-3	1.4E-3	2.0E-3	1.6E-2	3.4E-3	1.4E-3	3.0E-4	1.2E-4
EFII-CF- 7	1.4E-1	1.5E-1	6.0E-2	8.2E-3	2.3E-3	3.6E-3	2.1E-2	5.1E-3	5.4E-4	7.8E-5	2.2E-4
EFII-CF- 8a	1.0E-1	3.4E-2	1.4E-2	4.8E-3	1.3E-3	2.6E-3	1.9E-2	4.4E-3	3.5E-2	3.6E-5	1.7E-4
EFII-CF- 9	1.0E-1	4.3E-2	1.1E-1	1.6E-2	7.5E-3	1.3E-2	4.8E-2	1.2E-2	1.3E-2	9.6E-5	4.1E-3
EFII-CF- 10	9.0E-2	1.9E-2	2.5E-2	5.4E-3	2.1E-3	9.5E-3	4.5E-2	8.1E-3	7.1E-3	1.0E-4	1.3E-3
EFII-CF- 11	3.9E-2	4.8E-3	3.6E-3	1.4E-3	3.9E-4	5.1E-3	3.4E-2	4.9E-3	3.0E-3	8.4E-6	6.1E-4
EFII-CF- 12	4.5E-2	5.5E-3	7.1E-3	2.8E-3	2.1E-3	7.7E-3	4.1E-2	7.3E-3	5.8E-3	8.1E-7	2.6E-3
EFII-CF- 13	5.2E-2	1.3E-2	1.0E-2	8.4E-3	7.1E-3	1.4E-2	4.8E-2	1.4E-2	1.2E-2	1.3E-4	8.2E-3
EFII-CF- 14	3.7E-2	7.9E-3	1.2E-2	3.7E-3	2.0E-3	1.1E-2	5.4E-2	9.6E-3	5.6E-3	1.1E-4	3.9E-3
EFII-CF- 15	5.7E-2	3.0E-2	3.2E-2	4.6E-3	1.7E-3	9.6E-3	5.1E-2	1.5E-2	6.2E-3	3.4E-5	1.5E-4
EFII-CF- 16a	5.6E-2	1.3E-2	2.1E-2	3.0E-3	9.7E-4	1.0E-2	5.3E-2	1.5E-2	7.3E-3	3.9E-5	2.1E-4
EFII-CF- 17	4.4E-2	5.1E-2	8.1E-2	5.6E-3	1.3E-3	1.2E-2	6.1E-2	1.7E-2	2.7E-3	2.6E-5	5.0E-4
EFII-CF- 18	4.2E-2	2.4E-2	4.4E-2	5.8E-3	1.7E-3	2.7E-2	1.8E-1	4.6E-2	4.3E-3	3.6E-5	1.3E-4
EFII-CF- 19	4.0E-2	5.2E-3	1.3E-1	6.1E-3	1.8E-3	1.7E-2	8.5E-2	1.1E-2	1.1E-2	1.5E-6	6.9E-4
EFII-CF- 20	6.3E-2	2.1E-2	7.2E-2	4.2E-3	2.5E-3	9.1E-3	5.0E-2	6.4E-3	8.5E-3	2.6E-5	2.2E-4
GM	2.5E-2	1.0E-2	2.8E-2	3.5E-3	1.5E-3	3.2E-3	1.1E-2	3.6E-3	4.6E-3	2.3E-4	6.8E-4
min	9.8E-4	3.3E-4	1.2E-3	1.1E-4	9.1E-5	8.1E-5	2.8E-4	8.7E-5	3.0E-4	8.1E-7	7.0E-5
max	1.4E-1	1.5E-1	1.3E-1	3.5E-2	2.6E-2	2.7E-2	1.8E-1	4.6E-2	6.0E-2	2.7E-2	2.8E-2
max/min	139	464	109	314	286	333	625	527	199	33382	404
TRS-472	9.4E-5	6.0E-2	1.0E-3	5.7E-3	6.0E-3	-	-	-	8.0E-2	1.2E-3	2.0E-2

TRS-472 について

- : データの記載自体が無い。

表 2.4-2 温暖条件下（収穫前月気温>18°C）と寒冷条件下（収穫前月気温<13°C）における葉菜類の移行係数

元素	温暖(平均 21°C)					寒冷(平均 11°C)				
	n	GM	GSD	Min	Max	n	GM	GSD	Min	Max
Na	14	7.7E-2	5.2	4.6E-3	9.0E-1	14	5.4E-2	2.7	9.7E-3	4.0E-1
Mg	14	3.1E-1	2.0	1.2E-1	1.5E+0	14	3.2E-1	2.5	8.2E-2	2.1E+0
Al	14	6.3E-4	5.3	6.3E-5	1.3E-2	14	4.9E-4	6.3	5.9E-5	1.6E-2
Si	14	4.4E-4	4.8	1.3E-5	4.3E-3	13	3.4E-4	7.3	2.4E-5	9.7E-3
P	14	2.3E+0	2.1	7.5E-1	6.7E+0	14	1.6E+0	1.8	5.4E-1	4.5E+0
K	14	3.0E+0	2.0	7.4E-1	7.2E+0	14	4.3E+0	2.1	1.1E+0	1.4E+1
Ca	14	7.5E-1	2.7	9.4E-2	5.5E+0	14	7.0E-1	2.1	2.7E-1	2.3E+0
Sc	13	3.1E-3	4.5	1.9E-4	1.5E-2	14	3.7E-3	3.5	4.1E-4	1.9E-2
Ti	12	1.3E-3	3.1	2.1E-4	6.8E-3	13	1.2E-3	3.8	2.3E-4	1.9E-2
V	14	8.3E-4	4.4	3.1E-5	6.1E-3	13	7.8E-4	4.9	1.2E-4	2.1E-2
Cr	14	6.5E-3	3.0	1.1E-3	4.1E-2	14	7.6E-3	5.4	5.9E-4	4.6E-1
Mn	14	3.0E-2	1.6	1.4E-2	7.3E-2	14	2.8E-2	2.9	6.0E-3	4.2E-1
Fe	14	1.6E-3	2.1	6.6E-4	6.4E-3	14	1.6E-3	2.8	5.6E-4	1.6E-2
Co	14	8.2E-3	3.1	1.5E-3	1.2E-1	14	1.1E-2	3.4	2.2E-3	1.8E-1
Ni	14	3.6E-2	2.7	7.8E-3	2.8E-1	14	5.6E-2	4.4	9.0E-3	7.1E-1
Cu	14	1.6E-1	3.4	3.7E-2	3.8E+0	14	5.9E-2	4.2	8.4E-4	3.9E-1
Zn	14	3.0E-1	1.7	1.3E-1	1.3E+0	14	2.7E-1	1.5	1.5E-1	6.8E-1
Se	14	4.4E-2	4.4	8.3E-3	5.2E-1	14	6.0E-2	2.2	1.1E-2	3.0E-1
Rb	14	4.4E-1	2.6	5.8E-2	1.8E+0	14	7.6E-1	4.8	6.2E-2	1.1E+1
Sr	14	3.6E-1	2.9	5.0E-2	1.7E+0	14	2.7E-1	2.4	7.3E-2	3.0E+0
Y	14	1.7E-3	2.7	3.4E-4	7.9E-3	14	2.3E-3	3.6	1.6E-4	2.7E-2
Zr	14	8.5E-4	2.7	1.4E-4	5.4E-3	14	8.9E-4	3.1	1.2E-4	9.0E-3
Nb	14	1.3E-3	3.2	2.3E-4	8.8E-3	14	2.5E-3	4.0	1.4E-4	1.6E-2
Mo	14	6.0E-1	3.6	4.5E-2	3.3E+0	13	6.1E-1	3.4	1.4E-1	6.5E+0
Cd	14	4.1E-1	3.4	8.2E-2	3.4E+0	14	3.0E-1	3.7	3.6E-2	2.4E+0
Sn	14	1.1E-2	5.0	1.0E-3	5.7E-1	14	1.9E-2	3.9	9.5E-4	1.2E-1
Sb	14	1.4E-2	3.4	9.8E-4	5.5E-2	14	2.8E-2	2.8	4.3E-3	8.2E-2
Cs	14	7.0E-3	2.9	6.9E-4	7.7E-2	14	1.0E-2	3.9	3.3E-4	4.1E-2
Ba	14	2.4E-2	3.0	3.6E-3	1.2E-1	14	4.6E-2	2.8	1.6E-3	1.3E-1
La	14	2.4E-3	2.7	8.0E-4	1.6E-2	14	3.7E-3	3.8	1.1E-4	3.5E-2
Ce	14	1.2E-3	2.7	3.4E-4	7.1E-3	14	1.6E-3	4.6	9.1E-5	2.6E-2
Sm	12	2.2E-3	3.9	2.2E-4	1.4E-2	14	3.1E-3	5.4	8.1E-5	2.7E-2
Eu	12	7.2E-3	4.8	5.2E-4	5.4E-2	14	1.1E-2	6.0	2.8E-4	1.8E-1
Gd	13	2.1E-3	3.5	3.5E-4	1.4E-2	14	3.7E-3	5.2	8.7E-5	4.6E-2
Pb	14	3.6E-3	3.1	4.7E-4	4.3E-2	14	5.7E-3	3.5	3.0E-4	6.0E-2
Th	13	2.4E-4	10.6	8.1E-7	4.1E-3	13	3.1E-4	15.8	1.5E-6	2.7E-2
U	12	1.0E-3	4.0	1.1E-4	8.2E-3	13	6.9E-4	7.6	7.0E-5	2.8E-2

表 2.5-1 分析に用いた土壌試料の物理化学的特性

Sample code	採取場所	土壌分類	pH	EC (1:5) μS/cm	Total C g/kg	Silt %	Clay %
EP-SD-35	高知	低地水田土	5.8	54	16.8	19	18
EP-SD-36	長崎	褐色低地土	5.3	89	23.2	35	44
EP-SD-37	宮崎	非アロフェン質黒ボク土	5.9	65	25.2	22	36
EP-SD-38	北海道	灰色低地土	5.5	65	18.9	14	14
EP-SD-39	宮城	灰色低地土	5.4	93	30.4	25	30
EP-SD-40	千葉	黒泥土	6.2	61	29.7	15	11
EP-SD-41	埼玉	グライ低地土	5.1	88	19.4	18	11
EP-SD-42	富山	グライ台地土	5.7	58	18.8	14	17
EP-SD-43	岐阜	黒ボク土	5.8	108	12.5	35	15
EP-SD-44	滋賀	灰色低地土	5.6	60	14.7	22	16
EP-SD-45	奈良	灰色低地土	6.2	132	18.9	14	14
EP-SD-46	岡山	グライ低地土	5.2	128	29.0	28	18
EP-SD-47	山口	グライ低地土	5.8	95	13.8	23	15
EP-SD-48	徳島	褐色低地土	5.9	53	19.0	17	14
EP-SD-49	大分	灰色低地土	5.2	77	22.6	18	14
EP-SD-50	鹿児島	低地水田土	6.1	97	28.4	25	14
EP-SD-51	北海道	灰色低地土	5.6	72	18.3	28	27
EP-SD-52	青森	グライ低地土	5.2	88	35.9	33	27
EP-SD-53	秋田	グライ低地土	4.8	91	34.2	26	28
EP-SD-54	福島	黄色土	5.6	62	24.2	20	30
EF-SD-44	長崎	黄色土	5.2	289	8.2	30	40
EF-SD-45	宮崎	非アロフェン質黒ボク土	5.7	971	75.5	17	18
EF-SD-46	岩手	非アロフェン質黒ボク土	6.0	134	28.1	7	10
EF-SD-47	岩手	褐色森林土	6.8	2635	26.0	23	18
EF-SD-48	宮城	黒ボク土	7.4	95	31.1	7	9
EF-SD-49	埼玉	低地水田土	6.3	72	17.2	29	22
EF-SD-50	群馬	黒ボク土	6.4	263	12.8	19	15
EF-SD-51	富山	グライ台地土	6.1	189	26.7	19	20
EF-SD-52	山梨	黒ボク土	6.8	92	40.6	8	13
EF-SD-53	長野	黒ボク土	6.6	300	72.6	9	11
EF-SD-54	静岡	黒ボク土	6.2	181	25.1	8	12
EF-SD-55	滋賀	灰色低地土	6.7	49	14.8	14	12
EF-SD-56	奈良	褐色低地土	6.5	193	21.3	8	13
EF-SD-57	岡山	黄色土	6.2	675	31.4	13	12
EF-SD-58	山口	グライ低地土	6.5	81	22.6	13	13
EF-SD-59	徳島	褐色低地土	5.4	307	16.0	14	13
EF-SD-60	佐賀	グライ低地土	5.1	107	26.5	20	23
EF-SD-61	大分	黄色土	6.3	141	69.0	15	13
EF-SD-62	沖縄	灰色台地土	8.1	487	17.1	43	24
EF-SD-63	北海道	褐色森林土	4.6	196	31.3	26	22

表 2.5-2 10℃における Kd-¹³⁷Cs 測定の結果と平均の pH, EC および 23℃の Kd-¹³⁷Cs

Sample code	Kd-1	Kd-2	Kd-3	平均値	RSD (%)	pH	EC μS/cm	Kd @23℃
EP-SD-35	4500	4652	5271	4808	8	6.1	49	1933
EP-SD-36	3288	3181	3083	3184	3	5.8	60	680
EP-SD-37	1583	1615	1638	1612	2	6.4	85	566
EP-SD-38	5060	4347	4328	4578	9	5.9	53	2362
EP-SD-39	9074	5317	7476	7289	26	5.5	93	7801
EP-SD-40	8563	8003	7195	7921	9	6.6	61	3563
EP-SD-41	10269	8468	6736	8491	21	5.7	65	5707
EP-SD-42	8622	7307	8327	8085	9	6.2	47	2951
EP-SD-43	848	887	784	840	6	6.1	130	338
EP-SD-44	6167	4696	4627	5163	17	6.1	52	2952
EP-SD-45	5738	5104	4771	5204	9	6.7	81	11746
EP-SD-46	5273	5904	3703	4960	23	5.4	102	4409
EP-SD-47	5300	4332	4103	4578	14	6.4	67	1642
EP-SD-48	7611	6225	6240	6692	12	6.3	47	6708
EP-SD-49	2129	2102	1900	2044	6	5.5	71	881
EP-SD-50	1277	1163	1127	1189	7	6.5	96	772
EP-SD-51	4427	3564	3709	3900	12	6.0	74	5033
EP-SD-52	3969	2993	3061	3341	16	5.2	78	2340
EP-SD-53	6086	5332	4700	5373	13	5.1	77	4466
EP-SD-54	2912	2156	1995	2354	21	6.0	50	1499
EF-SD-44	1404	1121	1028	1184	17	5.9	181	983
EF-SD-45	284	240	248	257	9	6.2	642	360
EF-SD-46	3429	2691	2502	2874	17	6.6	134	4663
EF-SD-47	1085	896	863	948	13	7.1	1572	1478
EF-SD-48	367	345	357	356	3	7.5	145	703
EF-SD-49	6936	5942	6568	6482	8	6.5	73	27249
EF-SD-50	3363	2922	3161	3148	7	7.0	171	4989
EF-SD-51	14637	11274	11170	12360	16	6.6	130	16874
EF-SD-52	1244	1125	1114	1161	6	7.0	107	871
EF-SD-53	1808	1632	1503	1648	9	7.0	277	9365
EF-SD-54	3837	3354	3284	3492	9	6.7	145	5905
EF-SD-55	3836	2966	3127	3310	14	7.0	79	5502
EF-SD-56	5542	4581	4351	4825	13	7.1	171	8455
EF-SD-57	3200	2807	2808	2938	8	7.0	458	6067
EF-SD-58	5093	5820	5941	5618	8	6.8	80	9722
EF-SD-59	3556	3876	3797	3743	4	6.3	193	2987
EF-SD-60	8149	5935	6668	6917	16	5.7	74	7259
EF-SD-61	2184	2078	1851	2038	8	6.7	171	2544
EF-SD-62	11521	9992	8487	10000	15	8.0	343	14194
EF-SD-63	3142	2654	2759	2852	9	4.9	129	4022

表 2.6-1 植物中 ^{137}Cs 濃度の経時変化のフィッティングに使用したパラメータ値

種類	A	λ_a, d^{-1}	T_{eff}, y	B	λ_b, d^{-1}	T_{eff}, y
マメ科植物 (1年生草本)	144	0.00402	0.47	14.9	0.000142	13.4
カキ (落葉樹)	456	0.00432	0.44	28.5	0.000782	2.4
ベニカナメモチ (常緑樹)	503	0.00435	0.44	8.3	0.000399	4.8

表 2.6-2 捕獲した魚の全長と体重 (湿重量)

捕獲日	場所	魚種	全長 (cm)	湿体重 (g)	推定年齢 (才)
2015.9.29	北印旛沼	カムルチ	72	3,478	5
2015.10.8	北印旛沼	コイ	51	1,720	17
	北印旛沼	コイ	47	1,240	25
2015.11.8	北印旛沼	アメリカナマズ	60	2,013	9
	北印旛沼	コイ	45	725	21
	北印旛沼	コイ	42	863	13
	北印旛沼	フナ	35	598	7
2015.12.14	北印旛沼	フナ	33	483	7
	北印旛沼	アメリカナマズ	53	1,777	15
	北印旛沼	コイ	51.5	2,057	10
	北印旛沼	フナ	27.5	273	No data

表 2.6-3 エサの ^{137}Cs 濃度に対する筋肉, 内臓, および骨中の ^{137}Cs 濃度比

試料	Cs-137		
	(Bq/g-dry)	error	濃度比
筋肉	1.67.E-01	4.01.E-03	4.4
内臓	1.23.E-02	7.52.E-04	0.32
骨	5.69.E-03	3.04.E-04	0.15
消化器官 (小魚)	3.19.E-02	1.84.E-03	
消化器官 (スジエビ)	4.42.E-02	1.89.E-03	

表 2.6-4 コイ筋肉中の ^{137}Cs 濃度に対する卵の ^{137}Cs 濃度比

試料	Cs-137		
	(Bq/g-dry)	error	濃度比
卵	2.67.E-02	1.44.E-03	0.27
筋肉	9.92.E-02	2.50.E-03	

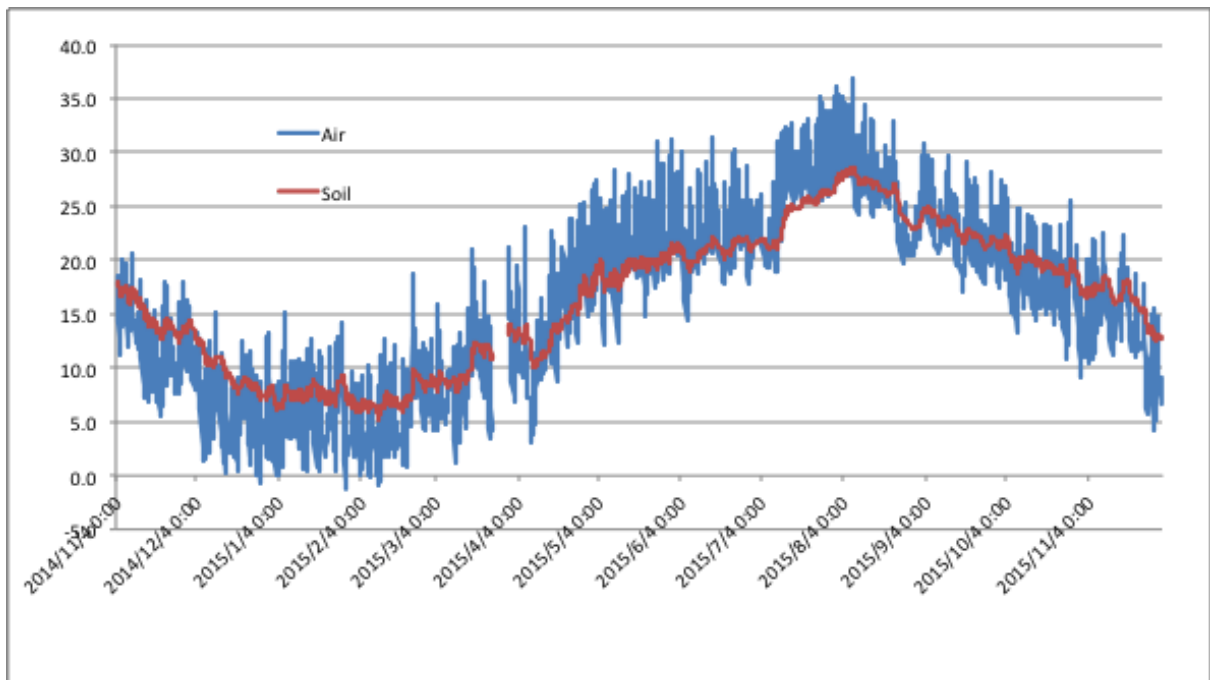
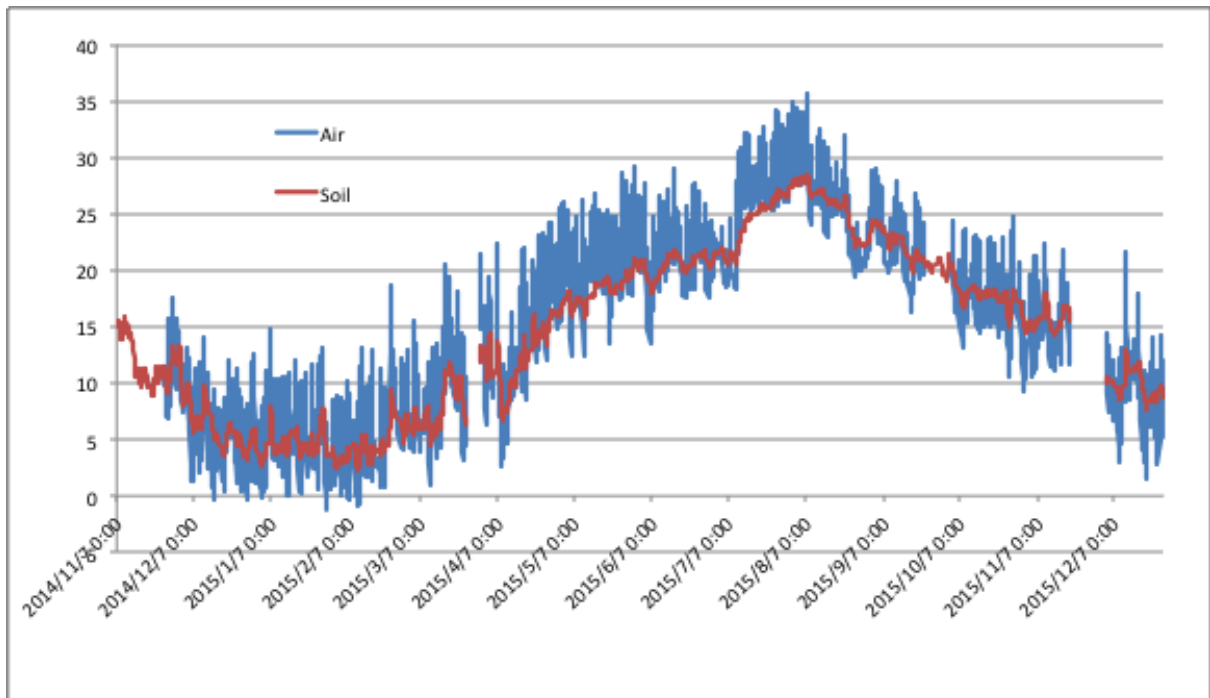


図 2.2-1 気温と地温の 1 年間における変動。

上：日陰条件土壌の地温と直上の気温（0.5m），

下：畑条件土壌（直射日光の当たる草地土壌）の地温と気温（1.5m）。

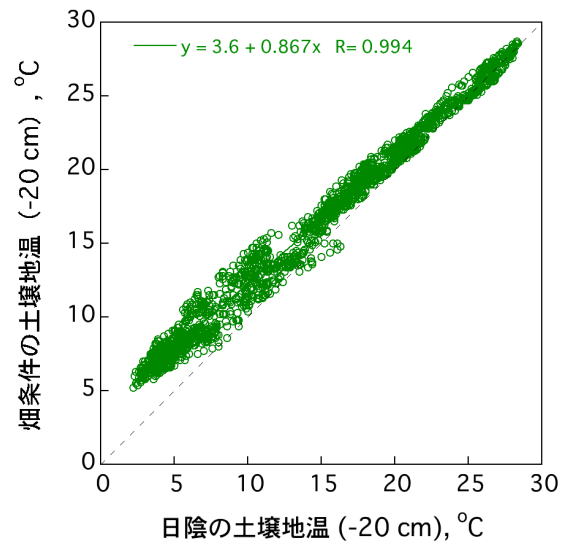
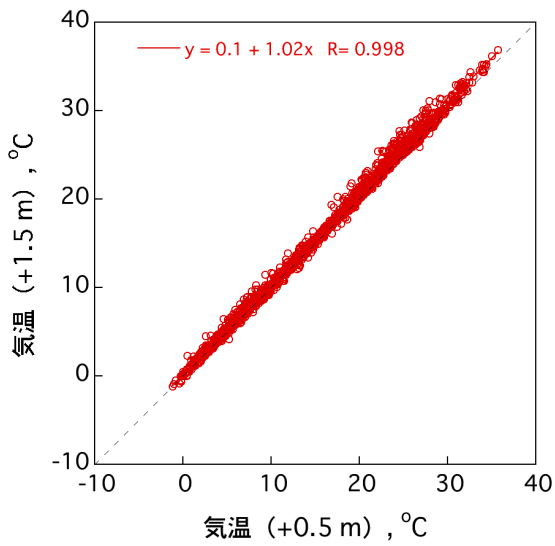


図 2.2-2 2つの測定地点における気温（左）と地温（右）の比較

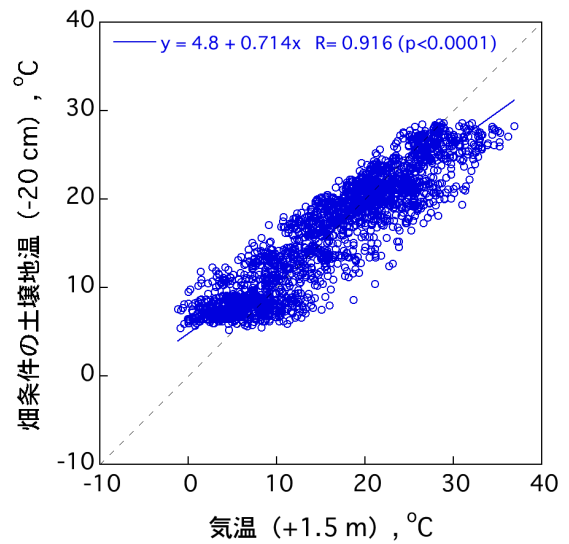
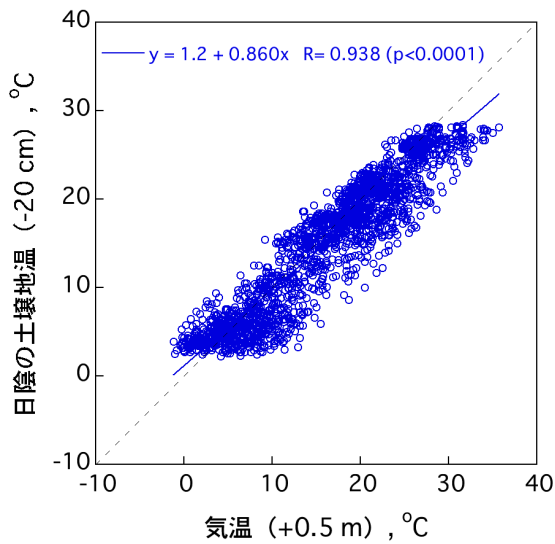


図 2.2-3 各測定地点における気温と地温の相関. 左：日陰条件, 右：畑条件

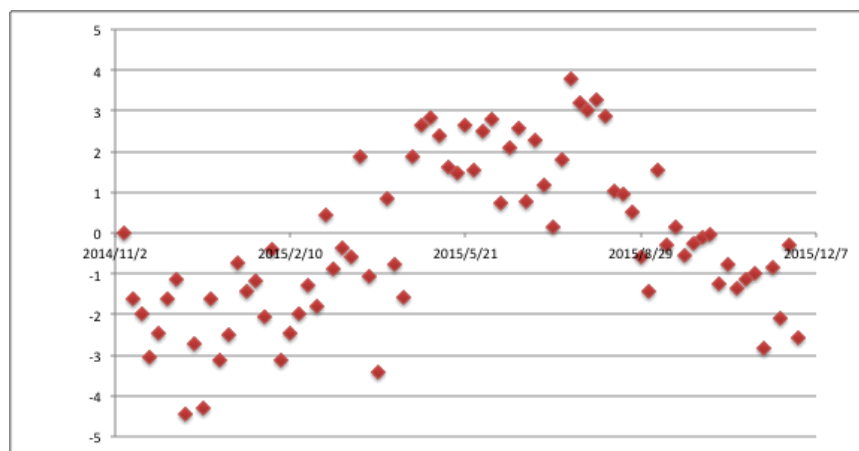


図 2.2-4 5日間平均の気温と地温の差の年間変動（畑条件）

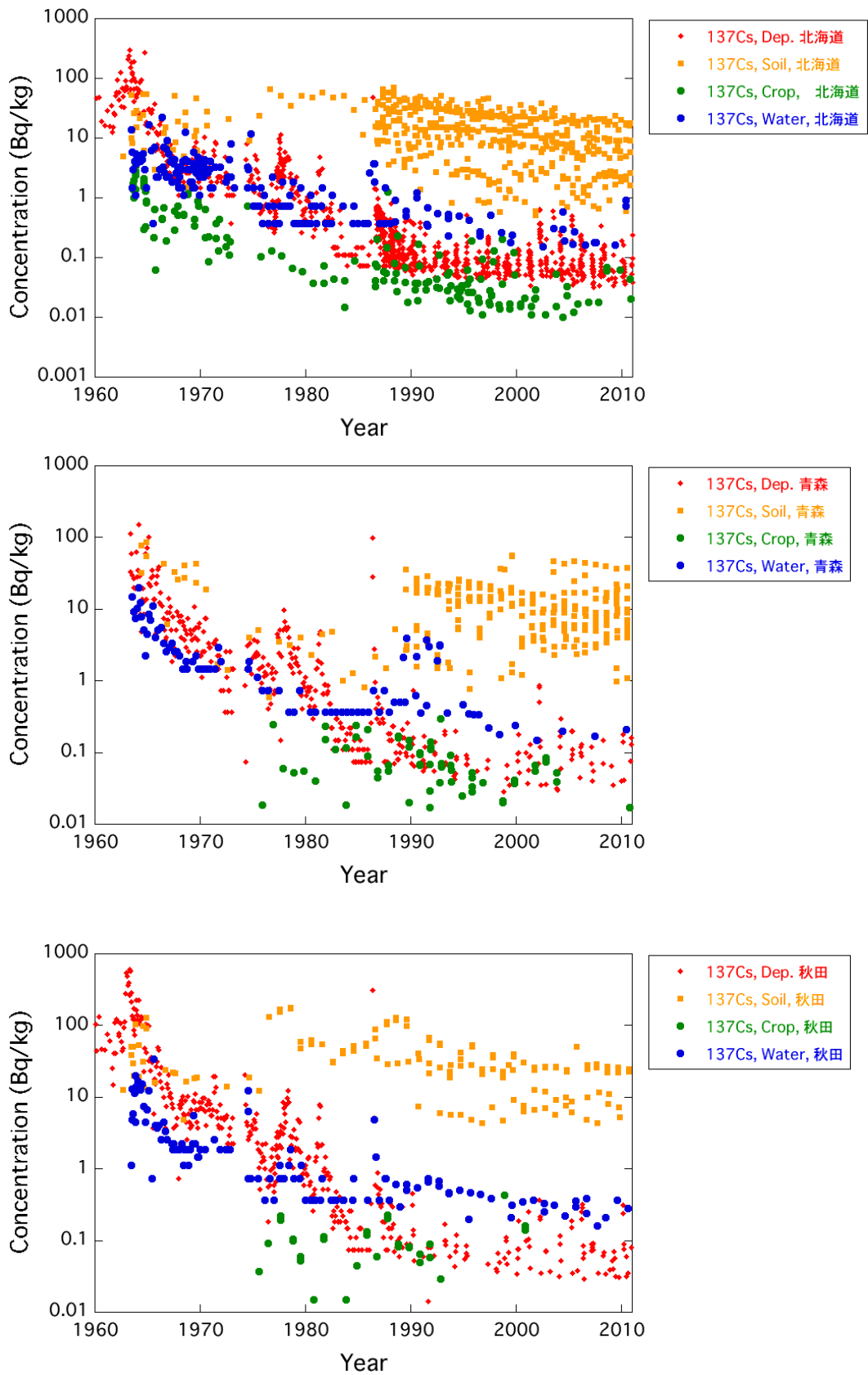


図 2.2-5 北海道，青森県および秋田県におけるグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下物，土壌，葉菜類，および陸水中濃度の経年変化。

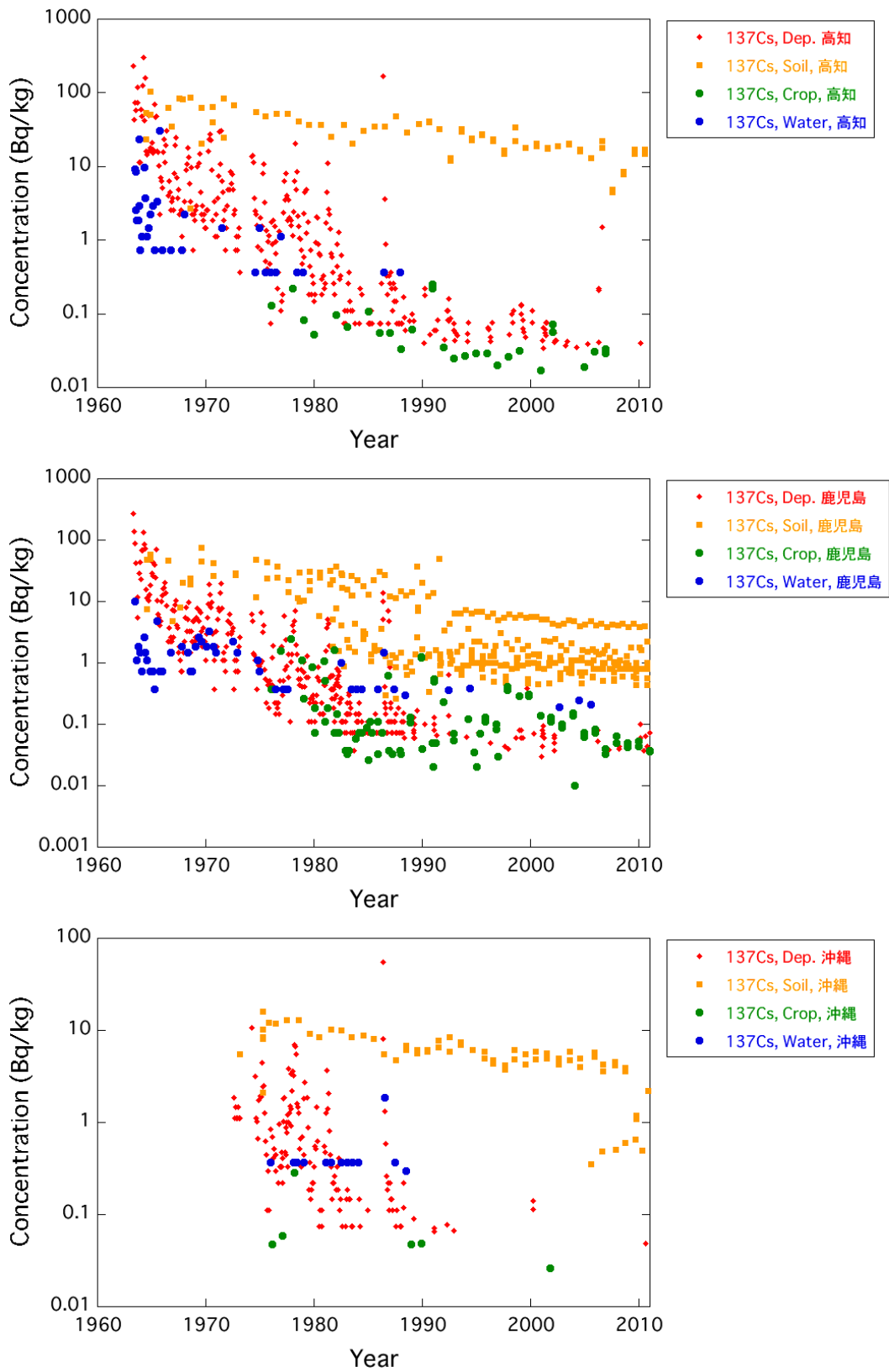


図 2.2-6 高知県，鹿児島県および沖縄県におけるグローバルフォールアウト ^{137}Cs の降下物，土壌，葉菜類，および陸水中濃度の経年変化

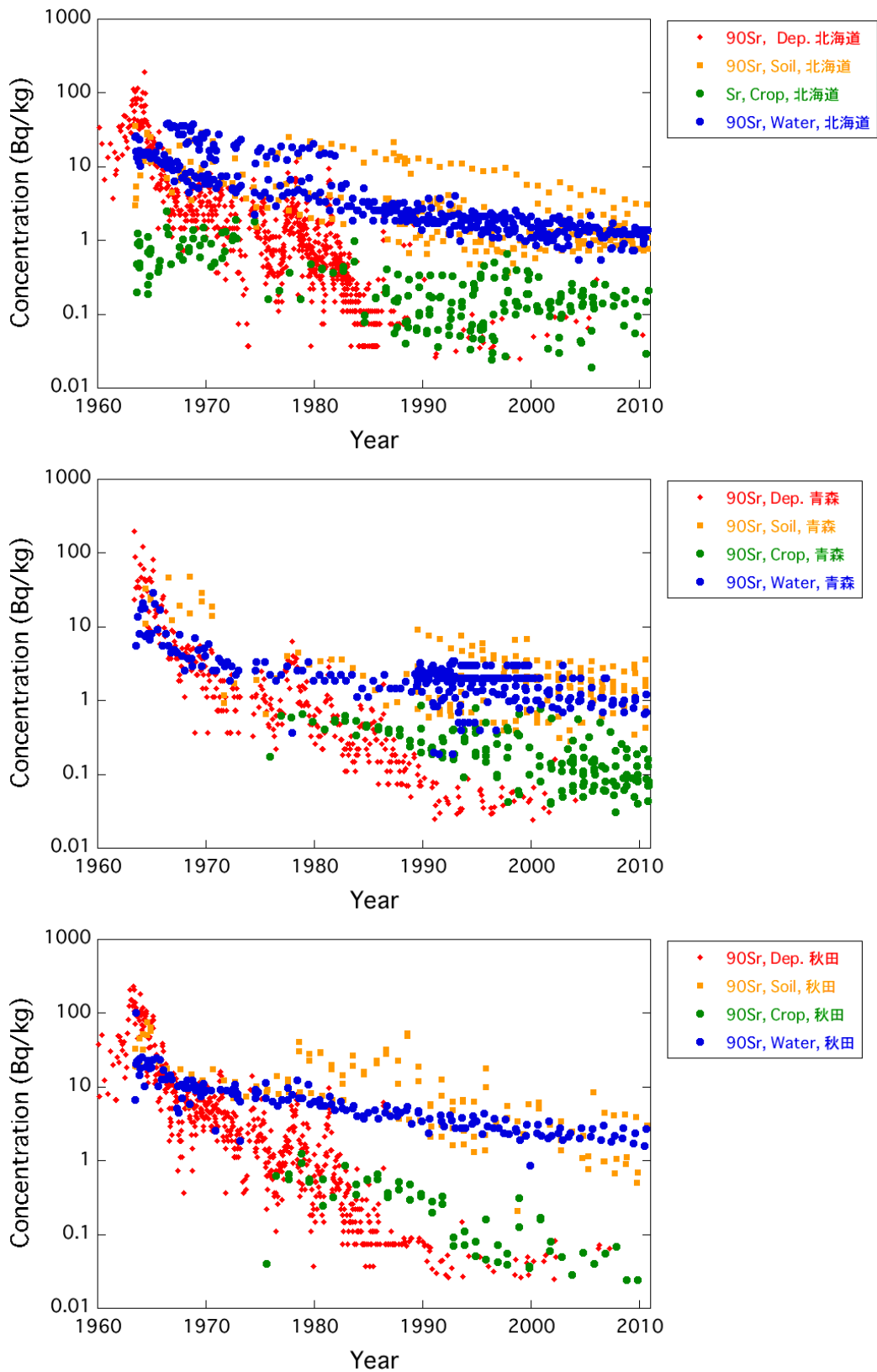


図 2.2-7 北海道、青森県および秋田県におけるグローバルフォールアウト ^{90}Sr の降水物、土壌、葉菜類、および陸水中濃度の経年変化。

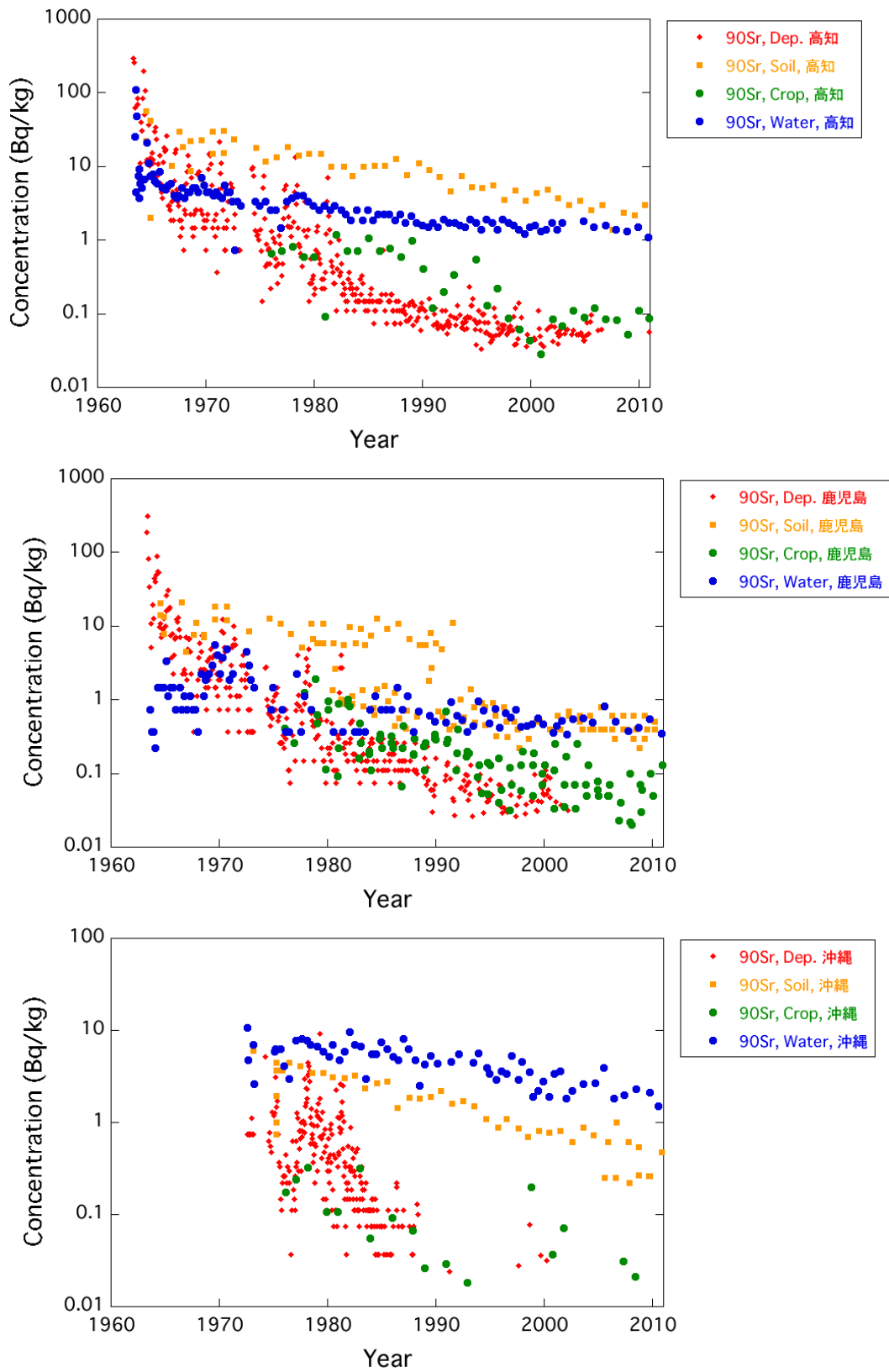


図 2.2-8 高知県，鹿児島県および沖縄県におけるグローバルフォールアウト ^{90}Sr の降下物，土壌，葉菜類，および陸水中濃度の経年変化

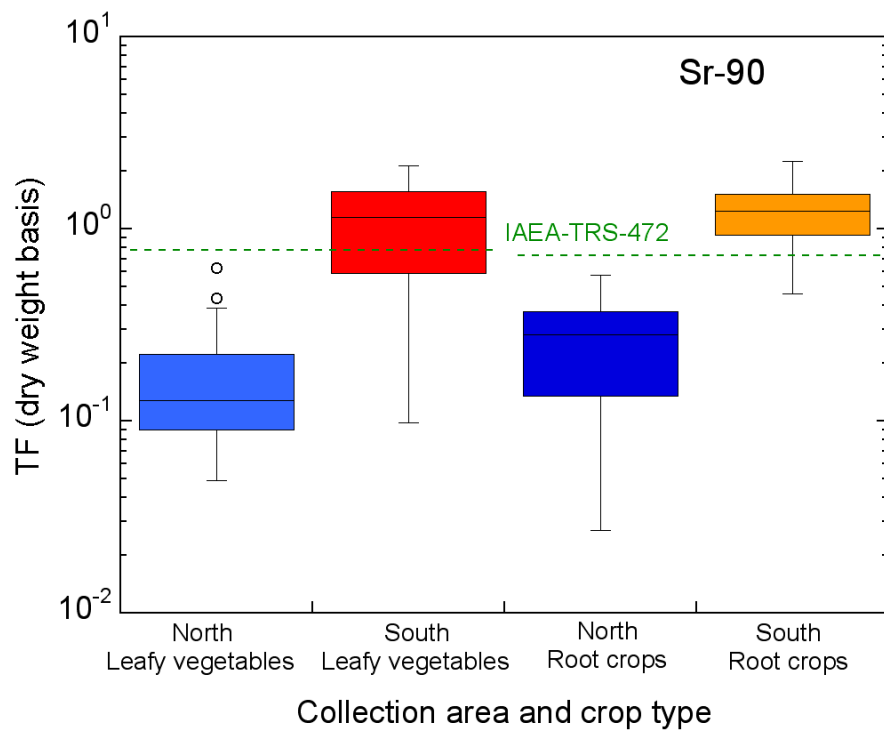
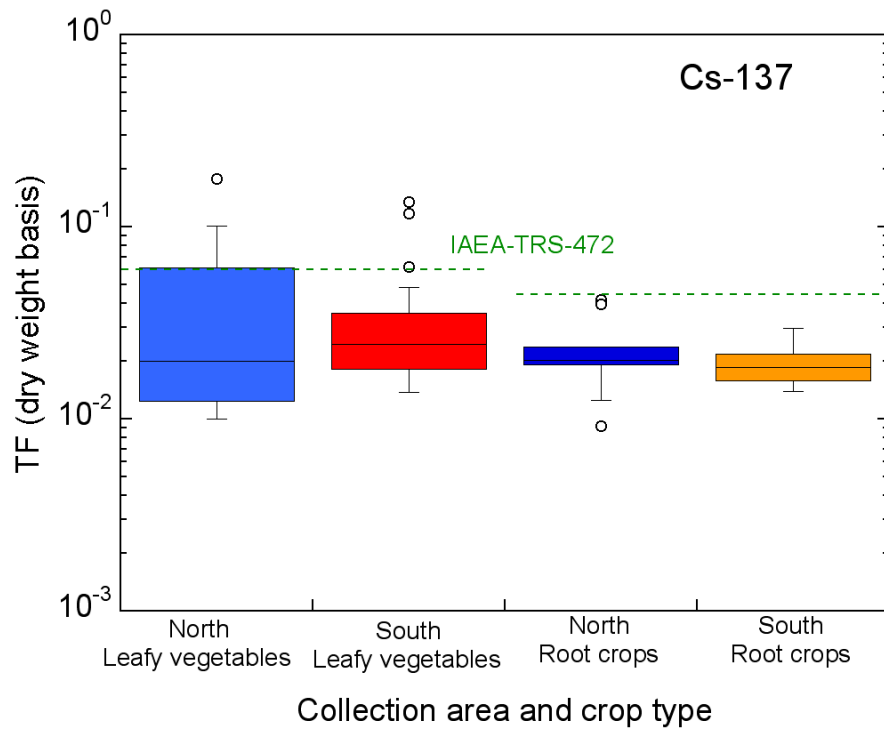


図 2.2-9 比較的寒冷地（北海道および秋田県）と比較的温暖地（高知県および沖縄県）におけるグローバルフォールアウト ^{137}Cs と ^{90}Sr の葉菜類および根菜類への見かけの移行係数の比較

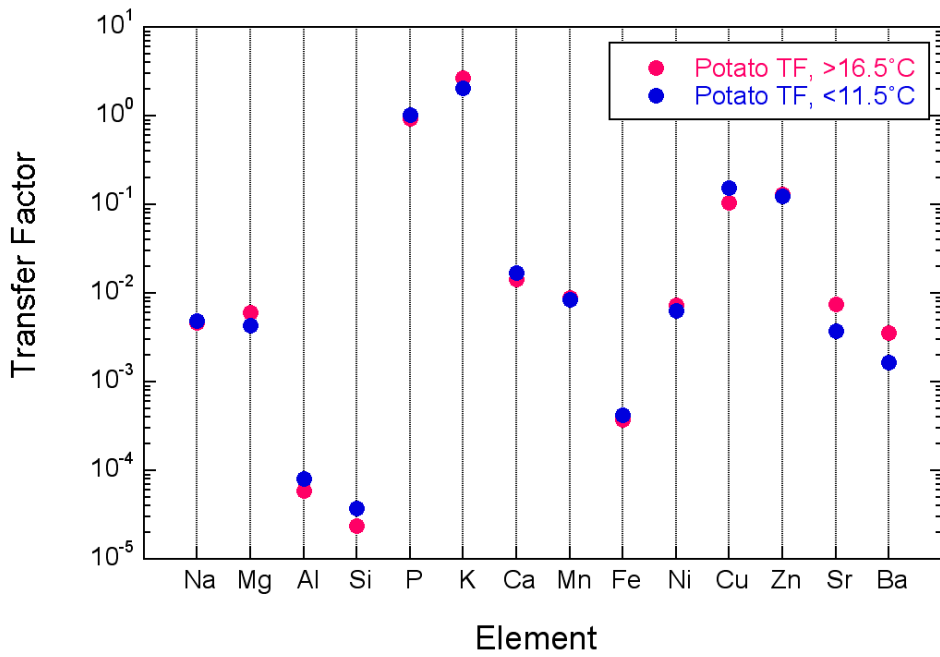
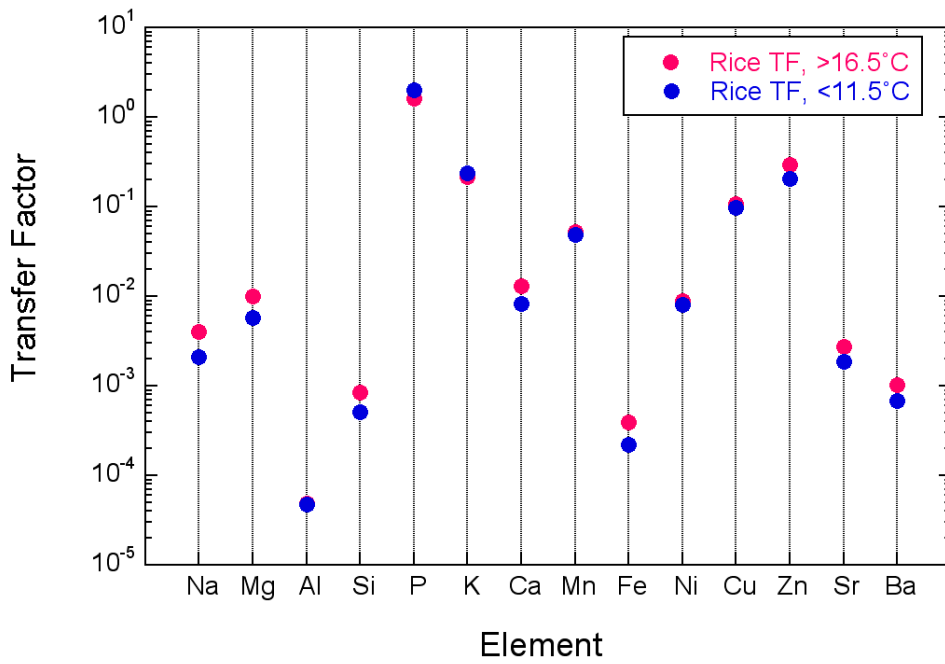


図 2.3-1 平成 26-27 年度に採取した土壌-農作物試料の移行係数の寒冷地と温暖地での比較
上：玄米，下：ジャガイモ

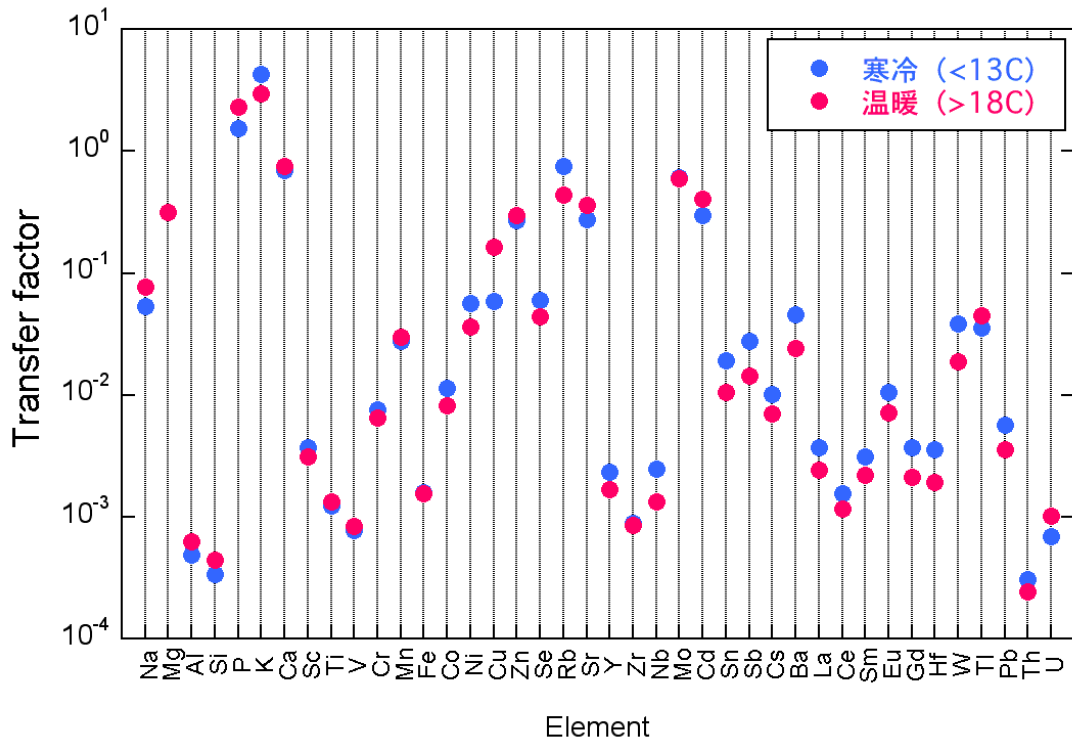


図 2.4-1 葉菜類採取 1 ヶ月前の月の平均気温を用いた分類による TF (幾何平均値) の元素毎の比較

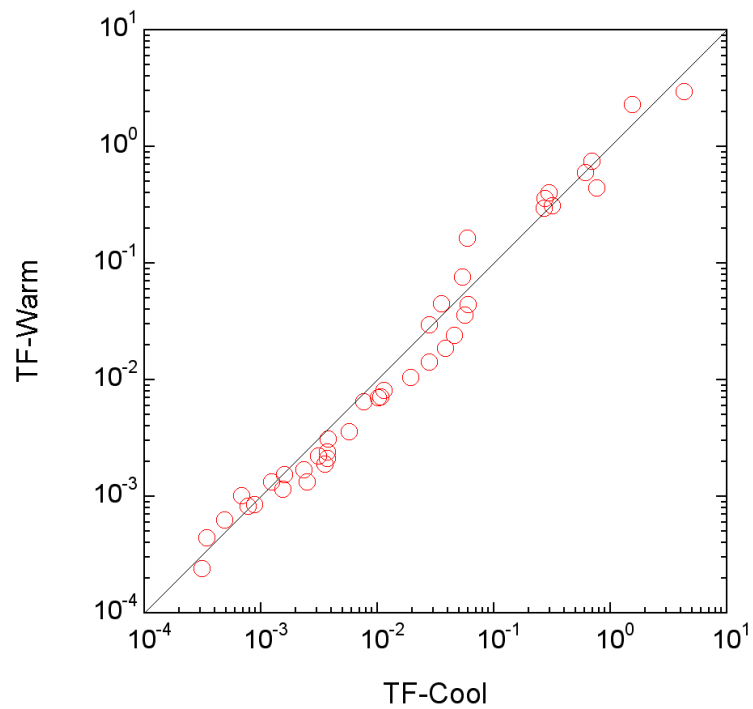


図 2.4-2 葉菜類採取 1 ヶ月前の月の平均気温を用いた分類による TF (幾何平均値) の比較

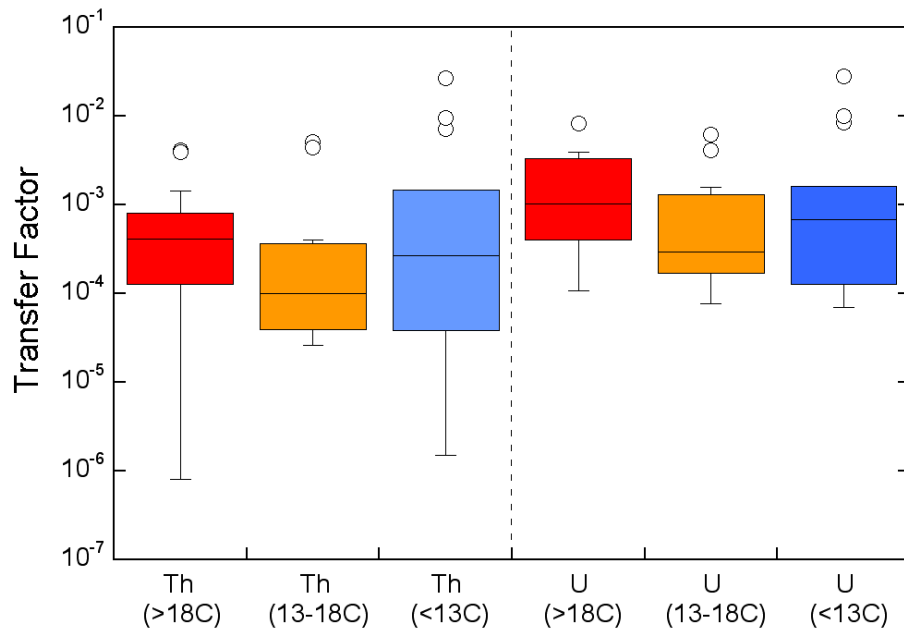


図 2.4-3 葉菜類採取 1 ヶ月前の月の平均気温を用いた分類による Th と U の TF (幾何平均値) の比較

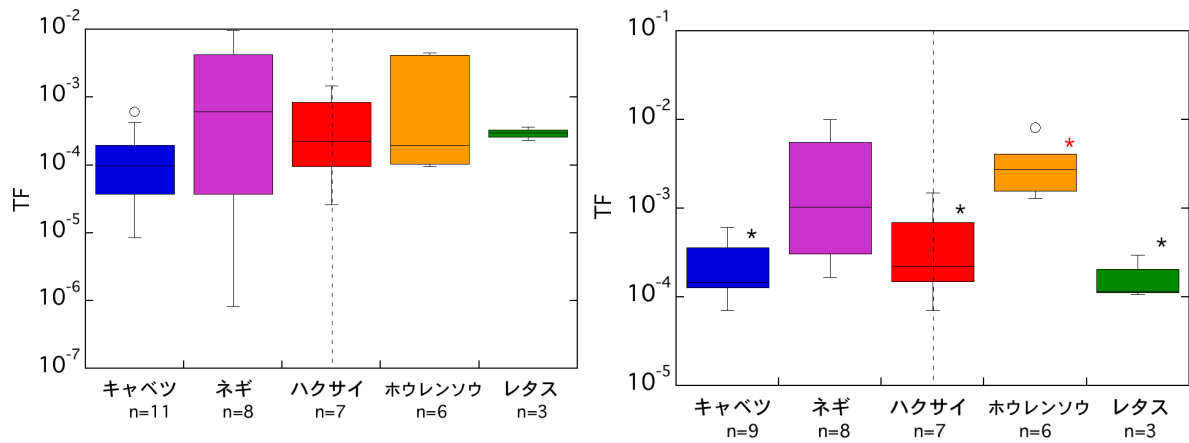


図 2.4-4 葉菜類の作物間の Th (左) と U (右) の移行係数の比較

*: 有意水準 0.05% で * を付した種類と比較したときに有意に高い。

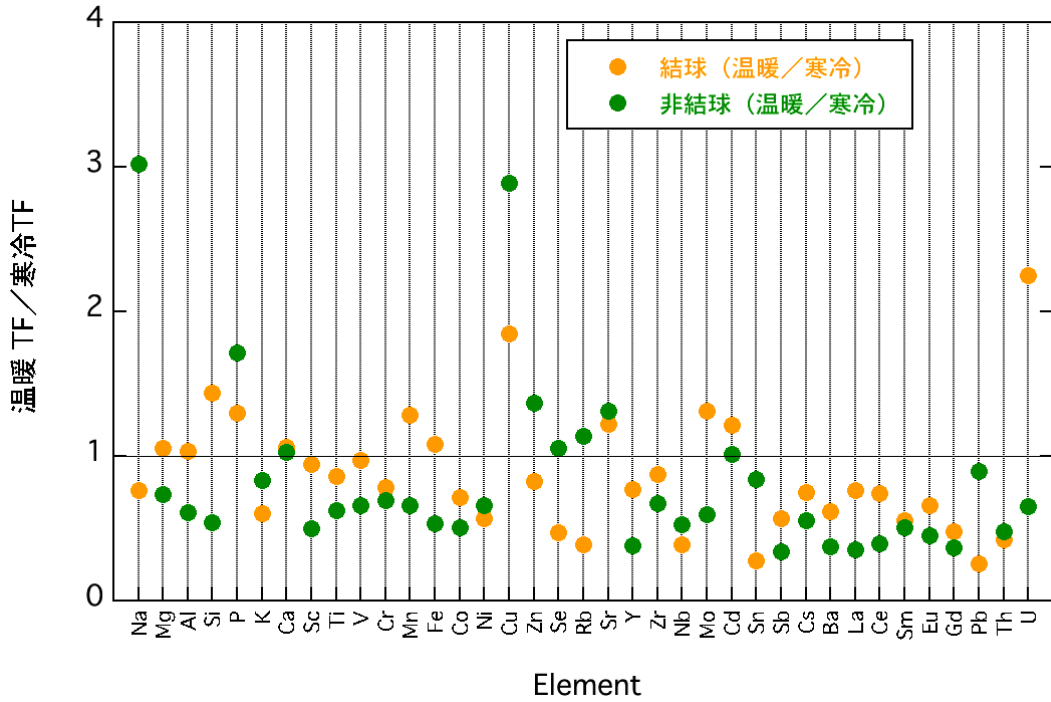


図 2.4-5 結球性および非結球性葉菜類における温暖と寒冷条件栽培の移行係数（幾何平均値）の比較（温暖 TF / 寒冷 TF）

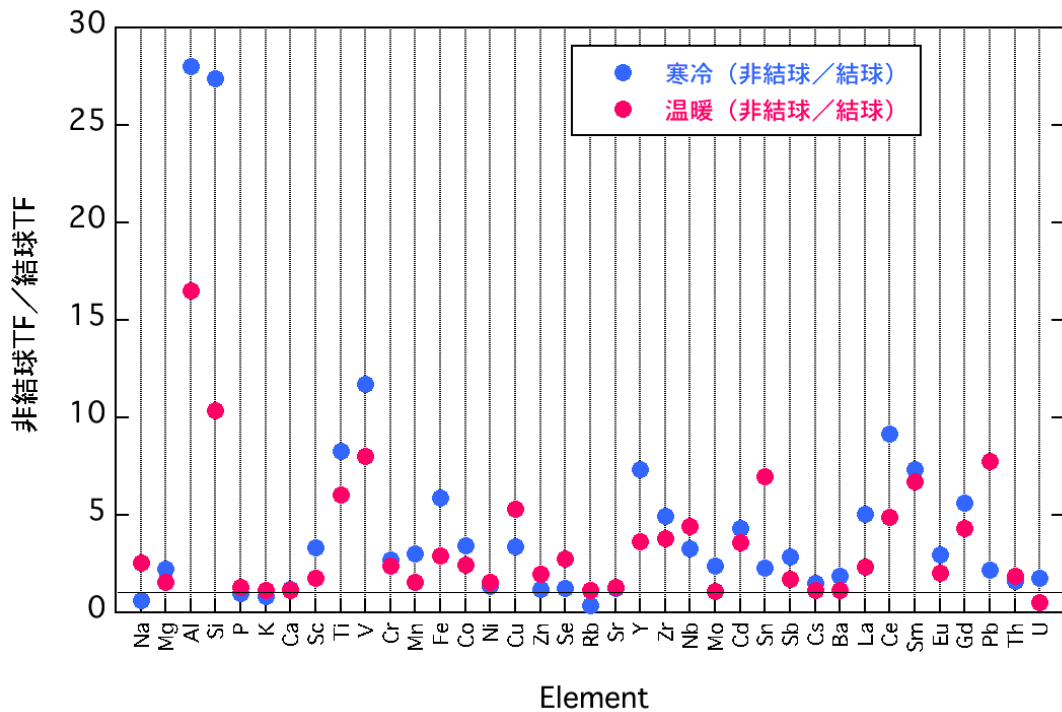


図 2.4-6 温暖および寒冷条件下における結球性と非結球性の葉菜類の移行係数（幾何平均値）の比較（非結球 TF / 結球 TF）

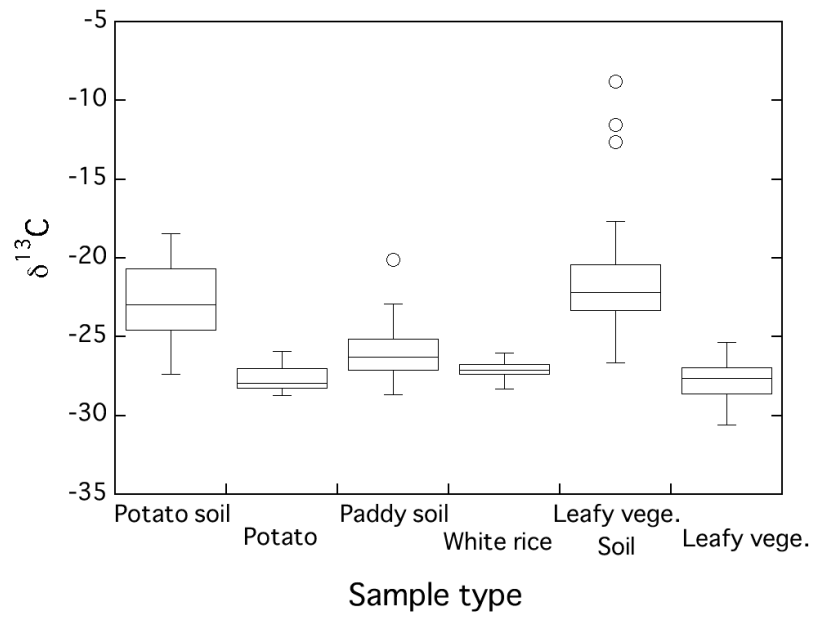


図 2.4-7 葉菜類、白米、ジャガイモおよびそれらの耕作土壌試料中の $\delta^{13}\text{C}$ 値

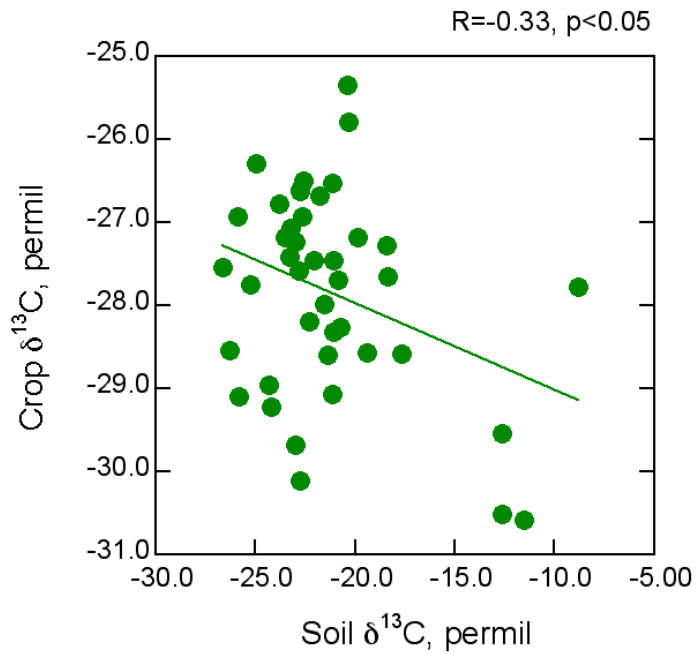


図 2.4-8 葉菜類と土壌中の $\delta^{13}\text{C}$ 値の関係

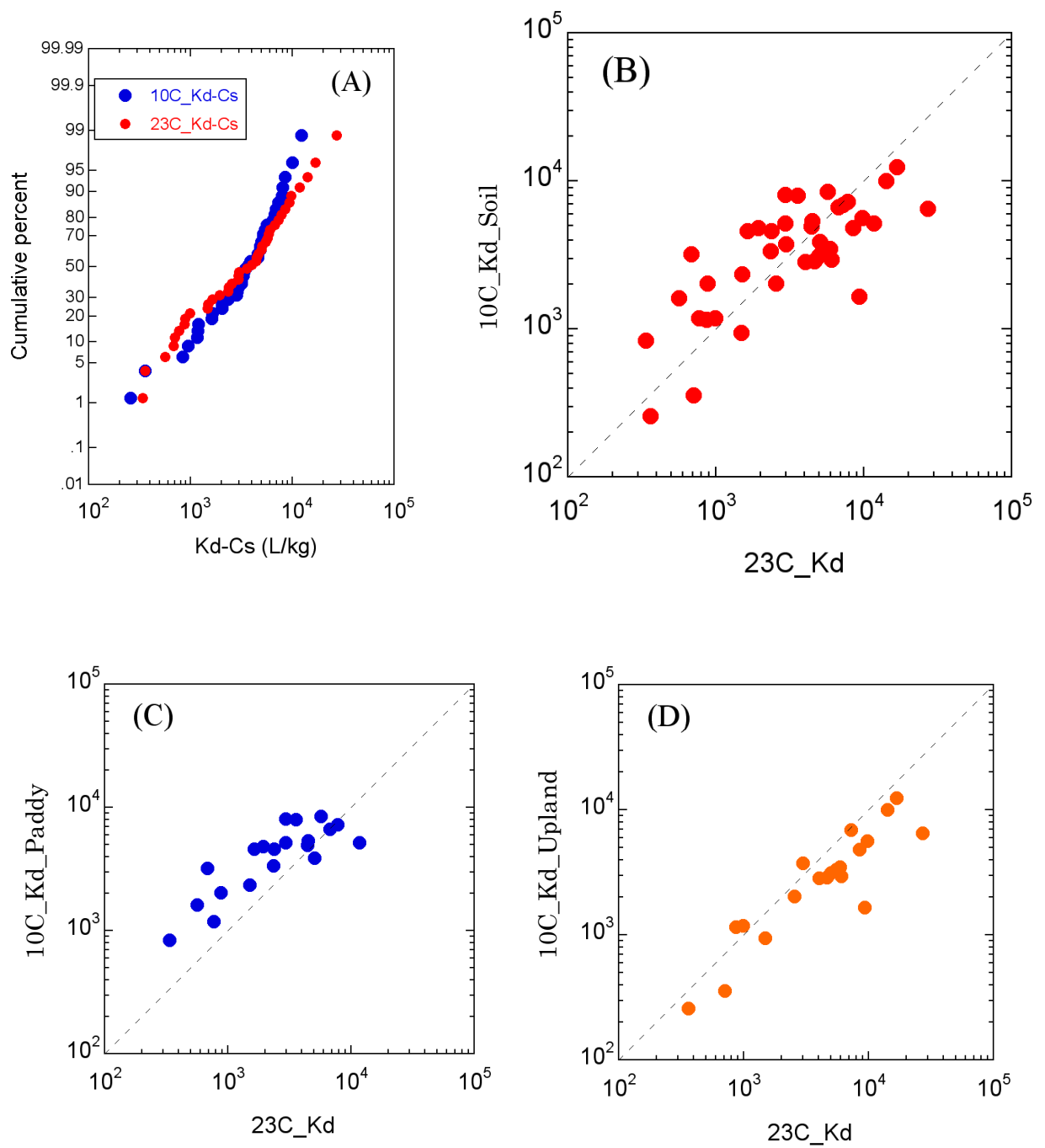


図 2.5-1 10°C と 23°C における Kd-Cs の比較

A: 累積度数分布, B: 使用全 40 試料, C: 水田土壌, D: 畑土壌 (すべて有意差なし)



図 2.6-1 用いた植物試料の写真

左上：カラスノエンドウ，右上：クローバー，左下：カキ（展開葉），右下：ベニカナメモチ

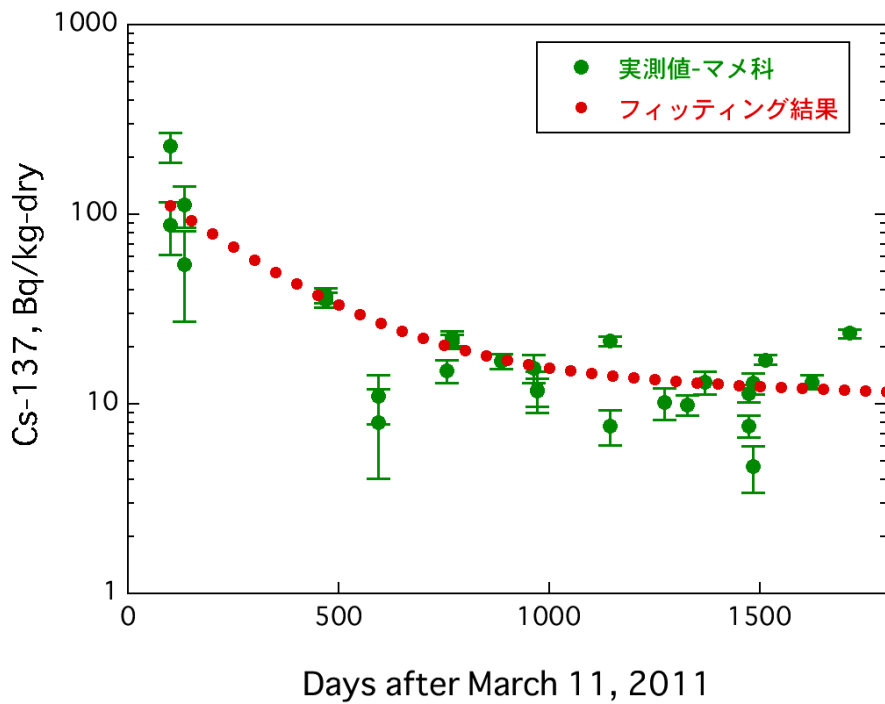


図 2.6-2 マメ科植物中の ^{137}Cs 濃度経時変化と指数関数フィッティング結果

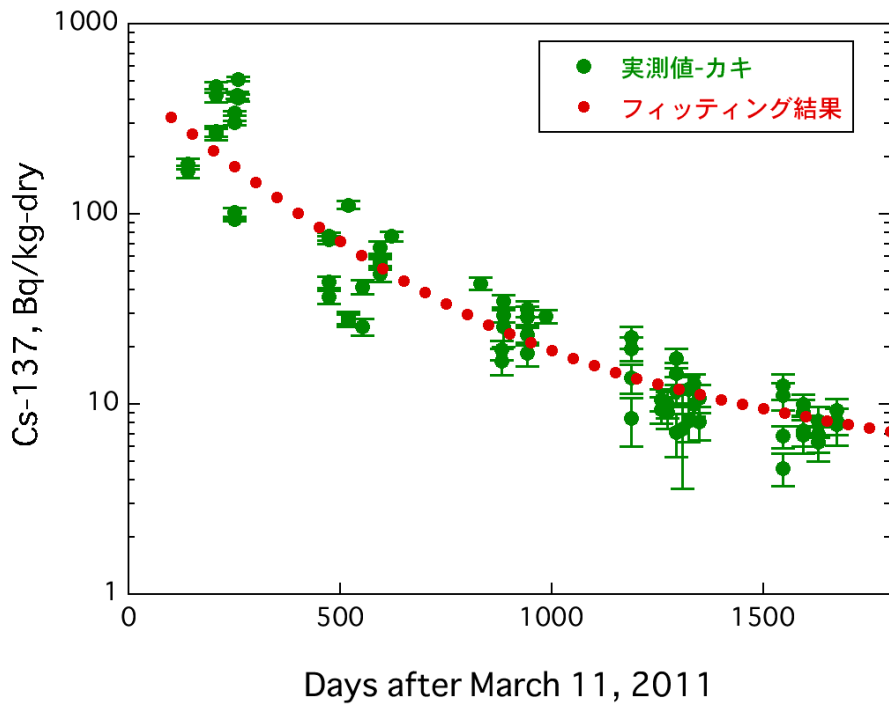


図 2.6-3 カキ（展開葉）の ^{137}Cs 濃度経時変化と指数関数フィッティング結果

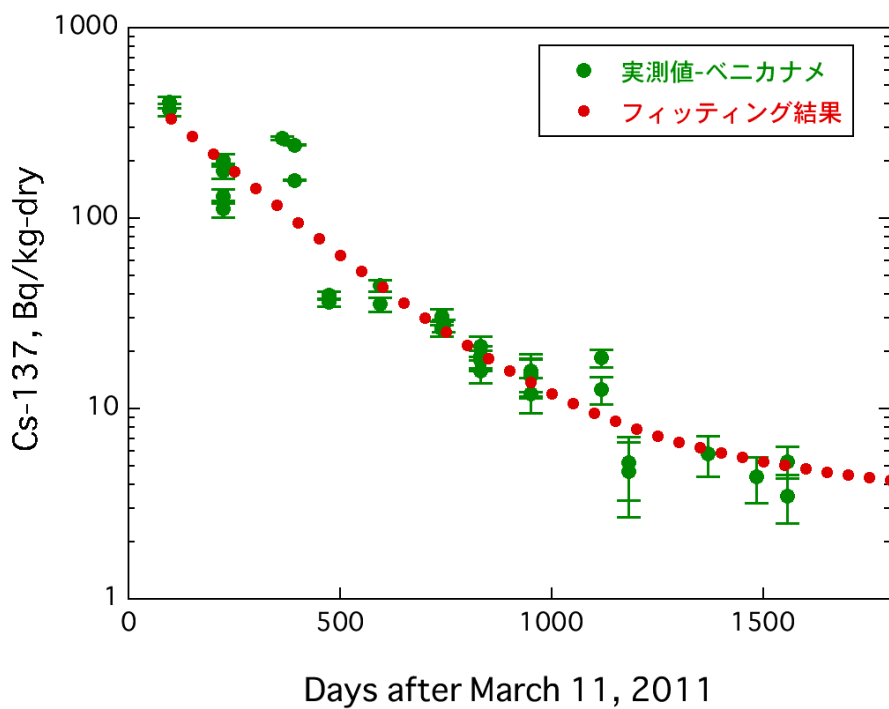


図 2.6-4 ベニカナメモチ（展開葉）の ^{137}Cs 濃度経時変化と指数関数フィッティング結果

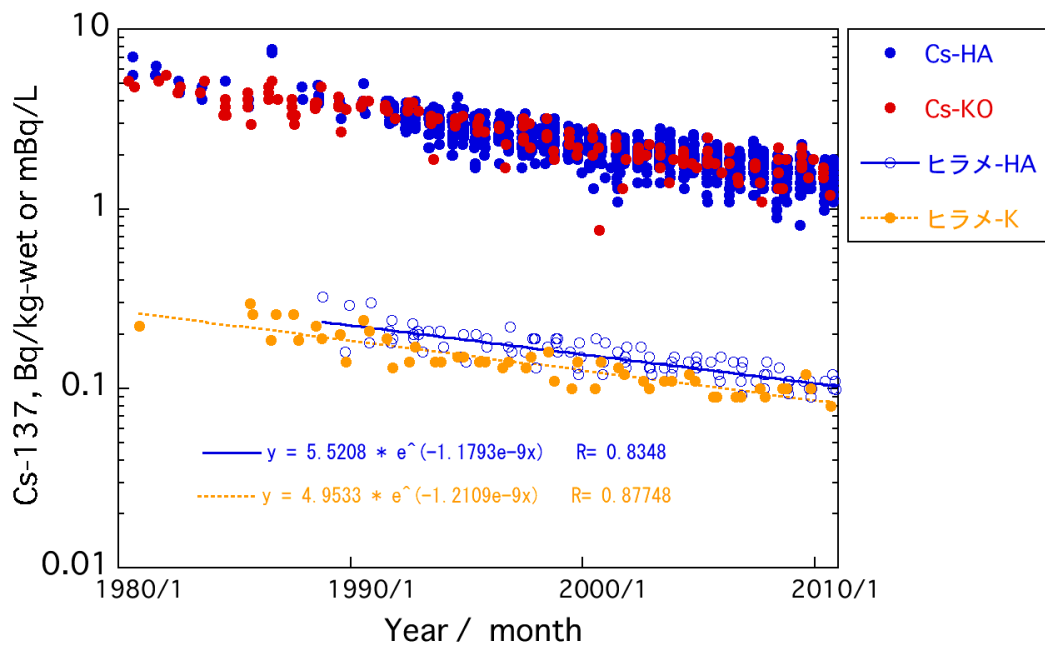


図 2.6-5 北海道 (H) および青森 (A) で採取された海水 (Cs-HA) とヒラメ (-HA), 鹿児島(K)と沖縄(O)で採取された海水 (Cs-KO) と鹿児島で採取されたヒラメ (-H) 中の ^{137}Cs 濃度の経年変化

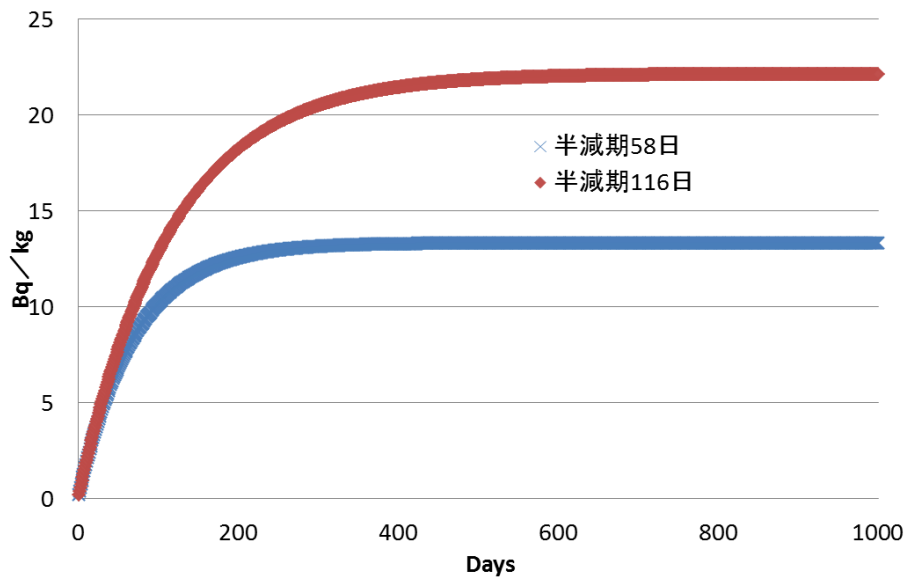


図 2.6-6 遅い移行成分の生物学的半減期のみを変化させたときの魚体中 ^{137}Cs 濃度の変化

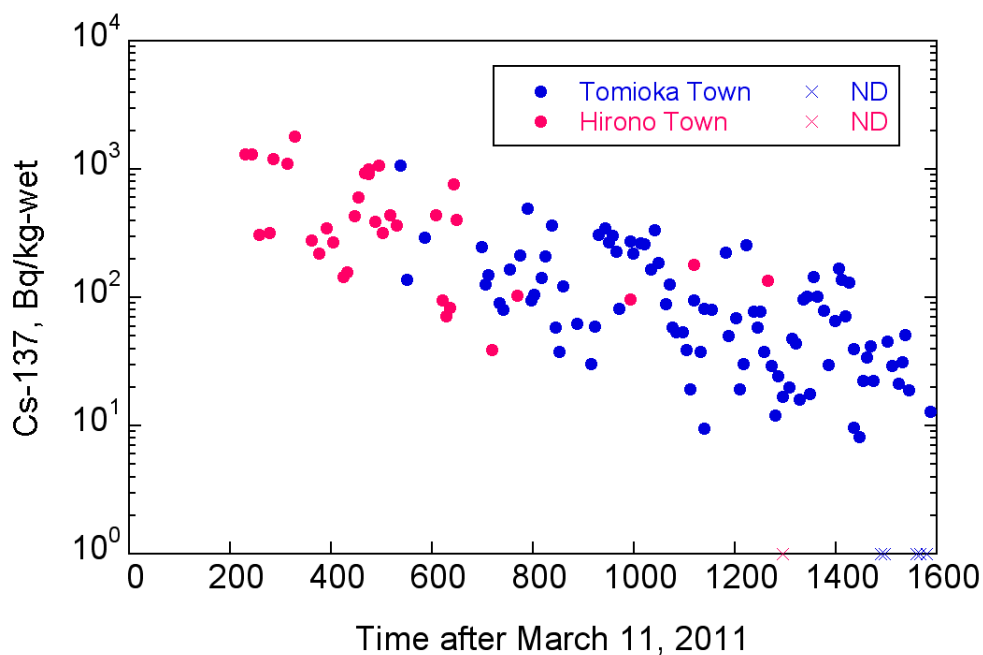


図 2.6-7 福島県広野町および富岡町沖で採取されたシロメバル（可食部）の ^{137}Cs 濃度の経時変化

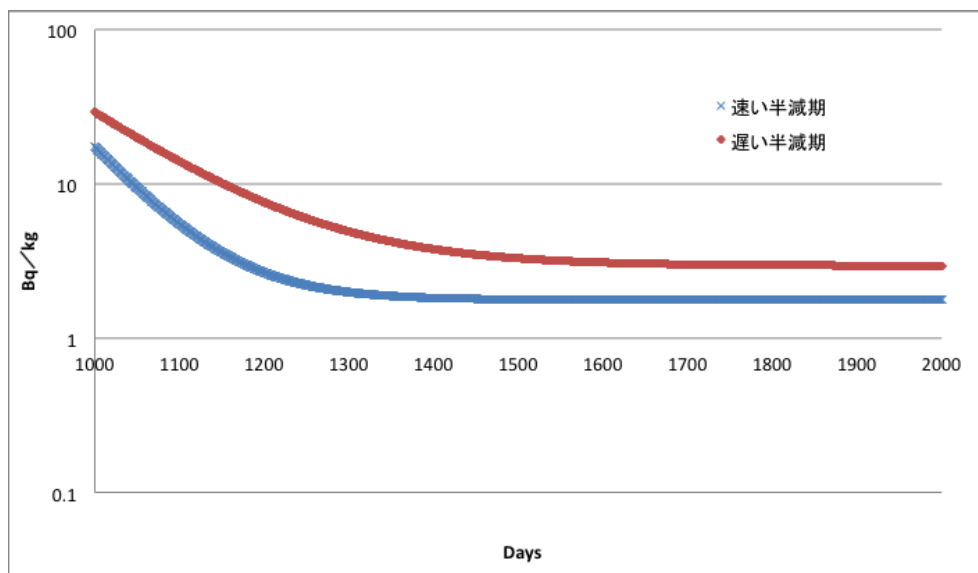


図 2.6-8 遅い成分の生物学的半減期を 58 日と 116 日に設定し、1000 日目以降に餌中の濃度を 1 Bq/kg に減少させたときの魚体中 ^{137}Cs 濃度の経時変化（図 2.6-6 の計算に条件を追加）

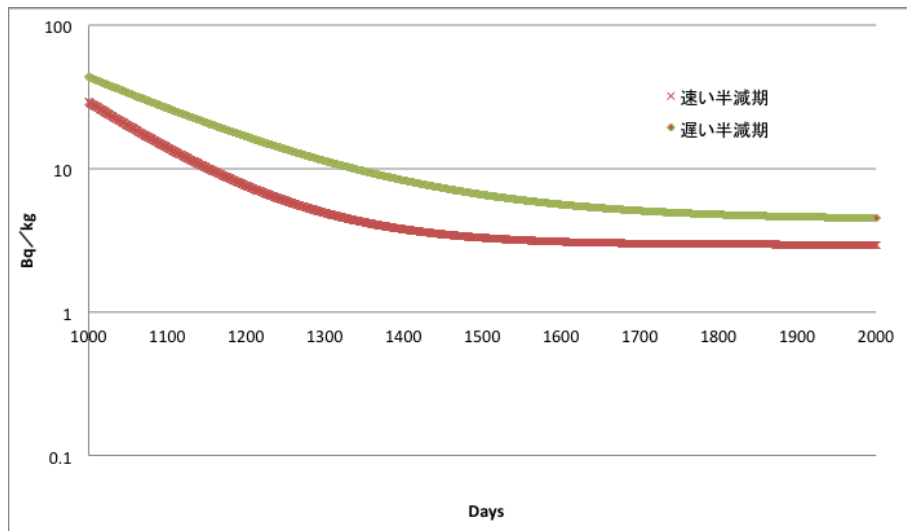


図 2.6-9 遅い成分の生物学的半減期を 116 日と 231 日に設定した時の魚体中 ^{137}Cs 濃度の経時変化



図 2.6-10 採取地点

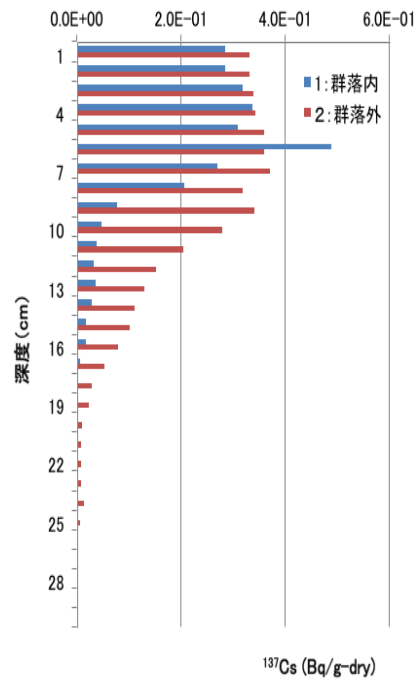


図 2.6-11 土壌コア試料中の ^{137}Cs 濃度分布

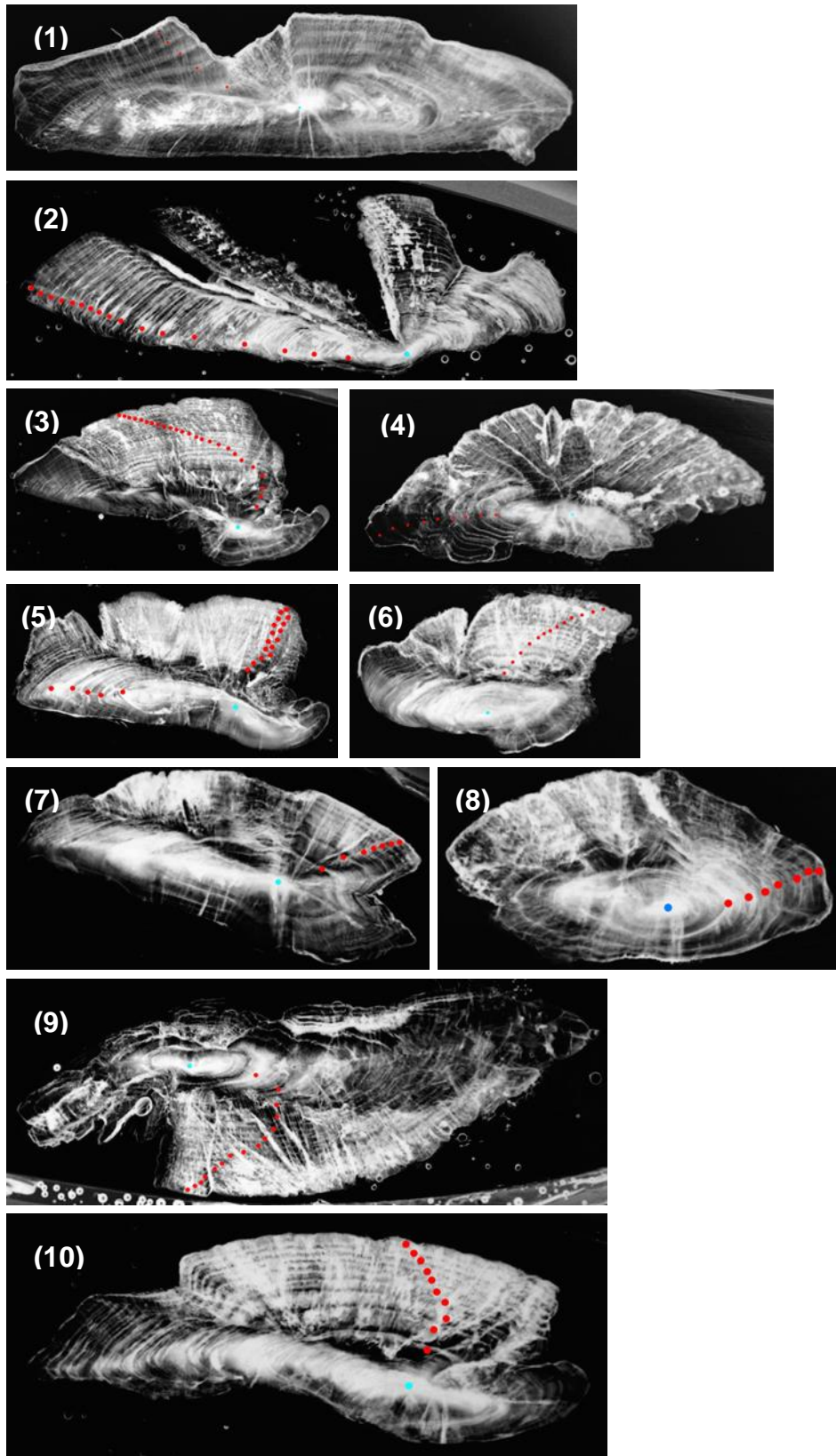


図 2.6-12 耳石による輪紋査定。(1) 72 cm カムルチー, (2) 51 cm コイ, (3) 47 cm コイ, (4) 60 cm アメリカナマズ, (5) 45 cm コイ, (6) 42 cm コイ, (7) 35 cm フナ, (8) 33 cm フナ, (9) 51.5 cm コイ, (10) 27.5 cm フナ。各魚の全長・湿重量は表 2.6-3 を参照されたい。

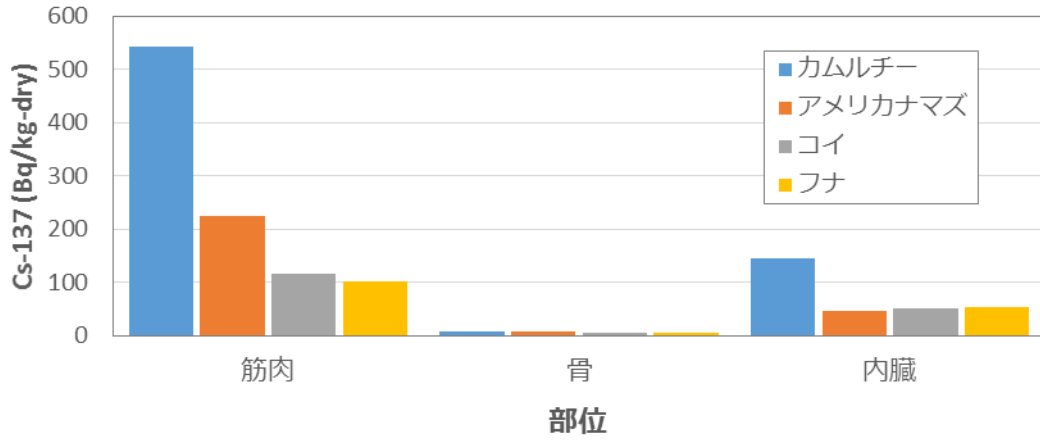


図 2.6-13 各魚種の部位別 ¹³⁷Cs 濃度

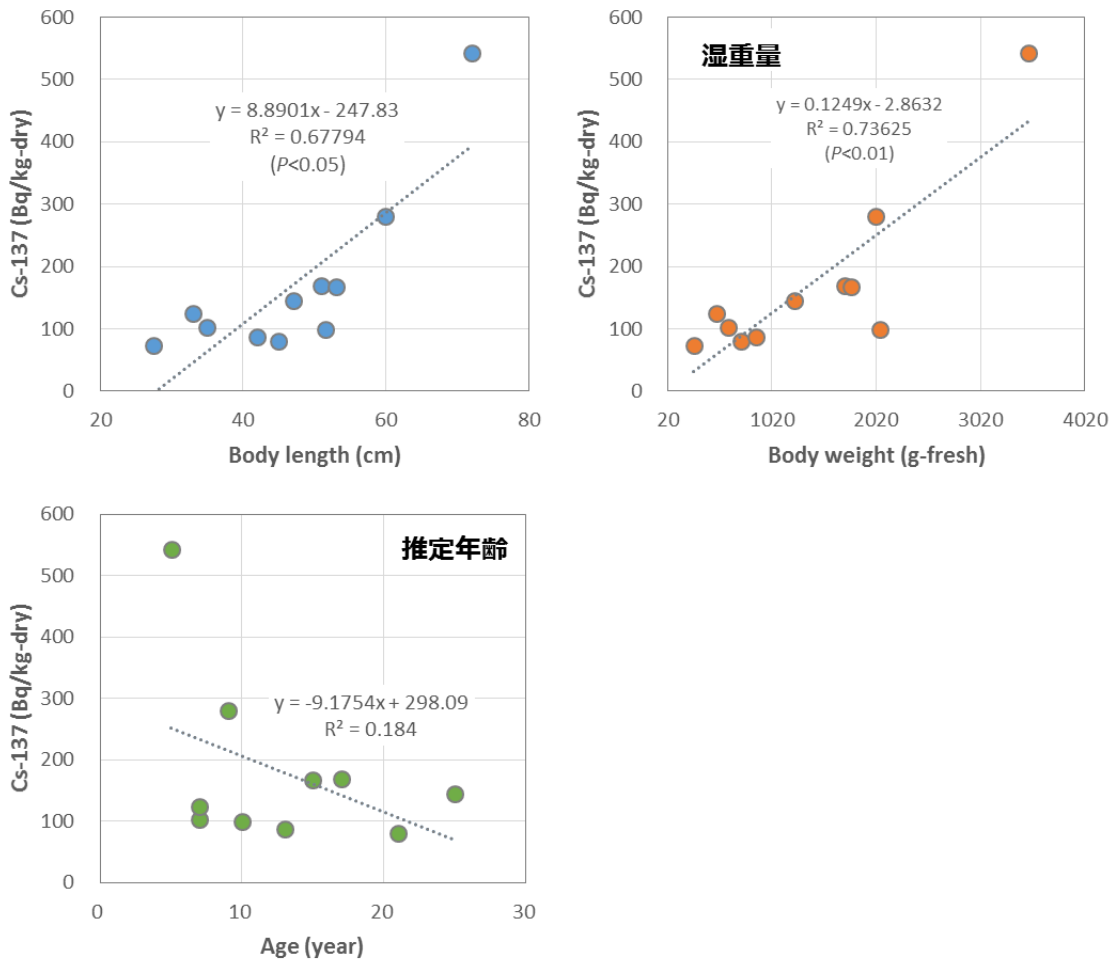


図 2.6-14 ¹³⁷Cs 濃度と全長，湿重量，および推定年齢との関係

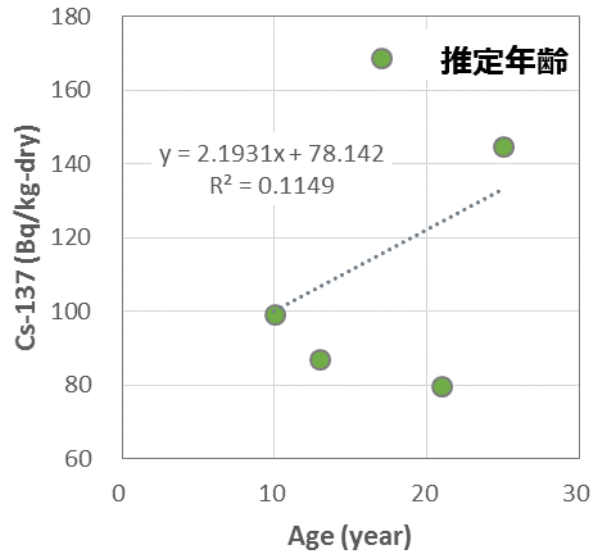


図 2.6-15 コイの推定年齢と ^{137}Cs 濃度との関係

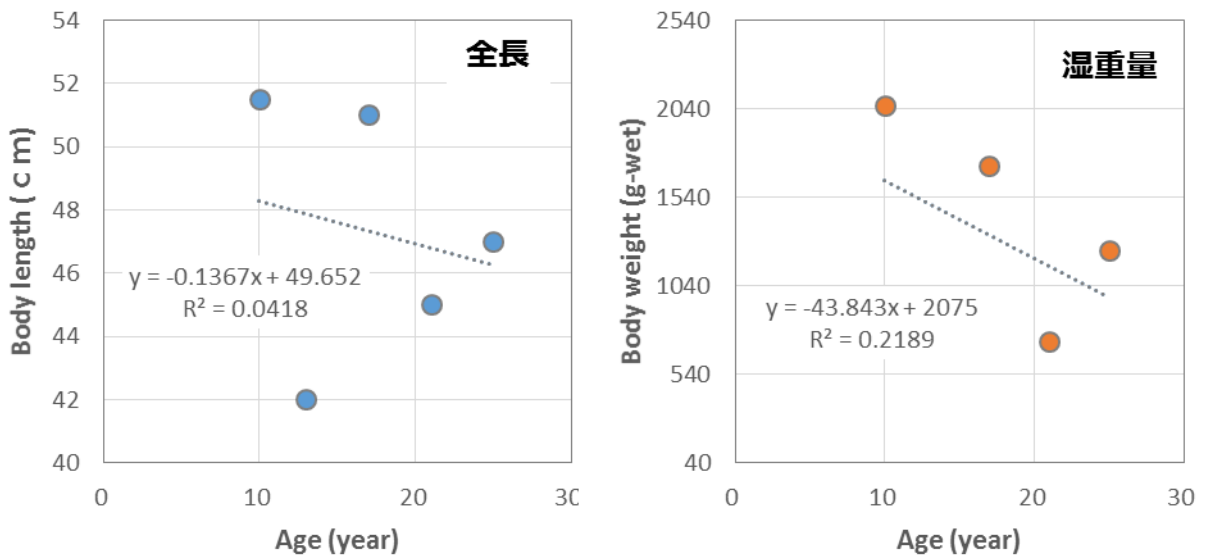


図 2.6-16 耳石による推定年齢と全長および湿重量との関係

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（地下水シナリオおよび近接シナリオ）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、 ^{14}C がヒトに移行する場として生活圏に着目しており、農耕地土壌から農作物への ^{14}C 移行データを収集している。これまでの調査から、生活圏に到達した ^{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おり（Ishii et al., 2015）、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いえる。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（ K_d ）や土壌-農作物間移行係数（TF）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（Ishii et al., 2015）。例えば、 ^{14}C 標識酢酸を添加すると ^{14}C ガスを発生する水田土壌を高熱高压処理あるいは化学的殺菌処理すると、 ^{14}C のガス化はほとんど認められなくなる。この結果は、農耕地における ^{14}C のガス化が、そこに生息する微生物の活動に依存していることを意味している。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（Frölicher et al., 2014）。微生物の活動は気温の変化に対して敏感に反応するため（Castro et al., 2010; Schindlbacher et al., 2011）、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と考えられる。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。ところが、昨年の本事業において微生物の呼吸活性およびアデノシン三リン酸（ATP）量を指標とした微生物バイオマスと ^{14}C ガス化率の関係が調査されたが、有意な相関関係は得られなかった（放射線医学総合研究所, 2015）。つまり、微生物の呼吸活性やバイオマス量は ^{14}C の移行パラメータとして利用できない可能性が示された。相関が得られなかった要因として、 ^{14}C 源として添加した酢酸に対する水田土壌微生物群の資化性が考えられている。酢酸は水田土壌微生物の炭素源としては利用し難い炭素であり、水田に酢酸より利用しやすい有機物が存在すれば酢酸の分解は遅くなり、見かけ上、土壌微生物の活性は高いが酢酸に含まれる ^{14}C のガス化は進まないこととなる。したがって、統括的指標については微生物の活性に囚われることなく柔軟に対応することが重要である。

本事業の目的は、ガスを介した ^{14}C の植物への移行を統括的に評価できる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）微生物と環境移行パラメータの関係、2）気温変化と微生物活動の関係についての調査、3）統括的指標を導入したモデルの試作。昨年度の本事業において、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と報告されている。但し、 ^{14}C の地上での化学形態を明らかにすることは容易ではない。そこで、“微生物と環境移行パラメータの関係”として、水田土壌に生息する土壌微生物による 95 種類の炭素資化性データを収集し、これら炭素資化性と [1,2- ^{14}C] 酢酸ナトリウム由来の ^{14}C ガス化との関係について解析した。炭素資化の速度も気温に影響されることが予想されるため、“温度変化と微生物活動の関係についての調査”において、炭素資化性に対する気温の効果についてデータ収集した。“統括的指標を導入したモデルの試作”では、 ^{14}C ガス発生率を統括的環境移行パラメータとして導入し、水田移行全体モデルを気温変化に対応させた。さらに、水稻全体モデルの精緻化のために模擬水田で葉面積指数（LAI）を実測すると共に、近傍大気と環境大気ガス交換に資する微気象データを収集した。水稻全体モデルに収集した実測データを反映し、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。この章では以上の内容について報告する。

引用文献

- Castro HF, Classen AT, Austin EE, Norby RJ, Schadt CW. 2010. Soil microbial community responses to multiple experimental climate change drivers. *Appl Environ Microbiol* 76:999-1007.
- Frölicher TL, Winton M, Sarmiento JL. 2014. Continued global warming after CO₂ emissions stoppage. *Nature Climate Change* 4:40-44.
- 放射線医学総合研究所. 2015. 平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化開発. 千葉.
- Ishii N, Ogiyama S, Sakurai S, Tagami K, Uchida S. 2015. Environmental transfer of

- carbon-14 in Japanese paddy fields, p 303-309. In Nakajima K (ed), Nuclear Back-end and transmutation technology for waste disposal. Springer, Tokyo.
- Japan Atomic Energy Agency, The Federation of Electric Power Companies of Japan. 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 –. Ibaraki, Japan.
- 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—.
- 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.

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発生する ^{14}C の化学形態は、酢酸、ギ酸、ホルムアルデヒド、メタノールなどの低級炭化水素化合物であることが知られている (Kaneko et al., 2003)。いずれの化合物に含まれる ^{14}C も、農耕地環境においてその大部分がガスとして大気中に放出されるため (放射線医学総合研究所, 2013), ガス化は ^{14}C の特徴的な環境挙動と言える。また, ^{14}C のガス化は主に土壌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推測される。ところが本事業の昨年度の調査では, ^{14}C 標識酢酸の ^{14}C ガス化率と水田土壌微生物の呼吸活性およびバイオマスとの間に有意な相関関係が得られなかった (放射線医学総合研究所, 2015)。 ^{14}C のガス化は ^{14}C 標識酢酸の分解に依存するため, この結果は呼吸活性やバイオマスが必ずしも酢酸の分解と直接的な対応関係にあるわけではないことを意味している。水田土壌には様々な有機物が含まれているため, 酢酸より利用しやすい有機物が存在すれば, まずその有機物が分解されるのであろう。例えば, これまでの本事業の成果においても, 酢酸, ギ酸, ホルムアルデヒド, およびメタノールに関して, それぞれガス化率が異なることが報告されている (放射線医学総合研究所, 2013)。つまり, ^{14}C のガス化は ^{14}C を含む有機物の化学形態に影響されるといえる。

地層処分場で発生する ^{14}C は, 発生当時の化学形態を維持し続けるわけではない。生活圏に到達するまでに様々な化学形態に変化し, 生活圏においても生物による取り込み, 合成, 分解の過程を経て様々な化学形態へと変化すると推察される。つまり, 水田土壌における TRU 廃棄物由来 ^{14}C の化学形態は多様であると考えられる。したがって, 水田土壌に生息する微生物群集がどのような有機物を好んで分解するかを知ることは, 水田生態系における ^{14}C ガスの発生を理解する上で重要である。

本節では, 15 種類の水田土壌を用いて, 各試料の土壌微生物群による 95 種類の炭素資化性について, そして得られた炭素資化性と ^{14}C 標識酢酸の ^{14}C ガス化率の関係について述べる。また, 15 水田土壌の選定理由とともに各土壌の物理化学的特徴についても述べる。

3.2.1. 水田土壌微生物群集による炭素資化

3.2.1.1. 水田土壌の選定条件

平成 14 年度から平成 18 年度にかけて本事業で採取された 63 水田土壌から 15 水田土壌を選定し, 水田土壌微生物群による炭素資化性データを収集した。選定条件および選定された水田土壌試料を表 3.2-1 に示す。選定条件の「7 日目ガス化率」であるが, これは昨年度本事業における成果を利用した (放射線医学総合研究所, 2015)。つまり, 土壌と水を重量比で 1:1 に調整した湛水水田土壌を 7 日間培養した後, RI トレーサーとして [1,2- ^{14}C]酢酸を添加し, そして 1 時間後の ^{14}C ガス化率である。一方, 積算ガス化率であるが, これは本事業における平成 19 年度から平成 24 年度までの成果まとめのデータを利用した (放射線医学総合研究所, 2013)。つまり, 土壌と水を重量比で 1:10 に調整した湛

水田土壌を作成し[1,2-¹⁴C]酢酸を添加後，7日間の培養期間に発生した全¹⁴Cガスの発生率である。選定条件の一つ，炭素/窒素比（炭素率）は有機物分解に関わる指標であり，炭素率が小さい土壌は比較的易分解性の有機物が多く，逆に大きい場合は難分解性の有機物が多い土壌である。そこで，炭素含量，窒素含量，および炭素率を選定の指標とした。土壌炭素含量は平均値に最も近い試料のみを選定基準としたが，土壌窒素含量については最小値に近い試料も選定基準として加えた。日本の水田は収穫後の休閑地に緑肥としてレンゲやヘアリーベッチを栽培することが多い。これは窒素分の供給が目的であり，つまり供給しなければ水稲栽培に必要な窒素が不足することを意味している。また，窒素不足は炭素利用の律速にもなるため，窒素含量の最小値も選定基準に含めた。

7日目ガス化率の項目において平均値に最も近い値を示した試料として，P21を選定した。この水田土壌は，積算ガス化率の項目において最大値を示した試料でもあった。同項目において P55 が最大値を示したが，選定からは外した。P55 はクロボク土であり，水田土壌としてよく利用される沖積土（グライ土や灰色低地土など）とは異なる。これが選定から外した理由である。積算ガス化率の最小値は P32 の 38.3%であるが，46.9%の P33 を最小値に近い試料として選定した。この選定は土壌の種類を考慮したためである。つまり，P32 と P33 はそれぞれ灰色低地土とグライ低地であり，この項目において P32 を選択した場合，選定されるグライ低地土と灰色低地土の試料数は，それぞれ 2 と 6 となる。そこで選定される両土壌試料数のバランスを考え，グライ低地土である P33 を選定した。また，P33 は土壌中窒素含量が平均値に最も近い試料でもあった。

表 3.2-1 の基準で選定した水田土壌 12 試料（重複を除く）の採取地域別および土壌タイプ別に集計した。また，この集計において採取地域は 1）北海道・東北・北陸地域，2）四国・九州・沖縄地域，そして 3）その他の地域の 3 つの地域に分別し，土壌タイプは 1）グライ低地土，2）灰色低地土，3）低地水田度，そして 4）その他のタイプの 4 つに分別した。その結果，四国・九州・沖縄地域から 6 試料が選定されたにも関わらず，北海道・東北・北陸地域からは 3 試料しか選定されなかった。一方，日本の水田でよく利用される土壌タイプである，グライ低地土，灰色低地土，および低地水田土はそれぞれ 3 試料，5 試料，および 3 試料であった。そこで，採取地域と土壌タイプを考慮して北海道・東北・北陸地域からグライ低地土および灰色低地土を各 1 試料ずつ選定した。また，平成 19 年度から平成 24 年までの本事業において，P2 は多くの試験で利用されており，様々なデータが蓄積されている。よって，P2 水田土壌も炭素資化性試験土壌として選定した。以上の基準で選定した水田土壌の地域別および土壌タイプ別集計結果を表 3.2-2 に示す。

3.2.1.2. 選定土壌の物理化学的特徴

1) 測定項目と分析方法

選定 15 水田土壌試料の物理的特徴として粒径組成，仮比重，土粒子密度，含水率を測定した。化学的特徴として電気伝導率，pH，塩基置換容量，置換カルシウムおよびカリウム，活性アルミニウムおよび鉄，炭素含量，そして窒素含

量を求めた。これら物理化学的項目の測定は、土壤環境分析法（日本土壤肥料学会, 1997）に従った。以下に、各測定項目の分析方法について簡単に述べる。

<前処理>

水田より採取した土壤は、風乾し、2 mm メッシュの篩にかけ、これを通過した土壤を分析試料（風乾細土）とした。

<粒径組成>

風乾細土に含まれる有機物を過酸化水素水で分解除去し、ピペット法で粗粒砂，細粒砂，シルト，粘土に分画し，それぞれの相対的存在割合（%）を求めた。

<仮比重>

風乾細土の重量を乾土が占める総容積（気相，液相，固相を含む体積）で割り，さらに水の比重で割り仮比重を求めた。

<土粒子密度>

風乾細土の重量をその土自体の体積（固相のみの体積）で割り土粒子密度を求めた。

<含水率>

風乾細土 2 g を 105°C で 24 時間乾燥し，含水率を求めた。

<電気伝導率>

1:5 水抽出法により求めた。つまり，風乾細土に対する水の比が 1:5 になるように水を添加し，1 時間振とうしたのち，懸濁液に電極を浸し電気伝導率を測定した。

<pH (H₂O)>

ガラス電極法により求めた。つまり，風乾細土に対する水の比が 1:2.5 になるように水を添加し，1 時間静置した。測定前に軽く攪拌し懸濁状態とし，ガラス電極の薄膜部を静かに液中に浸し，測定値が安定したのちに値を読み取った。

<塩基置換容量>

セミマイクロショーレンベルガー法で 1M 酢酸アンモニウムにより抽出後，インドフェノールブルー比色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。塩基置換容量は土壤が持つ負の電荷の総量であり，この値が高いほど保肥能力が高い。

<置換 Ca, K>

上述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の一定量に対し，塩化ストロンチウム溶液を加えて定容し，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のカリウムを原子吸光光度計により測定した。これは作物に吸収されやすいカルシウムやカリウム量の指標であり，値が高いほど肥沃な土壤である。

<活性 Al, Fe>

酸性シュウ酸塩溶解法で 0.2M 酸性シュウ酸溶液により抽出後，上澄みを回収し，ICP 発光分光分析装置によりアルミニウムおよび鉄を測定した。活性アルミニウムや活性鉄はリン酸の吸着に関与する。

<炭素含量，窒素含量>

CHN コーダを用い、乾式燃焼法により総炭素含量と総窒素含量を同時に測定した。

以上の分析により得られた選定 15 水田土壌試料の物理的および化学的特徴をそれぞれ表 3.2-3 と表 3.2-4 に示す。

2) 選定土壌の土性

岩石など土のもととなる材料（母材）が礫、砂利、砂、シルト、そして粘土と風化し、さらには腐植などの生物的作用も関与して土壌ができる。この風化作用により生じた砂、シルト、および粘土の土壌中での割合により土性が決まり、土性の分類は土性三角図が用いられる。そこで、選定 15 土壌の土性の違いを視覚的に表すため、それぞれの土壌に含まれる砂、シルト、および粘土の割合を土性三角図にプロットした（図 3.2-1）。この図から明らかのように、選定土壌はローム、粘土質ローム、砂質粘土ローム、および砂質ロームのいずれかに分類されることが分かった。

3) クラスタ解析

本調査では、砂を粗粒砂と細粒砂に細分して取得している。そこで、これらの項目も加えてより詳細に選定水田土壌の類似度を比較するために、粗粒砂、細粒砂、シルトおよび粘土の割合を用いてクラスタ解析を行った。

はじめに、これらの土壌粒子の存在割合についてユークリッド距離を求めた。つまり、存在割合を平面上の点に置き換え、任意の各 2 点間の距離をピタゴラスの定義から求めた。計算の結果得られたユークリッド距離行列は Ward 法でクラスタリングした。Ward 法は、各対象からその対象を含むクラスタの重心までの距離の二乗の総和を最小化する方法である（國弘ら 2004）。ユークリッド距離の計算、および Ward 法によるクラスタリングはすべて統計環境「R」で行った。結果を図 3.2-2 に示す。選定土壌は大きく分けて 2 つのクラスタに分類できた。この図において、P38 から P50 までを含むクラスタは比較的砂（粗粒砂＋細粒砂）の含有量が高い土壌群であった。この結果から、本クラスタ解析は砂含有量に影響を受けた分類であるといえる。

化学的特徴についても同様にクラスタ解析を行った。ただし、化学的特徴の測定項目で得られた値は単位が様々であり、かつ、数値も窒素含有量の 1 桁から交換性 Ca の 3 桁まで幅が大きい。このようなデータ系列においてユークリッド距離を求めた場合、得られる分類群は大きな値を持つ測定項目に強く影響された結果となる。そこで、標準ユークリッド距離を求めた。つまり、各項目の値を標準偏差で割り、分散を考慮したユークリッド距離として求めた。クラスタリングは Ward 法で行った。結果を図 3.2-3 に示す。P2 のみ他の土壌とは異なるクラスタに分類された。P2 は他の土壌と比較して交換性カルシウム、活性アルミニウムそれに炭素含量が多く、これらの特徴が他の土壌との化学的な違いとして分類されたと考えられる。P2 以外の土壌に関しては、細かく分類すると P27 と P52 のクラスタ、P62 から P33 のクラスタ、P10 のクラスタ

一、P29 と P50 のクラスター、そして P21 から P51 のクラスターに分類できた。

3.2.1.3. 炭素資化性

水田には様々な微生物が生息し、稲わら等の有機物分解、イネに対する窒素、リン酸カリウムなどの必須元素の供給等にかかわっている。ところが、微生物の種構成は土壌により異なるため (Chen et al., 2010)、炭素資化性も土壌で異なるであろう。また、土壌微生物に利用された有機炭素の最終産物は炭酸ガスなので (Six et al., 2006)、炭素資化性の違いは ^{14}C のガス化率にも影響すると考えられる。わが国の水田土壌における炭素資化性に関する情報を蓄積し、どのような炭素源がどの程度利用される可能性があるのか、その範囲を明らかにすることは、地層処分において発生した ^{14}C のガス化の範囲を推定する上で重要な情報となることが期待される。そこで、選定 15 水田土壌を用いて、それぞれの炭素資化性について分析した。

1) 実験材料と方法

15 種類の選定土壌および各土壌の物理・化学特性は前節を参照していただきたい。実験手順の概要を図 3.2-4 に示す。土壌から微生物を抽出するために、様々な方法が考案されているが、それぞれ利点と欠点がある (Stefanowicz, 2006)。本試験では、攪拌により土壌から微生物を抽出し沈降速度の差を利用して土壌粒子と微生物細胞を分ける、Pohland and Owen (2009) の改良法で土壌から微生物細胞を抽出した。

はじめに、湛水土壌を作製した。0.5 g の水田土壌を 50 mL 容のポリプロピレン性コニカルチューブに準備し、0.5 mL の脱イオン水を添加することで湛水土壌試料とし、これを 25°C、静置、暗条件のもと、7 日間培養した。土壌から溶液中に微生物を洗い出すために、培養後、20 mL の脱イオン水を加え湛水土壌試料を激しく攪拌した。脱イオン水の添加および攪拌操作をもう一度繰り返し、総溶液量を 40.5 mL とした。この懸濁試料を 25°C、暗条件のもと、30 分間、200 rpm で旋回振とう培養し、その後、土壌粒子を沈降させるために、さらに 4°C で 30 分間静置培養した。そして、上清 20 mL を新たに準備した 50 mL 容コニカルチューブに回収した。回収操作中に微生物が増殖することを抑制するために、この操作の間、懸濁試料および回収試料は共に氷上に置いた。回収した溶液はよく攪拌した後、脱イオン水で 1.5 倍希釈した。具体的には、8 mL の回収溶液に 12 mL の脱イオン水を加えた。この希釈懸濁溶液試料 150 μL を GN2 MicroPlate (Biolog, Hayward CA) の各ウェルに添加し、微生物の炭素資化性を調べた。GN2 MicroPlate は希釈懸濁溶液試料添加から 7 日間、25°C、暗条件の下で培養した。

GN2 MicroPlate には、95 種類の炭素源と酸化還元反応試薬が予め乾燥状態で各ウェルに充填されている。各ウェルの炭素基質および Grizzle and Zak (2006) のデータを基にした分類群を表 3.2-5 に示す。このウェルに微生物を含む溶液 (本試験では希釈懸濁溶液試料) を添加、培養することにより、炭素源が代謝されたウェルが発色する。この発色は、微生物の呼吸が引き起こすテトラゾリ

ウム塩の還元反応を利用したものであり，炭素資化の程度を表す。テトラゾリウム塩の発色は，マイクロプレートリーダー Spectra Max Paradigm (Molecular devices, Sunnyvale CA) を用い，590 nm の吸光度 (A_{590}) を指標として測定した。各ウェルに添加する溶液には微生物細胞粒子が含まれており，吸光度測定の影響となる。さらに，微生物細胞以外にも溶液中の還元物質によりテトラゾリウム塩が還元されることも考えられる。そこで，はじめに A_{590} と共に 750 nm の吸光度 (A_{750}) を測定し， A_{590} と A_{750} の差 (A_{sample}) を求め，次にネガティブコントロールウェル，つまり炭素源を含まずテトラゾリウム塩のみが含まれるウェルの A_{590} と A_{750} の差 (A_{ncont}) を求め， A_{sample} と A_{ncont} の差をテトラゾリウム塩還元反応による発色値 (以後，微生物活性値とする) とした。微生物活性値の測定は培養開始から 6 日目を除き，7 日間，毎日測定した。実験は 3 回繰り返した。

2) データ解析方法

試料間の炭素源に対する微生物活性を比較するために，Average well color development (AWCD) を式(3.2-1)から求めた：

$$AWCD = \frac{1}{n} \sum (A_{\text{sample}} - A_{\text{ncont}}) \quad \text{式(3.2-1)}$$

ここで， n は炭素基質の数を表しており，GN2 MicroPlate の場合，95 種類の炭素基質が含まれるため “ $n = 95$ ” となる。

水田土壌試料における炭素資化能の α 多様性の評価には，Shannon-Weaver 多様度指数を用いた。各プレートで得られた微生物活性値を基に，式(3.2-2)から H' を求めた。

$$H' = - \sum \left(\frac{A_i}{A_t} \right) \times \ln \left(\frac{A_i}{A_t} \right) \quad \text{式(3.2-2)}$$

ここで， H' は Shannon-Weaver 多様度指数を， A_i はウェル i における微生物活性値で， A_t は全ウェル (本試験では “95” ウェル) の微生物活性値の総和を意味する。これらの計算は Excel で行った。

炭素資化能の類似度を判定するために，培養 5 日目における水田土壌試料の微生物活性値から Bray-Curtis 指数を求め，そのデータに基づき主座標分析 (Principal Coordinate Analysis) を行った。Bray-Curtis 指数であるが，GN2 MicroPlate j の微生物活性値を (X_{1j}, \dots, X_{nj})，GN2 MicroPlate k の微生物活性値を (X_{1k}, \dots, X_{nk}) とするとき，式 3.2-3 で与えられる。

$$B = \frac{\sum_{i=1}^n |X_{ij} - X_{ik}|}{\sum_{i=1}^n |X_{ij} + X_{ik}|} \quad \text{式(3.2-3)}$$

AWCD および Shannon-Weaver 多様度指数の計算は Excel で行い, Bray-Curtis 指数および主座標分析は, 統計環境「R」で行った。

3) 水田土壌微生物による炭素資化の難易度ランク

15 水田土壌試料から抽出した微生物群の微生物活性値を表 3.2-6 に示す。我が国の水田土壌において, 資化されやすい炭素源および資化されにくい炭素源を明らかにするために, 培養期間中における最大微生物活性値を基準に, 炭素資化能力の順位を決定した。始めに表 3.2-6 から水田土壌試料毎に各炭素源に対する最大微生物活性値を抽出し, ランク付けした。炭素資化性は試料ごとに異なり, 試料によっては資化されなかった炭素が存在する。そのため, この作業で得られたランク値で試料間を比較することはできない。そこで, 試料間の比較が可能となるようランク値を標準化した。標準化したランク値は, ランク値をランク値の総和で除すことで求めた。各水田土壌試料で得られた標準化ランク値について, 炭素源毎に総和を求め, この総和のランク値から資化されやすい炭素源および資化されにくい炭素源を求めた。結果を表 3.2-7 に示す。最も資化されやすい炭素源は, Maltose で, 次に α -D-Glucose, D-Galactose, Tween 80, そして Sucrose が続いた。Tween 80 を除き全て糖であった。このことから, 廃棄物由来の ^{14}C が生活圏において糖に変換された場合, ガス化しやすい可能性がある。過去の調査において, ^{14}C は炭酸ガスとして大気中に放出され, 光合成により水稻に取り込まれる可能性が示されている (Ishii et al., 2015)。糖を含む炭水化物は光合成により合成されるため, 植物体に取り込まれた ^{14}C は, 微生物により分解されることにより再び大気中へと拡散すると考えられる。特に水田の場合, 収穫後の刈り株は次期の耕作のためにすき込まれ, 栄養源として利用される。つまり, すき込まれた刈り株は微生物により分解され, 再び水稻に取り込まれる。このように, 収穫により系外に除かれない限り, 水田生態系の中で循環すると考えられる。

一方, 最も資化が難しい炭素は, Formic Acid (ギ酸) で, Thymidine, Glucose-6- Phosphate, N-Acetyl-D- galactosamine, そして D-Serine と続いた。Formic Acid は, これまでに本事業においてガス化の調査が行われてきた炭素源の一つである (放射線医学総合研究所 2011)。酢酸と比較すると, ギ酸に含まれる ^{14}C はガス化しやすいことが報告されている (放射線医学総合研究所 2013)。この報告から, ギ酸は酢酸より資化されやすい炭素源であるように思われる。しかしながら, 湛水土壌試料に添加された両 ^{14}C 化合物は, 培養後も同程度試料溶液中に残存したことから, これらの資化性にはほとんど差がないと考えられる。酢酸の場合, カルボキシル基とメチル基に炭素が存在し, メチル基の ^{14}C は同化作用により細胞内に蓄積されやすく, その結果, 酢酸とギ酸の資化性は同等であるにも関わらず, 放出される ^{14}C ガスの割合はギ酸で高くなったと考えられる。では, なぜ資化しにくいギ酸が過去の ^{14}C トレーサー実験において 85% 以上気相に移行したかは, おそらく初期添加濃度が影響していると考えられる。後述するが, 酢酸の場合, ^{14}C トレーサー実験において安定同位体の酢酸をキャリアとして添加した場合, ^{14}C のガス化が抑制された。

4) 微生物活性の経時変化

各土壌の微生物活性の経時変化を明らかにするために、AWCD 値を求めた。結果を図 3.2-5 に示す。いずれの試料も GN2 MicroPlate に試料を添加した 3 日目以降に AWCD 値の急激な増加が観察され、培養期間中平衡に達することはなかった。このまま培養を続ければ、更に値は増加したかもしれない。しかしながら、培養期間の延長は測定精度の低下を招く恐れがあり、注意が必要である。本試験を通じて得られた経験から、長期の培養によりウェル内の試料溶液が蒸発し、それにより吸光度値が上昇することがあった。特に、GN2 MicroPlate の周辺部のウェルからの溶液の減少が顕著であった（図 3.2-6）。GN2 MicroPlate の標準的な使用法は、150 μ L の溶液試料を添加した後、30°Cあるいは 35°Cで 4 時間から 24 時間培養するとしている（Biolog, Inc., 2016a）。この方法は単離された細菌種の同定を目的としているために、比較的高温で培養を行っている。一方、微生物群集の解析のために開発された EcoPlate は 2 日から 5 日の培養を推奨している（Biolog, Inc., 2016b）。この培養期間が推奨される理由について特に説明はされていないが、試料溶液の減少と関係があると考えている。よって、本試験では EcoPlate の手順を参考にし、培養 5 日目の微生物活性値を基準に解析することにした。

培養 5 日目における AWCD の値を表 3.2-8 に示す。AWCD 値の平均は 1.01×10^{-1} で、最小および最大値はそれぞれ P29 の 2.93×10^{-2} と P11 の 2.76×10^{-1} であった。このように、5 日目において AWCD 値は約 10 倍の差があり、土壌により微生物の炭素資化能力が大きく異なることが分かった。この結果は、土壌により ^{14}C のガス化率が異なることを示唆しており、従って、我が国の水田土壌における炭素資化性の範囲を明らかにすることが重要である。

5) 各水田土壌の炭素資化の多様性と類似度

AWCD は、炭素資化に関して各ウェルの吸光度を全ウェルの吸光度の総和で除した値であり、炭素資化の多様性に関する情報を与えない。例えば、ある特定の炭素源だけ極端に利用できるような微生物が生息する土壌であっても、AWCD 値は高くなることがある。逆に、多様な炭素源を利用できるのだが、個々の炭素源の利用量が少ない場合、AWCD 値は低くなる。しかしながら、炭素資化能の多様性で考えれば、おそらく後者の例のほうが多様度指数は高くなると考えられる。そこで、炭素資化性の多様性を評価するために、5 日目における Shannon-Weaver 多様度指数 (H') を求めた（表 3.2-8）。また、AWCD と H' の関係を図 3.2-7 に示す。AWCD に対する H' の一時回帰直線の相関係数は有意であり、AWCD の増加に伴い炭素資化能の多様性も増すことが示された。同時に、P10 や P47 のように、AWCD 値が小さいにも関わらず、 H' が比較的高い土壌も存在することが確認できた。 H' が高い土壌は、気温の変化などの環境の変化により微生物活動が活発になった場合、様々な炭素源を利用し炭酸ガスを発生しやすいかもしれない。そのため、 ^{14}C の安全評価における詳細調査において、 H' は重要な調査項目となると考えられる。

次に、各水田土壌試料の炭素資化能の類似度を明らかにするために、各試料の微生物活性値を基に主座標分析を行った。結果を図 3.2-8 に示す。P2, P11, P24, および P27 は、第 1 固有ベクトル方向に、他の試料とは異なる位置に配置された。さらに、この 4 試料は比較的近接した距離を保っていたことから、炭素資化能が似ているといえる。炭素資化能であるが、この 4 試料は何れも他の土壌試料と比較して AWCD 値が高く（図 3.2-5）、従って、他の試料より多くの炭素を基質として利用できる微生物が生息していることを意味している。その他の試料については第 2 固有ベクトル方向においてばらけており、先の 4 試料と比較すると炭素資化能の類似度は低いといえる。

次に、炭素の利用し易さのパターンを指標として非計量多次元尺度法による多変量解析を行った。解析データとしてランク値から標準ユークリッド距離を求めた値を用いた。結果を図 3.2-9 に示す。第 2 固有ベクトル軸方向において、P33 のみ他の土壌試料とは異なる位置に配置された。先に述べたように、水田土壌微生物にとって Sucrose は利用しやすい炭素であるのだが、P33 による Sucrose の利用順位は 68 位であり、決して利用しやすい炭素ではない。また、N-Acetyl-D- glucosamine や L-Glutamic Acid に関しても、利用しやすさの平均順位はそれぞれ 20 位と 9 位であるが、P33 ではそれぞれ 94 位と 70 位であった。このような P33 の炭素資化性の特異性が、他の土壌とは異なるパターンとなった原因と考えられる。今後、P33 に生息する微生物群を明らかにすることで、どの微生物がどの炭素を利用するか明らかにできると考えられる。

3.2.2. 酢酸資化能力と ^{14}C ガス化率との関係

本事業では、これまで主に酢酸についてデータが収集されてきた。GN2 MicroPlate には酢酸も炭素源として充填されているため、このプレートの得られた酢酸の資化性を確認すると共に、 ^{14}C のガス化率との関係について検討した。

3.2.2.1. 酢酸に対する微生物活性

各土壌試料における酢酸を基質とした場合の微生物活性の経時変化を図 3.2-10 に示す。明確な増加が確認できたのは、P24 と P27 のみであった。しかしながら、両試料の最大値ですら AWCD の平均値 (1.01×10^{-1}) より小さいことから、GN2 MicroPlate に充填された炭素源の中でも酢酸は利用しにくい炭素源であるといえる。表 3.2-7 から、炭素源としての使いやすさは 95 種類の炭素源のうち酢酸は 81 番目であった。この結果からも、水田土壌微生物にとって酢酸は利用しにくい有機炭素であるといえる。

3.2.2.2. ^{14}C ガス化率との関係

GN2 MicroPlate による酢酸資化能と ^{14}C のガス化の関係を確認するために、GN2 MicroPlate における最大微生物活性値と、培養 7 日目における ^{14}C ガス化率の関係を調べた。 ^{14}C ガス化率であるが、平成 26 年度の本事業において、本年度と同じ水田土壌を用いた ^{14}C ガス化の試験が行われているため（放射線医

学総合研究所, 2015), この成果を利用することとした。本年度の炭素資化試験と平成 26 年度の ^{14}C ガス化試験も, 共に湛水から 7 日目の試料を用いて試験が行われている。

酢酸資化能と ^{14}C のガス化の関係は Spearman の順位相関で確認した。各試料の最大微生物活性値および ^{14}C ガス化率の順位を求め, 両パラメータの関係を図 3.2-11 にプロットした。相関係数は -0.08 であり, 両パラメータ間に有意な相関は認められなかった。しかしながら, この相関関係には注意が必要である。本年度の試験では, 培養後, 土壌から抽出した微生物懸濁液を脱イオン水で 120 倍に希釈して試験に供したが, 平成 26 年度の試験では湛水水田土壌試料そのものに $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムを添加した。したがって, 試料に含まれる微生物量は GN2 MicroPlate 試験において 120 倍程度少ないと考えられる。また, GN2 MicroPlate のウェルには炭素源として既に酢酸が充填されている。残念ながら充填量に関する情報は得られなかったが, 過去に行われた本事業の ^{14}C トレーサー実験において添加された酢酸量よりは, 多くの酢酸が添加されていると考えられる。GN2 MicroPlate と同じく Biolog 社が販売する MT2 MicroPlate は炭素源が充填されておらず, 任意の有機物をユーザーが添加することが可能な製品である。各ウェルには GN2 MicroPlate と同じテトラゾリウム塩のみがウェルに充填してある。MT2 MicroPlate に炭素源を添加する場合, ウェル当たり 0.3 mg の炭素源を充填することが推奨されており, これを GN2 MicroPlate に当てはめると 0.3 mg の酢酸がウェル充填されていたことになる。ウェルには試料溶液を $150\text{ }\mu\text{L}$ 添加することから, ウェル中の酢酸濃度は約 33 mmol/L と計算される。この濃度は, 先の試験より微生物の活動を抑制するのに十分な濃度である。一方, ^{14}C トレーサー実験では容器当たり約 100 pmol の酢酸を添加しており, GN2 MicroPlate の添加量と比較して, 十分に少い添加量であったといえる。このように初期濃度の違いが, 酢酸資化能と ^{14}C のガス化の関係に影響したと考えられる。従って, 酢酸資化能と ^{14}C のガス化の関係については, より詳細な検討が必要である。

3.2.2.3 微生物活性に対する酢酸の効果

GN2 MicroPlate に充填された酢酸の資化性の結果から, 酢酸は微生物にとって利用し難い有機物である可能性が示唆された, そこで, 微生物活性に対する酢酸の効果を確認するために, ^{14}C トレーサー実験を行った。

1) RI トレーサー実験手順

0.5 g 風乾水田土壌 (P36, 褐色低地土) を 30 mL 容のガスクロバイアルに準備した。酢酸は嫌氣的な有機物分解過程の中間代謝産物として生成される。水田での濃度はおよそ 10 mmol 程度であるため (犬伏, 1994), 準備した水田土壌を 10 mmol の酢酸ナトリウム溶液 (0.5 mL) と混合した。また, 酢酸ナトリウム溶液の代わりに脱イオン水と混合した湛水土壌試料も作成した。これら湛水土壌試料は 3 本準備し, 1 本はオートクレイブ滅菌した。以上の手順で準備した湛水土壌試料に, RI トレーサーとして $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウム ($^{14}\text{C}\text{-NaOAc}$)

を添加した。添加した $^{14}\text{C-NaOAc}$ の濃度はおよそ 100 pmol であった。また、土壌湛水のために用いた脱イオン水と酢酸ナトリウム溶液、および $^{14}\text{C-NaOAc}$ は、添加直前にろ過滅菌したものを使用した。 $^{14}\text{C-NaOAc}$ 添加後、試料は 25°C、暗条件で静置培養した。培養期間中、発生したガスが容器から漏れ出さないようにブチルゴム栓で容器を密封した。サンプリングは毎日新しい試料で行い、1 時間当たりの $^{14}\text{CO}_2$ 発生量と呼吸活性を求めた。

発生した $^{14}\text{CO}_2$ は、1N NaOH で回収した。試料容器の上流から空気を 20 mL/分の速度で 10 分間通気し、試料容器下流に設置した NaOH 溶液 (3 連) に通した。この NaOH 溶液と液体シンチレーションカクテル (Hionic-Fluor, PerkinElmer) を混合し、液体シンチレーションカウンターで ^{14}C の放射能を測定した。

呼吸活性はヨードテトラゾリウムクロライド (INT) を用いて測定した (放射線医学総合研究所, 2015)。測定方法の概要を簡単に述べる。湛水土壌試料に 1% INT 溶液を添加し、25°C、暗条件で 1 時間培養した。この培養期間中に細胞内で形成される INT-フォルマザンを抽出するために、N,N-ジメチルホルムアミドを添加、混合し、続いてエタノールを添加して混合した。これを 3,000 rpm で 5 分間遠心分離し、得られた上清をさらに 12,000 rpm で 5 分間遠心分離した。最終的に得られた上清の波長 485 nm における吸光度を測定し、既知の INT-フォルマザンで作成した検量線で定量した。

2) $^{14}\text{CO}_2$ 発生量と呼吸活性に対する酢酸添加の効果

培養期間中、日毎の 1 時間当たりの $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量と呼吸活性を図 3.2-12 に示す。単位時間当たりの $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量は、どの培養日においても同程度であった。脱イオン水で湛水した試料は平均 238 ± 27 Bq/g-dry/h の $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生した。一方、酢酸ナトリウムで湛水した土壌では、 12 ± 5 Bq/g-dry/h の $^{14}\text{CO}_2$ ガスしか発生せず、これは脱イオン水で湛水した試料と比較して約 20 倍低い発生量であった。 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量の低下の原因であるが、酢酸ナトリウムが直接的に微生物活動を抑制した可能性と、酢酸ナトリウム添加に伴う湛水土壌試料の pH の変化が微生物活動を抑制した可能性とが考えられる。そこで、湛水土壌試料の pH の変化を確認するために、P36 土壌を脱イオン水、10 mmol/L および 33 mmol/L の酢酸ナトリウム溶液で湛水し、これらの溶液の添加直後および 2 時間後に土壌溶液の pH を測定した。脱イオン水で湛水した場合、2 時間で土壌溶液は pH5.8 から pH5.1 に変化した。同じく 10 mmol/L および 33 mmol/L の酢酸ナトリウム溶液で湛水した場合、それぞれ pH6.9 から pH5.2 へ、pH7.3 から pH5.4 に変化した。酢酸ナトリウム添加直後、土壌溶液の pH は上昇したが、土壌の緩衝作用により脱イオン水と同定程度の pH になることが確認できた。従って、酢酸ナトリウム添加による $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量の低下の原因は、酢酸ナトリウムが直接的に微生物活動を抑制した結果と考えられる。この試験において酢酸ナトリウム溶液で湛水した試料は脱イオン水で湛水したコントロール試料と比較して炭素源が余分に添加されているので、酢酸による $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生抑制効果をより正確に評価するためには、 CO_2 の発生量あるいは比放射能 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) を比較するとよいと考えられる。

同様に、呼吸活性も酢酸ナトリウム添加により抑制された（図 3.2-11）。呼吸活性は $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量とは異なり、日毎に値が増加した。この傾向は、脱イオン水で湛水した土壌においても、酢酸ナトリウムで湛水した土壌でも観察された。この結果は、土壌を湛水することにより微生物が活発に増殖した結果と思われる。したがって、酢酸ナトリウムによる呼吸活性の抑制は、細胞増殖も抑制した可能性がある。

呼吸活性は日毎に増加するにもかかわらず、 $^{14}\text{CO}_2$ ガスは一定量しか発生しなかった。この結果は、 $^{14}\text{C-NaOAc}$ を利用してガス化する微生物種がある特定種に限られる可能性を示唆している。つまり、 $^{14}\text{C-NaOAc}$ をガス化する微生物は、本試験における培養条件および培養期間では増殖できず、その結果 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量が増大しなかったと考えられる。

以上の結果から、10 mmol の酢酸は水田土壌微生物の活性を抑制し、 $^{14}\text{CO}_2$ ガスの発生を抑制しているといえる。水田で発生する $^{14}\text{CO}_2$ ガスは光合成により水稻に取り込まれることから $^{14}\text{C-NaOAc}$ を利用する微生物を特定し、その微生物の水田における生態を明らかにすることは、TRU 廃棄物の線量評価において重要と思われる。

3.2.3. まとめ

15 種類の水田土壌を用いて、各試料の土壌微生物群による 95 種類の炭素資化性について調査した。さらに、本試験で得られた酢酸資化性と過去の本事業で得られた ^{14}C ガス化率の関係について検討した。

まず、過去に採取した水田土壌から、本試験で用いる 15 土壌を選定した。選定土壌はローム、粘土質ローム、砂質粘土ローム、および砂質ロームのいずれかに分類されることが分かった。土壌粒子組成によりクラスター解析を行ったところ、粗粒砂と細粒砂の含有量により 2 つのクラスターに分類できることが分かった。同様に、化学的特徴に基づくクラスター解析を行ったところ、P2 は他の土壌とは異なる化学特性を持つことが分かった。特に P2 は置換カルシウム、活性アルミニウムそれに炭素含量が多く、これが他の土壌試料とクラスターを分ける要因であると考えられた。

炭素資化試験の結果、我が国の水田土壌において資化されやすい炭素源は Maltose, α -D-Glucose, D-Galactose, Tween 80, および Sucrose で、逆に資化されにくい炭素源は Formic Acid (ギ酸) で、Thymidine, Glucose-6- Phosphate, N-Acetyl-D- galactosamine, および D-Serine であることが分かった。資化されやすい炭素源の多くは糖に分類される炭素であり、糖は光合成産物でもあることから、水田における ^{14}C の動態において鍵となる化合物であることが示された。本試験において、各炭素源の資化性難易度と土性との間には明確な関係は見いだせなかった。また、酢酸の資化性と ^{14}C ガス化率の関係についても調査したが、有意な関係は得られなかった。理由として、多量の酢酸による微生物活動の阻害が影響している可能性が示唆された。この結果から、基質の初期濃度がガス化に影響する可能性がある。今後、基質の初期濃度に対する ^{14}C ガス化率の効果を検討する必要がある。

引用文献

- Biolog, Inc., 2016a. Gram Negative Identification Test Panel.
- Biolog, Inc., 2016b. Microbial Community Analysis.
- Chen, X., L.-M. Zhang, J.-P. Shen, Z. Xu and J.-Z. He. 2010. Soil type determines the abundance and community structure of ammonia-oxidizing bacteria and archaea in flooded paddy soils. *Journal of Soils and Sediments* 10: 1510-1516.
- Grizzle, H.W. and J.C. Zak. 2006. A microtiter plate procedure for evaluating fungal functional diversity on nitrogen substrates. *Mycologia* 98: 353-363.
- 放射線医学総合研究所. 2011. 平成 22 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査. 千葉.
- 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]. 千葉.
- 放射線医学総合研究所. 2015. 平成 26 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化開発. 千葉.
- Ishii, N., S. Ogiyama, S. Sakurai, K. Tagami and S. Uchida. 2015. Environmental transfer of carbon-14 in Japanese paddy fields. In: K. Nakajima, editor *Nuclear Back-end and transmutation technology for waste disposal*. Springer, Tokyo. p. 303-309.
- Kaneko, S., H. Tanabe, M. Sasoh, R. Takahashi, T. Shibano and S. Tateyama. 2003. A study on the chemical forms and migration behavior of Carbon-14 leached from the simulated hull waste in the underground condition. *Materials Research Society Proceedings* 757: II3.8.1.
- Pohland, B. and B. Owen. 2009. BIOLOG EcoPlate standard methods. *TAS Technical Bulletin*. Biolog, Inc., Hayward, CA, USA.
- Six, J., S.D. Frey, R.K. Thiet and K.M. Batten. 2006. Bacterial and Fungal Contributions to Carbon Sequestration in Agroecosystems. *Soil Science Society of America Journal* 70: 555. doi:10.2136/sssaj2004.0347.
- Stefanowicz, A. 2006. The Biolog Plates Technique as a Tool in Ecological Studies of Microbial Communities. *Polish J. of Environ. Stud.* 15: 669-676.
- 國弘忠生, 藤田昌史, 胡 洪營, 藤江幸一. 2004. キノンプロファイルと PCR-DGGE を併用した汚染修復細菌の特定と微生物群集の挙動解析. *統計数理* 52: 329-342.
- 日本土壤肥料学会. 1997. 土壤環境分析法博友社, 東京.
- 犬伏和之. 水田の物質循環と微生物の働き. In *微生物の生態 19 物質循環における微生物の役割*, 日本微生物生態学会, Ed. 学会出版センター: 東京, 1994; Vol. 19, pp 91-118.

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 が生活圏へ移動した場合、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、炭素資化性に対する気温の効果についてデータ収集した。

3.3.1. ^{14}C 標識酢酸の ^{14}C ガス化率に対する気温の効果

気温の変化は微生物活性に影響を与える。そこで、気温が ^{14}C ガス化率に与える影響を明らかにするために、 $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムを用いたトレーサー実験を行った(気温効果実験)。また、本事業における過去の調査結果から、 $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムは微生物細胞、特に細菌細胞に取り込まれ、一部が細胞に同化されることが報告されている(放射線医学総合研究所, 2011)。同化された ^{14}C の再放出に対する温度効果についても同時に検討した(再放出実験)。得られた結果は、水稻全体モデルを温度変化に対応させるための基礎データとした。

3.3.1.1. 実験手順

はじめに気温効果試験について述べる。本試験は P2 水田土壌を用いて行った。試験の概要を図 3.3-1 に示す。風乾し、2 mm のメッシュで篩った 0.5 g の水田土壌を 5 mL の $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウム溶液(約 1.7 kBq mL^{-1})で湛水した。試料容器は 30 mL 容のガスクロバイアルを用いた。また、 ^{14}C 標識酢酸溶液は湛水する前に 0.2 μm 孔径のメンブランフィルターで濾過滅菌した。このようにして準備した湛水試料は、 10°C から 30°C まで、 5°C 刻みの気温で 10 日間、暗条件で、静置培養した。この培養期間中は毎日、気相および液相中の ^{14}C を測定した。

気相の $^{14}\text{CO}_2$ ガスを回収するために、試料容器の上流にポンプを接続し、20 mL/min の流速で 10 分間空気を流し続けた。試料容器の容量は 30 mL であったので、発生した ^{14}C ガスはこの流量(200 mL)で十分に下流の流れたと考えられる。試料容器の下流には、二酸化炭素吸収剤として 16 g の 1 mol/L 水酸化ナトリウム溶液を含むガス捕集ビンを 3 本接続した。ここで、発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスを捕集した。

液相の ^{14}C を回収するために、培養後の湛水土壌試料を約 3,700 G で 5 分間遠心分離し、得られた上清を 0.2 μm 孔径のメンブランフィルターでろ過したろ液を ^{14}C 測定試料とした。一方、残った土壌は、固相(土壌粒子に収着した ^{14}C 、および微生物に取り込まれた ^{14}C)から再放出される ^{14}C を評価するために使用した。

次に、再放出試験について述べる。この試験の試料は気温効果試験後の土壌試料を用いた。すなわち、湛水土壌試料から上清を回収した後の土壌を用いた。この土壌は、再放出試験を開始する前に脱イオン水で2回洗浄した。洗浄後、土壌試料は50 mL容のガスクロバイアルに入れ、5 mLの脱イオン水で湛水し、7日間培養した。培養後、気相、液相、および固相の ^{14}C を測定した。液相中の ^{14}C は、湛水試料を直接フィルターでろ過し、そのろ液を液相試料とし、フィルター上の土壌を固相試料とした。気相中の ^{14}C は、気温効果試験と同様の手順で処理し、NaOH溶液中に回収した。気温効果試験および再放出試験共に3回繰り返し行った。

液相中の ^{14}C を測定するために、測定試料はUltima Gold (PerkinElmer)と混合した。気相中の ^{14}C を捕集したNaOH溶液は、Hionic-Fluor (PerkinElmer)と混合した。固相試料はサンプルオキシダイザー(307型, PerkinElmer)で燃焼した。このとき発生した $^{14}\text{CO}_2$ をCarbo-Sorb E (PerkinElmer)で捕集し、これをPermafluor-E+ (PerkinElmer)と混合した。以上の手順で液体シンチレーションカクテルと混合した試料の ^{14}C 放射能は、Tri-Carb-25WTR Liquid Scintillation Analyzerで測定した。測定条件として、0-156 KeV領域を3分間測定した。測定により得られた計数値(dpm)から ^{14}C の濃度に換算した。

3.3.1.2. ^{14}C ガス発生に対する気温の効果 (気温効果実験)

気温効果試験における気相中の $^{14}\text{CO}_2$ 量、液相中の ^{14}C 残量、および固相中の ^{14}C 量を図3.3-2に示す。ただし、固相中の ^{14}C 量は実測していないため、初期添加 ^{14}C 量と気相および液相中の ^{14}C 量から見積もった推定量である。

$^{14}\text{CO}_2$ の発生は、気温に依存した(図3.3-2)。気温の上昇に伴い $^{14}\text{CO}_2$ 発生速度は早くなり、また、発生速度が最大となる日数も短くなった。30°Cにおける培養では、 $^{14}\text{CO}_2$ 発生速度は培養開始から1日目で最大となった。培養1日目における試料容器当たりの $^{14}\text{CO}_2$ 発生量は2,400 Bqで、この量は培養9日目における $^{14}\text{CO}_2$ 発生量の最大値4,000 Bqの6割に相当する。20°Cおよび25°Cでは培養1日目から2日目にかけて、15°Cでは培養3日目から4日目にかけて、そして10°Cでは培養5日目から6日目にかけて $^{14}\text{CO}_2$ 発生速度が最大となった。同様に、 $^{14}\text{CO}_2$ 発生量も気温に依存した。本試験で得られた最大 $^{14}\text{CO}_2$ 発生量の範囲は、試料容器当たり2,600 Bqから4,000 Bqであり、気温の上昇と共に $^{14}\text{CO}_2$ 発生量が増加した。気温に対する $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量を対数でプロットしたところ(図3.3-3)、15°Cから30°Cの範囲であれば、時間さえかければ $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量はほぼ最大値に達する可能性があることが示唆された。

液相中の ^{14}C 量であるが、 ^{14}C ガス発生量に伴い減少している(図3.3-2)。この結果は溶液中の ^{14}C がガスとして放出されていることを示唆している。この関係を確認するために、図3.3-4に $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量と液相中の ^{14}C 量をプロットした。この図から、 ^{14}C ガス発生量が2,500 Bqに至るまで、直線的に液相の ^{14}C 量が減少していることが分かった。そこで、2,500 Bq/試料以下のガス発生量のデータを用いて回帰直線を求めたところ、傾き-2.6で相関係数 $r=-0.992$ の一次直線が得られた。この傾きは、液相中の ^{14}C を2.6 Bq利用して1 Bqの $^{14}\text{CO}_2$

ガスを発生していることを意味している。このガス化が微生物に依存しているならば、この微生物は取り込んだ ^{14}C の 3.8 割を分解し、 $^{14}\text{CO}_2$ として気相へ放出しているといえる。また、この反応は気温には依存しないことも分かった。

添加した ^{14}C 総量から推定した固相中の ^{14}C 蓄積速度は、気温に依存して速くなった (図 3.3-2)。30°C の培養では、培養開始翌日に 5,200 Bq/試料の ^{14}C が固相に存在したと見積もられた。気温上昇による固相中の ^{14}C 量増加は、微生物活動の活発化によるものと思われる。一方、固相中の ^{14}C 量は、気温に関係なく時間と共に一度増加し、一定量 (5,000 Bq/試料程度) に達すると、その後は減少する傾向が観察された。 ^{14}C の減少は、一度微生物細胞内に取り込まれた ^{14}C がガスとして大気へ放出された結果と考えられる。図 3.3-4 において、2,500 Bq 以上のガスが発生する場合、液相中の ^{14}C 量は変化しないにもかかわらず $^{14}\text{CO}_2$ が気相へと放出されているが、この放出が固相から ^{14}C 量を減少させた原因であろう。

3.3.1.3. ^{14}C ガス再放出に対する気温の効果 (再放出実験)

気温効果試験の後に得られた土壌を回収し、これを再び 7 日間培養し、気相に放出された $^{14}\text{CO}_2$ 量、液相中の ^{14}C 量、および固相中の ^{14}C 量を測定した。つまり、再放出実験の初期 ^{14}C 濃度は、気温効果試験における推定固相 ^{14}C 濃度と考えられる。気温効果試験の後、再放出実験に使用するまでに、土壌試料はフィルター上で脱イオン水を用いて洗浄しており、この処理において ^{14}C が消失した可能性がある。したがって、推定固相 ^{14}C 濃度は本試験における初期濃度の最大値であり、実際の初期濃度は推定値より低かったと考えられる。培養 7 日目における各相の ^{14}C 量を図 3.3-5 に示す。

気相に放出された $^{14}\text{CO}_2$ であるが、30°C で培養した試料を除き、 ^{14}C と土壌試料との接触時間が長くなるにつれ一度 $^{14}\text{CO}_2$ 放出量が上昇し、その後減少する結果となった (図 3.3-5)。さらに、気温の違いにかかわらず、長期間 ^{14}C と接触させた土壌から放出される $^{14}\text{CO}_2$ ガス量は、おおよそ 300 Bq/試料に収束するように思われた。この結果は、気温の変化にかかわらず、一度固相に取り込まれた ^{14}C は一定量の ^{14}C を放出することを示唆している。

気相における、この ^{14}C 濃度変化の傾向であるが、推定固相 ^{14}C 量の変化 (図 3.3-2) と似ていた。同様に、液相や固相中の ^{14}C 濃度変化も推定固相 ^{14}C 量の変化と似ていた。そこで、気相、液相、および固相中の ^{14}C 濃度変化と気温効果試験における推定固相 ^{14}C 量の変化の関係を確認した (図 3.3-6)。いずれの相の ^{14}C 量も、推定固相 ^{14}C 量に依存して増加する傾向が確認できた。さらに、この増加は気温に依存しないことが分かった。興味深いことに、推定固相 ^{14}C 量が 4,000 Bq を境に、気相および液相への放出傾向が異なった。この理由については、今後更なる調査が必要である。

3.3.1.4. 統括的指標：気温変化に反応する微生物活動

^{14}C のガス化は特徴的な環境挙動であり、線量評価に影響する。気温変化に対応する微生物による ^{14}C のガス化をパラメータ化することにより、土壌微生物

物反応は統括的指標として利用できる可能性がある。そこで、本節（3.3 節）では ^{14}C のガス化に対する気温の効果，および固相に取り込まれた ^{14}C の再放出に対する気温の効果을明らかにするために 2 つの試験を行った。

気温効果実験において，気温の上昇が $^{14}\text{CO}_2$ の放出を速める効果があることを確認したが，放出の絶対量にはほとんど影響しないことが示唆された。10℃で培養した場合のみ，わずかに $^{14}\text{CO}_2$ 放出量の低下が観察されたが，この気温では水稻栽培は困難である。したがって，10℃以下の気温の低下は，水稻全体モデルにおいても，また実環境においても考慮する必要はないと考える。再放出実験では，気相および液相への ^{14}C の放出は，固相に蓄積された ^{14}C 量に依存することが示された。つまり，固相中の ^{14}C 蓄積量が多いほど，液相や気相へ再放出される ^{14}C 量が多くなることが分かった。今回の実験条件下では，しかしながら，この放出に対し気温は影響しないことが明らかとなった。

以上のように，気温変化に反応する微生物活動を統括的指標として利用するための基礎データを収集したが，水稻への ^{14}C 移行に関して，気温の変化はそれほど重要でない可能性を示唆している。統括的指標として，今回の試験で得られた結果の水稻全体モデルへの適応については第 3.5.1 節で詳しく述べる。

3.3.2. 多様な炭素の資化性に対する気温の効果

炭素は全生物にとって必須元素であるため，TRU 廃棄物から生じる低分子有機放射性炭素は生活圏において様々な化学形態に変化する。そこで，本節では水田土壌微生物による多様な炭素資源の資化性に対する気温の効果について述べる。

3.3.2.1. 実験手順

供試水田土壌として P2 と P11 を用いた。これらの物理化学的特徴については 3.2.1.1 節を参考にされたい。湛水土壌試料は 3.2.1.3 節と同様の手順で作成し，そして同様の手順で実験した。但し，湛水土壌および GN2 MicroPlate の培養温度は先の実験とは異なった。以下，実験手順を簡単に述べる。作成した湛水土壌試料は 15℃から 30℃まで 5℃刻みの温度で 7 日間培養し，土壌微生物を抽出した後，GN2 MicroPlate に添加した。その後 7 日間，湛水土壌試料の培養温度と同じ温度条件の下で GN2 MicroPlate を培養した。培養後，マイクロプレートリーダーを用いて各ウェルの吸光度を測定し，得られた値から微生物活性値を求めた。GN2 MicroPlate の吸光度は培養開始から 6 日目を除き，7 日間，毎日測定した。この実験は 3 回繰り返し行った。

微生物活性値を用い，式 3.2-1 から AWCD を求め，式 3.3-2 から H' を求めた。AWCD は培養開始から 7 日目までの経時変化について調査した。 H' は GN2 MicroPlate を培養して 5 日目の微生物活性値を用いて算出した。炭素資化能の類似度を判定するために，各培養日におけるそれぞれの水田土壌試料の微生物活性値から Bray-Curtis 指数を求め (Severin et. al, 2014)，そのデータに基づき主座標分析 ((Principal Coordinate Analysis) を行った。

3.3.2.2. AWCD に対する気温の効果

土壌試料より抽出した微生物群集を GN2 MicroPlate に添加した直後から 7 日間の AWCD の経時変化を図 3.3-7 に示す。両試料とも気温の上昇と共に AWCD が増加するまでの時間が短くなった。GN2 MicroPlate の場合、7 日間の培養で AWCD は平衡に達しなかったのだが、増加の傾向は先のトレーサー試験における ^{14}C ガス発生量の結果と似ていた（図 3.3-2）。十分な時間培養を行えば、気温に影響されることなく AWCD は一定の値に達する可能性を示唆している。

3.3.2.3. H' に対する気温の効果

各温度で 5 日間培養したときの H' の結果を図 3.3-8 に示す。両試料ともに、 15°C と 20°C 間および 25°C と 30°C 間で H' の値に差が無いが、 20°C 以下と 25°C 以上の気温では有意な差が認められた。つまり、 25°C を超える気温では、5 日間培養すれば利用できる炭素の種類と量が増すことを意味している。金属 TRU 廃棄物由来の ^{14}C は、生活圏においてありとあらゆる分子に変化している可能性があるため、 H' 値が高いということは生活圏に移行した ^{14}C がガス化しやすい可能性を示唆している。今後、炭素資化と ^{14}C ガス化との関係を明らかにする必要がある。

3.3.2.4. 炭素資化性パターン'に対する気温の効果

Bray-Curtis 類似度指数を用いて、各温度、各日における炭素資化性の類似度を比較した。各温度で培養した P2 における炭素資化性の変化パターンを図 3.3-9 に示す。いずれの温度においても左中央から下中央の座標へ移動し、最終的には右上部の座標へ移動していることがわかった。これらの結果を一つにまとめた結果を図 3.3-10 に示す。このクラスター解析では、類似度の高いプロットは近傍に配置される。例えば、 15°C の培養 7 日目のプロットの座標は (0.236, -0.330) であり、これは 20°C の培養 4 日目のプロットの座標 (0.244, -0.348) の近傍に位置する。つまり、P2 を 15°C で 7 日間培養すると、 20°C で 4 日間培養したときと同様の炭素資化性を示すことを意味している。図 3.3-10 から、P2 のプロットは 2 次曲線を描くように配置されており、このことは時間経過と共に P2 が取りうる炭素資化性のパターンに対し気温は影響しないことを意味している。この炭素資化性のパターンにおいても、気温はあるパターンにいたるまでの速度に影響を与えるだけであることが分かった。この結論が P2 だけに特異的であるかどうかを確認するために、P11 においても同様に、各温度、各培養日における炭素資化性の類似度を評価した。結果を図 3.3-11 に示す。P2 と同様にプロットされた。以上の結果から、今回の試験の条件下では、炭素資化性パターンに与える気温の影響は小さいといえる。土壌微生物群集の種組成が変化すれば炭素資化パターンは変化することが予測されることから、短期間の気温の変化は種組成に影響を与えないのかもしれない。気温の変化に伴う種組成の変化を明らかにすると共に、今後、微生物群集に対する長期的な気温変化の影響を明らかにする必要がある。

3.3.3. まとめ

気温の変化に対する微生物反応のデータを収集する目的で、[1,2-¹⁴C]NaOAcを用いたトレーサー実験、および GN2 MicroPlate を用いた炭素資化試験を行った。

トレーサー実験では、気温の変化に伴う ¹⁴C のガス化をパラメータ化し統括的指標として水稻全体モデルに適用することも考慮した。そのため、10°Cから30°Cまで 5°C刻みの温度で湛水土壌を培養し、ガスとして発生する ¹⁴CO₂ 量を経時的に測定した。その結果、気温の上昇は ¹⁴CO₂ の発生速度を促進するが、最終的な放出量にはほとんど影響しないことがわかった。同じくトレーサー実験において、一度固相に蓄積された ¹⁴C の気相への再放出に対する気温の効果についても検討した。その結果、¹⁴C の再放出についても気温はほとんど効果がなく、固相に蓄積された ¹⁴C 量に依存して気相や液相へ ¹⁴C の移行量が増加することが分かった。

GN2 MicroPlate を用いた炭素資化試験においてもトレーサー実験と同様の結論が得られた。つまり、気温の変化によって炭素資化性のパターンが変化することはなく、気温はある炭素資化性パターンに至るまでの速度に影響することがわかった。

¹⁴C ガス発生量や炭素資化パターンが気温の変化に影響されないということは、土壌微生物群集の種組成が、気温の変化に影響を受けていない可能性がある。今後、気温の変化と微生物群集構造との関係を明らかにすることで、本年度の結論をサポートする必要がある。一方で、より長期間気温を変化にさらされることによる効果についても検討が必要である。

引用文献

放射線医学総合研究所. 2011. 平成 22 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査. 千葉.

Severin, I.; Lindstrom, E. S.; Ostman, O., Relationships between bacterial community composition, functional trait composition and functioning are context dependent--but what is the context? PloS one 2014, 9 (11), e112409.

3. 4. 水稲全体モデルのための微気象パラメータの取得

金属 TRU 廃棄物から発生する有機態 ^{14}C の多くは、炭酸ガス ($^{14}\text{CO}_2$) として土壌から近傍大気へ放出され、光合成により水稲に取り込まれる可能性が示唆されている (荻山ら, 2008)。しかしながら、近傍大気と環境大気の交換半減期による影響は大きいことが分かっており、この結果は水稲群落内における $^{14}\text{CO}_2$ の滞留の程度により発生した $^{14}\text{CO}_2$ の水稲への取り込み量が大きくなることを示唆している。すなわち、水稲葉による水田被覆面積が小さければ、近傍大気と環境大気との間のガス交換は大きくなり、土壌から発生した炭酸ガスは環境大気により希釈され、イネに取り込まれる量は少なくなると予測される。逆に、水田被覆面積が大きければガス交換が小さくなり、水稲群落内に $^{14}\text{CO}_2$ が滞留し、それによってイネに取り込まれやすくなるかもしれない。前述したように、これまでの調査から、近傍大気と環境大気の交換半減期による影響は大きいことが分かっており、そのためこの交換半減期の値や切り替え時期について、水稲の成長段階によって、より現実的な設定が重要である。

そこで、土壌中から放出される ^{14}C の拡散、あるいは滞留に対する地上部の植生の影響を評価するために収集した基礎データを報告する。まず、群落の成長の指標として水稲各成長段階における葉面積指数 (Leaf Area Index: LAI) を取得した。次に、水稲群落の近傍大気と環境大気のガス交換半減期に資するデータとして、水稲群落内と群落外における風向風速および CO_2 濃度を測定した。本節では、これらの結果について報告する。

3.4.1. 水稲各成長段階における葉面積指数 (LAI)

3.4.1.1. LAI について

LAI とは、地表の単位面積に対して、その上方に存在するすべての葉の片側の総面積の比率である。植物群落の葉量を表す指標で、葉が多いほど値は大きくなる。LAI の値は、種組成や成長段階、季節性によって変わり、立地条件や管理方法にも強く影響を受ける。表 3.4-1 に代表的な植物種の LAI 値を示す。イネを含む作物では最適な LAI 値を示している。栽培方法等によってはこの値以上になるが、最適な LAI 値を超えると葉の相互遮蔽が増加して、下位葉などが光合成に貢献しなくなってしまうとされている。

3.4.1.2. 水稲栽培

健全な水稲苗作りは、その後の栽培に影響する。そこで、以下の手順で苗を育てた：1) 良好な種子の選定、2) 消毒、3) 催芽、4) 苗床での育苗、そして5) 田植え (図 3.4-1)。栽培品種は日本晴とし、2015年5月14日および7月23日に栽培を開始したイネを用いて LAI を測定した。

はじめに、充実した良好な種子を選別するために塩水選を行った。この塩水選では比重 1.13 の塩水 (水: 100 mL, NaCl: 20.15 g) に種子を浸し、沈んだ種子を播種用として選定した。選定後、播種用種子は水洗いした。塩水選によって播種用として選別された種子は約 3 割であった。

次に、イネの病気の原因となるカビや細菌を消毒するため温湯消毒を行った

(水田農業研究所, 2005)。塩水選で選別した播種用種子は、水洗いの後、乾かさずに 10 分間 60℃の湯に浸した。その後、種子を水道水に浸し、15℃に設定したインキュベータ内で約 7 日間吸水させた。この間、2 日毎に水を換え、種子が酸欠にならないようにした。高木ら (2013) の方法に従い、種子の芽がはと胸程度に揃ったことを確認し (図 3.4-1 c)、深さ 2 cm 程度の土 (パールソイル, 株式会社関東農産) に播種し、その上から薄く覆土した。田植えまで、この苗床で約 1 ヶ月間、屋外で育苗した。約 1 ヶ月間育苗した苗を、3 苗 1 株として、水稲用の粒状培土のホーネンス培土 1 号 (株式会社ホーネンアグリ) に植え、栽培した。

3.4.1.3. LAI, 草丈, 葉数, 分けつ数の測定方法

LAI は成長とともに増加し、出穂期頃に最大となり、その後、登熟に伴って減少する (堀江と桜谷, 1985; 斎藤ら, 2000)。そこで、測定は 1-2 週間に一度の割合で行い、値が最大となることが推測される出穂頃 (8 月中から末頃) までに 12 回行った。刈り取り日と生育段階の関係を表 3.4-2 に示す。刈り取ったイネの葉面積を測定するために、葉と茎を切り分け紙に貼りつけ、それをコピー機で画像化した (図 3.4-2)。画像化したデータは画像解析ソフト (ImageJ) に取り込み、マニュアルに従い葉面積を測定した。LAI は、前述したように、地表の単位面積に対してその上方に存在するすべての葉の片側の総面積の比率である。このことから、式(3.4-1)を用いて LAI 値を求めた。

$$\text{LAI} = 1 \text{ 株の葉面積 (m}^2\text{)} \times 22.2 \text{ 株/栽培面積 (m}^2\text{)} \quad \text{式(3.4-1)}$$

今回の栽培密度は、22.2 株/m² (条間 30 cm, 株間 15 cm) であった。この値は、イネの機械移植栽培の現場において平均的である。一般に、イネは条間 30 cm, 株間 15-18 cm の間隔で苗を移植し、この場合に栽培密度が 18-22.2 株/m² となる (高見ら, 1989; 岩手県農業研究センター, 2002; JADER, 2014)。また、武田と矢島 (1975) による 1/5000 a のワグネルポットを使った水稲個体群の群落光合成量の評価に関する研究では、ワグネルポットの配列を 25 株/m² としていた。これらの報告値から、本研究で得られた 22.2 株/m² という値は妥当な数字であると考えられる。

LAI のほか、草丈と葉の枚数、分けつ数 (根に近い茎にできる側芽が発達した分枝) も計数した。草丈であるが、イネのような単子葉植物の場合、自然状態で最も高い地点を草丈とすることがある。つまり、葉が自重で垂れ下がっている場合、実際の葉の長さより草丈は低くなることもある。本試験では、葉をまっすぐ延ばし、地際からその葉の先端までの最大長を草丈とした。

3.4.1.4. イネの生長

図 3.4-3 に、イネの成長に伴う草丈、葉数、および分けつ数の推移を示す。田植え後、草丈の成長は直線的に増加し、田植え後 50 日頃に停止した。この頃に主稈から出た葉数や分けつ数も最大となった。図 3.4-4 にイネの生育段階を模

式的に示す。イネは田植え後に急速に成長し、分げつを多数形成する。生育量は最高分げつ期に最大となるが、弱劣な分げつは穂を付けることなく枯れるため、生育量が減少する。残った分げつは将来ほとんどが穂を出す。この急速な成長期は栄養生長期といい、穂と葉の量を確保するためにイネは旺盛に生育する。分げつ数が最大に達するのと前後して、幼穂形成が始まる。生殖生長期は幼穂の原基が形成されてから出穂、開花までをいう。受精を終えると登熟が始まり、穂の中の米が熟していき、成熟した時期に収穫となる（星川, 1975; 小泉, 2016）。草丈、葉数、分げつ数の結果から、田植え後 50 日頃以降にイネが生殖成長に移ったと思われる。

3.4.1.5. LAI と草丈の関係

表 3.4-1 に LAI の値を示す。LAI は 0.02-8.80 の範囲だった。日本晴の LAI は、出穂頃に最大 6 程度になるとされる（堀江と桜谷, 1985）。今回は、いずれも 8 月中旬に刈り取った出穂頃の苗で、それを上回る値 8.40 と 8.80 が得られた。大きな値が得られた理由として、栽培環境が影響している可能性がある。LAI 測定用のイネを水田から刈り取る場合、対象の周囲に生きているイネが生育している必要がある（Yoshida et al., 1976）。しかし、今回は栽培スペースの問題で、周囲を他のイネに囲まれていない苗も測定に用いた。そのため、周囲を囲まれているイネに比べて光を多く受け、成長量が大きくなった可能性がある。イネの LAI と草丈の関係を図 3.4-5 に示す。草丈が 0 のとき、LAI も 0 になることから、0 を通る 2 次関数の式を当てはめ次式を得た：

$$y = 0.0008 x^2 - 0.0247 x \quad (r^2 = 0.9246)。$$

ここで、 x は草丈 (cm)、 y は LAI を意味する。

3.4.2. 模擬水田における微気象観測

水田群落内外の微気象データを得るために、模擬水田およびイネ科草本植物群落試験を行った。以下に、それぞれの試験の詳細について記す。

3.4.2.1. 模擬水田試験

ここでは模擬水田試験における登熟初期と登熟後期の結果を示す。各試験の条件を以下で述べる。

1 回目の試験（試験 1）は 2015 年 10 月 7 日から 8 日にかけて行った。対象群落としてバット（55 cm × 85 cm × 深さ 22.5 cm）で栽培した日本晴を用いた（図 3.4-6）。試験の概略を図 3.4-7 に示す。このイネは、2015 年 7 月 23 日に田植えをしており、LAI を測定したワグネルポットのイネと比較すると、2 ヶ月以上遅く栽培を開始した。しかし、7 月末の気温および日照環境から、出穂までの期間はワグネルポットの苗に比べて短く、試験を行った時点ですでに出穂している穂が確認できた。つまり、登熟期初期であったといえる。

風向風速と CO₂ 濃度は、群落頂上（測定高：68 cm）と内部（測定高：28 cm）

で測定した（図 3.4-7）。風向風速の測定は、超音波式風向風速計（DS-2 Sonic Anemometer, Decagon Devices）を用いて、測定値はデータロガー Em50（Decagon Devices）を用いて 1 分間隔で記録した（図 3.4-8）。DS-2 は水平方向の風向風速を測定する機器であり、鉛直方向の風向風速を測定する機器ではない。DS-2 には北を示す「N」のマークが印されており、鉛直方向の風向風速を測定する場合、このマークを天頂方向にして設置した。CO₂濃度は CO₂モニター付温湿度データロガー（SD800, Extech Instruments）で測定した。

2 回目の試験（試験 2）は 5 月 14 日に田植えをしたイネを用い、2015 年 9 月 29 日に測定を行った。対象群落として、1/5000 a のワグネルポットで栽培した日本晴を用いた（図 3.4-6）。試験の概略と実験時のイネの様子を図 3.4-9 に示す。ワグネルポットは、25 株/m²となるよう配置し、これは一般的な水田の栽培密度と大きく変わらないと考えられる。イネの生長段階として、すでに出穂してから 1 ヶ月ほど経過していたことから、登熟期の後半と考えられる。群落頂上（測定高：63-66 cm）と内部（測定高：20-23 cm）で鉛直方向の風向風速を測定した。

試験 1 における群落頂上と群落内の鉛直方向の風の頻度を図 3.4-10 に、風速ごとの鉛直方向の風の頻度を図 3.4-11 に示す。同じく、試験 2 における鉛直方向の風の頻度を図 3.4-12 に、風速ごとの鉛直方向の風の頻度を図 3.4-13 に示す。

両試験とも、群落頂上では下方から上向きの風が吹いていた（図 3.4-10, -12）。試験 1 では、0.5 m/s 以上の風が群落内では観測されなかったが、群落頂上では高い頻度で吹いていた（図 3.4-11）。このことから、風速は群落頂上の方が内部に比べて大きく、群落内ではイネが抵抗となり風速が抑えられていると考えられる。試験 2 では、群落頂上でも 0.5 m/s 以上の風は観測されず（図 3.4-13）、試験日の風速自体が小さかった。

群落内部の風向であるが、試験 1 において風速 0.25 m/s 以下の時、ほとんどが上方からの下向きの風、または斜め上方向からの風だった。一方、風速 0.25-0.5 m/s の場合、横方向からも風が吹いていた。試験 2 では、斜め下方から上向きの風か、横風からの風がほとんどだった。

次に、試験 1 で得られた群落内と群落頂上の CO₂濃度の関係を図 3.4-14 に示す。この図から、日中の群落内の CO₂濃度は群落頂部よりも若干低くなり、一方、夜間はほぼ同程度の濃度になることが分かった。日中、群落内における CO₂濃度の減少は光合成により CO₂がイネに吸収された結果と考えられる。日中の近傍大気と環境大気との間の CO₂の濃度勾配によって、群落内外で CO₂の交換が起こる可能性がある。このことから、近傍大気と環境大気の間でのガス交換は日中と夜間では異なる可能性が示唆される。

3.4.2.2. イネ科草本植物群落試験

イネ科草本植物群落試験では、群落内と群落頂に加え、群落外でも風向風速データを取得した。群落外のデータを取得することにより、水稻全体モデルにおける近傍大気と環境大気の間でのガス交換の基礎データとなることが期待できる。

草丈が低い群落（地表から群落頂までの平均的な高さ：約 57 cm）は栄養生長期を，高い群落（地表から群落頂までの平均的な高さ：約 70 cm）は水稻栽培における生殖生長期を想定した。各群落の生育状況および周囲の環境を図 3.4-15 に示す。また，この試験では機器による風向風速測定だけでなく，目視においても群落内外での大気の流れを確認するためにドライアイスの試験も行った。

まず，イネ科草本植物群落の LAI を，単位面積当たりの群落の重量から推定した。方法として，はじめにイネ科草本植物の重量から単位面積に生育する株数の推定を行った。すなわち，各群落から 25 cm × 25 cm (0.06 m²) に成育するイネ科草本植物を刈り取り（図 3.4-16），生重量を測定した。刈り取ったイネ科草本植物から 3 株を抜き出し，それぞれの生重量を測定し，一株当たりの平均生重量を求めた。そして，刈り取った草本植物の生重量を一株当たりの生重量で割り，刈り取った面積に生えていた株数を求めた。刈り取り面積とその面積に生えていた株数から，1 平方メートル当たりに生育する草本植物の本数を求めた。次に，1 株の葉面積 (m²) を 3 株分測定し，1 m² 当たりの本数を乗じて LAI を求めた。葉面積の測定はイネ葉面積と同様の手順で行った。

イネ科草本植物の低い群落から，LAI 測定用に採取した試料の草丈は 76±10 cm (n=3) で，LAI は 6.49 だった。一方，高い群落から採取した試料の草丈は 97±22 cm (n=3) で，LAI は 6.27 だった。イネ科草本植物とイネとでは LAI や草丈を同等に比較することは難しいが，イネの LAI の最大値が 6 程度で，出穂後に低下することを考えると，対象としたイネ科草本群落はイネの出穂期前後の時期に相当すると考えられる。今回選んだ 2 群落間で，LAI の値に大きな違いはなかったが，草丈の違いは群落内外の風速に影響するので (Campbell and Norman, 1997)，異なる成長段階における微気象観測データとして有用であると考えられる。

風向風速の測定は 2015 年 10 月 26 日から 27 日にかけて低群落で，10 月 27 日から 28 日にかけて高群落で行った。群落内，群落頂，群落外それぞれに，超音波風向風速計 DS-2 を各 2 台設置した（図 3.4-17）。2 台のうち 1 台を用いて水平方向の風向風速を測定し，もう 1 台で鉛直方向の風向風速を測定した。風向風速計の設置高であるが，高低両群落とも，群落内において 20 cm に，群落外において 126 cm であった。群落頂については，低群落において 57 cm，高群落に 70 cm の位置に風向風速計を設置した。

群落内外での水平・鉛直方向の風の動きをより詳細に調べるために，ある短い時間を抜き出して，風が移動した軌跡の図式化を試みた。つまり，風がベクトル量であることを考慮した，風の流れを調べる手段の一つであるプログレッシブダイヤグラム (千葉と安達, 1980) を利用した。低群落，高群落における各観測期間のうち，できるだけ同様な風の状態を比較するために，最大でも群落上部の風速が 2 m/s を超えない，風速のばらつきが比較的小さい時間帯を選んだ。群落上部の水平風速が 2 m/s 以下であることに着目した理由として，3.5.2 節において，群落内から群落外に向かう鉛直上向きの風の頻度が，群落上部での水平風速が 2 m/s 以下のときに高いことが挙げられる (図 3.5-20, 図 3.5-21)。本測

定期間中において水平風速 2 m/s 以上の風が観測された頻度は、1- 5 % と少なかったことから、短い時間であっても風速 2 m/s 以下は一般的な条件であると考えられる。また、植物が光合成を行う日中に活発なガス交換が起こることを想定し、照度計の値を確認して、日が出ている時間帯であることも選定基準とした。この基準において、低群落では 2015 年 10 月 26 日の 15:35 から 15:44、高群落では 2015 年 10 月 28 日の 7:40 から 7:49 までの各 10 分間とした。

プログレッシブダイヤグラムを作成するために、風の移動距離をベクトル座標として求めた。つまり、風速から測定時間(1分)あたりの距離を求め、群落外、頂上、内におけるそれぞれの時間 t における風の終点を原点とし、それを始点とした次の $t+1$ 分後の風のベクトルを直線で引いた。風向を x 軸および y 軸に正射影した値をベクトル座標とした。例えば、 $t+1$ 分後の風速 \vec{a} の移動距離を L とし、 x 軸の正の方向（北方向）に対する \vec{a} の角度を θ （時計回りを負、反時計回りを正とする）とした場合、 x 座標および y 座標はそれぞれ以下の式で与えられる：

$$x = (L_t \times \cos\theta_t) - (L_{t-1} \times \cos\theta_{t-1})$$

$$y = (L_t \times \sin\theta_t) - (L_{t-1} \times \sin\theta_{t-1})$$

以上の方法で、原点から開始する 10 分間の風の軌跡を描いた。得られた図は、水平方向で上側が北になるように、鉛直方向で上側が天頂になるようにするため、90 度左に回転させて表示している。水平方向の軌跡を図 3.4-18 に、鉛直方向の軌跡を図 3.4-19 に示す。

水平方向の風は低群落、高群落ともに群落外部で最も移動量が大きく、群落内で最も小さかった。このことから、植物体があることによって、風の移動が遮断されることが分かる。群落内の水平方向の風は 10 m 四方を超えていなかった。例えば、風は幅 10 m の水田を水平方向に抜けにくい可能性があり、群落内の風は群落内で滞留している可能性がある。

鉛直方向の風の動きに関して、水平方向と同様に風の軌跡を追跡した。その結果、高群落の群落頂上では、上下ではなく、群落面を動くような風の動きが認められた。一方で、群落内では鉛直方向の風が認められた。このことから、群落内から風が抜けにくいことが示唆される。これに対し、低群落では群落頂上、内ともに鉛直方向や横向きの風が不規則に認められた。

図 3.4-20 は、各測定位置での平均水平風速を示している。群落外部の平均水平風速は、群落頂上に比べて低群落で 6 倍、高群落で約 3 倍大きかった。一方、低群落では、群落頂上と群落内の平均風速はほとんど同程度だったが、高群落では群落内部の方が、群落頂上に比べて約 1/6 の大きさだった。このことから、群落が大きいほど、群落によって風の動きが抑えられることが考えられる。

鉛直方向の平均風速の結果を図 3.4-21 に示す。群落内部の平均風速が、低群落に比べて高群落で約 4 倍大きかった。このとき、水平方向の平均風速は、群落間でほとんど変わらなかった。高い群落の群落内部で鉛直方向の風の移動が起こっていた理由として、地際の葉が枯れるなどして群落内部の植物体の密度

が低群落に比べて低かった可能性がある(図 3.4-16)。

群落内外の風の動きを目視で確認するため、2015年10月29日にドライアイスを用いた目視試験を行った。ドライアイスはプラスチック容器に入れ、そこに水(または湯)を適量加えて、群落のさまざまな高さに設置した。容器から出る白煙の動きを観察するとともに、ビデオカメラ(Everio, JVC Kenwood)で撮影した(図 3.4-22)。観測の結果、群落内で発生したドライアイスの白煙は、水平方向に拡散する傾向が見られた。また、群落頂部における水平方向の風により、群落外へ抜け出る白煙はほとんど観察できなかった。この白煙は炭酸ガスであり、 $^{14}\text{CO}_2$ が土壌から発生した後の動態を模擬していると考えられる。したがって、水田で発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは群落内で滞留し、その期間にイネに取り込まれる可能性がある。

3.4.3. まとめ

実測により、草丈とLAIの関係を示す2次回帰式を求めた。栽培観測の結果、LAIが同じでも成長段階によって葉の立ち具合や葉の形状が変わるため、これらは近傍大気と環境大気とのガス交換にも影響するかもしれない。したがって、今後、近傍大気と環境大気とのガス交換とLAIの関係を、より詳細に検討する必要がある。葉の形状の情報も含む値の取得が必要である。

微気象観測により、植物群落内外における鉛直方向および水平方向の風速と風向のデータを取得することができた。その結果、群落内の大気は群落頂の横風により蓋をされ、群落内で循環しうる可能性が示唆された。今後、植物群落内外で CO_2 濃度や照度を測定し、風向風速データとの関係を明らかにすることで、より精度高く、近傍大気と環境大気との交換半減期を求めることができると期待される。本試験で得られたデータの水稻全体モデルへの適応は、第3.5.2節を参考されたい。

引用文献

- 岩手県農業研究センター, 農業研究センター本部(北上市成田) A. 水稻 1. 移植栽培 <http://www2.pref.iwate.jp/~hp2088/library/saibai/saibai1101.pdf> (2016.1.6 accessed)
- 荻山 慎一, 鈴木 弘行, 犬伏 和之, 武田 洋, 内田 滋夫. TRU 廃棄物の地層処分を想定した放射性炭素の植物による経根吸収: 酢酸を起源とする放射性炭素の植物への移行. 保健物理 (2008), 43 (3), p268-277
- 小泉 美香. 早稲田キャンパスにおける生物と環境を探る—東洋の緑の革命 (IR-8) Tailoring of Rice Plant — <http://heisei-tompantanuki.image.coocan.jp/> (2016.1.7 accessed)
- 斎藤 邦行, 村木 智裕, 土居 寿幸, 黒田 俊郎. 水稻品種の乾物生産に及ぼす暗呼吸の影響—日本晴とタカナリの生長効率比較—. 日作紀 (2000), 69 (2) p194-200
- 石井 龍一: 執筆代表者. 作物学 (I) —食用作物編—(2000) 文永堂出版.

- 水田農業研究所. 米・麦担当. 品種に応じた水稻種子の温湯消毒法 (2005) 埼玉県
- <https://www.pref.saitama.lg.jp/b0909/documents/381742.pdf> (2015.3.19 accessed)
- 高木 葉二, 石岡 康彦, 新井 菊江, 服部 謙次. 水稻温湯消毒種子取扱マニュアル 失敗しない適正な浸種と催芽 (2013) JA 北ひびき, JA 北ひびき 稲作振興協議会, 上川農業改良普及センター土別支所
- 高見 晋一, 菅谷 博, 鳥山 和伸. 水田水・地温の簡易推定法. 農業気象(1989) 45 (1), p 43-47
- 武田 友四郎, 矢島 正晴. 群落光合成の半経験的評価法の改良. 日作紀(1975) 44 (3), p 343-349
- 千葉 修, 安達 隆史. 微風時の風の特性 (1報). 天気 (1980) 27, p 331 - 341, 社団法人日本気象学会
- 星川 清親. (1975) 解剖図説イネの生長. 農山漁村文化協会.
- 堀江 武, 桜谷 哲夫. イネの生産の気象的評価・予測法に関する研究:(1) 個体群の吸収日射量と乾物生産の関係. 農業気象 (1985), 40(4) p 331-342
- JADER (一般社団法人 全国農業改良普及支援協会) みんなの農業広場. 機械移植 栽培 - 栽植密度の重要性 <http://www.jeinou.com/benri/rice/2009/04/161130.html#02> (2016.1.6 accessed)
- Campbell G. S., Norman J. M. 著. (2003) 生物環境物理学の基礎 (第2版) 久米篤, 大槻 恭一, 熊谷 朝臣, 小川 滋 監訳. 第5章 風 p.65-78, 森北出版株式会社.
- Le Dantec V., Dufrêne E., Saugier B. Interannual and spatial variation in maximum leaf area index of temperate deciduous stands. *Forest Ecology and Management* (2000) 134 (1-3), p 71-81
- Turner D. P., Acker S. A., Means J. E., Garman S. L. Assessing alternative allometric algorithms for estimating leaf area of Douglas-fir trees and stands. *Forest Ecology and Management* (2000) 126 (1), p 61-76
- Yoshida Shouichi, Forno Douglas A., Cock James H., Gomez Kwanchai A. Laboratory Manual for Physiological Studies of Rice, Third Edition. The International Rice Research Institute (1976) p 82, Chapter 19 Measurement of leaf area, leaf area index, and leaf thickness. p 69-72

3. 5. 微生物活動を反映したモデルの構築

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)を構築することは、安全評価において重要である。これまで構築した水稲全体モデルを図 3.5-1 に示す。本事業における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、その一部が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、土壌微生物の活性とそれに伴う ^{14}C ガスの水田における動態、およ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により、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。

上述の知見をモデルに反映すべく、昨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。その結果、群落が成熟した状態では近傍大気と環境大気間のガス交換が殆ど行われぬ可能性が示唆された。そこで、この可能性を水稲全体モデルで模擬するため、葉面積指数(Leaf Area Index: LAI)を指標に近傍大気と環境大気の移行半減期をある生育段階で切り替えるようにプログラムを改良した。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。土壌からの CO_2 放出については、温度計数 (Q_{10} : ある温度の化学反応速度と、その温度から 10°C の温度上昇したときの化学反応速度との比) 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。上記の内容で改良した水稲全体モデルで解析を行ったところ、土壌からの CO_2 放出は近傍大気から環境大気への移行半減期に対する解析結果への寄与が大きく、特に群落成熟期以降の移行半減期の影響が高いことが確認できた。このように、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分かった。

本節ではより現実的なパラメータを設定するために、本年度行った野外実験および室内実験の結果を水稲全体モデルに反映することを試みた。始めに本年度行った実験の概要を述べ、どのようにそれらの結果を水稲全体モデルに反映し精緻化したか、次に精緻化したモデルによる基本解析、およ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。

3.5.1. 水稲全体モデルに対する微生物による炭素の取り込みおよび分解の反映

本報告書第 3.3 節で述べたように、本年度は微生物による ^{14}C 標識酢酸の利用に対する温度効果について調査した。ここでは、これらの実験データをモデルに反映させる視点から解析を行い、その結果得られたモデルパラメータについて報告する。

3.5.1.1. 実験概要

土壌微生物による炭素の取り込み速度および分解速度を評価するために RI トレーサー実験が実施され、この試験では温度変化による違いも検討された。本トレーサー実験は、10日間連続培養実験とそれに続いて7日間培養実験が行われた。10日間連続培養実験では、P2水田土壌0.5gに対し ^{14}C 標識酢酸溶液5mlを添加し、 10°C から 30°C まで 5°C 刻みの気温で10日間静置培養が行われた。そして培養期間中、毎日、気相および液相中の ^{14}C が測定された。10日間連続培養実験終了後、直ちに土壌を水で洗浄し、再び5mlの脱イオン水で湛水し、7日間培養された。この時の培養温度は上記の初期培養時と同じ温度に設定された。この実験では毎日の測定はせず、7日後の気相、液相、固相の ^{14}C が測定された。実験の詳細は第3.3節を参照されたい。

3.5.1.2. 実験結果

(1) 10日間連続培養実験

培養温度別の各相の ^{14}C 量の培養日数による測定結果を図3.5-2に示す。固相の ^{14}C は測定しておらず、初期添加量から気相と液相の ^{14}C 量を差し引いた推定量である。培養日数に対する各相の ^{14}C 量は、以下のように変化した。

液相：培養日数とともに ^{14}C 量は減少。培養温度上昇に依存し減少速度が速い。

気相：培養日数とともに ^{14}C 量は増加。培養温度上昇に依存し増加速度が速い。

固相：培養初期では増加し、さらに培養日数が経過すると減少する傾向。培養温度が高いと培養初期における増加が速く、減少に転じる培養日数が短い。

この結果は、液相の ^{14}C 標識酢酸が土壌内の微生物に取り込まれ、その後、微生物によってガス状の炭素に分解されていることを示している。培養温度 25°C のケースのみではあるが、平成20年度および21年度にも同様の実験が実施されており（放射線医学総合研究所, 2009, 2010）、微生物が存在しないケースでは、どの相においても ^{14}C 量にほとんど変化が無かったことから、土壌への ^{14}C の取り込みも土壌から気相への ^{14}C の放出（分解）も微生物が関与していることが裏付けされている。今回の結果は、培養温度によって、微生物による固相内への ^{14}C の取り込み速度等が異なることを示している。

(2) 7日間培養実験

初期培養後、土壌に蓄積された ^{14}C が7日間の培養によって、気相や液相にどの程度移行するかを調べた実験結果を図3.5-3に示す。初期の培養日数によって土壌内 ^{14}C 量が異なるので、各図において縦軸は初期培養直後の土壌内 ^{14}C 量で規格化した濃度を用いた。各相の結果は、培養温度によって大きな差がないように見える。そこで、図3.5-4に全培養温度の結果をまとめた。気相、固相の結果は、培養温度による違いは見られなかったが、液相の濃度は培

養温度が高いと低くなる傾向にあった。

3.5.1.3. 実験結果の反映

(1) 固相への¹⁴C取り込み

10日間連続培養の実験結果は、培養温度によって各相の濃度変化に違いが見られた。液相から固相への取り込みは、液相の濃度減少または固相の濃度上昇の時間変化に着目すればよいが、固相では分解現象も生じているので液相の濃度減少に着目するのが妥当である。その液相の¹⁴C濃度は、最初は急激に減少するが、ある濃度で平衡となる。気相濃度や固相濃度も同様、最初は急激に濃度が増加するが、ある濃度で概ね平衡に達する。各相の濃度が平衡になる比率を表3.5-1にまとめた。この結果は現在の水稻全体モデルに設定されているソース（灌漑水）から、近傍大気、土壌および灌漑水に瞬間的に供給されると仮定した比率と同じであり、平成20年度の実験結果（放射線医学総合研究所, 2009）と類似であった。図3.5-2に示した培養温度別の¹⁴Cの時間変化から、培養温度によって土壌への取り込み速度は変わるが、培養温度が15℃以上であれば4日以内、20℃以上では3日以内に平衡比率となる。この結果、固相へのごく初期の取り込み速度は培養温度によって異なるものの、温度影響は3日程度であった。表3.5-2に大阪以北の主要都市における1971年から2000年までの30年間の平均気温を示す。稲は主に5月から9月に栽培されることが多く、10℃以下の気温のときに栽培されることはほぼない。したがって、10℃におけるトレーサー実験結果はモデルへの反映データから除外した。

(2) 7日間培養実験

固相には土壌以外にも微生物が生息している。この土壌微生物による¹⁴C標識有機物の分解は¹⁴Cガスの発生を伴う。10日連続培養実験では、ソース（液相）から固相への¹⁴C取り込みの現象も含まれるが、7日間培養実験では¹⁴C標識有機物の分解は¹⁴Cガスの発生のみである。そこで、7日間培養実験に着目し分解速度の算出を試みた。実験データにおいて分解速度を表しているのは、固相の濃度減少、気相や液相の濃度上昇である。しかし、個々の実験が独立している（連続性が無い）ので、単純に濃度の培養日数の時間変化（2日目と3日目の濃度差など）から分解速度を算出しようとしても、得られる分解速度のデータはばらつきが大きくなる。そこで、各初期培養日数の実験の各々において、分解速度を算出することとした。図3.5-5に土壌内微生物による¹⁴C分解による濃度の時間変化のイメージを示す。図中の減少曲線は、固相の濃度変化を示し、固相の減少した分が気相と液相に移行した¹⁴C分となる。

i) 固相濃度による分解速度の算定

固相における微生物での分解による¹⁴C濃度変化は、下式で表わされるとする。

$$\frac{C_t}{C_0} = \exp\left(-\frac{\ln(2)}{t_{half}} \times t\right) \quad \text{式(3.5-1)}$$

ここで、

C_t : 時刻 t における固相 ^{14}C 濃度

C_0 : 時刻ゼロにおける初期 ^{14}C 濃度 (濃度は規格化しているため, $C_0=1$)

t_{half} : 分解半減期 (day)

t : 時刻 (day)

上式から一日当たりの分解速度 k_{dc} は下式として表現できる。

$$\ln\left(\frac{C_t}{C_0}\right)/t = -\frac{\ln(2)}{t_{half}} = -k_{dc} \quad \text{式(3.5-2)}$$

ここで、

k_{dc} : 土壌内微生物による一日当たりの ^{14}C 分解速度

固相濃度については、「10日連続培養実験直後の濃度(7日間培養実験の初期濃度となる)」と「7日間培養後の濃度」から、式(3.5-2)を適用して分解速度を算出した。固相の濃度は、初期添加量(液相に添加)を1.0とした規格化濃度を用いた。図3.5-6に各培養温度における7日間での ^{14}C 分解量の変化を示す。初期培養直後からその7日後までに減少した ^{14}C 量の変化(傾き)が式(3.5-2)の k_{dc} に相当する。個々の実験から得られた k_{dc} を、初期培養日数を横軸にして整理すると図3.5-7となる。いずれの培養温度においても0.1/day付近で平衡となった。また、培養温度が高いと平衡になる培養日数が短くなることも分かった。

ii) 気相と液相の濃度による分解速度の算定

初期培養してから7日培養後の気相と液相の ^{14}C 増加量から、固相における分解速度を算定した。各相の濃度は、初期培養直後の土壌濃度を1.0とした規格化濃度を用いた。先に示した図3.5-5と式(3.5-1)から、気相と液相の濃度変化と分解速度の関係は下式となる。

$$C_{a+w,t} = C_0 - C_t = C_0\{1 - \exp(-k_{dc} * t)\} \quad \text{式(3.5-3)}$$

ここで、

$C_{a+w,t}$: 時刻 t における気相と液相の ^{14}C 濃度 (気相と液相の合算値)

上式から、

$$\ln\left(1 - \frac{C_{a+w,t}}{C_0}\right)/t = -k_{dc} \quad \text{式(3.5-4)}$$

なお、濃度は規格化しているため $C_0=1$

上式より、固相の分解速度を算出した。算出した分解速度を培養温度別に初期培養日数で整理すると図 3.5-8 となる。10°Cを除き、いずれの培養温度においても 0.01/day 付近で平衡となった。10°Cの場合は他の温度より約 2 倍高く、0.02/day 付近で平衡となった。また、培養温度が高いと平衡になる初期培養日数が短くなることは、固相濃度から求めた分解速度の結果と同様であった。

iii) 固相濃度から算出した分解速度と気相&液相濃度から算出した分解速度の違い

10 日間連続培養において、固相の ^{14}C 濃度は推定値である。従って、7 日間培養を開始した時の固相濃度は正確には不明である。7 日間培養を実施する際、一旦固相（土壌）を洗浄しており、7 日培養実験の固相の初期濃度が、実際には推定値よりも低い可能性がある。その結果、7 日間培養実験では固相の初期濃度と実験後の濃度の差が大きくなるので、実際の分解速度よりも大きく評価されていると思われる。一方、7 日間培養実験における気相と液相の ^{14}C 濃度の初期値はゼロであり、それらの濃度の増加分は、7 日間培養実験で固相から分解された ^{14}C に該当する。従って、この場合は気相と液相の濃度から算出された分解速度を適用するのが妥当である。

初期培養の日数によって分解速度は変化しているが、初期培養日数が 10 日に近づくと分解速度も平衡に近づいた。そこで、初期培養日数 8~10 日後の 7 日間培養から得られた分解速度を培養温度別に平均してみると表 3.5-3 となる。この結果を図示すると図 3.5-9 になる。これらの結果から、分解速度（又は分解半減期）と培養温度には相関性が見られた。しかし、培養温度が高くなると分解速度が遅くなる傾向であり、温度が高くなれば分解が進むという一般的な知見とは逆の結果が得られた。これは、培養温度が高いと分解も速くなるために、7 日間培養実験を実施した段階で、既に固相には分解しにくい成分だけが残ったためと推察される。これについては次項で検討する。なお、ここでの分解しにくい成分とは、水稻全体モデルの難分解性成分ではなく、易分解性成分に相当し、培養実験ではさらに分解しやすい成分（非常に分解しやすい成分）が含まれているものと考えられる。そして、この非常に分解しやすい成分は時間スパンが非常に短いために水稻全体モデルでは考慮していない。

以上より、培養温度による分解速度の違いは、水稻全体モデルには適用できないと思われるが、全ての培養温度による結果を平均すると、分解半減期として約 55 日が得られる。この値は現在の水稻全体モデルで設定されている 27~67~114 日（イネが生育していない期間で、灌漑水が無い時の「土壌 1」コンパートメント⇒「環境大気」コンパートメントへの移行半減期）に類似する結果となった。

iv) 10日連続培養とその後の7日間培養の実験の連続性

10日連続培養では、培養日数を経るにつれ、気相の ^{14}C 濃度が平衡になった。ソース添加後、土壌で分解されたガス状の ^{14}C が、密閉状態下において気相が飽和状態（ガス分圧）となっている可能性がある。なお、平成20年度作業で同様の実験において、5日後にガス開放した実験では分圧による影響はないとされている（放射線医学総合研究所, 2009）。そこで、気相における10日連続培養における ^{14}C 濃度と、その後の7日間培養の ^{14}C 濃度について連続性があるか調べた。

図3.5-10に初期添加量を1.0とした時の、10日連続培養時の気相濃度およびその後の7日間培養の気相濃度をまとめた。7日間培養後の培養日数は初期培養日数+7日間とした。また、7日間培養の気相濃度に10日連続培養時の気相濃度を加算した値も併せて図中に示した。つまり、例えば初期培養3日の後に7日間培養した場合、初期培養3日終了時点の気相濃度と7日間培養後の気相濃度を合算し、横軸の培養日数3日+7日=10日に濃度をプロットした。

図3.5-10において、培養温度の低い場合、初期培養時に ^{14}C の固相（土壌）への取り込みが遅いので、培養温度 10°C では、初期培養と7日間培養後とを併せた気相濃度は、初期培養の気相濃度よりも低い濃度となる。例えば、初期培養3日後に7日間培養した場合、計10日間の培養日数となり、初期培養3日の気相濃度と7日間培養後の気相濃度の合算値は、初期培養10日の気相濃度よりも約1オーダー低くなっている。しかし、初期培養10日後に7日間培養した場合、培養日数計17日における合算した気相濃度は、初期培養10日の気相濃度をほぼ外挿した値となった。

一方、温度が高い場合、 10°C とは異なる反応が示された。培養温度が高くなるにつれ、初期培養の気相濃度と7日間培養後の合算気相濃度に違いがなくなり、7日間培養後の合算気相濃度は、初期培養の気相濃度を外挿したような値となった。培養温度が高い場合、初期培養で固相（土壌）への取り込みが速く、初期培養の約3日以降は固相での分解現象によってのみ気相に ^{14}C が移行していると考えられる。

以上の結果から、固相への取り込み量が一定に達すれば、10日連続培養でも、その後の7日間培養でも、液相内、気相内での ^{14}C の存在有無に関わらず、固相の分解（速度）が同じように継続していると考えられることから、初期培養およびその後の7日間培養の実験は固相の分解現象に関して連続性があるといえる。

3.5.2. 水稻全体モデルに対する近傍大気と環境大気的气体交換効果の反映

本報告書第3.4節で述べたように、本年度は模擬水田群落において群落内、群落頂、群落外の水平および鉛直方向の風速を測定した。ここでは、これらの実験データをモデルに反映させる視点から解析を行い、その結果得られたモデルパラメータについて報告する。

3.5.2.1. 実験概要

水稻の成長期および登熟期における近傍大気と環境大気の交換半減期に資するデータを得るために、草丈約 57 cm と約 70 cm の水稻模擬群落で風向風速データを取得した。図 3.5-11 に風速計設置のイメージ図を示す。57 cm 群落の場合 2015 年 10 月 26 日から 27 日にかけて測定されたデータを、70 cm 群落の場合 10 月 27 日から 28 日にかけて測定されたデータを利用した。また、群落内部から外部、または群落外部から内部への風の流れを目視確認するため、蚊取り線香の煙を用いて群落内部と群落外部における煙の拡散状態をビデオ撮影したデータを、同様に群落内、群落頂、および群落外にドライアイスを設置し、その白煙の流れをビデオ撮影してたデータも参考した。実験の詳細は第 3.4 節を参照されたい。

3.5.2.2. 実験結果と結果分析

(1) 観測データによる群落内外の風の状態

まず、群落外部と群落頂部および内部との水平方向の風速（水平風速）の関係について調べた。図 3.5-12 に 57 cm 高の群落植物の、図 3.5-13 に 70 cm 高の群落植物の、水平風速の関係を示す。どちらの植物群落も、群落内部の水平風速は、群落外部の風速との相関は殆ど見られず、群落内部の風は、群落外部の風とは異なるものである（別な要因で吹いている）と考えられた。一方、群落頂部の風速は、群落外部の風速に対してバラツキは大きいものの多少の相関が見られた。

次に、各測定高さにおける鉛直方向の風速（鉛直風速）について調べた。図 3.5-14 に 57 cm 高の群落植物の、図 3.5-15 に 70 cm 高の群落植物の、鉛直風速の関係を示す。水平風速と同様、群落内部の鉛直風速は、外部の鉛直風速に対して相関は見られなかった。群落外部の鉛直風速と群落頂部の鉛直風速は、57 cm 高の群落植物では多少の相関があるように見える程度であるが、70 cm 高の群落植物では相関があることが分かった。

水平、鉛直ともに群落内部の風速は、群落外部の風速と相関が得られたなかったことから、群落頂部との風速とも相関がないと推測される。そこで、ある程度相関関係が得られた群落外部と頂部に着目して、それらの鉛直風速の関係をさらに詳細に検討した。その際、群落頂部の鉛直風速については、上方向、下方向、その他で分類することとした。風の上方向、下方向の判断基準は、天頂を 0 度、天底を 180 度とした場合、135 度から 225 度の範囲から吹き込む風を上方向の風とし、315 度から 45 度の範囲から吹き込む風を下方向の風とした。図 3.5-16 に 57 cm 高の群落植物の、図 3.5-17 に 70 cm 高の群落植物の、鉛直風速の関係を示す。群落頂部における上方向の鉛直風速は、57 cm 高の植物群落で約 0.2 m/s 以下、70 cm 高の植物群落で約 0.5 m/s 以下が殆どであり、上方向の風は水平方向の風と比較して強くないことが分かった。一方、群落外部から内部への下方向の風が吹くケースは非常に少なく、70 cm 高の植物群落で特にその頻度は少なかった。

次に、水平風速と鉛直風速の関係について検討した。図 3.5-18 に 57 cm 高の

群落植物について、図 3.5-19 に 70 cm 高の群落植物について、群落頂部における水平風速と鉛直風速の関係を示した。全体的には水平風速と鉛直風速に相関があるように見えるが、上方向の風に着目すると、水平風速との相関性自体よりも、水平風速に条件があることが分かる。57 cm 高の植物群落で水平風速が約 0.2 m/s 以下、70 cm 高の植物群落で水平風速が約 0.4 m/s 以下に集中し、水平風速が一定以上であれば鉛直方向の風が吹きにくいことを示している。このように、水平風速が小さいと上向き風が発生し易いというのは、後述するビデオ撮影からも明らかとなっているが、群落頂部で水平方向の風が吹いている場合には、上方向（群落内部から外部）には風が抜けず、水平方向の風が鉛直方向の風の流れを止める蓋の効果を果たしているためと考えられる。

観測データでは、天底の前後 90 度範囲から吹く風を上方向と判定したが、その風の方向を判断する角度を絞り込めば、上方向の風が発生し易い、水平風速が 0.2 m/s 以下、又は 0.4 m/s 以下の条件は、さらに低い水平風速となる可能性がある。この可能性を確認するためには、観測データとビデオ撮影（煙の移動状態の観察）をより長い期間で対応付けして、鉛直の風向値と目視とを関連付けるデータが必要となる。

一方、上方向の風に比べて、下方向の風が発生する頻度はさらに低かった。これは、群落内部へ風が吹く（空気が入る）のは、水平方向の風による蓋効果とともに、植物群落の葉の状態が大きく寄与していると思われる。57 cm 高の植物では植物自体が直立した状態に近いが、極端に下方向の風が発生頻度が少なかった 70 cm 高の植物では葉が垂れており、その葉の状態が蓋効果の役割を果たしていると思われる。

（2）ビデオ撮影による群落内外の風の状態

観測データを測定した約 24 時間のうち、ごく短い期間（1 回約 5 分で数回撮影）でビデオ撮影を行った。ここではビデオ撮影結果を示すことができないが、目視によって以下の 2 点が確認できた。

- ・群落内では横風が生じる瞬間と止まる直前に上昇し、その後群落頂部で水平方向に拡散する傾向が見られた。
- ・横風が吹いている時、煙は群落内を水平に拡散しており、群落外へ抜け出る様子は殆ど確認できなかった。

この観察結果より、群落頂部に風の蓋があり、群落内で生じた CO₂ ガスは群落外へは抜け難いことが視覚的に示された。

（3）群落内部から群落外部への風が発生する状態の検討

水平、鉛直風速およびビデオ撮影結果の観察結果から、群落頂部の水平風速が小さくなると、群落内部から外部への風が発生し易いと考えられる。つまり、近傍大気から環境大気への空気の移行が起こりやすいと考えられる。水平および鉛直風速で得られた条件は、群落頂部における水平風速であるが、ここでは、

一般的に観測される気象データを用いて判断できないか検討した。

まず、群落外部の水平風速と、群落頂部の鉛直風速の関係を整理した。図 3.5-20 に 57 cm 高の植物群落について、図 3.5-21 に 70 cm 高の植物群落について示す。これらの図は、各々図 3.5-18 と図 3.5-19 に類似しており、群落頂部の水平方向の風速の代わりに群落外部の水平方向の風速を指標にすることが可能であることを示している。上記(1)で示した群落頂部の水平風速の条件は、群落外部の水平風速にすると、57 cm 高の群落植物で約 1.0 m/s 以下、70 cm 高の群落植物で約 1.5 m/s 以下となる。但し、両者とも水平風速 2.0 m/s までは上方向の風が発生しているので、2.0 m/s 以下も目安の風速とする。

ここで、①上記の水平風速の条件を満たした時に、群落頂部で上向きの風が発生する割合を算定し、次に、②上記の水平風速の条件を満たす年間の発生割合を算出した。また、①×②により、1日にどれくらいの割合(時間比率)で、群落内部から外部へ空気が移行するかを算定できる。

まず①について、群落外部における水平方向の風速分類別に、群落頂部で上向きに風が吹く頻度(割合)について検討した。結果を表 3.5-4 に示す。57 cm 高の植物と 70 cm 高の植物では群落頂部で風が上向きとなる頻度は異なるが、ここでは両者の群落植物を併せて、全ての風速分類を対象として上向き風の発生割合が 0.33 と算出された。なお、2 m/s 以上のデータ数が少なく結果に与える影響が小さいので全てのデータを対象とした。

次に②について、群落外部の水平風速が 2 m/s 以下となる発生割合を算定した。これには年間を通じて観測されている気象データを用いることが必要であり、気象庁の Automated Meteorological Data Acquisition System (アメダス)を用いることとした。アメダスの観測高さ今回の観測高さは異なるので、観測高さによる風速の違いを補正することが必要となる。風速は、観測された高さに対して以下の対数則に従うことが知られている。

$$U = A \cdot \ln\left(\frac{Z}{Z_0}\right) \quad \text{式(3.5-5)}$$

ここで、

U: 高さ Z での風速 (m/s)

A: u^*/κ

Z: 高さ (m)

Z_0 : 空気力学的粗度(地表面の凸凹の大きさ) (m)

u^* : 摩擦速度(大気安定度, 地表面状態-都市域, 田畑, 森林等-によって異なる)

κ : カルマン定数 (= 0.4)

まず、実際のアメダスとの関係を調べた。図 3.5-22 に、千葉観測所および船橋観測所のアメダスの風速と本調査において観測された風速データとの関係を調べた。アメダスは放医研での観測日時に対応しているが、いずれの地点も式(3.5-5)の関係は見られず、測定場所が異なれば両者のデータを関連付けること

が困難であることが分かった。

そこで、式(3.5-5)に従うと仮定し、放医研での観測高さ約 24.2 m（標高約 23 m+測定高 1.2 m）の風速を、千葉観測所の観測高さ（47.9 m）に外挿した。その結果、標高 47.9 m 高さでは群落外部の風速の 1.21 倍になることから、群落外部の風速 1 m/s および 2 m/s は、標高 47.9m では 1.2 m/s および 2.4 m/s に相当することになる。千葉観測所のアメダスから、イネの生育期間である 4 月～9 月末を対象に、2014 年と 2015 年の 2 ヶ年について、時間別の風速別発生頻度を調べたところ図 3.5-23 および表 3.5-5 となった。なお、冬季は風速が大きくなる傾向があり、イネの生育期間に該当しないことから、年間のデータを母集団とするのは適当ではないと判断した。表 3.5-5 が示すように、風速 2.4 m/s 以下の発生頻度は 0.242 であった。

以上のように、群落外部で 2 m/s 以下の風速の発生頻度が 0.242、その際に群落内部から群落外部へ風が抜ける発生割合は 0.33 と考えられる。今回観測された植物群落は、イネの出穂以後での生育状態に類似しており、そのようなイネ状態の期間では、群落内部から外部へガスが移行するのは、 $0.242 \times 0.33 = 0.080$ の割合で発生することと推定される。即ち、1 日 24 時間のうち約 2 時間だけ、群落内部から外部へガスが移行することを意味する。

（４）群落内部から外部へのガス移行量の推定

ここまでで、群落内部から外部へガスが移行する時間割合を算定した。ここでは、そのガスが移行する時の移行量を推定する。しかし、定量的な評価はできないので、ビデオ観測において、線香の煙が群落外に移行する時の状態から判断することとした。

線香の煙の観察から、その時の空気の 1 秒間での移行量は 1 ヶ所当たり 100 cm³ 程度と推測された。また、この移行は数秒間継続するような状態ではなく瞬間的なものである。しかし、ここで類推する移行量は、ある程度ガスの移行が継続した場合における平均的な時間当たりの移行量である。従って、瞬間的な移行量から推定する 100 cm³ が妥当かは不明であるが、継続的な条件下での時間当たりの移行量としては十分な量と判断する。今後新たな観測データが得られることを期待する。なお、移行量を推定する際に、従来のように群落外部へ抜ける口径と風速から設定することも考えられるが、葉面積指数（LAI）が大きくなると口径を仮定することが困難であり、従来の方法での移行量の算定は行わなかった。そこで、ガスが移行する貫通口の個数は、1 m² 当たり 10 ヶ所程度と仮定した。

3.5.2.3. 近傍大気と環境大気の移行半減期

前項で示した鉛直方向の風速データに従い、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の算出を試みた。計算には以下の仮定を設けてた：

- ・群落内部からガス流出分（上向き風速による）は、そのまま系外に移行。
- ・この時の移行速度は 1.0 m/s（暫定的に観測データの約 2 倍）。

- ・群落内の CO₂ 濃度は 380 ppm。
- ・群落内の体積をイネの生育実験の広さは 6.3 m³ (3 m × 3 m × 0.7 m)。
- ・群落内部から群落外部へ移行するガス体積；ガス移行時で 100 cm³/sec。
- ・群落内から外部へ移行する貫通口は 90 個 (10 個/m²×9 m²)。
- ・ガス移行は時間当たり 0.08 の割合で発生。
- ・ガス移行量は平均して 8 cm³/sec (100 cm³/sec×0.08)。

群落内部の CO₂ が上記の移行量に従い逐次系外に放出される状態を模擬し、群落内の ¹⁴CO₂ 濃度が初期値の半分になるまでの時間を Excel で計算した。図 3.5-24 に計算結果を示す。初期 CO₂ 濃度が半分となるまでの日数は約 43 日と計算された。これが移行半減期であり、計算条件で与えたガス移行体積量や群落内の体積によって上記の結果は変動するが、イネの群落が成長した状態では想定される範囲の半減期と考える。

3.5.2.4. 観測結果に基づく水稻全体モデルへの反映の検討

これまでに述べた微生物による炭素の取り込みおよび分解実験および模擬水田の風向風速観測結果のデータを反映し、水稻全体モデルにおける移行半減期等の見直しを行った。

(1) 灌漑水から流入した曝露源の近傍大気，土壤 2 および灌漑水への流入割合

微生物による炭素の取り込みおよび分解実験の結果から、液相に添加した ¹⁴C 標識酢酸は、添加後 3 日以内でほぼ固相，気相に移行し、3 日目以降の各相における ¹⁴C 存在割合は、現在のモデルの比率と同じであった。従って、モデルを変更する必要はない。なお、温度による影響を反映するため、曝露源が灌漑水から流入してきた場合に流入先への割合として、液相 5%，固相 52%，気相 43% に微調整した。

培養温度 10℃ の場合、微生物活性が低いために炭素の取り込みが遅く、実験結果は上記の比率が液相 8%，固相 64%，気相 28% となっていた。田植え以降のイネの生育期間では 15℃ 以下の温度は対象外となるが、モデルによる感度解析でその影響を把握することとした。

(2) 土壤から近傍大気（または灌漑水）への移行半減期

微生物による炭素の取り込みおよび分解実験の結果から、培養温度による影響は小さく、その分解半減期は 10℃～30℃ の培養温度の平均で約 55 日であることが分かった。この分解半減期は、水稻全体モデルにおける、「土壤から近傍大気（または灌漑水）への移行半減期」に相当する。55 日の移行半減期は、現在のモデルの 27～67～114day の移行半減期幅のほぼ中央値に該当し、この場合もモデル変更の必要はない。培養温度による分解半減期の変動幅も小さかったことから、感度解析で検討する必要性は小さいと考える。

(3) 近傍大気から環境大気への移行半減期

昨年度、イネの成長段階は LAI を指標として以下の 3 段階に分類された。

- 区分 III) 田植え～栄養成長期： LAI=0～2 (0～49 日)
- 区分 III) 栄養成長期後～生殖成長： LAI=2～4 (50～58 日)
- 区分 III) 生殖成長後～収穫まで： LAI=4 以上 (59～150 日)

本年度の模擬水田群落であるが、草丈 57 cm の群落および 70 cm の群落とも LAI 値は 6 であり、昨年度の分類に当てはめると、両群落とも生殖成長後から収穫の時期に分類された。この 2 つの群落の外部、頂部および内部における水平方向と鉛直方向の風速の観測の結果、近傍大気(群落内部)から環境大気(群落外部)へのガス移行半減期は、約 43 日と試算された。また、環境大気から近傍大気へのガスの移行は殆ど起こらない考えられた。試算された移行半減期(43 日)であるが、この値はさまざまな仮定のもとに試算されている。例えば、群落内から群落外へのガス移行量は $100 \text{ cm}^3/\text{sec}$ と仮定しているが、この仮定は人工的に発生させた煙の観察から見積もられた値であり、実際に測定された値ではない。したがって、実際の気体の移行量は、この仮定とは異なる可能性もある。ここでは試算値を丸めた 40 日を区分 III) の上限値に設定することとした。区分 III) の下限値は、試算値の 1/10 の 4 日と設定した。気体の移行量を仮定した量の 10 倍に見積もった場合に得られる値である。そして、代表値は上限値と下限値の中間の 20 日とした。

区分 I) と区分 II) については観測データがなく現行値から変更することはできないが、区分 II) については、区分 III) の結果との関係を考慮して、上限値を区分 III) の下限値に変更した。

以上より、見直しした「近傍大気から環境大気への移行半減期」を以下のように設定した。

- 区分 III) 田植え～栄養成長期： 0.1～0.3～0.5 day (現行のまま)
- 区分 III) 栄養成長期後～生殖成長： 0.5～2～4 day (上限値を 3day から 4 day に変更)
- 区分 III) 生殖成長後～収穫まで： 4～20～40 day (従来の 3～10～17 day の下限値、代表値、上限値とも変更)

(4) 水稻全体モデルのプログラム改良

具体的なプログラム変更内容は以下のとおりである。

「Air コンパートメント ⇒ Atmosphere コンパートメントの移行経路」のプログラム内変数の移行半減期パラメータを以下とした。

- ・ T_HF_ENV1 ; T_LAI0 の期間に適用する移行半減期(day)
; 0.1～0.3～0.5 d (昨年度と同じ)
- ・ T_HF_ENV2 ; T_LAI2 の期間に適用する移行半減期(day)

; 0.5~2~4 d (上限値のみ変更)

・T_HF_ENV3 ; T_LAI2以降, 収穫期までの期間に適用する移行半減期(day)
; 4~20~40 d (上下限, 代表値とも変更)

3.5.3. 水稻全体モデルの改良および検証解析

本節では, 各パラメータの基準値を適用した基本解析, およ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の結果について報告する。

3.5.3.1. 改良した水稻全体モデルの検証解析 (基本解析)

モデル改良内容を検証するため, モデルパラメータの基準値を用いた基本解析を実施した。これまでの検討において, 変更したモデルパラメータおよびその値は以下の通りである。

近傍大気→環境大気の移行半減期

区分 III) {LAI=2~4}: 0.5~2~4 day (上限値のみ変更)

区分 III) {LAI>4~収穫まで}: 4~20~40 day

ここでは, 代表値を変更した区分 III) における移行半減期を 20 day とした場合について, 灌漑水と同時に ^{14}C が流入してくる場合を基本解析として実施した。対照として昨年度のモデルパラメータによる解析結果と比較した。なお, 曝露源である灌漑水から流入してきた ^{14}C の土壌, 灌漑水および近傍大気の各コンパートメント (COM) への割合は, 本年度微調整した値を設定して解析した。

図 3.5-25 に基本解析結果と平成 26 年度モデルによる解析結果における各移行経路の移行量を示す。区分 III) に該当する 59 day 以降, 近傍大気から環境大気への移行量は, 昨年度に比べて少なくなった。中干し期 (80~90 day) では, 昨年度では約 5,500 Bq/day の移行量に対し, 本年度では約 4,000 Bq/day であった。一方, 土壌 1→近傍大気の移行半減期の値は昨年度と同じであるものの, その移行量は, 中干し期において, 昨年度で約 12,000 Bq/day に対し, 本年度は約 13,500 Bq/day と増えた。近傍大気→環境大気の移行半減期が大きくなったことで, 近傍大気 COM の ^{14}C 濃度が高くなり, 図 3.5-26 に示すように近傍大気→土壌 1 の移行量が増えた。その結果, 土壌 1 COM 内の ^{14}C 量が増加し, 再度, 土壌 1→近傍大気の移行量が増えることとなった。各移行パスは, 1つの COM から他の COM へ一方的に移行するのではなく, 両 COM 間の相互移行を模擬している。この相互パスは基本的に両 COM の濃度が同じになるように働くため, 一方の COM の濃度が高くなると, 移行半減期の値が同じでも移行量が増えることを示している。

図 3.5-27 に, 各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。昨年度モデルの結果に比べて, 近傍大気→環境大気の移行半減期が大きくなった 59 day 以降で, 近傍大気 COM の ^{14}C 量は, 中干し期において昨年度の約 160 Bq から本年度の約 290 Bq と約

2 倍に増えた。これは近傍大気→環境大気の移行半減期を 2 倍にした効果が明確に表れており、モデルが適切に機能していることを示している。

イネの COM を見ると、昨年度モデルの結果に対して、茎葉部 COM の ^{14}C 量も 59 day 以降増えており、その後の穂部の ^{14}C 量も増えた。収穫時における穂部の ^{14}C 量は、昨年度の約 200 Bq から本年度では約 350 Bq と 1.75 倍に顕著な増加を示した。

3.5.3.2. 感度解析

感度解析は、変更したモデルパラメータ(近傍大気→環境大気の移行半減期)以外に、曝露時期、曝露期間、灌漑水流入時における各 COM への割合に着目して 10 通りの条件を設定した。表 3.5-6 に基本解析のパラメータを、表 3.5-7 に感度解析ケース一覧をまとめた。感度解析ケースは以下の 4 つに大別される。

- 1) 継続曝露で、曝露開始時期を変えた場合；
感度解析 No.1 (中干し 1 週間前) と No.2 (中干し直後)
- 2) 上記 1)と同じ条件で、近傍大気→環境大気の移行半減期を上限 40day にした場合；
感度解析 No.3~No.5, No3 は基本解析の比較対象
- 3) 短期曝露 (1 週間のみ) で、曝露時期と曝露期間を変えた場合；
感度解析 No.6~No.9
- 4) 灌漑水流入時における土壌、灌漑水および近傍大気への流入割合を変えた場合；
灌漑水 100%, 土壌 2 と近傍大気は 0%

見直しした近傍大気→環境大気の移行半減期は、区分 III) の 59 day 以降に適用される。また、イネもその時期からの成長が速い。そのためケース 1) は、変更した移行半減期の影響が、どの時期から曝露するとより効果的に見られるかを調べるものである。田植え開始直後からの曝露でなくても、収穫時におけるイネ内部の ^{14}C 量が同じとなる可能性を考えた。

ケース 2) は、見直しした移行半減期を上限にした場合であり、どの程度の影響があるかを確認するためである。

ケース 3) は、上記 1)と 2)の条件に加え、曝露期間を短期間とした場合である。放射性廃棄物処分場を放出源として想定している現状では、短期曝露というのは適当ではないが、見直しした移行半減期の影響がより顕著に現れる可能性を考えた。

ケース 4) は、灌漑水として圃場に流入してきた ^{14}C が、土壌の微生物に取り込まれずガス化もしない状態にある場合を想定したものである。どのような影響があるか確認しておくことが重要と考えた。

i) 感度解析 No.1 ケース

本ケースは、中干し 1 週間前から曝露したケースである。図 3.5-28 に各移行経

路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。収穫前の落水時における土壌 1→近傍大気の移行量は、基本解析に比べて約 1/2 であった。収穫期における穂部の ^{14}C 量は、基本解析の約 350 Bq に対し約 180 Bq となり、これも約 1/2 となった。

総曝露期間は、基本解析では $120-10=110$ day, No.1 では $7+(120-90)=37$ day と約 1/3 の曝露期間であることから、イネの成長が速い時期から曝露を受けると、曝露期間に比べより高い割合でイネ穂部へ ^{14}C が移行することが分かった。

一方、本感度解析結果で着目すべき点は、中干し期において近傍大気 COM の ^{14}C 量が減少していることである。基本解析を含む従来の結果および文献等の観測結果では、蓋効果の役割をしていた灌漑水が無くなることで、土壌から近傍大気に急激に炭素が移行し、近傍大気の ^{14}C 量や濃度が高くなるのが一般的であった。本感度解析でも収穫前の落水期 (120 day 以降) では、この現象が確認されている。中干し期直前の近傍大気 COM の ^{14}C 量は、基本解析の約 3,400 Bq に対して本感度解析では約 3,200 Bq であり殆ど同じであった。そこで、土壌 1 COM 内の ^{14}C 存在量を調べたところ、図 3.5-29 の結果となった。基本解析に対し本感度解析の中干し期直前の土壌 1 COM 内の ^{14}C 存在量は約 1/10 であり、曝露直後の中干し期には、土壌 1 内に ^{14}C が蓄積されておらず、近傍大気に移行する ^{14}C が無いと考えられた。このため、従来では中干し期において、近傍大気から茎葉部に ^{14}C が大量に移行し、収穫期におけるイネ内部の ^{14}C 量に寄与していたが、本感度解析では、中干し期におけるイネへの ^{14}C 移行量は少なかった。

基本解析では、茎葉部への ^{14}C 移行は約 60 day 以降から増加しており、中干し期直前 (73 day) から曝露させた本感度解析では、イネの ^{14}C 量が殆ど変わらないことが予想されたものの、本感度解析により中干し期までに土壌 1 内に蓄積される ^{14}C 量が収穫期におけるイネの ^{14}C 量に影響を及ぼすことが分かった。

ii) 感度解析 No.2 ケース

本ケースは、中干し直後から曝露したケースである。図 3.5-30 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。中干し後の挙動は、感度解析 No.1 と類似であった。収穫前の落水時における土壌 1→近傍大気の移行量は、基本解析に対し約 36%、感度解析 No.1 に対し約 85%であった。収穫期における穂部の ^{14}C 量は、基本解析の約 350 Bq に対し約 150 Bq で約 40%、感度解析 No.1 に対し約 83%であった。

総曝露期間は、基本解析に対し約 27%、感度解析 No.1 に対し約 81%であった。基本解析の曝露期間に比べ、より高い割合でイネ穂部へ ^{14}C が移行した。図 3.5-31 に示すように、中干し期以降の土壌 1 内 ^{14}C 存在量は、本感度解析 No.2 は No.1 の約 83%であり、これが収穫期のイネ穂部の ^{14}C 量の割合に影響した。これは、No.1 では、中干し期前のイネへの移行は最終的なイネへの移行量に対して寄与が小さかったためである。しかし、曝露期間によって土壌内に蓄積された ^{14}C 量が異なるために、収穫前落水期 (20 day 以降) における土壌 1→近傍大気への ^{14}C 移行量および近傍大気の ^{14}C 存在量が No.1 と No.2 では異

なり，それが収穫期のイネの ^{14}C 量の違いとなった。

iii) 感度解析 No.3 ケース

本ケースは，田植え時からの継続曝露であり，59 day 以降，近傍大気→環境大気の移行半減期を上限の 40 day としたケースである。図 3.5-32 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。移行量，存在量の挙動は，基本解析と類似であった。近傍大気の使用量は，基本解析の約 1.5 倍であり，収穫期におけるイネ穂部の ^{14}C 量は，基本解析の約 1.6 倍となった。イネの成長が速い時期において，近傍大気から環境大気へ ^{14}C が移行し難くなることで，近傍大気の ^{14}C 量（又は濃度）が高くなり，イネへの ^{14}C 移行量が顕著に増えることが分かった。

iv) 感度解析 No.4 ケース

本ケースは，区分 III) における近傍大気→環境大気の移行半減期を上限の 40 day とし，感度解析 No.1 と同様，中干し 1 週間前から曝露したケースである。図 3.5-33 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。移行量，存在量の挙動は，感度解析 No.1 と類似であった。収穫前の落水時における土壌 1→近傍大気の移行量は，No.3 に比べて約 45%であった。収穫期における穂部の ^{14}C 量は，No.3 の約 560 Bq に対し約 300 Bq で約 52%となった。収穫期におけるイネ穂部の ^{14}C 量は，基本解析に対し No.1 では約 51%，No.3 に対し No.4 では約 52%とほぼ同じであった。また，収穫期におけるイネ穂部の ^{14}C 量を基本解析と比べると，本感度解析では基本解析の約 82%であった。曝露期間が基本解析よりも約 34%と短いことを踏まえると，区分 III) における近傍大気→環境大気の移行半減期の影響が顕著であった。

v) 感度解析 No.5 ケース

本ケースは，区分 III) における近傍大気→環境大気の移行半減期を上限の 40 day とし，感度解析 No.2 と同様，中干し後から曝露したケースである。中干し直後から曝露したケースである。図 3.5-34 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。移行量，存在量の挙動は，感度解析 No.2 と類似であった。収穫前の落水時における土壌 1→近傍大気の移行量は，No.3 に比べて約 37%であった。収穫期における穂部の ^{14}C 量は，No.3 の約 560 Bq に対し約 250 Bq で約 45%となった。収穫期におけるイネ穂部の ^{14}C 量は，基本解析に対し No.2 では約 45%，No.3 に対し No.5 では約 45%と殆ど同じであった。また，収穫期におけるイネ穂部の ^{14}C 量を基本解析と比べると，本感度解析では基本解析の約 72%であった。このケースにおいても，曝露期間が基本解析の約 27%であるのに対し，穂部の ^{14}C 量は基本解析の約 72%と，比率だけ考えると基本解析の約 3 倍は穂部に移行していることになる。

vi) 感度解析 No.6 ケース

本ケースは，1 週間のみでの曝露とし，曝露時期は中干し直前の 1 週間とした

ケースである。図 3.5-35 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。中干し期が終わるまでは、感度解析 No.1 と移行量、存在量の挙動は類似であった。中干し期以降 ^{14}C の流入が無い場合、灌漑水が存在している間は近傍大気の ^{14}C 存在量は殆どゼロになり、収穫前の落水以降、土壌 1 からの移行により多少の回復が見られた。収穫期における穂部の ^{14}C 量は、基本解析の約 7%、No.1 の約 13%であった。曝露期間としては、基本解析の約 6.4%、No.1 の約 19%であり、No.1 の曝露期間割合よりも穂部の移行割合が低いことから、中干し期以降の曝露の方がイネへの移行に対する寄与が高いことを示している。

vii) 感度解析 No.7 ケース

本ケースは、区分 III) における近傍大気→環境大気の移行半減期を上限の 40 day とし、感度解析 No.6 と同様、曝露条件を中干し直前の 1 週間のみとしたケースである。図 3.5-36 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。移行量や存在量の絶対値の大きさが異なるものの、感度解析 No.6 と挙動は類似であった。移行半減期の同じものと比べると、収穫期における穂部の ^{14}C 量は、No.3 の約 7%、No.4 の約 13%であり、感度解析 No.6 と同じ結果であった。基本解析と比べると、収穫期における穂部の ^{14}C 量は約 11%であり、穂部への移行は曝露期間の比率の 2 倍弱であった。

viii) 感度解析 No.8 ケース

本ケースは、中干し直後 1 週間の曝露としたケースである。図 3.5-37 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。 ^{14}C が流入する 1 週間は近傍大気等の ^{14}C 存在量は増加するが、流入が終わるとほぼゼロにまで低下し、落水した後に再度、近傍大気の ^{14}C 存在量が増加する。収穫期における穂部の ^{14}C 量は、基本解析の約 7.6%、No.2 の約 17%である。また、曝露期間が同じ No.6 と比べると約 115%となり、ここでも中干し期以降に曝露した方がイネへの移行が多いことが分かった。

ix) 感度解析 No.9 ケース

本ケースは、区分 III) における近傍大気→環境大気の移行半減期を上限の 40 day とし、中干し直後 1 週間の曝露としたケースである。図 3.5-38 に各移行経路の移行量と各 COM 内の ^{14}C 存在量を示す。移行量や存在量の絶対値の大きさが異なるものの、感度解析 No.8 と挙動は類似であった。但し、近傍大気の ^{14}C 存在量が No.8 より多いため、収穫前の落水開始までにゼロとなることはない。収穫期における穂部の ^{14}C 量は、No.3 の約 7.7%、No.5 の約 17%である。また、曝露期間が同じ No.7 と比べると約 113%である。これらは、近傍大気→環境大気の移行半減期の違いによって絶対量の違いはあるが、感度解析 No.8 で見られた関係とほぼ同じであった。本感度解析における収穫期における穂部の ^{14}C 量は、基本解析の約 13%であり、穂部への移行は曝露期間の比率の約 2 倍であった。

x) 感度解析 No.10 ケース

本ケースは、灌漑水流入時において、灌漑水のみには¹⁴Cが存在するとしたケースである。図 3.5-39 に各移行経路の移行量と各 COM 内の¹⁴C 存在量を示す。中干し期で見ると、土壌 1→近傍大気への¹⁴C 移行量は基本解析の約 1.7 倍、近傍大気の¹⁴C 存在量も約 1.6 倍であった。また、収穫期における穂部の¹⁴C 量は、基本解析の約 128%と 30%多くなっており、灌漑水流入時に近傍大気や土壌に¹⁴C が分配されない状況の方が、イネ環境中の¹⁴C 量が増えると考えられる。その理由の 1 つは、灌漑水流入と同時に近傍大気へ移行した¹⁴C はすぐに環境大気に移行するが、本感度解析の条件では、灌漑水から近傍大気へ移行する過程を経て環境大気に移行するので、イネ環境中（近傍大気、土壌 1 および灌漑水の 3 つの COM）の¹⁴C 量が減り難いためと考えられる。もう 1 つの理由は、灌漑水の¹⁴C の多くが土壌に残るためである。灌漑水の¹⁴C は土壌 2 COM へ移行し、その後、土壌 1 COM へ移行する。図 3.5-40 に灌漑水から土壌 1 および土壌 2 への移行量を示す。図 3.5-39 に示した灌漑水→近傍大気の移行量（最大で約 60 Bq/day）に比べて土壌 2 への移行量は約 200 倍であった。

図 3.5-41 に基本解析と本感度解析における土壌 1 COM 内の¹⁴C 存在量を示した。土壌 1 には基本解析の約 1.8 倍の¹⁴C 量が存在していることが分かる。従来、灌漑水流入時には 52%の¹⁴C が土壌 2 へ直接移行するとしている。本感度解析では灌漑水 100%であり、その多くが土壌 2 へ移行すれば従来よりも約 1.9 倍の¹⁴C 量が土壌 1 と土壌 2 に残ることになり、解析結果もそれを示している。

一方、中干し期までは近傍大気の¹⁴C 量が殆ど増加しないのでイネへの移行も殆ど無く、従来の結果とは異なる挙動であった。しかし、中干し期や収穫期前の落水以降に、土壌 1 COM 内に蓄積されていた（基本解析の約 1.8 倍の）¹⁴C 量が近傍大気へ一気に移行し、最終的なイネへの移行量は基本解析よりも増加した。

以上のように、本感度解析の結果は興味深いものとなっており、灌漑水中にどのような化学形態で¹⁴C が入っているのか、そして、その物質のガス化のし易さ（微生物への取り込み易さ）の特性が比較的重要であることを強く示唆しているものと考えられる。

3.5.3.3. 収穫期におけるイネ内¹⁴C 量およ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イネ内¹⁴C 量を図 3.5-42 にまとめた。グラフには参考として昨年度モデルの結果も含めている。これらの結果から、近傍大気→環境大気の移行半減期の重要性が改めて認識することができた。移行半減期を上限に設定した感度解析 No.3 の収穫期におけるイネ内¹⁴C 量は、基本解析の約 1.6 倍であり、昨年度モデルと比べると約 2.3 倍となっている。そして、中干し期以降の近傍大気の¹⁴C 量（濃度）が、イネへの¹⁴C 移行量に高く寄与していることが再度確認できた。また、灌漑水流入時における各相への¹⁴C の振り分け状態についても比較的影響があることが確認できた。

3.5.4. まとめ

本作業では，本年度実施したトレーサー実験および模擬水稻群落における風向風速観測データを基に，灌漑水から土壌や近傍大気への温度別の移行半減期，および近傍大気と環境大気の移行半減期を検討した。その結果，イネ群落が成長した状態では，近傍大気と環境大気の移行半減期が，昨年度見直しした移行半減期よりもさらに長い可能性が示唆された。また，灌漑水から土壌や近傍大気への移行半減期（ガス化速度）については，水稻全体モデルにおいて温度による効果を反映するほど顕著な影響はなく，従来のモデルから変更する必要がないと判断した。

上記の内容を水稻全体モデルに反映し，基本解析およびモデルパラメータを変更した感度解析を行ったところ，やはり近傍大気→環境大気の移行半減期の解析結果に対する影響が大きく，特に中干し期以降において，最もその効果が大きいことが窺えた。従って，近傍大気→環境大気の移行半減期については，イネ群落の成長段階に合わせた，より実際的な値を設定することが重要である。

また，初期のガス化速度については，酢酸の実験結果から，灌漑水流入時における各相に割り振る割合を従来のモデルと同じとしたが，灌漑水中に含まれる¹⁴Cの化学形態とそのガス化し易さについて，データを収集する必要性が示唆された。

引用文献

- 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；千葉．
- 放射線医学総合研究所．2010．平成21年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査．千葉．

3. 6. 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、ガス化を考慮した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、日本の 15 地点から採取した水田土壌を用いて 95 種類の炭素資化性についてデータを収集した。また、 ^{14}C ガス発生量および炭素資化性に対する気温の影響についてもデータを収集した。ガス発生に対する気温の効果は、水稻全体も出るのパラメータ設定のための基礎データとして利用し、モデルの精緻化を行った。近傍大気と環境大気とのガス交換は水稻に蓄積される ^{14}C 量に影響する。そのため、模擬水田環境およびイネ科草本植物群落内で、ガス交換のデータ取得のための予備実験を開始した。本年度取得した実測データに基づき、水稻全体モデルのパラメータを変更し、改良モデルの妥当性および各パラメータの感度解析を行った。以上の結果を本節でまとめ、今後の課題について述べる。

日本の北と南の地区から 15 地点の水田土壌を選定し、土壌微生物による 95 種類の炭素資化能について調査した。利用できる炭素の種類、および利用速度は水田土壌により異なることが明らかとなった。限られた土壌での試験結果ではあるが、我が国の水田土壌において資化されやすい炭素源は Maltose, α -D-Glucose, D-Galactose, Tween 80, および Sucrose であった。逆に、資化されにくい炭素源はギ酸, Thymidine, Glucose-6- Phosphate, N-Acetyl-D- galactosamine, および D-Serine であることが分かった。金属 TRU 廃棄物から酢酸が発生する可能性が示唆されており、本事業においても特に重要な化学種としてデータが蓄積されてきている。この酢酸であるが、95 種の有機物のうち 15 番目に利用し難い有機物であることが分かった。さらに、酢酸は土壌微生物活性を抑制している可能性も示唆された。炭素はありとあらゆる生物にとって必須元素である。したがって、TRU 廃棄物処分場から生活圏に移行した ^{14}C は様々な生物に取り込まれ、代謝されることにより多様な炭素分子に変換される可能性がある。今後はより多様な炭素のガス化についても検討する必要がある。そのために、炭素資化能とガス化との関係を明らかにし、最終的にパラメータ化することが重要である。

酢酸による微生物活性の抑制であるが、これまでの本事業における試験結果から、トレーサーレベルの微量な酢酸は炭酸ガスとして大気に放出することが示されている。一方、本年度の試験結果から、水田環境に存在するレベルの酢酸の添加は炭酸ガスの発生を抑制することが示された。つまり、初期濃度によりその挙動が変わることを示している。 ^{14}C のガス化に対する初期濃度の効果については、ほとんど知見が得られていないので、この効果についても調査する必要がある。

^{14}C の特徴的な環境挙動であるガス化は、主に微生物の活動により引き起こされていると考えられている。微生物の活動は気温に影響されるため、 ^{14}C のガス化に対する気温の効果について検討した。その結果、気温は $^{14}\text{CO}_2$ 放出速度に影響するが、最終的な放出量にはほとんど影響しないことが示された。しかしながら、本年度の試験は 10 日間の試験であり、長期間異なる気温にさらされた場合、微生物群集構造が変化するかもしれない。土壌が異なれば炭素資化

能が異なるように、微生物群集構造が変化すれば $^{14}\text{CO}_2$ ガス放出量にも影響すると考えられる。気温の変化と微生物群集構造の変化の関係は、今後の検討課題である。

微生物細胞に取り込まれた ^{14}C の再放出についても同様の結果が得られた。つまり、気温は ^{14}C の再放出にも影響しないことが分かった。再放出される ^{14}C 量は、むしろ細胞内に取り込まれた ^{14}C 量が重要であった。

本事業で開発した水稻全体モデルにおいて、近傍大気と環境大気の移行半減期が、イネによる ^{14}C の蓄積に影響することが示唆されている。水稻全体モデルより現実的に精緻化するためには近傍大気と環境大気の移行半減期の精度を高める必要がある。これまでは文献調査による文献値を参考に移行半減期を決定してきたが、本年度は模擬水田およびイネ科草本植物群落において群落内、群落頂、群落外の風向風速を求め、近傍大気と環境大気の移行半減期試算のための基礎データとした。風向風速の観測結果であるが、群落頂付近で吹いている水平方向の風が蓋となり、群落内の大気は群落外へは移行しにくい状況となっていることが確認された。

水稻全体モデルの精緻化では、気温の変化対応できるモデルとするため、本年度実施した ^{14}C のガス化に対する気温効果のデータを、そして近傍大気と環境大気の半減期をより現実的な値に近づけるために模擬水稻群落における風向風速観測データ取り入れた。解析の結果、気温の効果はモデルのパラメータを変更するほどの顕著な影響がないことが分かった。一方、風向風速観測結果は、成長したイネ群落は、近傍大気と環境大気の移行半減期を長くする可能性が示された。この結果を反映してパラメータを設定したところ、基本解析および感度解析において、やはり近傍大気から環境大気への移行半減期がイネへの ^{14}C 移行量に強く影響することがわかった。本年度は群落が十分成長した時期の実測データを用いており、群落成長期のデータは十分とはいえない。傍大気→環境大気の移行半減期については、イネ群落の成長段階に合わせた、より現実的な値を設定することが重要である。

表 3.2-1 水田土壌選定条件

項目	基準	最小値	平均値	最大値	選定試料(値)
7日目ガス化率*	平均値に最も近い試料	18.6%	26.5%	37.1%	P21 (26.1%)
	最大値に近い試料				P38 (31.9%), P51 (37.0%)
	最小値に近い試料				P11 (18.6%), P49 (18.9%)
積算ガス化率**	平均値に最も近い試料	38.3%	62.8%	75.3%	P48 (62.6%)
	最大値に近い試料				P21 (75.3%)
	最小値に近い試料				P33 (46.9%)
土壌炭素含量	平均値に最も近い試料	13.8 g/kg	28.4 g/kg	125.3 g/kg	P50 (28.4 g/kg)
土壌窒素含量	平均値に最も近い試料	1.4 g/kg	2.7 g/kg	10.0 g/kg	P33 (2.7 g/kg)
	最小値に近い試料				P62 (1.4 g/kg)
炭素/窒素比	平均値に最も近い試料	7.7	10.1	14.7	P10 (10.1)
	最大値に近い試料				P27 (14.7)
	最小値に近い試料				P24 (7.7)

*7日目ガス化率: 湛水水田土壌を7日間培養後に¹⁴C標識酢酸を添加し、その後1時間当たりに発生した¹⁴Cのガス化率

**積算ガス化率: 湛水水田土壌作成と同時に¹⁴C標識酢酸を添加し、その後培養7日間に発生した¹⁴Cのガス化率

表 3.2-2 選定土壌の採取地域および土壌タイプ

項目	分類	試料数	試料(地域, 土壌タイプ)
採取地域	北海道・東北・北陸	6	P2(岩手), P27(山形), P29(新潟), P38(北海道), P51(北海道), P52(青森)
	四国・九州・沖縄	6	P11(福岡), P24(鹿児島), P48(徳島), P49(大分), P50(鹿児島), P62(熊本)
	その他	3	P10(広島), P21(滋賀), P33(広島)
土壌タイプ	グライ低地土	4	P10, P33, P52, P62
	灰色低地土	6	P11, P21, P29, P38, P49, P51
	低地水田土	3	P24, P27, P50
	その他	2	P2(多湿クロボク土), P48(褐色低地土)

表 3.2-3 選定土壌の物理的特徴

試料	粒径組成				仮比重	土粒子密度 (g/cm ³)	含水率 (%)
	粗粒砂 (%)	細粒砂 (%)	シルト (%)	粘土 (%)			
P2	22	30	31	17	0.61	2.41	13.3
P10	30	23	20	27	1.09	2.59	1.4
P11	12	23	35	29	1.22	2.72	2.5
P21	16	35	29	20	1.3	2.67	4.2
P24	16	45	24	16	1.13	2.52	8.0
P27	15	14	42	29	0.74	2.53	5.1
P29	16	33	33	19	0.72	2.51	6.2
P33	21	27	33	20	0.89	2.57	2.0
P38	29	44	14	14	0.93	2.49	5.6
P48	17	52	17	14	1.27	2.61	2.5
P49	26	42	18	14	1.07	2.34	2.6
P50	20	41	25	14	0.88	2.46	8.4
P51	13	32	28	27	0.91	2.64	8.3
P52	9	31	33	27	0.83	2.57	8.0
P62	9	45	22	24	1.10	2.49	5.5

表 3.2-4 選定土壌の化学的特徴

試料	EC (1:5) ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	pH (H_2O)	塩基置換容量 ($\text{meq}/100\text{g}$)	交換性Ca ($\text{mg}/100\text{g}$)	交換性K ($\text{mg}/100\text{g}$)	活性Al (g/kg)	活性Fe (g/kg)	全炭素 (g/kg)	全窒素 (g/kg)
P2	96	6.1	16	370	8	46.2	16.0	84.7	6.4
P10	253	5.3	<10	90	7	1.1	3.6	19.2	1.9
P11	95	6.7	13	264	16	2.3	8.7	21.3	2.2
P21	57	6.0	<10	126	15	1.3	4.1	15.6	1.9
P24	114	6.0	<10	110	16	6.8	3.1	14.0	1.8
P27	74	5.7	11	346	37	3.4	16.3	46.6	3.2
P29	65	5.5	13	115	26	13.6	6.1	43.5	4.3
P33	170	6.7	12	189	20	1.1	3.1	30.2	2.7
P38	65	5.5	17	162	19	4.8	11.5	18.9	2.0
P48	53	5.9	11	91	28	2.1	5.8	19.0	2.1
P49	77	5.2	11	69	21	2.9	5.5	22.6	2.7
P50	97	6.1	12	124	25	13.6	3.3	28.4	3.4
P51	72	5.6	11	172	31	3.6	6.6	18.2	2.1
P52	88	5.2	27	215	12	4.4	17.0	37.4	3.2
P62	129	6.3	22	237	43	4.2	7.8	15.0	1.4

表 3.2-5 各ウェルに充填された炭素基質、化学式および化学分類群（その1）

ウェル番号	炭素基質	化学式	化学分類群
A1	(no carbon source)		
A2	α -Cyclodextrin	C ₃₆ H ₆₀ O ₃₀	Polymers
A3	Dextrin	C ₆ H ₁₀ O ₅	Polymers
A4	Glycogen	(C ₆ H ₁₀ O ₅) _n	Polymers
A5	Tween 40	C ₆₂ H ₁₂₃ O ₂₆	Polymers
A6	Tween 80	C ₃₂ H ₆₀ O ₁₀	Polymers
A7	N-Acetyl-D- galactosamine	C ₈ H ₁₅ NO ₆	Carbohydrates
A8	N-Acetyl-D- glucosamine	C ₈ H ₁₅ NO ₆	Carbohydrates
A9	Adonitol	C ₅ H ₁₂ O ₅	Carbohydrates
A10	L-Arabinose	C ₅ H ₁₀ O ₅	Carbohydrates
A11	D-Arabitol	C ₅ H ₁₂ O ₅	Carbohydrates
A12	D-Cellobiose	C ₁₂ H ₂₂ O ₁₁	Carbohydrates
B1	i-Erythritol	C ₄ H ₁₀ O ₄	Carbohydrates
B2	D-Fructose	C ₆ H ₁₂ O ₆	Carbohydrates
B3	L-Fucose	C ₆ H ₁₂ O ₅	Carbohydrates
B4	D-Galactose	C ₆ H ₁₂ O ₆	Carbohydrates
B5	Gentiobiose	C ₁₂ H ₂₂ O ₁₁	Carbohydrates
B6	α -D-Glucose	C ₆ H ₁₂ O ₆	Carbohydrates
B7	m-Inositol	C ₆ H ₁₂ O ₆	Carbohydrates
B8	α -D-Lactose	C ₁₂ H ₂₂ O ₁₁	Carbohydrates
B9	Lactulose	C ₁₂ H ₂₂ O ₁₁	Carbohydrates
B10	Maltose	C ₁₂ H ₂₂ O ₁₁	Carbohydrates
B11	D-Mannitol	C ₆ H ₁₄ O ₆	Carbohydrates
B12	D-Mannose	C ₆ H ₁₂ O ₆	Carbohydrates

表 3.2-5 各ウェルに充填された炭素基質、化学式および化学分類群（その2）

ウェル番号	炭素基質	化学式	化学分類群
C1	D-Melibiose	C12H22O11	Carbohydrates
C2	β -Methyl- D-Glucoside	C7H14O6	Carbohydrates
C3	D-Psicose	C6H12O6	Carbohydrates
C4	D-Raffinose	C18H32O16	Carbohydrates
C5	L-Rhamnose	C6H12O5	Carbohydrates
C6	D-Sorbitol	C6H14O6	Carbohydrates
C7	Sucrose	C12H22O11	Carbohydrates
C8	D-Trehalose	C12H22O11	Carbohydrates
C9	Turanose	C12H22O11	Carbohydrates
C10	Xylitol	C5H12O5	Carbohydrates
C11	Methyl Pyruvate	C4H6O3	Carbohydrates
C12	Mono-Methyl- Succinate	C5H8O4	Carbohydrates
D1	Acetic Acid	C2H4O2	Carboxylic acids
D2	Cis-Aconitic Acid	C6H6O6	Carboxylic acids
D3	Citric Acid	C6H8O7	Carboxylic acids
D4	Formic Acid	CH2O2	Carboxylic acids
D5	D-Galactonic Acid Lactone	C6H10O6	Carboxylic acids
D6	D-Galacturonic Acid	C6H10O7	Carboxylic acids
D7	D-Gluconic Acid	C6H12O7	Carboxylic acids
D8	D-Glucosaminic Acid	C6H13NO6	Carboxylic acids
D9	D-Glucuronic Acid	C6H10O7	Carboxylic acids
D10	α -Hydroxy Butyric Acid	C4H8O3	Carboxylic acids
D11	β -Hydroxy Butyric Acid	C4H8O3	Carboxylic acids
D12	γ -Hydroxy Butyric Acid	C4H8O3	Carboxylic acids
E1	p-Hydroxy Phenylacetic Acid	C8H8O3	Carboxylic acids
E2	Itaconic Acid	C5H6O4	Carboxylic acids
E3	α -Keto Butyric Acid	C4H6O3	Carboxylic acids
E4	α -Keto Glutaric Acid	C5H8O5	Carboxylic acids
E5	α -Keto Valeric Acid	C5H8O3	Carboxylic acids
E6	D,L-Lactic Acid	C3H6O3	Carboxylic acids
E7	Malonic Acid	C3H4O4	Carboxylic acids
E8	Propionic Acid	C6H6O2	Carboxylic acids
E9	Quinic Acid	C7H12O6	Carboxylic acids
E10	D-Saccharic Acid	C6H10O8	Carboxylic acids
E11	Sebacic Acid	C10H18O4	Carboxylic acids
E12	Succinic Acid	C4H6O4	Carboxylic acids
F1	Bromo Succinic Acid	C4H5O4Br	Miscellaneous
F2	Succinamic Acid	C4H7NO3	Amines/amides
F3	Glucuronamide	C6H11NO6	Amines/amides
F4	L-Alaninamide	C3H8N2O	Amines/amides

表 3.2-5 各ウェルに充填された炭素基質、化学式および化学分類群（その3）

ウェル番号	炭素基質	化学式	化学分類群
F5	D-Alanine	C3H7NO2	Amino acids
F6	L-Alanine	C3H7NO2	Amino acids
F7	L-Alanyl- glycine	C5H10N2O3	Amino acids
F8	L-Asparagine	C4H8N2O3	Amino acids
F9	L-Aspartic Acid	C4H7NO4	Amino acids
F10	L-Glutamic Acid	C5H9NO4	Amino acids
F11	Glycyl-L- Aspartic Acid	C6H10N2O5	Amino acids
F12	Glycyl-L- Glutamic Acid	C7H12N2O5	Amino acids
G1	L-Histidine	C6H9N3O2	Amino acids
G2	Hydroxy-L- Proline	C5H9NO3	Amino acids
G3	L-Leucine	C6H13NO2	Amino acids
G4	L-Ornithine	C5H12N2O2	Amino acids
G5	L- Phenylalanine	C9H11NO2	Amino acids
G6	L-Proline	C5H9NO2	Amino acids
G7	L-Pyroglutamic Acid	C5H7NO3	Amino acids
G8	D-Serine	C3H7NO3	Amino acids
G9	L-Serine	C3H7NO3	Amino acids
G10	L-Threonine	C4H9NO3	Amino acids
G11	D,L-Carnitine	C7H15NO3	Amino acids
G12	γ -Amino Butyric Acid	C4H9NO2	Amino acids
H1	Urocanic Acid	C6H6N2O2	Miscellaneous
H2	Inosine	C10H12N4O5	Miscellaneous
H3	Uridine	C9H12N2O6	Miscellaneous
H4	Thy midine	C10H14N2O5	Miscellaneous
H5	Phenyethylamine	C8H11N	Amines/amides
H6	Putrescine	C4H12N2	Amines/amides
H7	2-Aminoethanol	C2O7NO	Amines/amides
H8	2,3-Butanediol	C4H10O2	Miscellaneous
H9	Glycerol	C3H8O3	Miscellaneous
H10	D,L- α -Glycerol Phosphate	C3H9O6P	Miscellaneous
H11	Glucose-1- Phosphate	C6H13O9P	Miscellaneous
H12	Glucose-6- Phosphate	C6H13O9P	Miscellaneous

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P2, 1/15)

炭素基質	P02土壌試料の各培養日における微生物活性					P02土壌試料の各培養日における微生物活性						
	1日	2日	3日	4日	5日	7日	1日	2日	3日	4日	5日	7日
<i>α</i> -Cyclodextrin	0.000	0.000	0.000	0.000	0.017	0.210	0.610	0.000	0.000	0.000	0.000	0.018
Dextrin	0.000	0.000	0.000	0.266	0.525	0.722	0.780	0.000	0.000	0.000	0.000	0.044
Glycogen	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.135	0.303
Tween 40	0.000	0.000	0.000	0.000	0.122	0.314	0.616	0.000	0.000	0.000	0.000	0.332
Tween 80	0.000	0.000	0.042	0.184	0.500	0.753	0.872	0.000	0.000	0.000	0.034	0.237
N-Acetyl-D- galactosamine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.072
N-Acetyl-D- glucosamine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.198	0.419	0.808	0.000	0.000	0.000	0.000	0.118
Adonitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.170	0.680
L-Arabinose	0.022	0.031	0.029	0.026	0.024	0.022	0.022	0.000	0.000	0.000	0.000	0.238
D-Arabitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.022	0.000	0.000	0.000	0.158	0.342
D-Cellobiose	0.000	0.000	0.000	0.157	0.571	0.931	0.963	0.000	0.086	0.158	0.178	0.193
i-Erythritol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.041	0.060
D-Fructose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.163	0.000	0.000	0.000	0.000	0.090	0.218
L-Fucose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.020	0.099	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Galactose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.223	0.000	0.000	0.000	0.000	0.088	0.156
Gentiobiose	0.000	0.000	0.000	0.183	0.420	0.950	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
<i>α</i> -D-Glucose	0.000	0.008	0.330	0.919	1.030	1.179	0.000	0.000	0.000	0.000	0.043	0.203
m-Inositol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.058	0.199
<i>α</i> -D-Lactose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.042	0.252
Lactulose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.362	0.729
Maltose	0.000	0.133	0.590	0.963	1.018	1.227	0.000	0.000	0.000	0.176	0.500	0.804
D-Mannitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.199	0.431
D-Mannose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.093	0.383	1.121	0.000	0.000	0.000	0.042	0.380
D-Melibiose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.025	0.000	0.000	0.000	0.000	0.049	0.314
<i>β</i> -Methyl- D-Glucoside	0.000	0.000	0.000	0.000	0.251	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.038	0.075
D-Psicose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Raffinose	0.000	0.000	0.042	0.217	0.442	0.743	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
L-Rhamnose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.070	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Sorbitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.071	0.270
Sucrose	0.000	0.072	0.423	0.773	0.952	1.099	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.012
D-Trehalose	0.000	0.030	0.211	0.550	0.780	1.045	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Turanose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.024	0.033	0.044	0.000	0.000	0.000	0.000	0.019
Xylitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.098
Methyl Pyruvate	0.000	0.177	0.356	0.588	0.782	0.765	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mono-Methyl- Succinate	0.000	0.000	0.000	0.000	0.180	0.332	0.425	0.000	0.000	0.000	0.000	0.211
Acetic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.305
Cis-Aconitic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.088	0.162	0.159	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Citric Acid	0.000	0.000	0.212	0.541	0.557	0.573	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Formic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Galactonic Acid Lactone	0.000	0.000	0.000	0.000	0.025	0.076	0.151	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Galacturonic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.032	0.209	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Gluconic Acid	0.000	0.000	0.006	0.199	0.355	0.648	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Glucosaminic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.021	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Gluconic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.017	0.052
<i>α</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005
<i>β</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.009	0.176	0.364	0.650	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
<i>γ</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.000	0.080	0.147	0.188	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.000	0.000	0.000	0.005	0.041	0.102	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P10, 2/15)

P10土壌試料の各培養日における微生物活性							P10土壌試料の各培養日における微生物活性						
炭素基質							炭素基質						
1日	2日	3日	4日	5日	7日		1日	2日	3日	4日	5日	7日	
<i>α</i> -Cyclodextrin	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Itaconic Acid	0.028	0.048	0.047	0.056	0.057	0.062
Dextrin	0.008	0.000	0.000	0.016	0.023	0.033	<i>α</i> -Keto Butyric Acid	0.002	0.000	0.000	0.005	0.007	0.008
Glycogen	0.014	0.012	0.003	0.005	0.009	0.018	<i>α</i> -Keto Glutaric Acid	0.016	0.031	0.031	0.034	0.037	0.054
Tween 40	0.000	0.000	0.000	0.005	0.009	0.046	<i>α</i> -Keto Valeric Acid	0.003	0.007	0.007	0.008	0.000	0.002
Tween 80	0.005	0.010	0.005	0.022	0.019	0.037	DL-Lactic Acid	0.003	0.008	0.004	0.013	0.006	0.020
N-Acetyl-D- galactosamine	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	Malonic Acid	0.005	0.008	0.008	0.014	0.013	0.026
N-Acetyl-D- glucosamine	0.000	0.001	0.000	0.003	0.001	0.004	Propionic Acid	0.001	0.006	0.010	0.018	0.019	0.032
Adonitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Quinic Acid	0.002	0.004	0.000	0.028	0.052	0.085
L-Arabinose	0.017	0.024	0.015	0.021	0.034	0.065	D-Saccharic Acid	0.016	0.034	0.031	0.032	0.035	0.062
D-Arabitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Sebacic Acid	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.016
D-Cellobiose	0.000	0.000	0.000	0.006	0.012	0.024	Succinic Acid	0.000	0.002	0.001	0.002	0.001	0.000
i-Ery thritol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.012	0.049	Bromo Succinic Acid	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Fructose	0.000	0.000	0.000	0.016	0.022	0.032	Succinamic Acid	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.003
L-Fucose	0.008	0.017	0.016	0.016	0.015	0.014	Glucuronamide	0.018	0.034	0.034	0.040	0.045	0.035
D-Galactose	0.008	0.010	0.009	0.011	0.012	0.040	L-Alaninamide	0.001	0.006	0.007	0.011	0.009	0.011
Gentiobiose	0.001	0.000	0.001	0.004	0.009	0.036	D-Alanine	0.008	0.010	0.008	0.011	0.008	0.007
<i>α</i> -D-Glucose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005	0.018	L-Alanine	0.006	0.015	0.011	0.011	0.007	0.024
m-Inositol	0.003	0.005	0.000	0.014	0.023	0.034	L-Alanyl L- glycine	0.000	0.000	0.001	0.003	0.002	0.031
<i>α</i> -D-Lactose	0.002	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Asparagine	0.009	0.021	0.021	0.021	0.019	0.024
Lactulose	0.001	0.001	0.000	0.001	0.000	0.000	L-Aspartic Acid	0.012	0.023	0.021	0.016	0.015	0.016
Maltose	0.000	0.001	0.000	0.005	0.014	0.030	L-Glutamic Acid	0.006	0.010	0.011	0.014	0.017	0.025
D-Mannitol	0.000	0.002	0.000	0.001	0.000	0.000	Glycyl-L- Aspartic Acid	0.003	0.001	0.005	0.007	0.008	0.003
D-Mannose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.012	0.032	Glycyl-L- Glutamic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Melibiose	0.008	0.018	0.014	0.018	0.019	0.030	L-Histidine	0.021	0.030	0.028	0.032	0.033	0.029
<i>β</i> -Methyl- D-Glucoside	0.001	0.000	0.000	0.010	0.028	0.037	Hydroxy-L- Proline	0.009	0.017	0.018	0.019	0.022	0.019
D-Psicose	0.005	0.005	0.000	0.001	0.000	0.000	L-Leucine	0.006	0.025	0.023	0.028	0.026	0.027
D-Raffinose	0.004	0.006	0.006	0.010	0.010	0.034	L-Ornithine	0.011	0.012	0.012	0.012	0.010	0.022
L-Rhamnose	0.004	0.007	0.000	0.001	0.001	0.020	L-Phenylalanine	0.003	0.006	0.005	0.006	0.006	0.009
D-Sorbitol	0.002	0.010	0.004	0.009	0.002	0.000	L-Proline	0.003	0.000	0.000	0.002	0.007	0.026
Sucrose	0.002	0.007	0.002	0.016	0.019	0.034	L-Pyroglutamic Acid	0.005	0.001	0.000	0.007	0.004	0.021
D-Trehalose	0.002	0.004	0.005	0.004	0.018	0.050	D-Serine	0.007	0.009	0.014	0.012	0.012	0.013
Turanose	0.002	0.004	0.005	0.018	0.025	0.033	L-Serine	0.012	0.016	0.016	0.016	0.019	0.017
Xylitol	0.001	0.002	0.000	0.001	0.003	0.030	L-Threonine	0.013	0.033	0.031	0.032	0.028	0.025
Methyl Pyruvate	0.015	0.029	0.031	0.082	0.210	0.266	D,L-Carnitine	0.002	0.004	0.000	0.002	0.000	0.000
Mono-Methyl- Succinate	0.000	0.000	0.000	0.000	0.003	0.030	<i>γ</i> -Amino Butyric Acid	0.002	0.000	0.000	0.000	0.004	0.040
Acetic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Urocanic Acid	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.002
Cis-Aconitic Acid	0.007	0.011	0.005	0.007	0.006	0.011	Inosine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Citric Acid	0.019	0.036	0.035	0.038	0.035	0.047	Uridine	0.001	0.001	0.001	0.008	0.001	0.000
Formic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Thymidine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Galactonic Acid Lactone	0.017	0.032	0.035	0.037	0.035	0.032	Phenylethylamine	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Galacturonic Acid	0.005	0.018	0.016	0.021	0.025	0.046	Putrescine	0.001	0.000	0.000	0.000	0.008	0.022
D-Gluconic Acid	0.022	0.040	0.035	0.039	0.049	0.058	2-Aminoethanol	0.004	0.005	0.002	0.006	0.001	0.000
D-Glucosaminic Acid	0.014	0.027	0.022	0.030	0.025	0.025	2,3-Butanediol	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000
D-Glucuronic Acid	0.010	0.016	0.016	0.014	0.030	0.056	Glycerol	0.007	0.011	0.005	0.001	0.016	0.039
<i>α</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.005	0.002	0.005	0.008	0.005	0.010	D,L- <i>α</i> -Glycerol Phosphate	0.003	0.004	0.000	0.002	0.001	0.002
<i>β</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.001	0.000	0.001	0.005	0.005	0.025	Glucose-1- Phosphate	0.004	0.006	0.002	0.005	0.005	0.004
<i>γ</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Glucose-6- Phosphate	0.001	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.001	0.000	0.000	0.002	0.001	0.000							

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P21, 4/15)

炭素基質	P21土壌試料の各培養日における微生物活性							P21土壌試料の各培養日における微生物活性						
	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目	炭素基質	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目	
<i>α</i> -Cyclodextrin	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Itaconic Acid	0.014	0.015	0.017	0.020	0.024	0.027	
Dextrin	0.013	0.009	0.006	0.006	0.005	0.006	<i>α</i> -Keto Butyric Acid	0.001	0.002	0.000	0.000	0.000	0.005	
Glycogen	0.010	0.009	0.014	0.009	0.012	0.015	<i>α</i> -Keto Glutaric Acid	0.008	0.014	0.016	0.025	0.030	0.037	
Tween 40	0.000	0.000	0.000	0.000	0.010	0.020	<i>α</i> -Keto Valeric Acid	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005	
Tween 80	0.003	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	DL-Lactic Acid	0.004	0.003	0.006	0.029	0.056	0.096	
N-Acetyl-D-glucosamine	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	Malonic Acid	0.004	0.005	0.005	0.003	0.005	0.008	
N-Acetyl-D-galactosamine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.008	Propionic Acid	0.000	0.000	0.000	0.004	0.023	0.020	
Adonitol	0.000	0.001	0.005	0.035	0.029	0.038	Quinic Acid	0.003	0.005	0.010	0.078	0.220	0.198	
L-Arabinose	0.010	0.010	0.007	0.019	0.028	0.032	D-Saccharic Acid	0.011	0.012	0.011	0.023	0.032	0.059	
D-Arabitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.015	Sebacic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	
D-Cellobiose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Succinic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.011	0.031	
D-Erythritol	0.000	0.002	0.003	0.000	0.000	0.000	Bromo Succinic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.053	0.180	
D-Fructose	0.000	0.000	0.000	0.015	0.034	0.034	Succinamic Acid	0.001	0.002	0.007	0.009	0.037	0.073	
L-Fucose	0.003	0.004	0.004	0.005	0.012	0.023	Glucuronamide	0.013	0.016	0.016	0.023	0.030	0.036	
D-Galactose	0.002	0.005	0.006	0.005	0.019	0.035	L-Alaninamide	0.003	0.004	0.001	0.013	0.016	0.023	
Gentiobiose	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.003	D-Alanine	0.004	0.007	0.001	0.001	0.005	0.007	
<i>α</i> -D-Glucose	0.000	0.000	0.000	0.033	0.128	0.224	L-Alanine	0.003	0.004	0.003	0.020	0.029	0.103	
m-Inositol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005	0.018	L-Alanyl-L-glycine	0.001	0.000	0.003	0.014	0.018	0.018	
<i>α</i> -D-Lactose	0.000	0.001	0.000	0.001	0.004	0.004	L-Asparagine	0.008	0.011	0.012	0.026	0.029	0.066	
Lactulose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.005	L-Aspartic Acid	0.010	0.010	0.009	0.011	0.023	0.033	
Maltose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.004	L-Glutamic Acid	0.005	0.008	0.014	0.022	0.029	0.102	
D-Mannitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.020	Glycyl-L-Aspartic Acid	0.002	0.000	0.000	0.000	0.006	0.015	
D-Mannose	0.000	0.000	0.001	0.035	0.259	0.392	Glycyl-L-Glutamic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Melibiose	0.000	0.004	0.003	0.004	0.005	0.006	L-Histidine	0.012	0.009	0.007	0.012	0.021	0.048	
<i>β</i> -Methyl-D-Glucoside	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.004	Hydroxy-L-Proline	0.008	0.012	0.016	0.034	0.043	0.095	
D-Psicose	0.003	0.006	0.007	0.010	0.015	0.029	L-Leucine	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.031	
L-Rhamnose	0.002	0.003	0.002	0.007	0.004	0.027	L-Ornithine	0.006	0.009	0.011	0.011	0.022	0.031	
D-Sorbitol	0.002	0.005	0.004	0.005	0.009	0.034	L-Phenylalanine	0.002	0.004	0.000	0.004	0.001	0.015	
Sucrose	0.001	0.003	0.001	0.002	0.002	0.008	L-Proline	0.001	0.004	0.006	0.020	0.024	0.027	
D-Trehalose	0.001	0.000	0.001	0.002	0.003	0.005	L-Pyrogutamic Acid	0.004	0.002	0.004	0.000	0.000	0.006	
Turanose	0.001	0.000	0.002	0.006	0.007	0.013	D-Serine	0.005	0.009	0.006	0.003	0.005	0.005	
Xylitol	0.000	0.003	0.002	0.006	0.011	0.025	L-Serine	0.005	0.009	0.006	0.003	0.008	0.010	
Methyl Pyruvate	0.007	0.093	0.365	0.496	0.500	0.481	L-Threonine	0.008	0.014	0.009	0.009	0.014	0.018	
Mono-Methyl-Succinate	0.001	0.003	0.000	0.000	0.000	0.008	D-L-Carnitine	0.002	0.003	0.000	0.000	0.002	0.006	
Acetic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.014	0.028	<i>γ</i> -Amino Butyric Acid	0.001	0.000	0.000	0.002	0.013	0.008	
Cis-Aconitic Acid	0.002	0.007	0.009	0.017	0.246	0.601	Urocanic Acid	0.004	0.004	0.004	0.008	0.015	0.019	
Citric Acid	0.005	0.008	0.003	0.008	0.073	0.581	Inosine	0.001	0.003	0.000	0.003	0.005	0.007	
Formic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Uridine	0.003	0.006	0.002	0.003	0.008	0.008	
D-Galactonic Acid Lactone	0.009	0.012	0.009	0.012	0.016	0.027	Thymidine	0.001	0.000	0.000	0.000	0.006	0.003	
D-Galacturonic Acid	0.003	0.010	0.014	0.018	0.020	0.028	Phenethylamine	0.001	0.004	0.000	0.005	0.007	0.007	
D-Gluconic Acid	0.010	0.014	0.014	0.018	0.020	0.028	Putrescine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Glucoosaminic Acid	0.007	0.007	0.011	0.013	0.015	0.035	2-Aminoethanol	0.001	0.002	0.000	0.000	0.004	0.000	
D-Gluconic Acid	0.006	0.007	0.013	0.027	0.042	0.146	2,3-Butanediol	0.001	0.000	0.000	0.001	0.001	0.003	
<i>α</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.005	0.000	0.000	0.000	0.003	0.004	Glycerol	0.003	0.004	0.006	0.007	0.010	0.021	
<i>β</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.002	0.000	0.007	0.276	0.437	0.709	D,L- <i>α</i> -Glycerol Phosphate	0.004	0.004	0.007	0.012	0.028	0.028	
<i>γ</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.000	0.014	0.016	0.009	Glucose-1-Phosphate	0.001	0.004	0.003	0.001	0.003	0.007	
<i>p</i> -Hydroxy Phenylacetic Acid	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Glucose-6-Phosphate	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.003	

表3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P24, 5/15)

P24土壌試料の各培養日における炭素基質						P24土壌試料の各培養日における微生物活性							
炭素基質	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目	炭素基質	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目
α-Cyclodextrin	0.005	0.004	0.001	0.000	0.010	0.535	Itaconic Acid	0.000	0.003	0.028	0.050	0.060	0.065
Dextrin	0.007	0.194	0.437	0.736	1.004	1.192	α-Keto Butyric Acid	0.002	0.000	0.003	0.010	0.020	0.103
Glycogen	0.001	0.029	0.170	0.620	0.982	1.248	α-Keto Glutaric Acid	0.002	0.008	0.024	0.222	0.374	0.450
Tween 40	0.000	0.000	0.001	0.093	0.177	0.383	α-Keto Valeric Acid	0.006	0.012	0.010	0.009	0.009	0.012
Tween 80	0.000	0.048	0.291	0.456	0.581	0.871	DL-Lactic Acid	0.002	0.003	0.160	0.316	0.461	0.493
N-Acetyl-L-D- galactosamine	0.000	0.002	0.001	0.001	0.001	0.000	Malonic Acid	0.007	0.002	0.009	0.010	0.012	0.031
N-Acetyl-D- glucosamine	0.001	0.000	0.003	0.051	0.249	0.818	Propionic Acid	0.000	0.003	0.066	0.083	0.132	0.251
Adonitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005	0.014	Quinic Acid	0.000	0.003	0.007	0.045	0.069	0.115
L-Arabinose	0.002	0.005	0.007	0.006	0.010	0.082	D-Saccharic Acid	0.000	0.000	0.006	0.012	0.020	0.187
D-Arabitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Sebacic Acid	0.000	0.002	0.011	0.004	0.012	0.246
D-Cellobiose	0.000	0.000	0.071	0.461	0.958	0.914	Succinic Acid	0.000	0.000	0.075	0.212	0.246	0.252
i-Erythritol	0.002	0.002	0.001	0.001	0.002	0.007	Bromo Succinic Acid	0.000	0.000	0.099	0.095	0.101	0.110
D-Fructose	0.001	0.000	0.130	0.445	0.648	1.002	Succinamic Acid	0.002	0.004	0.000	0.000	0.000	0.012
L-Fucose	0.000	0.000	0.003	0.097	0.426	0.868	Glucuronamide	0.003	0.006	0.022	0.077	0.122	0.229
D-Galactose	0.000	0.002	0.193	0.504	0.736	1.053	L-Alaninamide	0.001	0.000	0.012	0.091	0.158	0.436
Gentiobiose	0.000	0.000	0.111	0.394	0.685	1.251	D-Alanine	0.002	0.005	0.004	0.006	0.009	0.013
α-D-Glucose	0.000	0.000	0.273	0.651	0.935	1.082	L-Alanine	0.001	0.001	0.040	0.095	0.139	0.323
m-Inositol	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.002	L-Alanyl-L- glycine	0.003	0.003	0.062	0.181	0.288	0.475
α-D-Lactose	0.000	0.002	0.002	0.009	0.015	0.456	L-Asparagine	0.003	0.003	0.029	0.121	0.334	0.514
Lactulose	0.000	0.001	0.015	0.008	0.071	0.609	L-Aspartic Acid	0.000	0.004	0.179	0.399	0.601	0.662
Maltose	0.000	0.022	0.394	0.580	0.995	1.178	L-Glutamic Acid	0.000	0.001	0.138	0.378	0.634	0.750
D-Mannitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.003	0.009	Glycyl-L- Aspartic Acid	0.002	0.006	0.022	0.021	0.023	0.020
D-Mannose	0.000	0.000	0.108	0.506	0.952	0.835	Glycyl-L- Glutamic Acid	0.000	0.000	0.004	0.026	0.171	0.712
D-Melibiose	0.002	0.002	0.004	0.006	0.010	0.017	L-Histidine	0.003	0.004	0.005	0.011	0.025	0.140
D-Psicose	0.000	0.000	0.004	0.013	0.014	0.020	Hydroxy-L- Proline	0.000	0.000	0.000	0.006	0.003	0.014
L-Rhamnose	0.000	0.000	0.003	0.040	0.347	0.641	L-Leucine	0.001	0.014	0.059	0.084	0.120	0.224
D-Sorbitol	0.000	0.000	0.003	0.009	0.081	0.811	L-Ornithine	0.002	0.001	0.015	0.033	0.070	0.194
Sucrose	0.000	0.001	0.083	0.327	0.831	1.169	L-Proline	0.001	0.002	0.009	0.042	0.090	0.376
D-Trehalose	0.005	0.000	0.114	0.477	0.867	1.123	L-Pyroglutamic Acid	0.002	0.008	0.043	0.158	0.252	0.367
Turanose	0.002	0.000	0.004	0.010	0.020	0.045	D-Serine	0.000	0.002	0.002	0.002	0.005	0.003
Xylitol	0.001	0.000	0.003	0.004	0.008	0.005	L-Serine	0.002	0.006	0.005	0.008	0.011	0.013
Methyl Pyruvate	0.000	0.146	0.250	0.269	0.291	0.316	L-Threonine	0.002	0.005	0.008	0.011	0.019	0.032
Mono-Methyl-L-Succinate	0.002	0.003	0.020	0.012	0.012	0.016	D,L-Carnitine	0.001	0.003	0.003	0.000	0.000	0.000
Acetic Acid	0.000	0.000	0.063	0.039	0.037	0.031	γ-Amino Butyric Acid	0.001	0.002	0.072	0.139	0.156	0.319
Cis-Aconitic Acid	0.000	0.000	0.063	0.115	0.255	0.660	Urocanic Acid	0.001	0.007	0.018	0.112	0.251	0.654
Citric Acid	0.000	0.000	0.005	0.111	0.424	0.595	Inosine	0.004	0.007	0.003	0.006	0.003	0.000
Formic Acid	0.000	0.000	0.000	0.002	0.006	0.004	Uridine	0.002	0.005	0.003	0.004	0.005	0.003
D-Galacturonic Acid Lactone	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Thymidine	0.003	0.004	0.005	0.004	0.006	0.002
D-Galacturonic Acid	0.000	0.006	0.098	0.230	0.501	0.653	Phenylethylamine	0.004	0.008	0.010	0.008	0.010	0.008
D-Gluconic Acid	0.001	0.000	0.007	0.023	0.077	0.288	Putrescine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
D-Glucosaminic Acid	0.000	0.000	0.006	0.005	0.007	0.006	2-Aminoethanol	0.000	0.000	0.006	0.043	0.074	0.105
D-Glucuronic Acid	0.000	0.001	0.006	0.046	0.210	0.474	2,3-Butanediol	0.000	0.008	0.014	0.061	0.053	0.050
α-Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.004	0.003	0.001	0.003	0.000	Glycerol	0.002	0.008	0.012	0.027	0.040	0.060
β-Hydroxy Butyric Acid	0.002	0.003	0.104	0.335	0.456	0.660	D,L-α-Glycerol Phosphate	0.003	0.003	0.002	0.005	0.006	0.000
γ-Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.000	0.003	0.014	0.020	Glucose-1- Phosphate	0.002	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.002	0.001	0.000	0.001	0.001	0.001	Glucose-6- Phosphate	0.000	0.002	0.002	0.002	0.010	0.012

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P27, 6/15)

P27土壌試料の各培養日における微生物活性							P27土壌試料の各培養日における微生物活性						
炭素基質							炭素基質						
1日	2日	3日	4日	5日	7日	7日目	1日	2日	3日	4日	5日	7日	7日目
<i>α</i> -Cyclodextrin	0.000	0.000	0.055	0.486	0.838	1.024	Itaconic Acid	0.009	0.068	0.073	0.076	0.084	0.327
Dextrin	0.005	0.011	0.087	0.360	0.571	0.800	<i>α</i> -Keto Butyric Acid	0.006	0.008	0.005	0.003	0.001	0.109
Glycogen	0.002	0.017	0.117	0.206	0.279	0.467	<i>α</i> -Keto Glutaric Acid	0.001	0.024	0.145	0.319	0.396	0.460
Tween 40	0.000	0.002	0.075	0.194	0.324	0.509	<i>α</i> -Keto Valeric Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.002	0.072
Tween 80	0.001	0.077	0.250	0.347	0.442	0.634	DL-Lactic Acid	0.002	0.011	0.036	0.063	0.092	0.254
N-Acetyl-D- galactosamine	0.000	0.000	0.000	0.037	0.206	0.527	Malonic Acid	0.004	0.014	0.015	0.014	0.009	0.109
N-Acetyl-D- galactosamine	0.000	0.000	0.000	0.058	0.174	0.666	Propionic Acid	0.004	0.011	0.014	0.028	0.047	0.163
Adonitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.025	Quinic Acid	0.004	0.012	0.032	0.043	0.062	0.208
L-Arabinose	0.002	0.023	0.056	0.118	0.186	0.436	D-Saccharic Acid	0.010	0.061	0.072	0.161	0.421	0.838
D-Arabitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.035	Sebacic Acid	0.002	0.003	0.005	0.015	0.016	0.132
D-Cellobiose	0.000	0.000	0.035	0.120	0.248	0.782	Succinic Acid	0.000	0.009	0.163	0.149	0.142	0.190
i-Erythritol	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.109	Bromo Succinic Acid	0.003	0.083	0.154	0.182	0.178	0.253
D-Fructose	0.002	0.003	0.036	0.104	0.175	0.418	Succinamic Acid	0.001	0.011	0.019	0.090	0.210	0.635
L-Fucose	0.001	0.005	0.005	0.008	0.008	0.079	Glucuronamide	0.002	0.014	0.019	0.084	0.125	0.424
D-Galactose	0.002	0.008	0.081	0.490	0.836	1.001	L-Alaninamide	0.002	0.008	0.014	0.047	0.082	0.210
Gentiobiose	0.002	0.000	0.006	0.183	0.476	0.825	D-Alanine	0.002	0.008	0.003	0.004	0.004	0.091
<i>α</i> -D-Glucose	0.001	0.004	0.235	0.813	0.855	0.985	L-Alanine	0.002	0.005	0.007	0.031	0.080	0.268
m-Inositol	0.007	0.000	0.004	0.034	0.080	0.221	L-Alanyl-L-glycine	0.003	0.001	0.006	0.046	0.101	0.340
<i>α</i> -D-Lactose	0.003	0.002	0.002	0.000	0.040	0.348	L-Asparagine	0.007	0.007	0.012	0.070	0.137	0.309
Lactulose	0.007	0.004	0.002	0.002	0.003	0.120	L-Aspartic Acid	0.003	0.003	0.017	0.037	0.134	0.488
Maltose	0.001	0.010	0.232	0.743	0.907	1.123	L-Glutamic Acid	0.002	0.009	0.049	0.183	0.317	0.724
D-Mannitol	0.003	0.009	0.037	0.101	0.150	0.298	Glycyl-L-Aspartic Acid	0.001	0.012	0.018	0.116	0.019	0.086
D-Mannose	0.000	0.000	0.018	0.200	0.390	0.903	Glycyl-L-Glutamic Acid	0.000	0.000	0.000	0.004	0.175	0.604
D-Melibiose	0.001	0.006	0.057	0.290	0.524	0.932	L-Histidine	0.001	0.025	0.024	0.029	0.034	0.138
β -Methyl-D-Glucoside	0.001	0.001	0.014	0.085	0.149	0.364	Hydroxy-L-Proline	0.005	0.013	0.012	0.021	0.048	0.311
D-Psicose	0.003	0.009	0.004	0.007	0.008	0.072	L-Leucine	0.021	0.009	0.005	0.000	0.000	0.066
L-Raffinose	0.002	0.005	0.085	0.299	0.531	0.827	L-Ornithine	0.003	0.012	0.028	0.080	0.134	0.332
L-Rhamnose	0.006	0.007	0.008	0.043	0.093	0.309	L-Proline	0.006	0.005	0.026	0.122	0.440	0.911
D-Sorbitol	0.004	0.004	0.014	0.058	0.111	0.277	L-Pyrogutamic Acid	0.003	0.002	0.036	0.081	0.117	0.283
Sucrose	0.003	0.002	0.170	0.740	0.923	1.110	D-Serine	0.003	0.006	0.005	0.004	0.002	0.077
D-Trehalose	0.005	0.003	0.065	0.695	0.943	1.086	L-Serine	0.005	0.010	0.012	0.012	0.014	0.126
Turanose	0.003	0.001	0.044	0.162	0.381	0.699	L-Threonine	0.002	0.004	0.003	0.008	0.031	0.326
Xylitol	0.002	0.003	0.005	0.000	0.000	0.046	D-L-Carnitine	0.005	0.009	0.007	0.006	0.006	0.072
Methyl Pyruvate	0.011	0.327	0.456	0.467	0.463	0.544	γ -Amino Butyric Acid	0.003	0.000	0.030	0.096	0.156	0.330
Mono-Methyl-Succinate	0.002	0.017	0.030	0.066	0.151	0.533	Urocanic Acid	0.000	0.001	0.018	0.239	0.396	0.594
Acetic Acid	0.001	0.000	0.028	0.070	0.065	0.137	Inosine	0.000	0.000	0.011	0.072	0.122	0.261
Cis-Aconitic Acid	0.003	0.009	0.194	0.547	0.743	0.914	Uridine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.032
Citric Acid	0.015	0.063	0.264	0.597	0.785	0.556	Thymidine	0.000	0.000	0.000	0.000	0.016	0.211
Formic Acid	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.058	Phenylethylamine	0.001	0.006	0.006	0.012	0.016	0.122
D-Galactonic Acid Lactone	0.005	0.020	0.020	0.026	0.031	0.136	Putrescine	0.000	0.000	0.000	0.002	0.010	0.102
D-Galacturonic Acid	0.003	0.016	0.018	0.074	0.148	0.427	2-Aminoethanol	0.000	0.001	0.000	0.007	0.020	0.128
D-Glucuronic Acid	0.003	0.027	0.024	0.086	0.363	0.660	2,3-Butanediol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.019
D-Glucosaminic Acid	0.007	0.009	0.017	0.029	0.039	0.128	Glycerol	0.005	0.004	0.027	0.150	0.209	0.306
D-Glucuronic Acid	0.007	0.006	0.007	0.012	0.040	0.182	D,L- α -Glycerol Phosphate	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.041
<i>α</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.003	0.004	0.000	0.000	0.000	0.060	Glucose-1-Phosphate	0.002	0.000	0.000	0.000	0.001	0.401
β -Hydroxy Butyric Acid	0.002	0.005	0.040	0.170	0.305	0.623	Glucose-6-Phosphate	0.000	0.002	0.002	0.002	0.005	0.079
γ -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.000	0.023	0.088	0.175							
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.054							

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P29, 7/15)

炭素基質	P29土壌試料の各培養日における微生物活性							炭素基質	P29土壌試料の各培養日における微生物活性						
	1日	2日	3日	4日	5日	7日	7日		1日	2日	3日	4日	5日	7日	
α -Cyclodextrin	0.000	0.000	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	Itaconic Acid	0.006	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	
Dextrin	0.024	0.023	0.022	0.017	0.005	0.000	0.000	α -Keto Butyric Acid	0.004	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	
Glycogen	0.006	0.003	0.007	0.007	0.000	0.000	0.000	α -Keto Glutaric Acid	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Tween 40	0.003	0.001	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	α -Keto Valeric Acid	0.008	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	
Tween 80	0.009	0.007	0.004	0.000	0.010	0.065		DL-Lactic Acid	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	0.347	
N-Acetyl-L-D-galactosamine	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Malonic Acid	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
N-Acetyl-D-galactosamine	0.001	0.000	0.003	0.034	0.081	0.168		Propionic Acid	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Adonitol	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Quinic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
L-Arabinose	0.005	0.003	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	D-Saccharic Acid	0.005	0.000	0.002	0.003	0.000	0.000	
D-Arabitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Sebacic Acid	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Cellobiose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.009	0.009	Succinic Acid	0.002	0.000	0.000	0.013	0.040	0.049	
i-Erythritol	0.002	0.001	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	Bromo Succinic Acid	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Fructose	0.001	0.000	0.000	0.004	0.009	0.017		Succinamic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
L-Fucose	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Gluturonamide	0.005	0.002	0.003	0.003	0.000	0.000	
D-Galactose	0.002	0.000	0.021	0.142	0.264	0.340		L-Alaninamide	0.004	0.003	0.004	0.000	0.000	0.000	
Gentiobiose	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	D-Alanine	0.006	0.002	0.004	0.000	0.000	0.000	
α -D-Glucose	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.073		L-Alanine	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
m-Inositol	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Alanyl-L-glycine	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
α -D-Lactose	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Asparagine	0.005	0.004	0.005	0.018	0.017	0.013	
Lactulose	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Aspartic Acid	0.005	0.000	0.003	0.000	0.000	0.037	
Maltose	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Glutamic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Mannitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Glycyl-L-Aspartic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Mannose	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Glycyl-L-Glutamic Acid	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Melibiose	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Histidine	0.007	0.001	0.004	0.005	0.000	0.000	
D-Psicose	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Hydroxy-L-Proline	0.005	0.003	0.003	0.000	0.000	0.000	
D-Raffinose	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Leucine	0.006	0.005	0.008	0.000	0.000	0.000	
L-Rhamnose	0.004	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Ornithine	0.004	0.004	0.007	0.002	0.000	0.000	
D-Sorbitol	0.003	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Phenylalanine	0.004	0.003	0.002	0.000	0.000	0.000	
Sucrose	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Proline	0.005	0.001	0.002	0.000	0.000	0.000	
D-Trehalose	0.003	0.002	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Pyrogutamic Acid	0.005	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	
Turanose	0.003	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	D-Serine	0.006	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	
Xylitol	0.003	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	L-Serine	0.003	0.002	0.004	0.000	0.000	0.000	
Methyl Pyruvate	0.002	0.000	0.124	0.252	0.563	0.436		L-Threonine	0.005	0.001	0.003	0.000	0.000	0.000	
Mono-Methyl-Succinate	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	D-L-Carnitine	0.003	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	
Acetic Acid	0.003	0.002	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	γ -Amino Butyric Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Cis-Aconitic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.020	0.387		Urocanic Acid	0.008	0.002	0.007	0.003	0.000	0.000	
Citric Acid	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	0.231		Inosine	0.004	0.001	0.005	0.000	0.000	0.000	
Formic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Uridine	0.002	0.003	0.005	0.000	0.000	0.000	
D-Galactonic Acid Lactone	0.004	0.000	0.003	0.007	0.005	0.006	0.006	Thymidine	0.003	0.005	0.003	0.000	0.000	0.000	
D-Galacturonic Acid	0.003	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	Phenylethylamine	0.005	0.004	0.004	0.000	0.000	0.000	
D-Gluconic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Putrescine	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
D-Glucosaminic Acid	0.006	0.006	0.007	0.001	0.000	0.000	0.000	2-Aminoethanol	0.003	0.000	0.001	0.009	0.028	0.049	
D-Gluconamic Acid	0.003	0.002	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	2,3-Butanediol	0.002	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	
α -Hydroxy Butyric Acid	0.006	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	Glycerol	0.006	0.003	0.005	0.000	0.000	0.000	
β -Hydroxy Butyric Acid	0.003	0.000	0.005	0.000	0.003	0.050	0.003	D,L- α -Glycerol Phosphate	0.002	0.000	0.002	0.001	0.000	0.000	
γ -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Glucose-1-Phosphate	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.005	0.002	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	Glucose-6-Phosphate	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P38, 9/15)

P38土壌試料の各培養日における微生物活性							P38土壌試料の各培養日における微生物活性						
炭素基質							炭素基質						
1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目	7日目	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目	
α-Cyclodextrin	0.004	0.017	0.016	0.014	0.012	0.016	Itaconic Acid	0.012	0.022	0.024	0.024	0.025	
Dextrin	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	α-Keto Butyric Acid	0.004	0.018	0.018	0.016	0.019	
Glycogen	0.011	0.023	0.025	0.022	0.023	0.021	α-Keto Glutaric Acid	0.008	0.011	0.012	0.012	0.016	
Tween 40	0.001	0.006	0.006	0.001	0.003	0.006	α-Keto Valeric Acid	0.007	0.021	0.024	0.023	0.027	
Tween 80	0.004	0.011	0.013	0.007	0.013	0.005	DL-Lactic Acid	0.006	0.009	0.010	0.006	0.011	
N-Acetyl-D-glucosamine	0.005	0.017	0.017	0.014	0.017	0.013	Malonic Acid	0.002	0.004	0.008	0.004	0.008	
N-Acetyl-D-glucosamine	0.004	0.016	0.017	0.014	0.015	0.016	Propionic Acid	0.000	0.004	0.006	0.006	0.013	
Adonitol	0.005	0.017	0.016	0.016	0.016	0.016	Quinic Acid	0.003	0.014	0.012	0.013	0.017	
L-Arabinose	0.026	0.068	0.066	0.062	0.062	0.059	D-Saccharic Acid	0.006	0.019	0.018	0.015	0.017	
D-Arabitol	0.004	0.014	0.014	0.011	0.011	0.011	Sebacic Acid	0.001	0.007	0.008	0.007	0.010	
D-Cellobiose	0.002	0.007	0.008	0.005	0.010	0.013	Succinic Acid	0.002	0.010	0.013	0.006	0.004	
i-Erythritol	0.005	0.017	0.017	0.012	0.012	0.013	Bromo Succinic Acid	0.007	0.023	0.030	0.032	0.037	
D-Fructose	0.006	0.019	0.018	0.016	0.018	0.019	Succinamic Acid	0.004	0.019	0.021	0.017	0.020	
L-Fucose	0.008	0.023	0.024	0.022	0.025	0.009	Glucuronamide	0.009	0.024	0.025	0.025	0.027	
D-Galactose	0.005	0.017	0.019	0.017	0.018	0.020	L-Alaninamide	0.010	0.025	0.027	0.026	0.030	
Gentiobiose	0.004	0.013	0.015	0.014	0.015	0.011	D-Alanine	0.006	0.011	0.012	0.011	0.014	
α-D-Glucose	0.005	0.017	0.018	0.016	0.016	0.018	L-Alanine	0.008	0.015	0.016	0.015	0.017	
m-Inositol	0.002	0.008	0.010	0.009	0.010	0.010	L-Alanyl-L-glycine	0.008	0.025	0.022	0.025	0.023	
α-D-Lactose	0.005	0.012	0.015	0.012	0.016	0.015	L-Asparagine	0.008	0.015	0.017	0.014	0.018	
Lactulose	0.005	0.017	0.090	0.373	0.697	1.284	L-Aspartic Acid	0.006	0.007	0.015	0.011	0.014	
Maltose	0.003	0.013	0.014	0.013	0.010	0.013	L-Glutamic Acid	0.003	0.011	0.010	0.009	0.006	
D-Mannitol	0.006	0.022	0.023	0.024	0.020	0.013	Glycyl-L-Aspartic Acid	0.001	0.006	0.011	0.012	0.013	
D-Mannose	0.004	0.015	0.015	0.015	0.013	0.009	Glycyl-L-Glutamic Acid	0.000	0.000	0.003	0.002	0.000	
D-Melibiose	0.004	0.007	0.010	0.010	0.009	0.010	L-Histidine	0.007	0.016	0.020	0.021	0.018	
β-Methyl-D-Glucoside	0.004	0.016	0.017	0.016	0.013	0.018	Hydroxy-L-Proline	0.007	0.016	0.018	0.018	0.021	
D-Psicose	0.005	0.013	0.018	0.016	0.019	0.018	L-Leucine	0.012	0.016	0.017	0.022	0.015	
D-Raffinose	0.002	0.011	0.014	0.011	0.013	0.013	L-Ornithine	0.005	0.011	0.012	0.013	0.016	
L-Rhamnose	0.006	0.018	0.021	0.018	0.024	0.025	L-Phenylalanine	0.009	0.018	0.023	0.024	0.027	
D-Sorbitol	0.005	0.018	0.021	0.032	0.039	0.035	L-Proline	0.007	0.023	0.024	0.036	0.061	
Sucrose	0.003	0.012	0.014	0.011	0.018	0.016	L-Pyrogutamic Acid	0.008	0.017	0.022	0.029	0.027	
D-Trehalose	0.003	0.014	0.023	0.040	0.102	0.254	D-Serine	0.007	0.020	0.020	0.021	0.018	
Turanose	0.007	0.025	0.025	0.023	0.025	0.027	L-Serine	0.008	0.018	0.020	0.014	0.016	
Xylitol	0.007	0.019	0.020	0.020	0.021	0.021	L-Threonine	0.010	0.028	0.027	0.025	0.024	
Methyl Pyruvate	0.008	0.025	0.028	0.059	0.675	0.760	D,L-Carnitine	0.005	0.021	0.023	0.021	0.022	
Mono-Methyl-Succinate	0.000	0.006	0.006	0.002	0.002	0.000	γ-Amino Butyric Acid	0.003	0.013	0.016	0.012	0.009	
Acetic Acid	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.007	Urocanic Acid	0.009	0.022	0.022	0.020	0.021	
Cis-Aconitic Acid	0.005	0.012	0.013	0.010	0.011	0.009	Inosine	0.012	0.010	0.015	0.011	0.012	
Citric Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	Uridine	0.006	0.020	0.020	0.019	0.019	
Formic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	Thymidine	0.003	0.016	0.017	0.018	0.016	
D-Galactonic Acid Lactone	0.006	0.013	0.015	0.012	0.014	0.016	Phenethylamine	0.004	0.016	0.020	0.017	0.018	
D-Galacturonic Acid	0.004	0.015	0.016	0.015	0.020	0.020	Putrescine	0.002	0.013	0.012	0.013	0.013	
D-Gluconic Acid	0.010	0.021	0.024	0.020	0.025	0.028	2-Aminoethanol	0.006	0.024	0.023	0.024	0.020	
D-Glucosaminic Acid	0.008	0.017	0.019	0.020	0.020	0.023	2,3-Butanediol	0.004	0.016	0.020	0.023	0.018	
D-Glucuronic Acid	0.003	0.012	0.016	0.015	0.016	0.017	Glycerol	0.007	0.017	0.020	0.016	0.018	
α-Hydroxy Butyric Acid	0.010	0.013	0.016	0.013	0.016	0.015	D,L-α-Glycerol Phosphate	0.004	0.017	0.016	0.014	0.013	
β-Hydroxy Butyric Acid	0.001	0.013	0.015	0.013	0.018	0.014	Glucose-1-Phosphate	0.002	0.008	0.011	0.001	0.007	
γ-Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.006	0.008	0.005	0.005	0.000	Glucose-6-Phosphate	0.001	0.001	0.002	0.000	0.000	
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.003	0.010	0.010	0.012	0.010	0.011							

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P49, 11/15)

P49土壌試料の各培養日における微生物活性						P49土壌試料の各培養日における微生物活性					
炭素基質			炭素基質			炭素基質			炭素基質		
1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目
<i>α</i> -Cyclodextrin	0.004	0.007	0.016	0.020	0.024	0.028	0.019	0.011	0.015	0.015	0.021
Dextrin	0.014	0.015	0.036	0.128	0.194	0.331	0.004	0.003	0.010	0.009	0.008
Glycogen	0.010	0.027	0.056	0.104	0.181	0.249	0.006	0.005	0.017	0.017	0.024
Tween 40	0.002	0.001	0.002	0.016	0.055	0.175	0.011	0.017	0.026	0.031	0.036
Tween 80	0.009	0.012	0.020	0.027	0.071	0.196	0.006	0.005	0.005	0.007	0.012
N-Acetyl-D- galactosamine	0.003	0.005	0.008	0.010	0.007	0.010	0.005	0.006	0.012	0.020	0.032
N-Acetyl-D- galactosamine	0.004	0.008	0.014	0.037	0.068	0.120	0.002	0.006	0.008	0.014	0.023
Adonitol	0.003	0.008	0.009	0.009	0.010	0.020	0.007	0.015	0.034	0.063	0.098
L-Arabinose	0.028	0.058	0.056	0.074	0.107	0.163	0.010	0.008	0.011	0.036	0.062
D-Arabitol	0.003	0.005	0.008	0.014	0.024	0.046	0.002	0.007	0.018	0.041	0.068
D-Cellobiose	0.003	0.007	0.035	0.066	0.087	0.061	0.005	0.012	0.017	0.023	0.027
i-Ery thritol	0.004	0.009	0.010	0.010	0.011	0.018	0.009	0.008	0.012	0.013	0.019
D-Fructose	0.005	0.016	0.037	0.053	0.083	0.135	0.004	0.007	0.013	0.015	0.024
L-Fucose	0.004	0.008	0.008	0.011	0.018	0.031	0.012	0.016	0.014	0.013	0.016
D-Galactose	0.004	0.007	0.024	0.105	0.197	0.300	0.008	0.014	0.016	0.019	0.023
Gentiobiose	0.003	0.009	0.044	0.110	0.229	0.492	0.008	0.006	0.010	0.015	0.023
<i>α</i> -D-Glucose	0.003	0.010	0.061	0.158	0.281	0.422	0.005	0.005	0.017	0.035	0.065
m-Inositol	0.002	0.005	0.013	0.021	0.037	0.050	0.004	0.010	0.015	0.025	0.043
<i>α</i> -D-Lactose	0.006	0.005	0.010	0.028	0.053	0.094	0.010	0.010	0.011	0.023	0.042
Lactulose	0.003	0.007	0.009	0.008	0.012	0.018	0.009	0.010	0.013	0.029	0.035
Maltose	0.003	0.007	0.042	0.104	0.181	0.323	0.005	0.008	0.021	0.038	0.047
D-Mannitol	0.004	0.008	0.012	0.026	0.045	0.074	0.003	0.003	0.010	0.016	0.022
D-Mannose	0.003	0.005	0.047	0.167	0.370	0.581	0.002	0.003	0.005	0.011	0.012
D-Melibiose	0.004	0.009	0.029	0.081	0.122	0.136	0.014	0.012	0.012	0.007	0.014
<i>β</i> -Methyl-D-Glucoside	0.003	0.008	0.023	0.029	0.045	0.115	0.010	0.010	0.019	0.023	0.033
D-Psicose	0.005	0.010	0.020	0.029	0.037	0.042	0.007	0.013	0.016	0.017	0.030
D-Raffinose	0.004	0.005	0.023	0.060	0.127	0.253	0.006	0.008	0.016	0.030	0.058
L-Rhamnose	0.003	0.008	0.030	0.056	0.109	0.220	0.007	0.011	0.011	0.024	0.038
D-Sorbitol	0.004	0.015	0.069	0.134	0.216	0.352	0.006	0.013	0.028	0.028	0.055
Sucrose	0.003	0.008	0.029	0.080	0.220	0.400	0.006	0.012	0.019	0.054	0.092
D-Trehalose	0.008	0.022	0.069	0.139	0.217	0.338	0.006	0.007	0.008	0.009	0.016
Turanose	0.003	0.017	0.053	0.095	0.158	0.327	0.008	0.008	0.016	0.027	0.049
Xylitol	0.002	0.005	0.009	0.008	0.010	0.012	0.010	0.013	0.032	0.051	0.072
Methyl Pyruvate	0.007	0.013	0.044	0.224	0.546	0.860	0.004	0.006	0.008	0.010	0.009
Mono-Methyl-Succinate	0.002	0.003	0.006	0.020	0.003	0.000	0.004	0.006	0.012	0.036	0.043
Acetic Acid	0.002	0.004	0.001	0.000	0.001	0.015	0.006	0.009	0.021	0.018	0.020
Cis-Aconitic Acid	0.005	0.005	0.013	0.021	0.035	0.096	0.004	0.012	0.038	0.092	0.116
Citric Acid	0.009	0.002	0.008	0.005	0.014	0.101	0.008	0.013	0.011	0.011	0.017
Formic Acid	0.005	0.008	0.002	0.002	0.004	0.008	0.008	0.014	0.012	0.013	0.015
D-Galactonic Acid Lactone	0.009	0.008	0.012	0.012	0.019	0.104	0.008	0.013	0.011	0.013	0.033
D-Galacturonic Acid	0.005	0.013	0.034	0.054	0.099	0.172	0.004	0.009	0.029	0.043	0.060
D-Gluconic Acid	0.010	0.009	0.033	0.072	0.105	0.183	0.008	0.010	0.015	0.024	0.037
D-Glucosaminic Acid	0.008	0.011	0.010	0.008	0.008	0.013	0.006	0.009	0.009	0.007	0.012
D-Gluconic Acid	0.005	0.009	0.012	0.017	0.041	0.238	0.007	0.016	0.025	0.055	0.075
<i>α</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.009	0.008	0.009	0.017	0.024	0.039	0.003	0.006	0.011	0.007	0.008
<i>β</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.003	0.010	0.034	0.047	0.078	0.159	0.004	0.006	0.006	0.005	0.008
<i>γ</i> -Hydroxy Butyric Acid	0.002	0.006	0.018	0.026	0.026	0.028	0.003	0.002	0.003	0.004	0.004
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.005	0.012	0.020	0.029	0.059	0.057	0.003	0.002	0.003	0.004	0.006

表 3.2-6 水田土壌微生物による炭素資化性の経時変化 (P62, 15/15)

炭素基質	P62土壌試料の各培養日における微生物活性						
	1日目	2日目	3日目	4日目	5日目	7日目	7日目
α -Cyclodextrin	0.001	0.000	0.000	0.002	0.010	0.094	0.136
Dextrin	0.006	0.005	0.003	0.007	0.068	0.508	0.013
Glycogen	0.009	0.008	0.014	0.016	0.020	0.020	0.032
Tween 40	0.000	0.001	0.000	0.004	0.004	0.002	0.012
Tween 80	0.005	0.003	0.009	0.054	0.225	0.666	0.532
N-Acetyl-D- galactosamine	0.000	0.000	0.003	0.000	0.000	0.000	0.016
N-Acetyl-D- glucosamine	0.001	0.000	0.000	0.000	0.176	0.000	0.236
Adonitol	0.001	0.001	0.001	0.005	0.012	0.014	0.008
L-Arabinose	0.018	0.037	0.034	0.028	0.033	0.033	0.019
D-Arabitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005
D-Cellobiose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.004	0.010
i-Erythritol	0.001	0.003	0.004	0.000	0.003	0.002	0.000
D-Fructose	0.001	0.001	0.005	0.000	0.014	0.014	0.108
L-Fucose	0.002	0.000	0.008	0.003	0.007	0.009	0.012
D-Galactose	0.003	0.000	0.003	0.000	0.005	0.008	0.014
Gentiobiose	0.002	0.000	0.007	0.003	0.007	0.270	0.000
α -D-Glucose	0.002	0.000	0.001	0.001	0.003	0.015	0.050
m-Inositol	0.001	0.000	0.004	0.000	0.006	0.014	0.055
α -D-Lactose	0.004	0.004	0.005	0.000	0.004	0.002	0.071
Lactulose	0.000	0.000	0.001	0.000	0.002	0.000	0.278
Maltose	0.002	0.000	0.000	0.002	0.011	0.186	0.732
D-Mannitol	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.018	0.011
D-Mannose	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.181
D-Melibiose	0.001	0.001	0.002	0.000	0.001	0.007	0.021
β -Methyl- D-Glucoside	0.003	0.000	0.003	0.001	0.007	0.012	0.018
D-Psicose	0.006	0.002	0.009	0.004	0.011	0.016	0.018
L-Rhamnose	0.003	0.006	0.011	0.006	0.012	0.007	0.128
D-Sorbitol	0.005	0.001	0.007	0.004	0.005	0.004	0.144
Sucrose	0.004	0.001	0.004	0.006	0.177	1.144	0.004
D-Trehalose	0.006	0.002	0.007	0.004	0.036	0.006	0.000
Turanose	0.005	0.004	0.004	0.003	0.008	0.010	0.004
Xylitol	0.002	0.000	0.007	0.005	0.012	0.011	0.019
Methyl Pyruvate	0.000	0.000	0.031	0.255	0.284	0.217	0.001
Mono-Methyl- Succinate	0.004	0.000	0.006	0.018	0.021	0.047	1.208
Acetic Acid	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.009	0.027
Cis-Aconitic Acid	0.004	0.002	0.005	0.018	0.223	0.643	0.003
Citric Acid	0.001	0.000	0.000	0.007	0.310	0.791	0.003
Formic Acid	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.003
D-Galactonic Acid Lactone	0.006	0.000	0.003	0.000	0.004	0.003	0.006
D-Galacturonic Acid	0.001	0.004	0.011	0.014	0.022	0.026	0.000
D-Gluconic Acid	0.006	0.001	0.013	0.020	0.079	0.234	0.010
D-Glucoosaminic Acid	0.008	0.007	0.009	0.007	0.014	0.016	0.003
D-Gluconic Acid	0.005	0.007	0.012	0.009	0.019	0.024	0.114
α -Hydroxy Butyric Acid	0.013	0.002	0.002	0.000	0.002	0.002	0.007
β -Hydroxy Butyric Acid	0.005	0.004	0.124	0.440	0.483	0.535	0.019
γ -Hydroxy Butyric Acid	0.000	0.000	0.001	0.004	0.002	0.019	0.004
p-Hydroxy Phenylacetic Acid	0.002	0.006	0.005	0.004	0.003	0.005	0.003

表 3.2-8 培養 5 日目における各試料の AWCD と多様度指数

土壌試料	AWCD		H'	
	mean	sd	mean	sd
P2	0.209	0.030	3.55	0.08
P10	0.045	0.033	3.78	0.30
P11	0.276	0.114	3.85	0.03
P21	0.050	0.031	3.28	0.10
P24	0.165	0.034	3.61	0.07
P27	0.198	0.002	3.84	0.04
P29	0.029	0.020	2.57	0.93
P33	0.032	0.044	3.38	0.85
P38	0.044	0.015	3.04	0.36
P48	0.086	0.047	3.20	0.09
P49	0.077	0.038	3.79	0.19
P50	0.068	0.013	3.51	0.08
P51	0.079	0.031	3.50	0.61
P52	0.056	0.042	3.54	0.62
P62	0.092	0.054	3.31	0.15

表 3.4-1 様々な植物種の LAI

植物種	LAI	文献
イネ	6	石井ら、2000
コムギ	5-6	多収穫栽培のもので6-10 石井ら、2000
トウモロコシ（サイレージ用）	6前後	石井ら、2000
ダイズ	5-7	8以上も報告あり 石井ら、2000
ジャガイモ	3-4	石井ら、2000
キャッサバ	3-3.5	最大6-7 石井ら、2000
ナラ、ブナ	0.4-8.1	Le Dantec et al., 2000
ベイマツ	4.6-16.9	若齢林から高齢林 Turner et al., 2000

表 3.4-2 各生育段階におけるイネの草丈と LAI

田植え日	刈り取り日	生育段階	草丈			LAI
			平均 (cm)	標準偏差	n	
2015/5/14	5月15日	栄養生長	14.6	0.64	3	0.022
	6月3日	栄養生長	52.0	2.6	3	0.48
	6月11日	栄養生長	63.5	1.8	3	0.95
	6月28日	栄養生長	84.0	-	1	4.5
	7月8日	生殖生長	97.8	2.5	3	4.9
	7月22日	生殖生長	112.7	1.5	3	6.8
	7月28日	生殖生長	108.0	-	1	4.2
	8月13日	生殖生長	117.3	5.9	3	8.8
	8月19日	生殖生長（出穂・開花）	115.7	4.1	3	8.4
2015/7/23	8月4日	栄養生長	31.0	-	1	0.085
	8月12日	栄養生長	60.3	4.0	3	1.7
	8月28日	栄養生長	61.0	6.2	3	1.7

表 3.5-1 各相の濃度が平衡になった時の比率

培養温度	気相 (%)	液相 (%)	固相 (%)
10℃	28.4	7.8	63.8
15℃	40.1	5.6	54.2
20℃	41.8	4.9	53.3
25℃	46.1	4.7	49.2
30℃	45.8	4.1	50.0
平均*	43.5	4.8	51.7
平成21年度の設定値	43.1	4.1	52.8

* 培養8日～10日の平均(10℃を除く)

表 3.5-2 大阪以北の主要都市の月平均気温

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

5月から9月までをイネの生育期間と仮定。

表 3.5-3 土壌微生物による ^{14}C の分解速度及び分解半減期

培養温度	分解速度* (/ day)	分解半減期 (day)
10℃	0.01529	45.3
15℃	0.01343†	51.6
20℃	0.01205	57.5
25℃	0.01182	58.6
30℃	0.01097	63.2

*初期培養日数が8～10日で、7日間培養のデータから求めた分解速度の平均

†初期培養日数10日の外れた1つのデータを除く

表 3.5-4 群落上部の風速別に見た群落頂部の上向き風速の発生頻度

群落	風速分類	発生度数		上向き風速の発生割合	
		上向き以外	上向き	風速別	平均
57cm	2m/s以上	70	14	0.2	0.33
	1~2m/s	177	39	0.22	
	1m/s未満	1185	173	0.146	
70cm	2m/s以上	16	3	0.188	
	1~2m/s	276	139	0.504	
	1m/s未満	1054	539	0.511	

表 3.5-5 千葉観測所におけるアメダス時別風速データ

風速分類	度数	発生割合
1.2m/s未満	403	0.046
1.2~2.4m/s	1724	0.196
2.4~3m/s	1205	0.137
3~5m/s	3143	0.358
5~10m/s	2171	0.247
10m/s以上	144	0.016
計	8790	1.0

2014年4月~9月末及び2015年4月~9月末のデータを使用した。

表 3.5-6 水稲全体モデルにおける各設定パラメータ値

移行経路	対象期間	パラメータ値*			
		下限	基準	上限	
近傍大気	LAI<2	0-50d	0.1	0.3	0.5
→環境大気	2≦LAI<4	50-59d	0.5	2	4(3)
	4≦LAI(収穫まで)	59-150d	4(3)	20(10)	40(17)
土壌1	栽培期間中の落水時	0-150d	1.9	2.5	24
→近傍大気	収穫以後次期栽培までの落水期間	150-365d	27	67	114
土壌1	栽培期間中の湛水時	0-80d	1.9	6.1	24
→灌漑水		90-120d			
初期流入割合	灌漑水流入時の曝露量の割合 (但し、3相の合計は100%とする)	近傍大気	34	43	54
		灌漑水	2	6	11
		土壌2	38	52	61

*赤字は本年度変更した値で、括弧内は昨年度のパラメータ値

表 3.5-7 感度解析ケースのパラメータ一覧

移行経路	感度解析ケース												
	対数期間	基本解析パラメータ値		#1	#2	#3	#4	#5	#6	#7	#8	#9	#10
		昨年度	今年度										
近傍大気 →環境大気	LAI<2 2≤LAI<4 4≤LAI(収穫まで)	基準 基準 基準(10)	基準 基準 基準(20)	基準 基準(20) 基準(20)	基準 基準(20) 基準(20)	基準 基準(40) 上限(40)	基準 基準(20) 上限(40)	基準 基準 基準(20)	基準 基準 基準(20)	基準 基準 上限(40)	基準 基準 基準(20)	基準 基準 上限(40)	基準 基準 基準(20)
土壌1 →近傍大気	栽培期間中の落水時 収穫以後次期栽培までの落水期間	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準	基準 基準
土壌1 →灌漑水	栽培期間中の灌水時	基準	基準	基準	基準	基準	基準	基準	基準	基準	基準	基準	基準
初期流入割合	灌漑水流入時の曝露量の割合 (但し、3相の合計は100%とする)	基準(42%) 基準(5%) 基準(53%)	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 基準 基準	基準 0 100 0
曝露期間 (曝露源は灌漑水)	田植え開始後か、 田植え開始後から継続	田植え開始後から継続	田植え開始後から継続	中干し1週間 前日から継続	中干し終了 直後から継続	田植え開始 後から継続	中干し1週間 前日から継続	中干し終了 直後から継続	中干し1週間 前日から継続	中干し1週間 前日から継続	中干し1週間 前日まで	中干し1週間 のみ	田植え開始 後から継続
感度解析のケース				継続曝露での曝露開始 時期による影響	継続曝露での曝露開始 時期による影響	近傍大気と環境大気の影響	近傍大気と環境大気の影響	近傍大気と環境大気の影響	近傍大気と環境大気の影響	近傍大気と環境大気の影響	近傍大気と環境大気の影響	近傍大気と環境大気の影響	初期流入割合の影響

注意) 昨年度のパラメータと異なる箇所をオレンジの帯で示した。

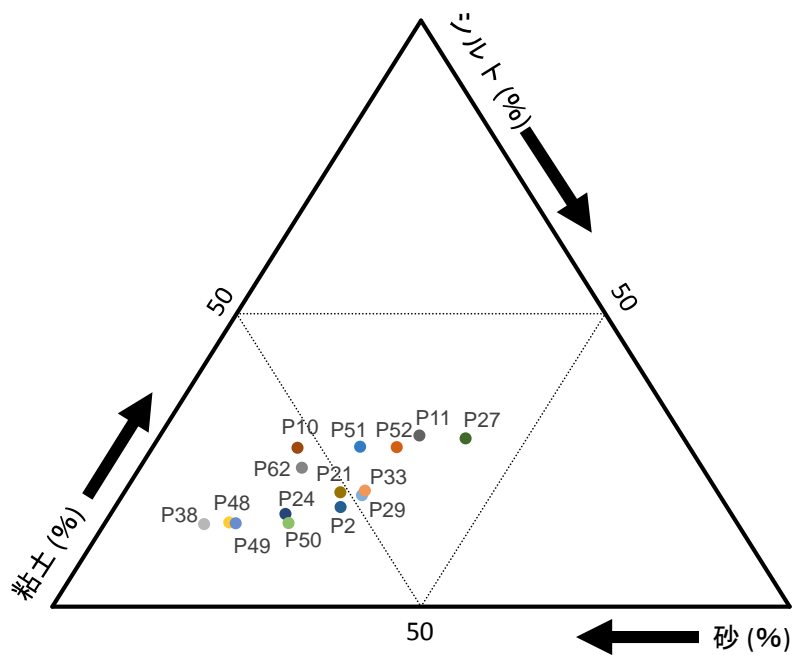


図 3.2-1 供試土壌の粒径組成に基づく土性三角座標

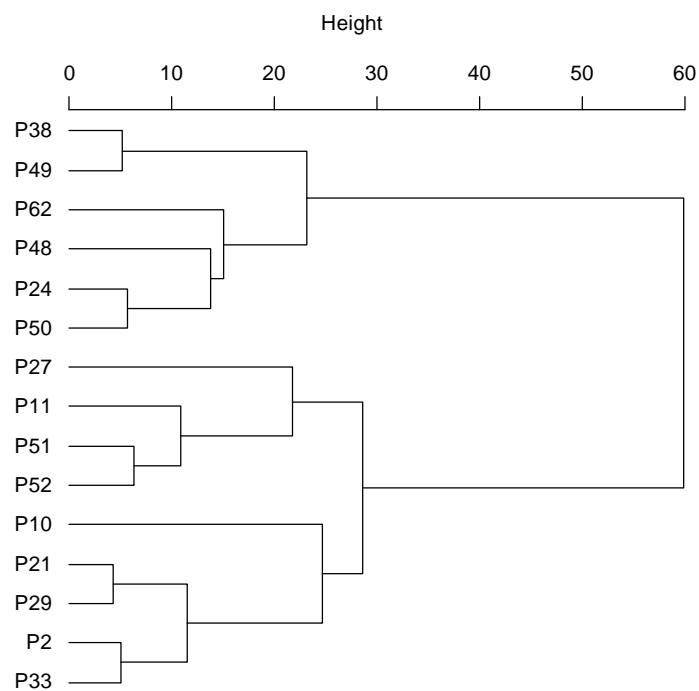


図 3.2-2 粗粒砂、細粒砂、シルトおよび粘土含有率によるクラスタリング

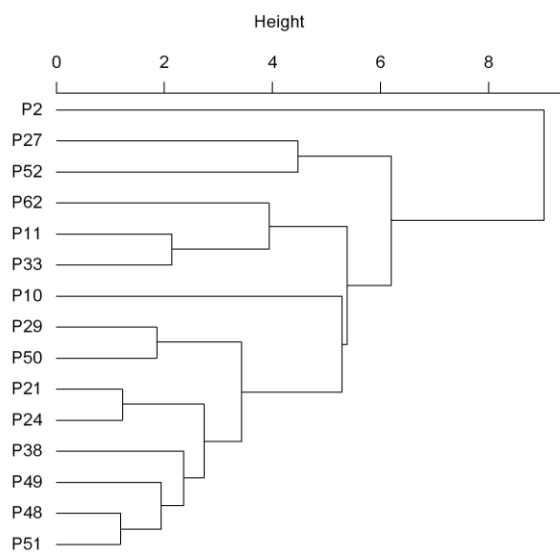


図 3.2-3 化学的特徴によるクラスタリング

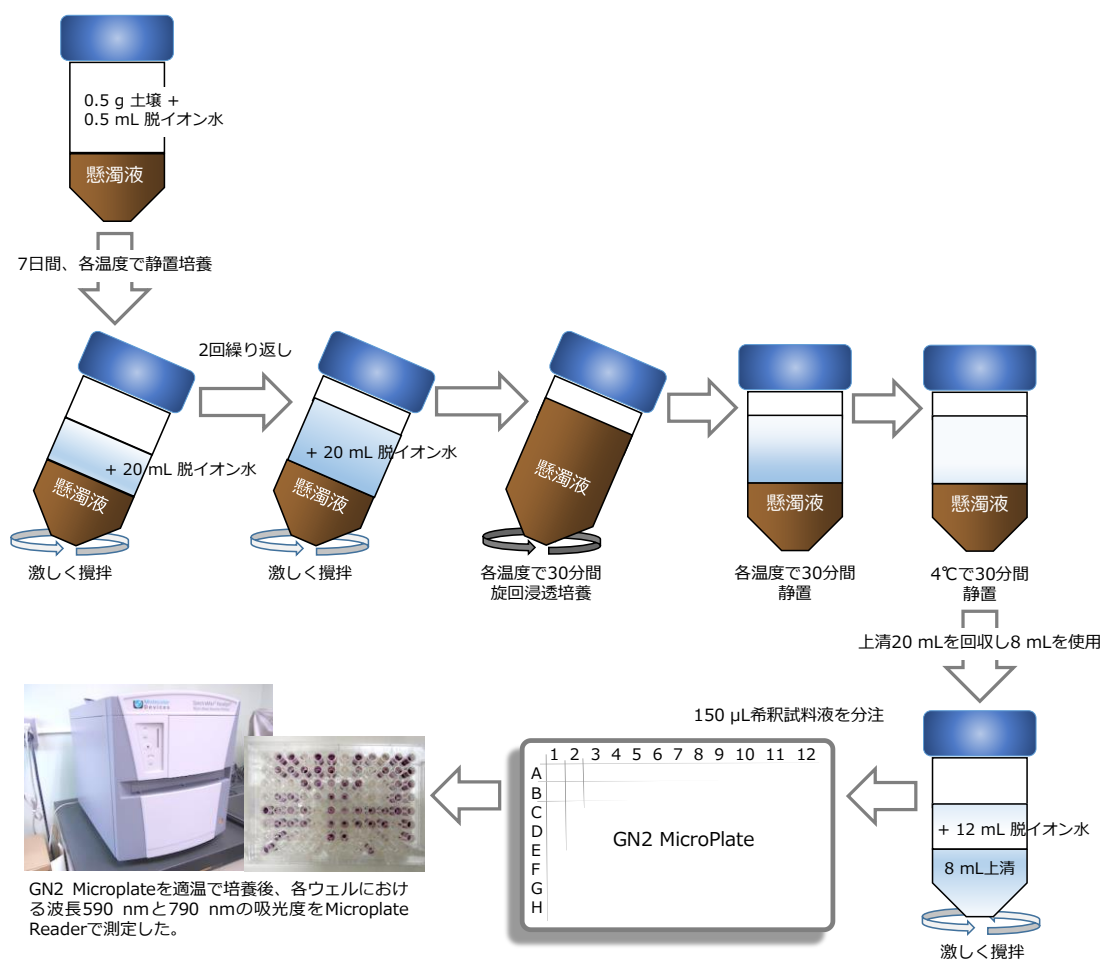


図 3.2-4 炭素資化性試験の実験手順概要

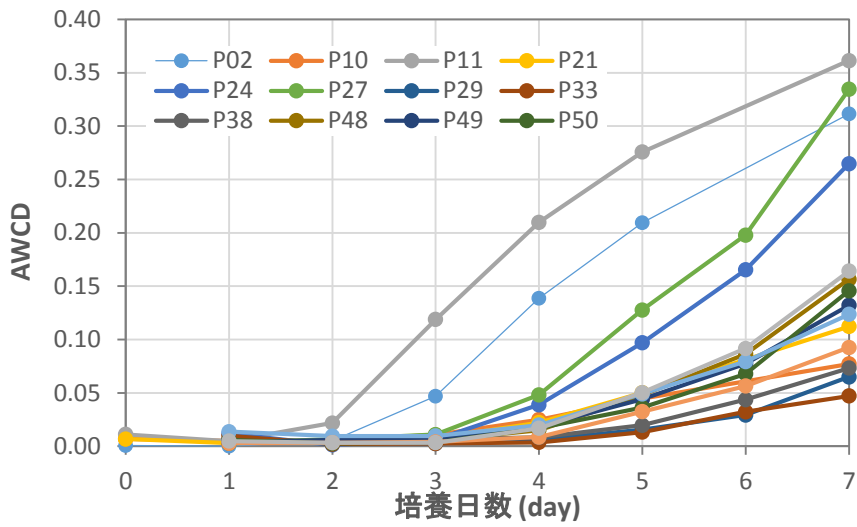


図 3.2-5 15 水田土壌試料の AWCD 値の経時変化

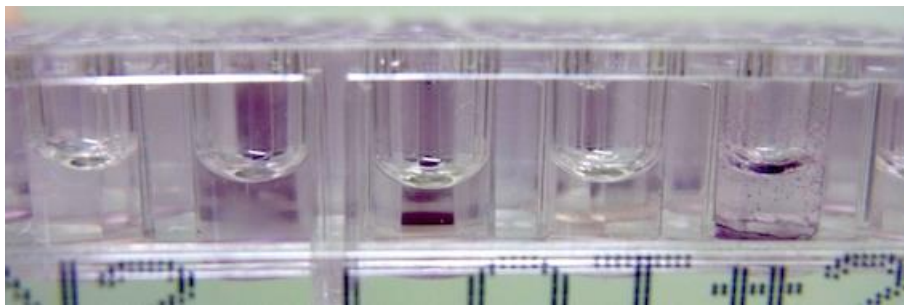


図 3.2-6 GN2 MicroPlate 端における試料溶液の減少
150 μ L の試料量はウェルの 8 分目程度の位置に相当する。

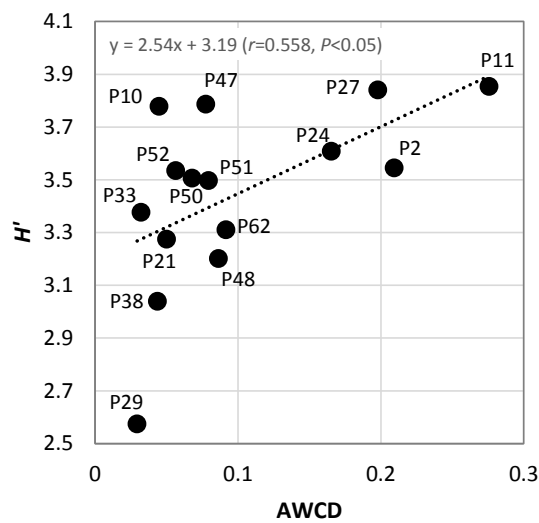


図 3.2-7 AWCD と Shannon-Weaver 多様度指数との関係

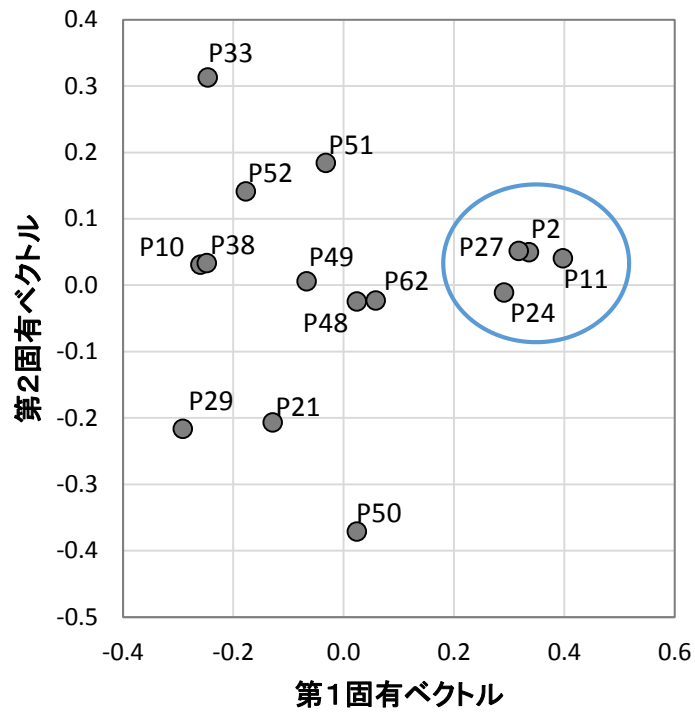


図 3.2-8 主成分分析による炭素資化能の類似性

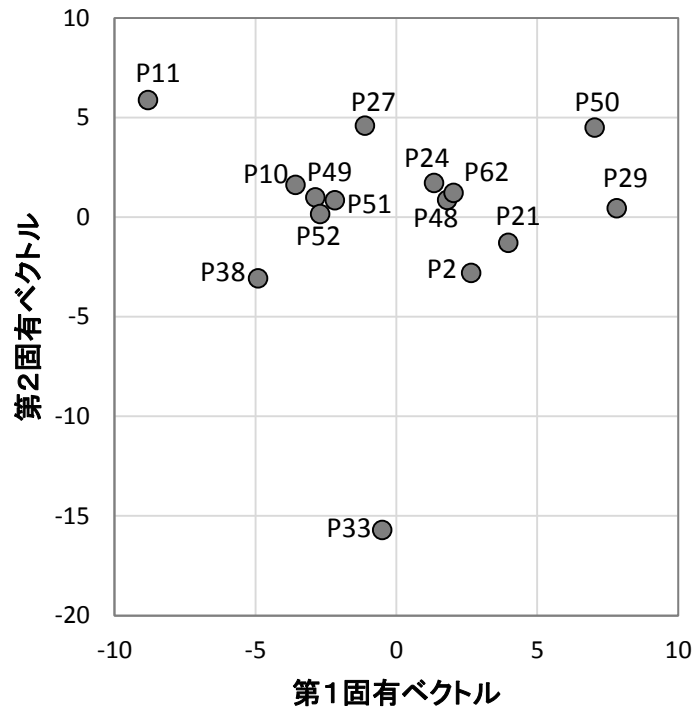


図 3.2-9 主成分分析による炭素の利用し易さ順位の類似性

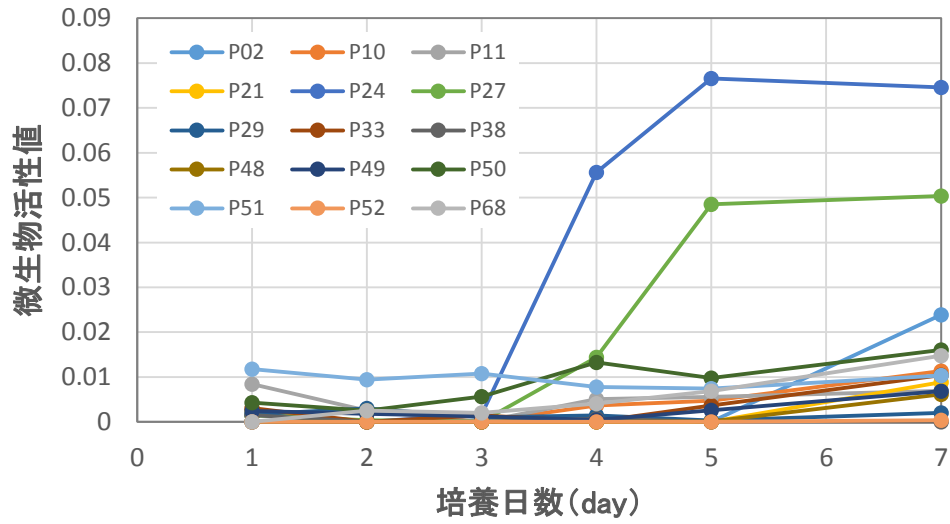


図 3.2-10 酢酸資化性の経時変化

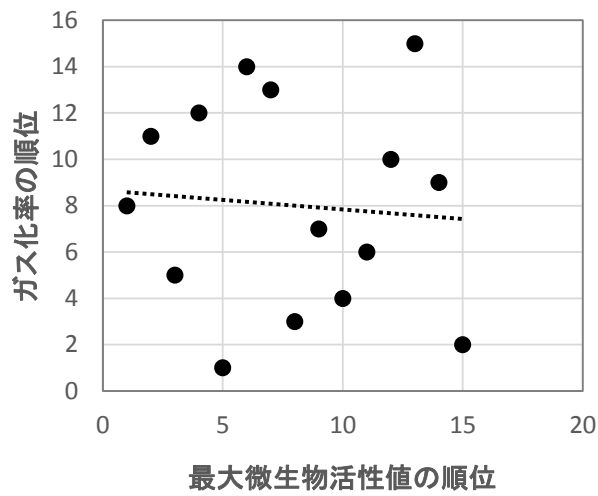


図 3.2-11 酢酸資化能（微生物活性値の最大値）と ¹⁴C ガス化率との関係

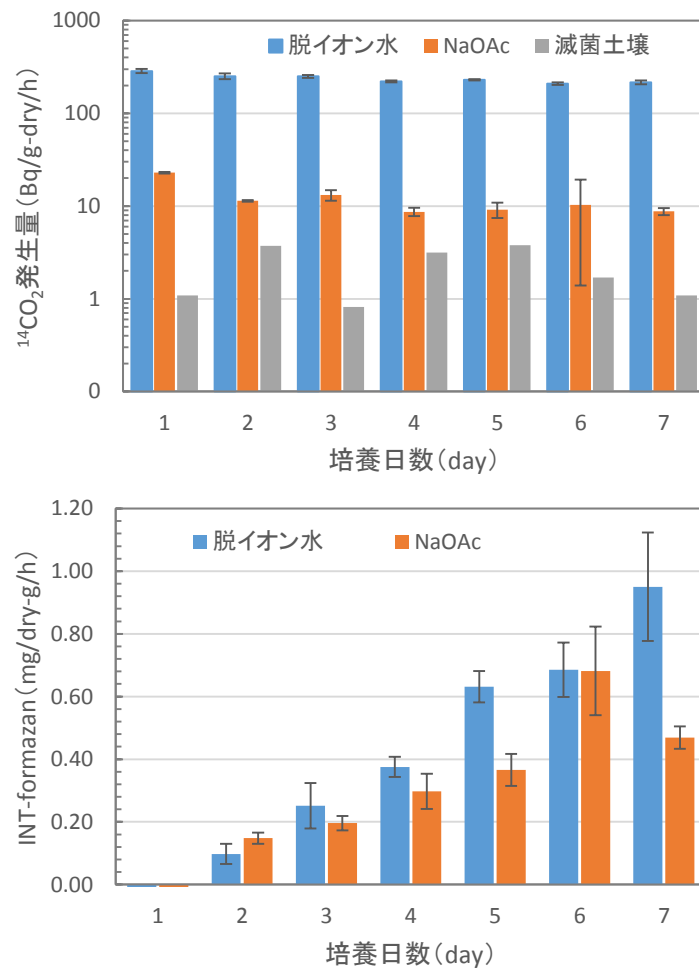


図 3.2-12 微生物活性に対する酢酸の効果

(上) $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する効果と (下) 呼吸活性に対する効果

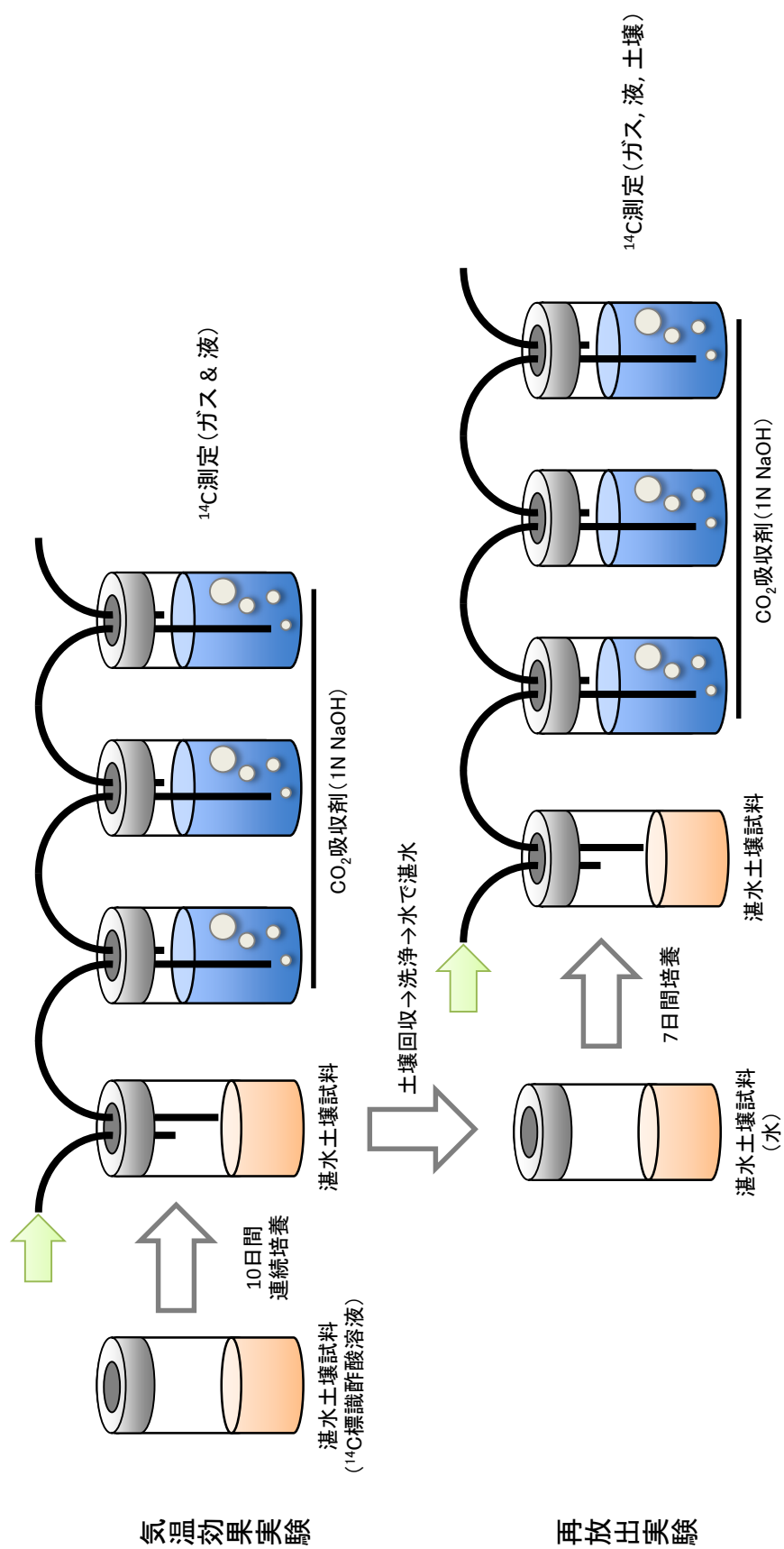


図 3.3-1 ^{14}C ガス化に対する気温効果と固相からの ^{14}C 再放出試験の概要

上段が気温効果実験の概要で、この試験で得られた土壤試料を用いて下段に示す再放出試験を行った。

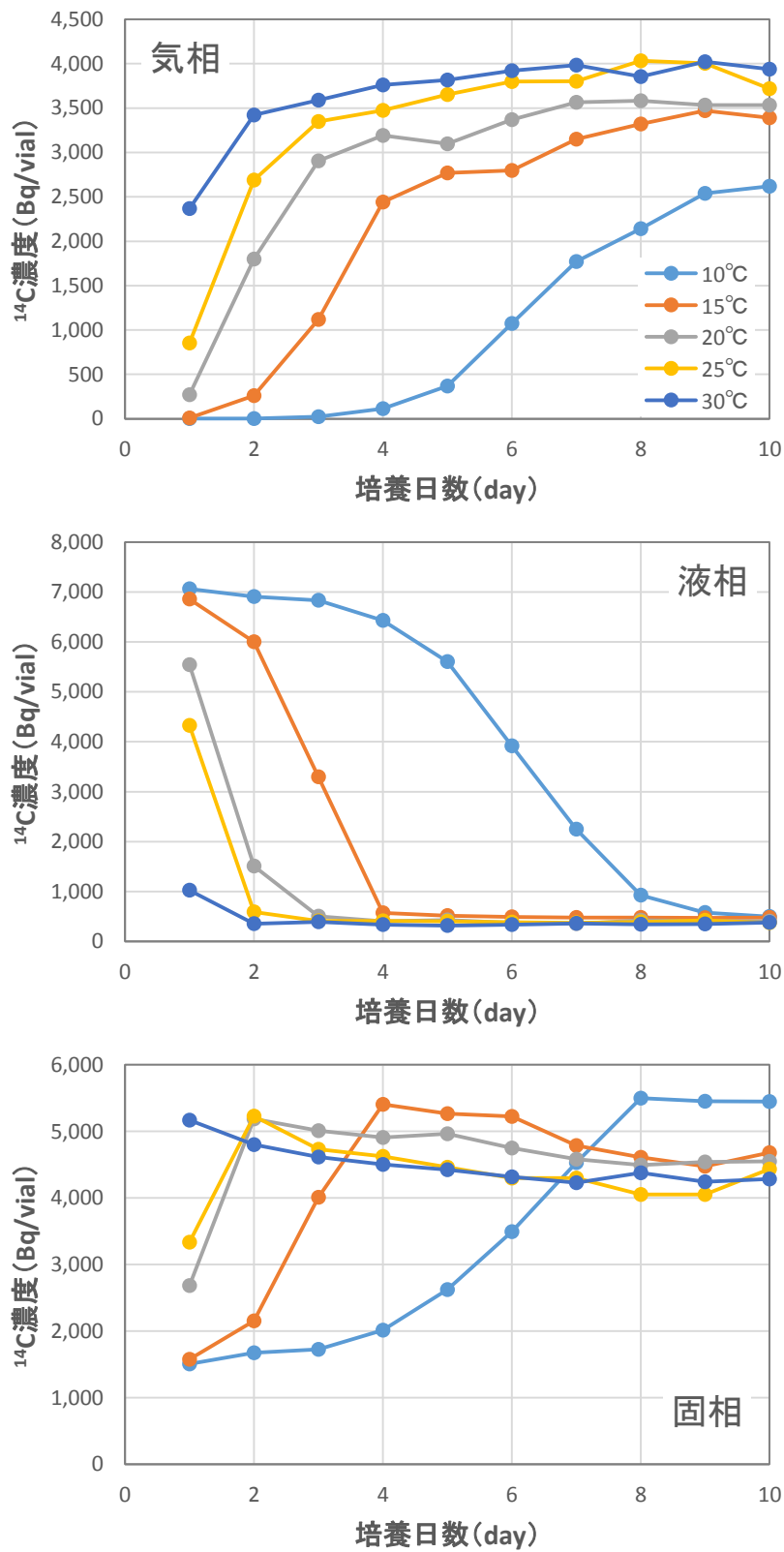


図 3.3-2 各培養日における気相、液相、固相中 ^{14}C 濃度。
 固相中濃度は初期添加 ^{14}C 量と気相および液相中の ^{14}C 量から推定した濃度。

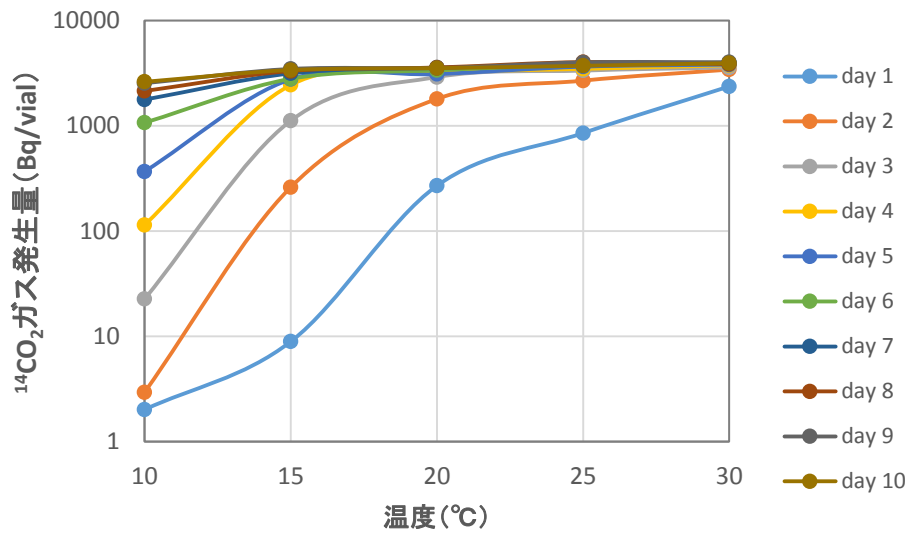


図 3.3-3 気温に対する $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量

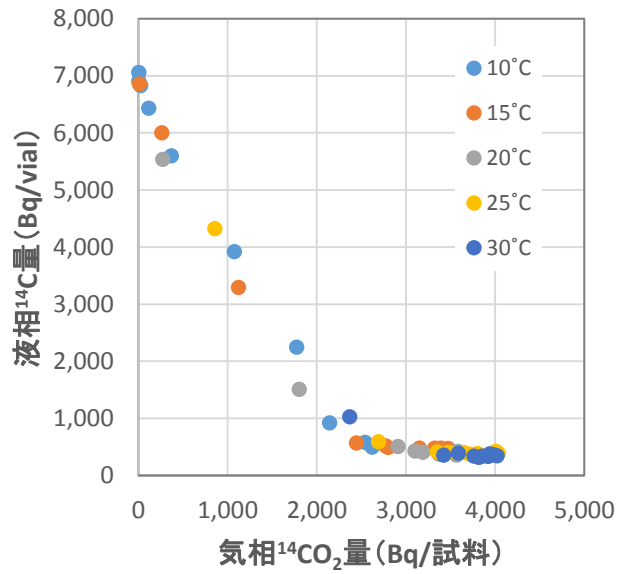


図 3.3-4 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量と液相中の ^{14}C 量との関係

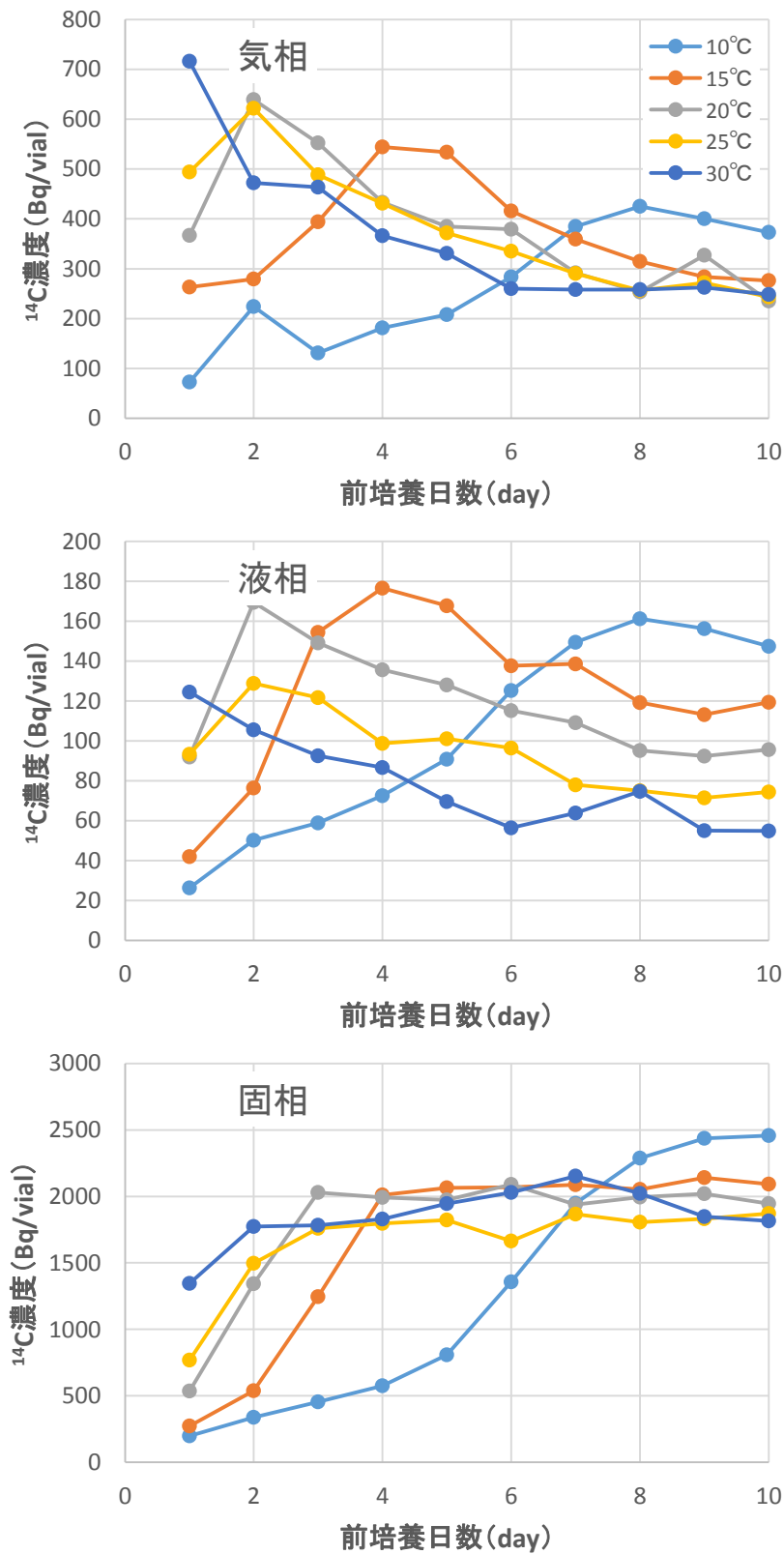


図 3.3-5 再放出実験における培養 7 日目の気相、液相、および固相中の ¹⁴C 濃度
 前培養日数は、この試験において実験を開始する前に ¹⁴C 標識酢酸と接触させていた日数

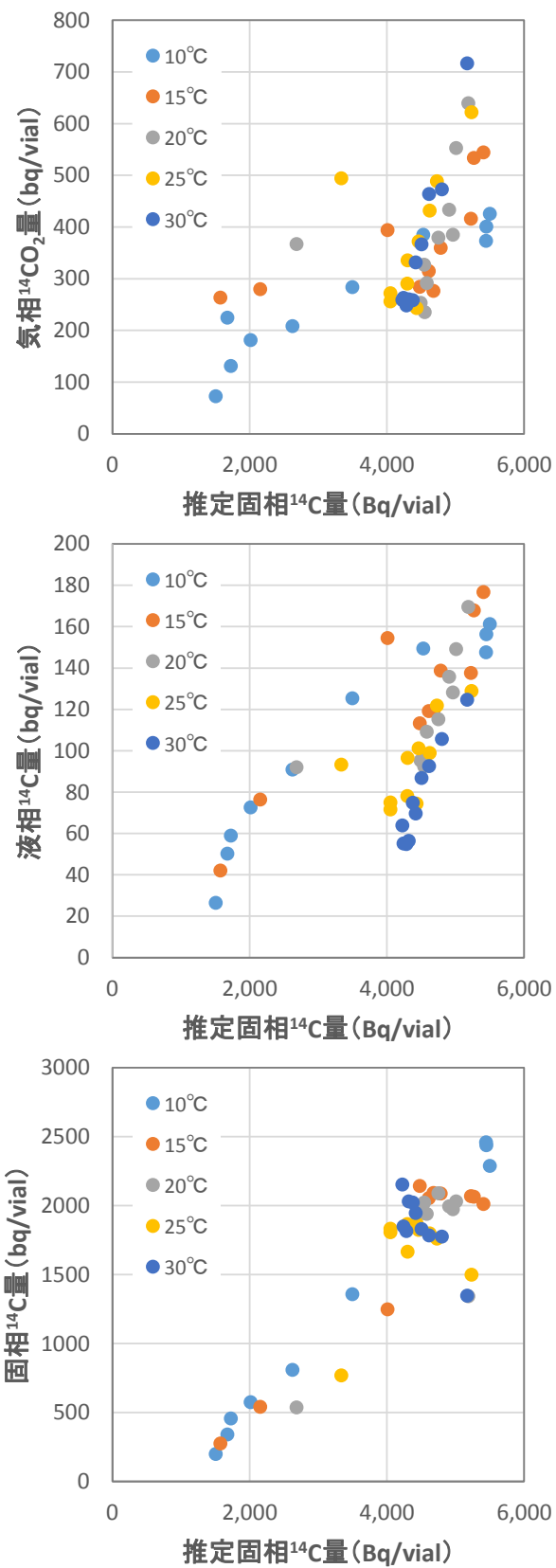


図 3.3-6 気温効果試験で推定された固相 ¹⁴C 量と気相、液相および固相中の ¹⁴C 量の関係

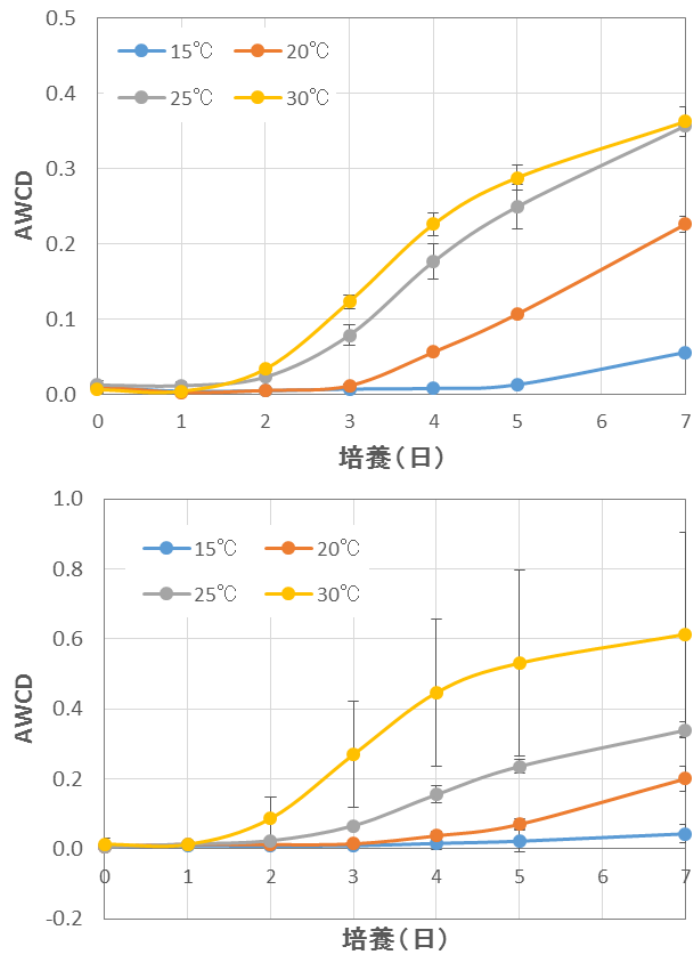


図 3.3-7 AWAD の経時変化
 上が P2 土壌の結果, 下が P11 土壌の結果

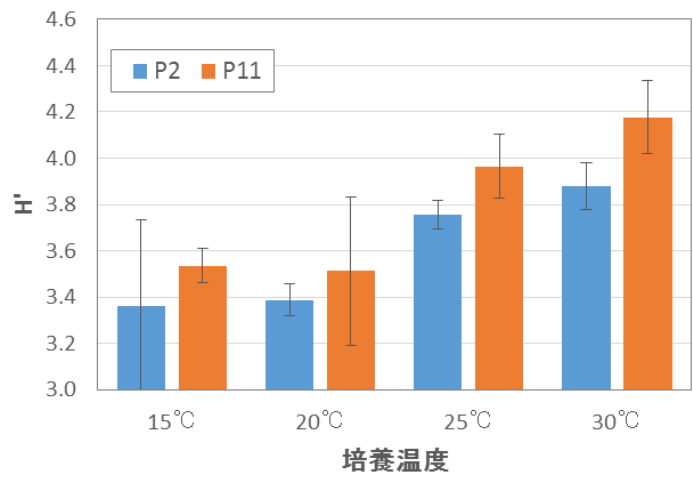


図 3.3-8 培養 5 日目における H'

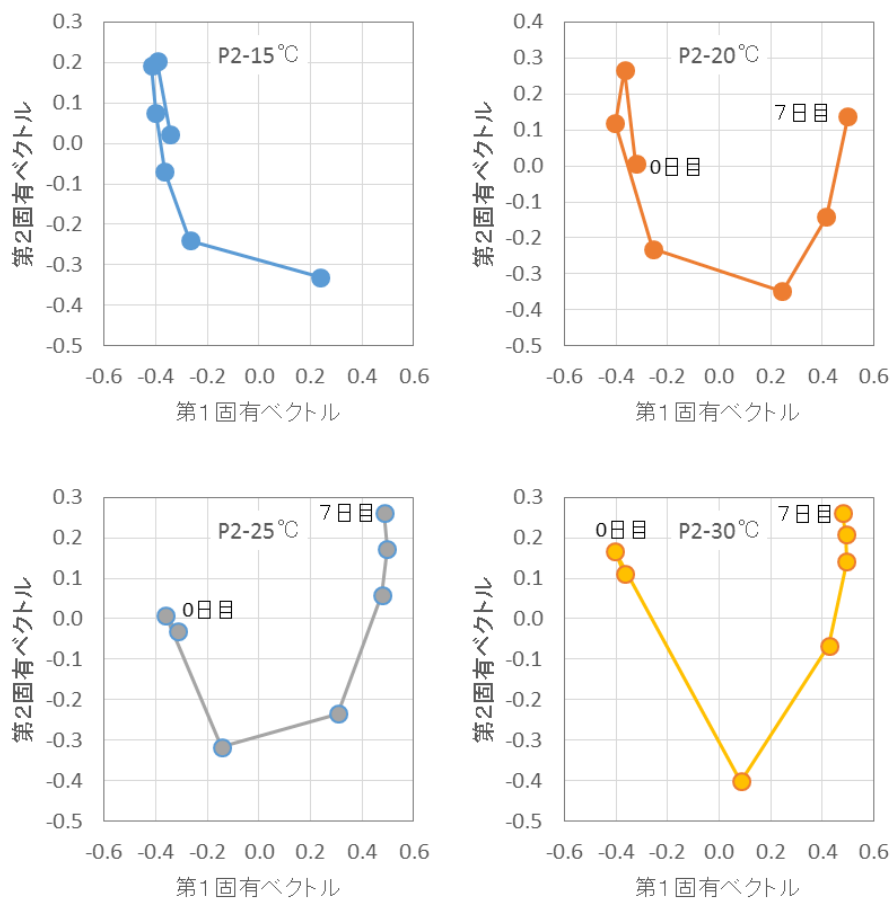


図 3.3-9 各温度で培養した P2 の炭素資化性の類似性

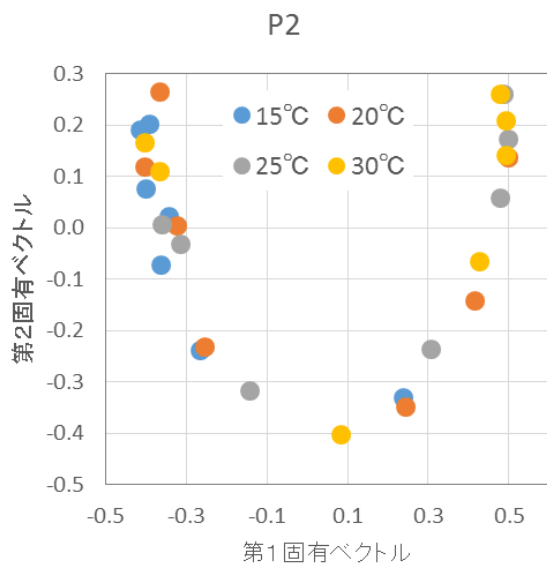


図 3.3-10 P2 における各温度，各培養日における炭素資化性の類似性

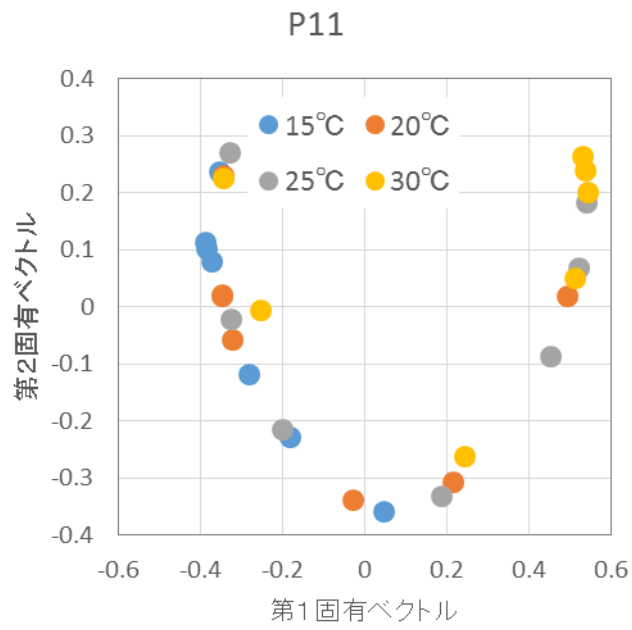


図 3.3-11 P11 における各温度，各培養日における炭素資化性の類似性

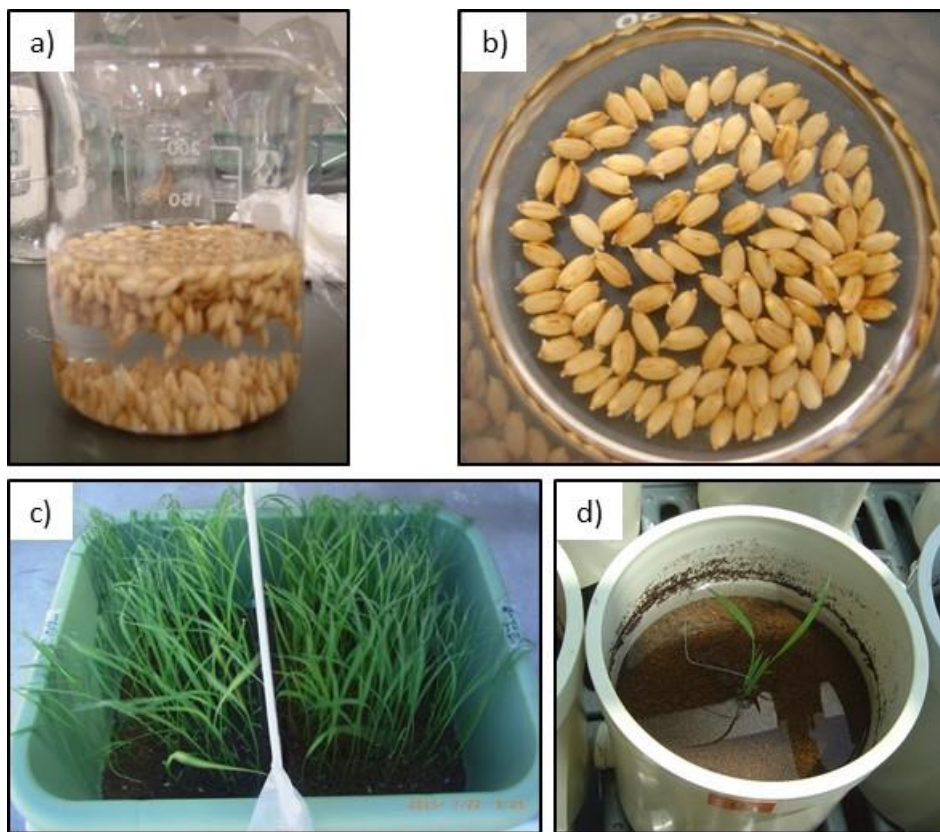


図 3.4-1 育苗の様子。a) 塩水選、b) 催芽、c) 苗床、d) 田植え。

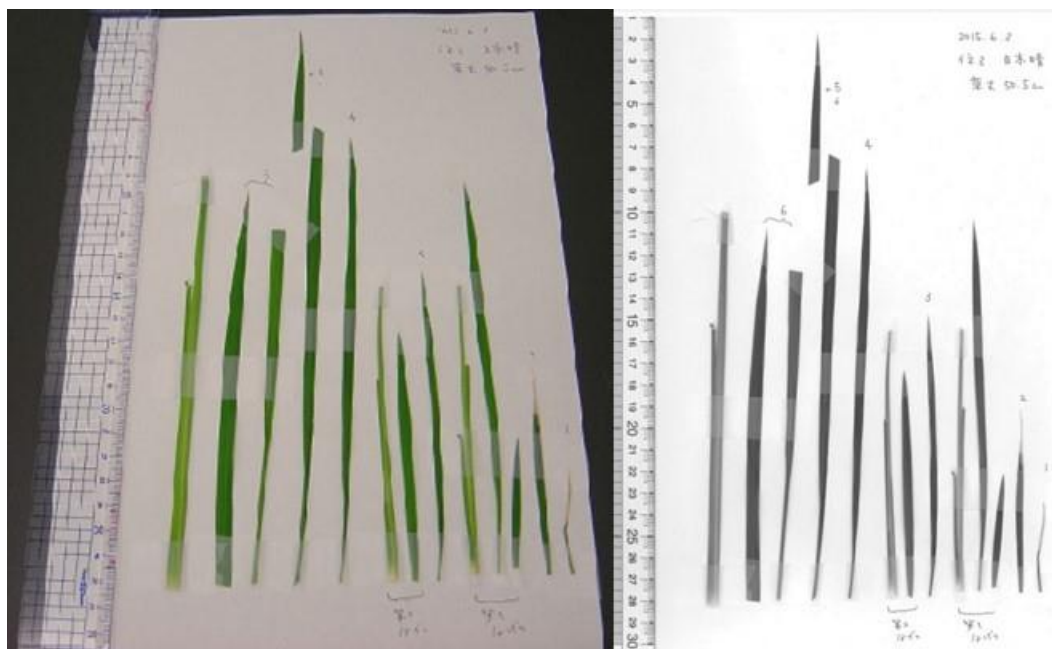


図 3.4-2 LAI の測定

左) 採取した葉と茎を用紙に貼付し、右) コピー機で画像化した。

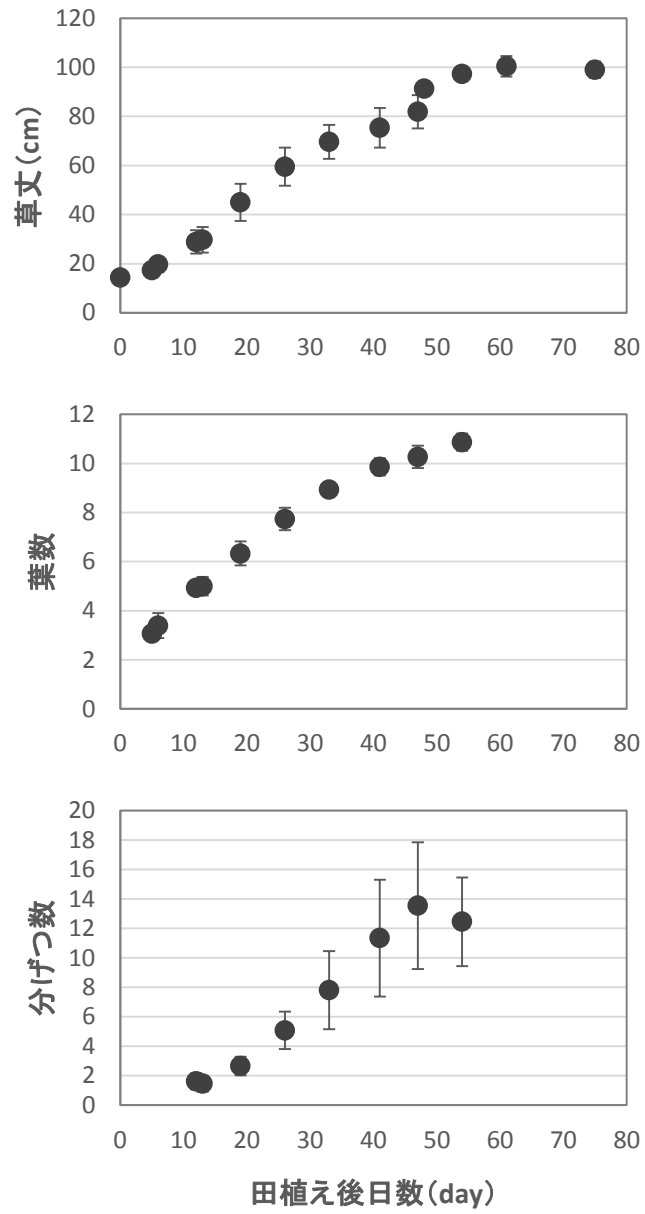


図 3.4-3 水稻の草丈、葉数、および分けっ数の推移
エラーバーは標準偏差。

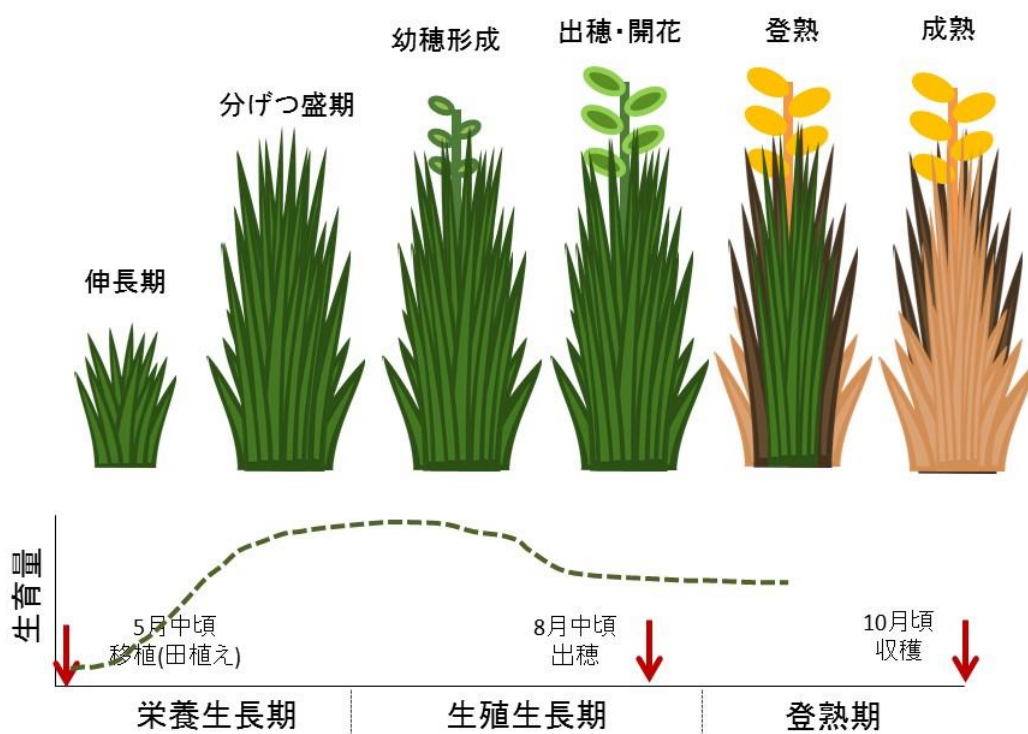


図 3.4-4 イネの生長段階

赤い矢印は、本研究で5月に移植したイネの実際の時期を示す。

参考：農研機構 水稻の主要生育ステージとその特徴

<http://www.reigai.affrc.go.jp/zusetu/ricegrowth.html> (2016.1.7 accessed)

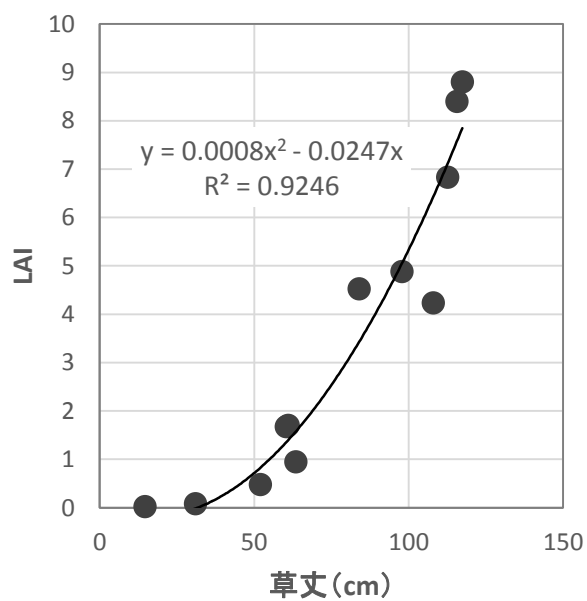


図 3.4-5 LAI と草丈の関係



図 3.4-6 水田模擬群落

左) 実験 1 と右) 実験 2 で用いた模擬水田

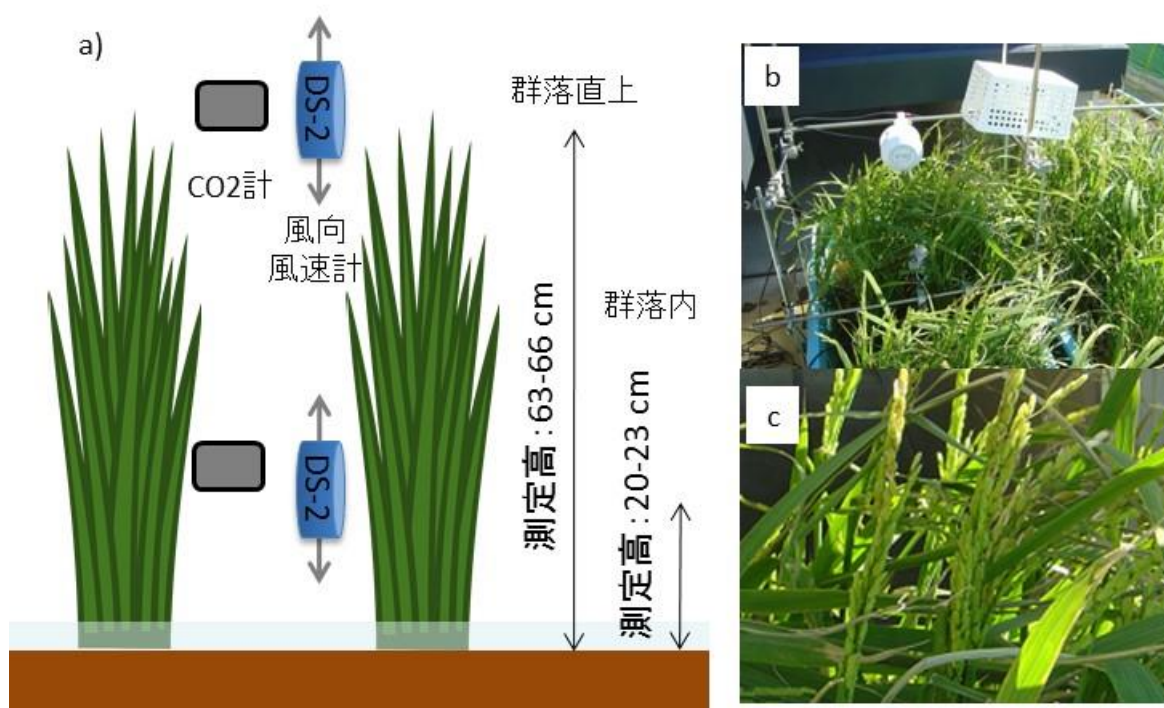


図 3.4-7 模擬水田試験 1

a) 水稻群落の様子と機器の行き関係。b) 測定の様子と
c) 測定時のイネの穂の様子。出穂していることが確認できる。



図 3.4-8 微気象測定に用いた機器

左) 超音波式風向風速計 DS-2 と、右) CO₂ 測定器
DS-2 の赤い丸印内は北を意味する「N」のマーク

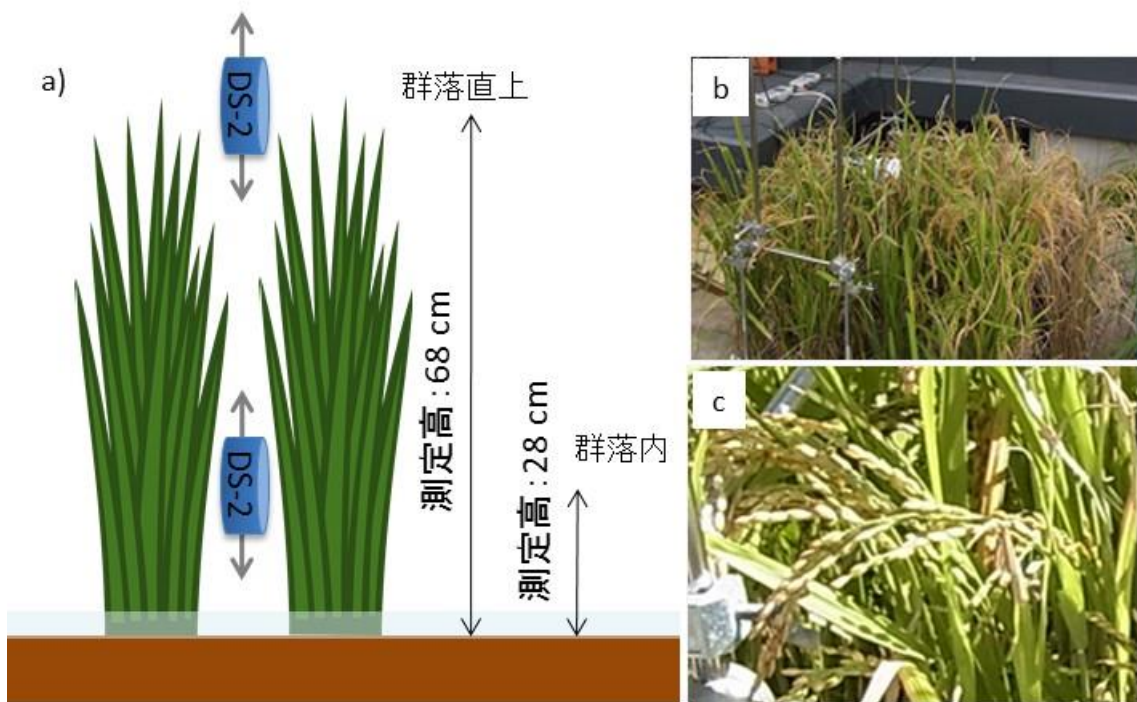


図 3.4-9 模擬水田試験 2

a) 水稻群落の様子と機器の行き関係。b) 測定の様子と
c) 測定時のイネの穂の様子。

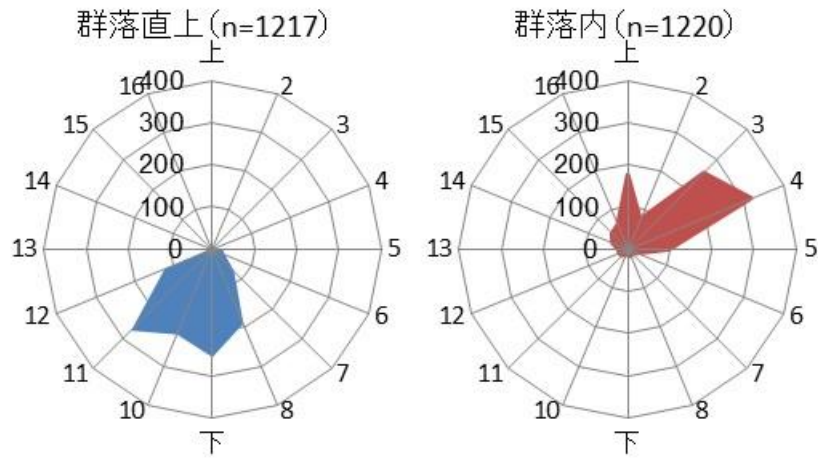


図 3.4-10 試験 1 における鉛直方向の風の頻度

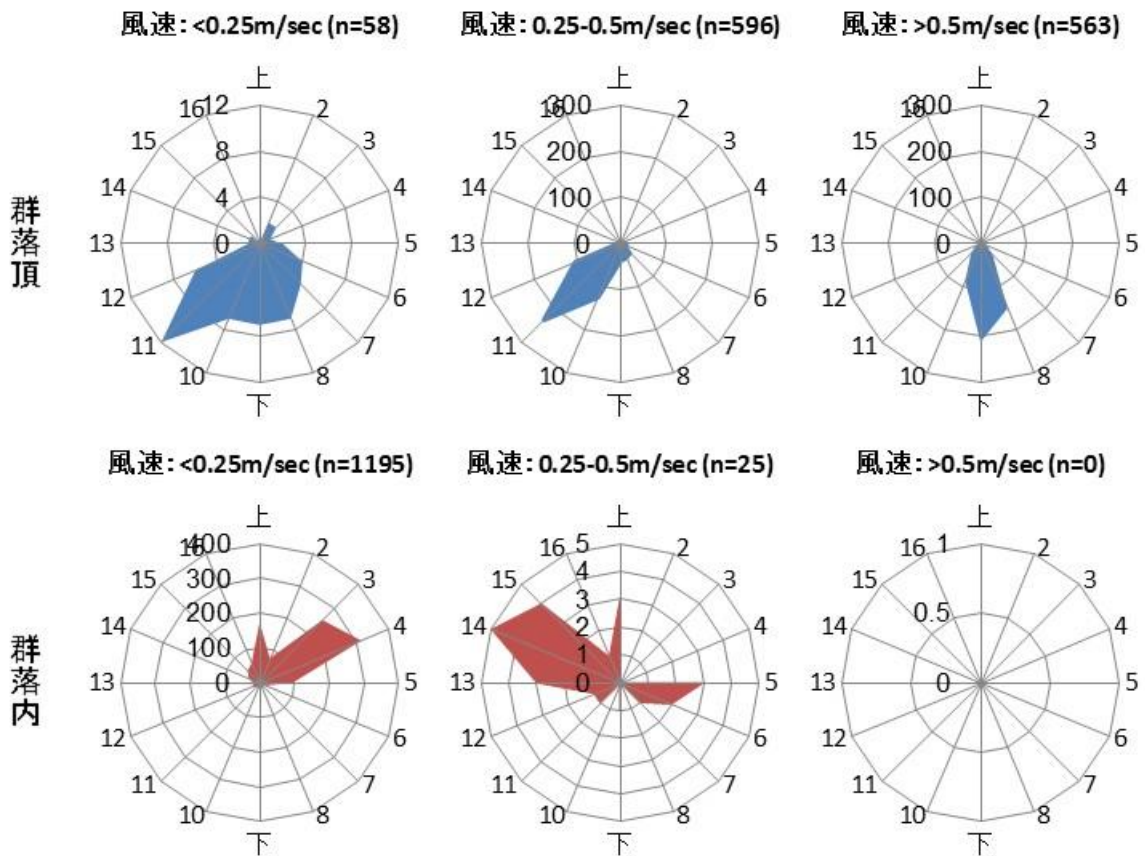


図 3.4-11 試験 1 における風速の別鉛直風向頻度

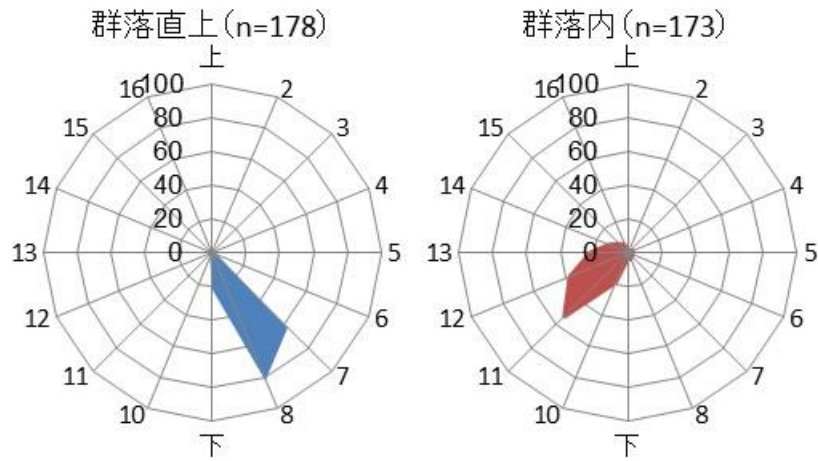


図 3.4-12 試験 2 における鉛直方向の風の頻度

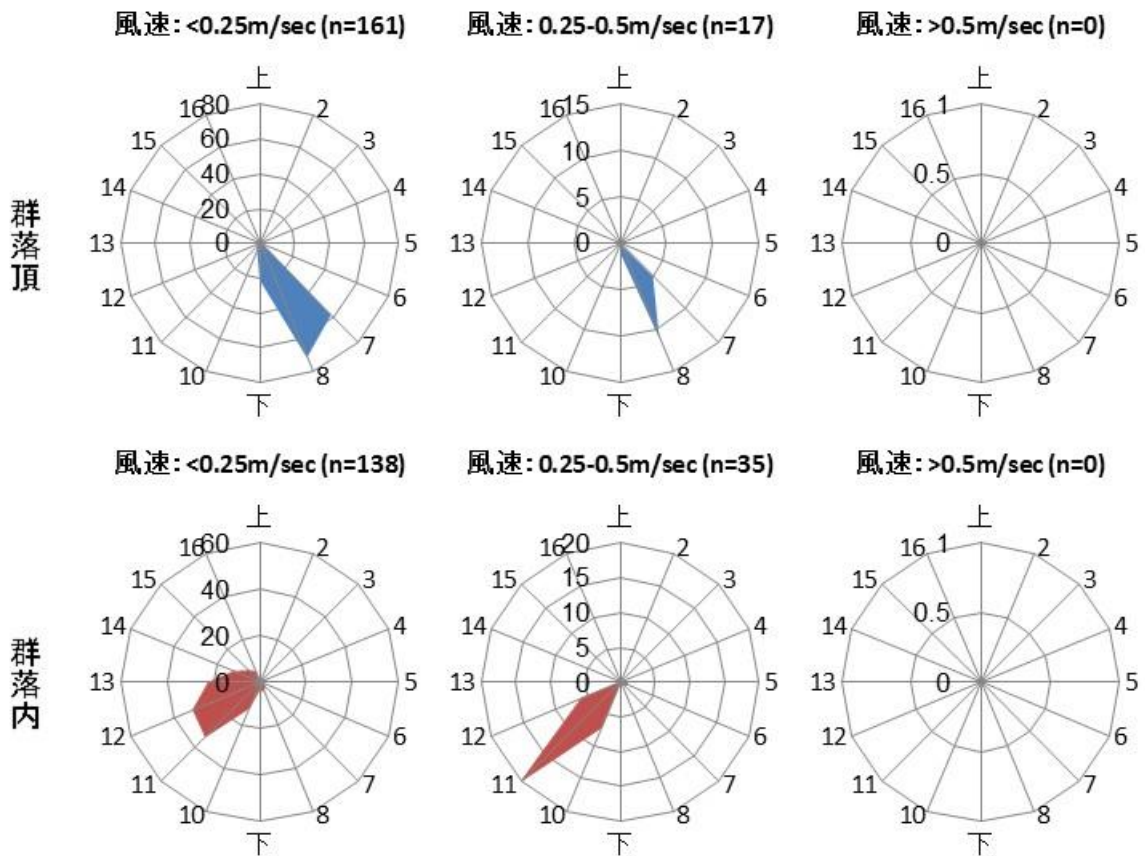


図 3.4-13 試験 2 における風速の別鉛直風向頻度

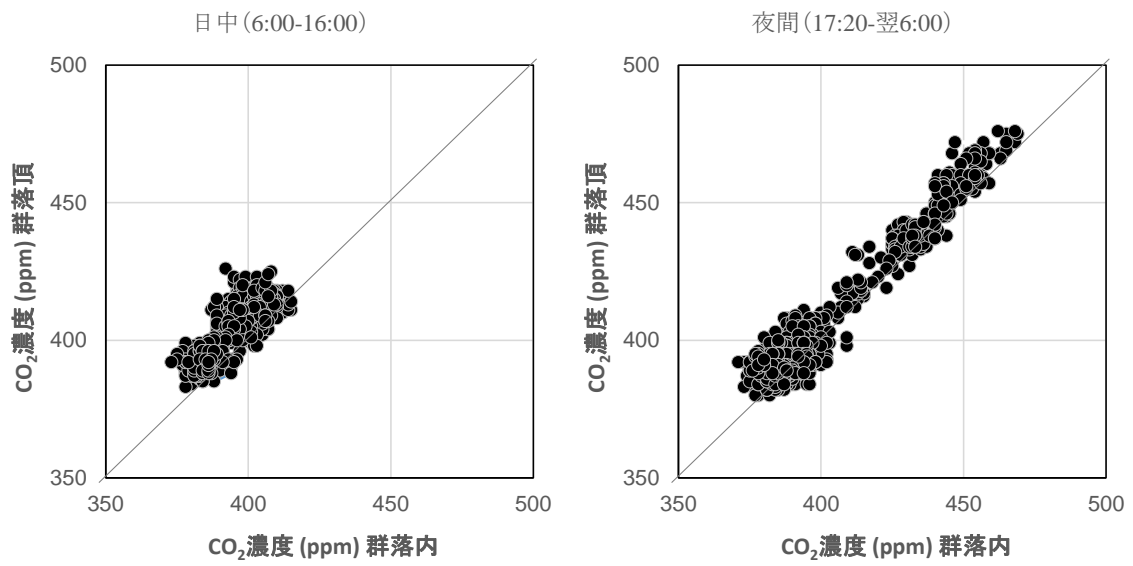


図 3.4-14 日中と夜間における群落内外の CO₂ 濃度の関係



図 3.4-15 イネ科草本植物の群落

左) 低い群落と、右) 高い群落。



図 3.4-16 イネ科草本植物の群落の LAI 測定準備
 左) 低い群落と、右) 高い群落から 25 cm × 25 cm の区画を刈取った。

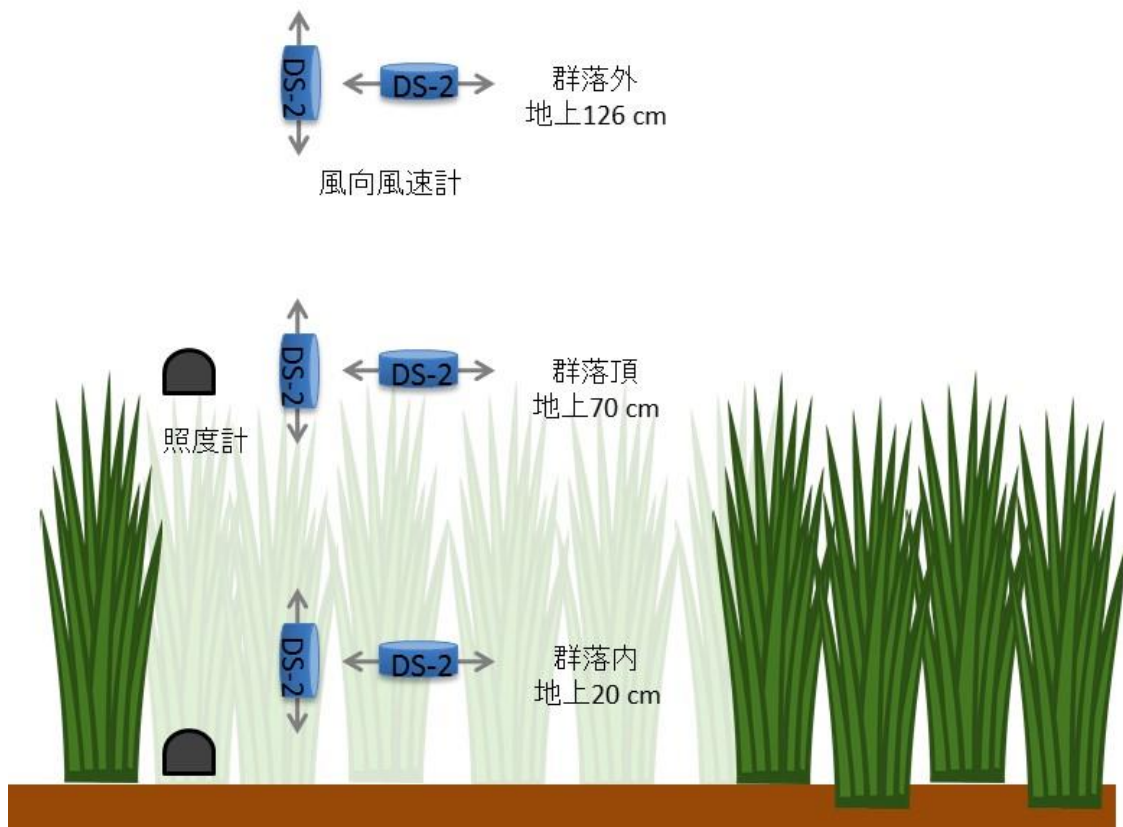


図 3.4-17 イネ科草本植物の高群落での微気象観測の概略と様子

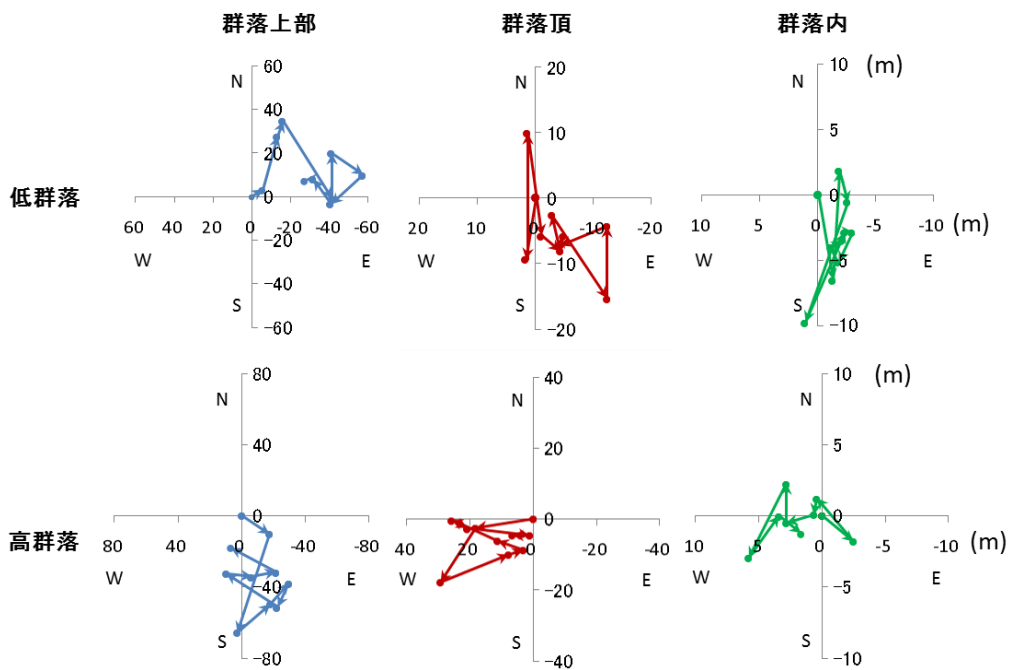


図 3.4-18 イネ科草本植物の水平方向における 10 分間の風の移動距離。
軸の横のアルファベットは方位を意味する。

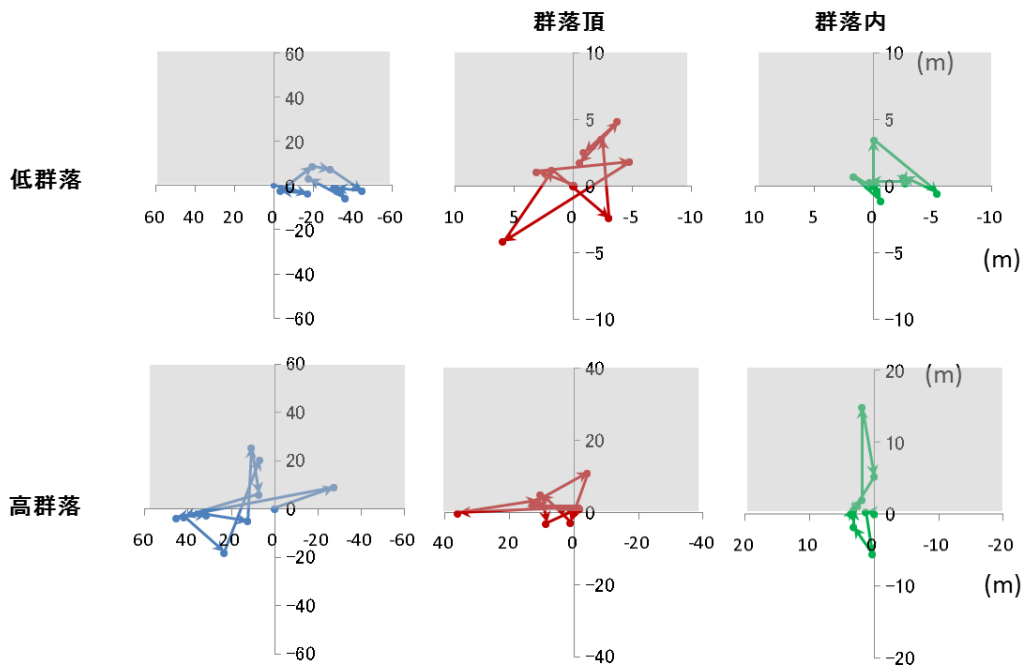


図 3.4-19 イネ科草本植物の鉛直方向における 10 分間の風の移動距離。
灰色の部分 は水平面よりも上側を意味する。

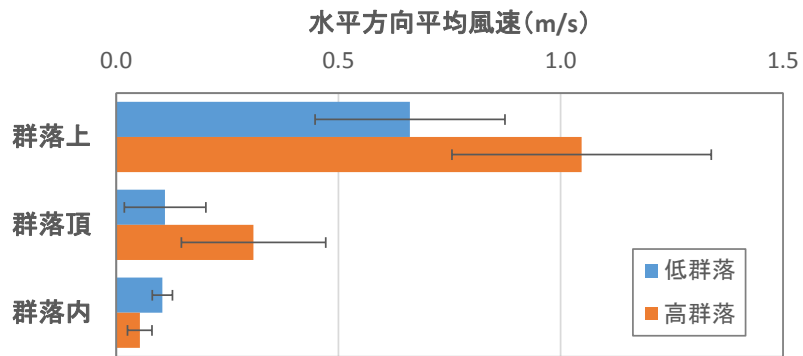


図 3.4-20 イネ科草本植物の各測定場所での水平方向の平均風速 (n=10)

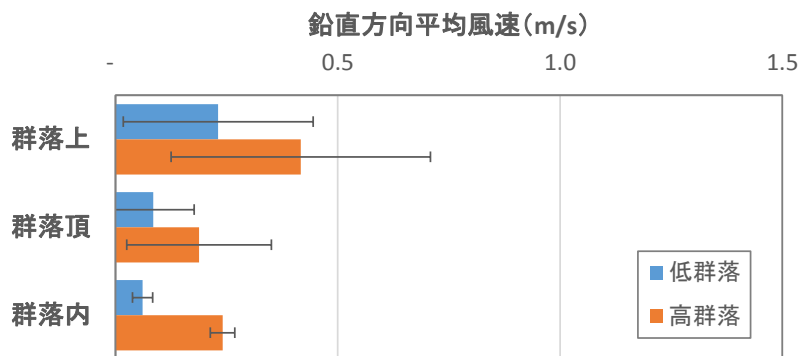


図 3.4-21 イネ科草本植物の各測定場所での鉛直方向の平均風速 (n=10)



図 3.4-22 ドライアイス試験の様子

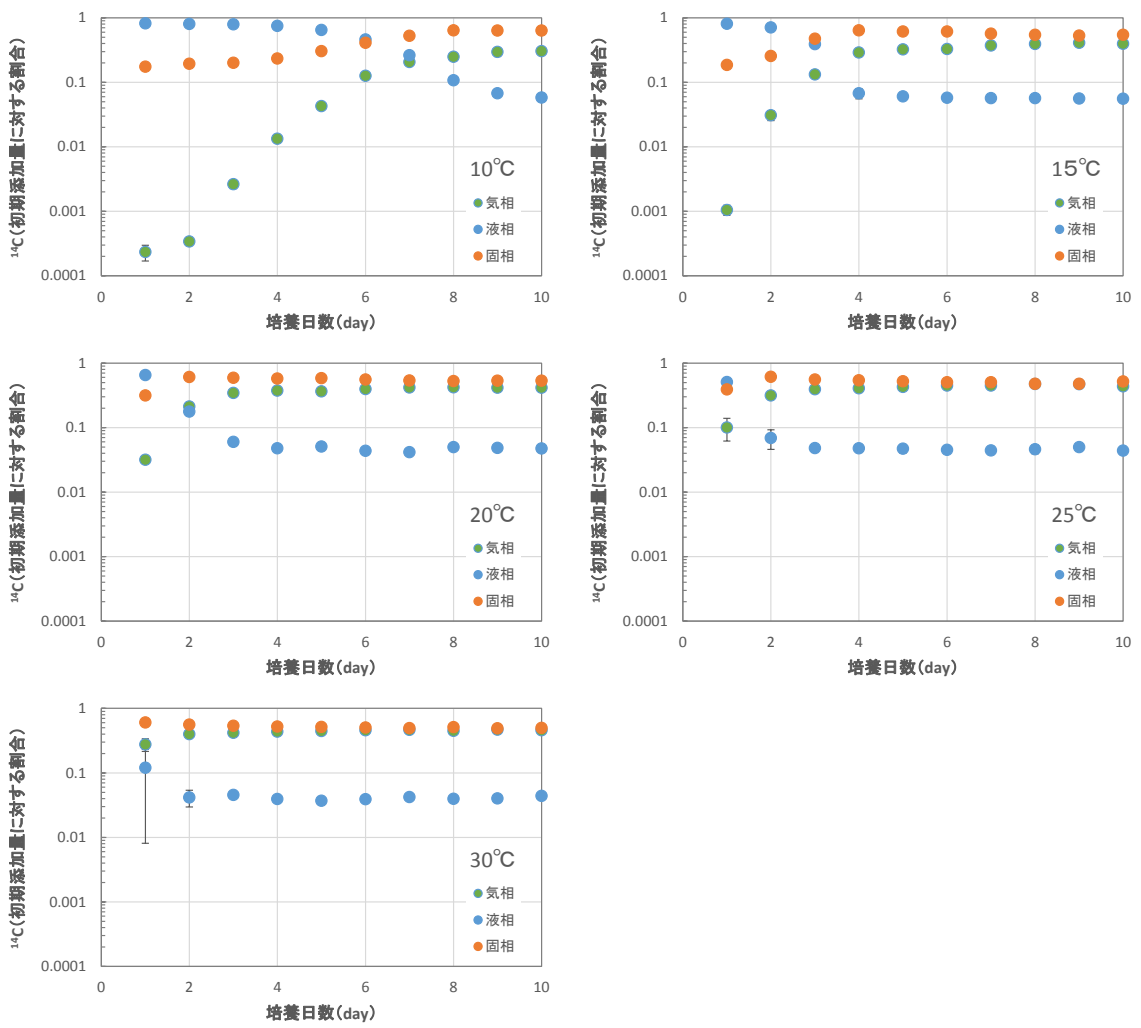


図 3.5-2 10日間連続培養実験の各相における ^{14}C 濃度の測定結果
エラーバーは標準偏差 (n=3)

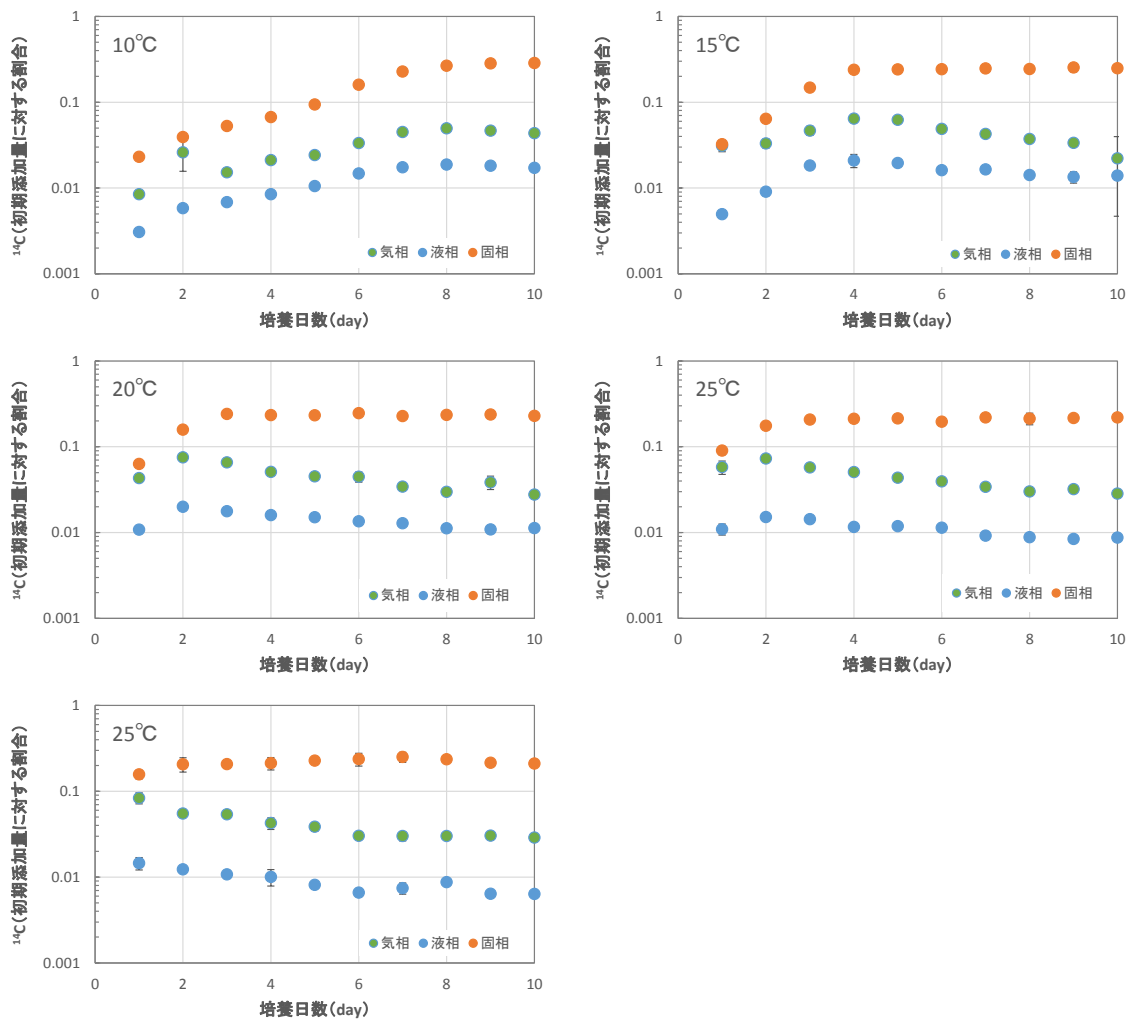


図 3.5-3 初期培養から 7 日培養後の各相における ^{14}C 濃度の測定結果
エラーバーは標準偏差 (n=3)

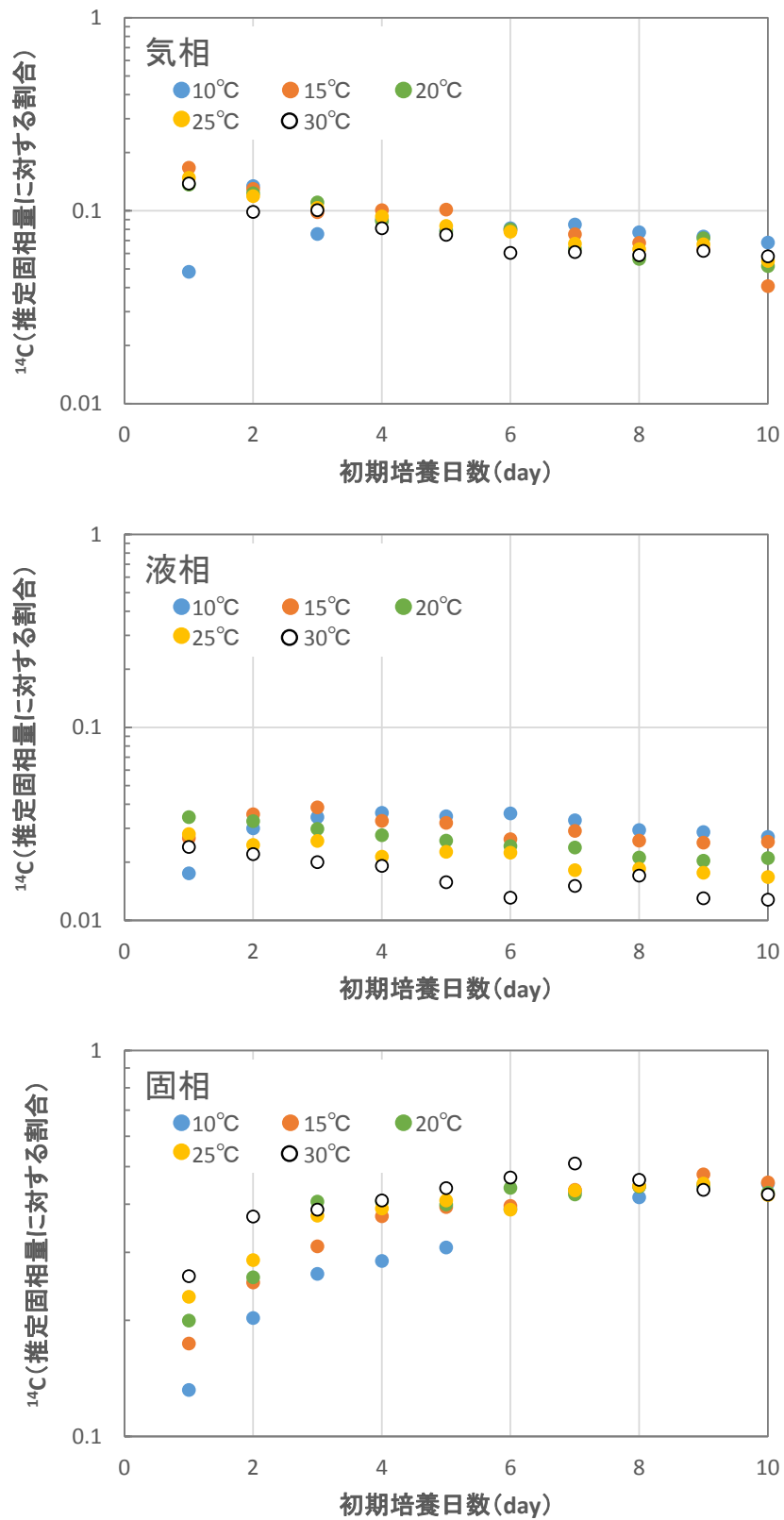


図 3.5-4 初期培養から 7 日培養後の各相における ^{14}C 濃度の測定結果 (全培養温度)

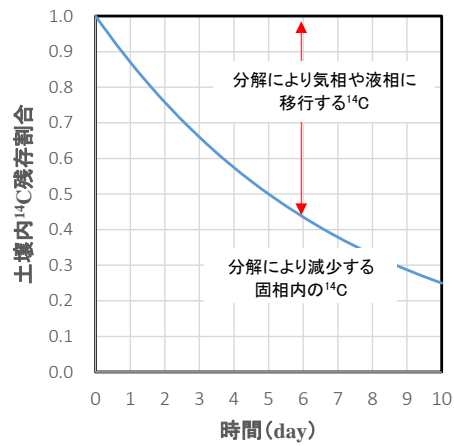


図 3.5-5 土壌内微生物による ^{14}C 分解の濃度変化イメージ

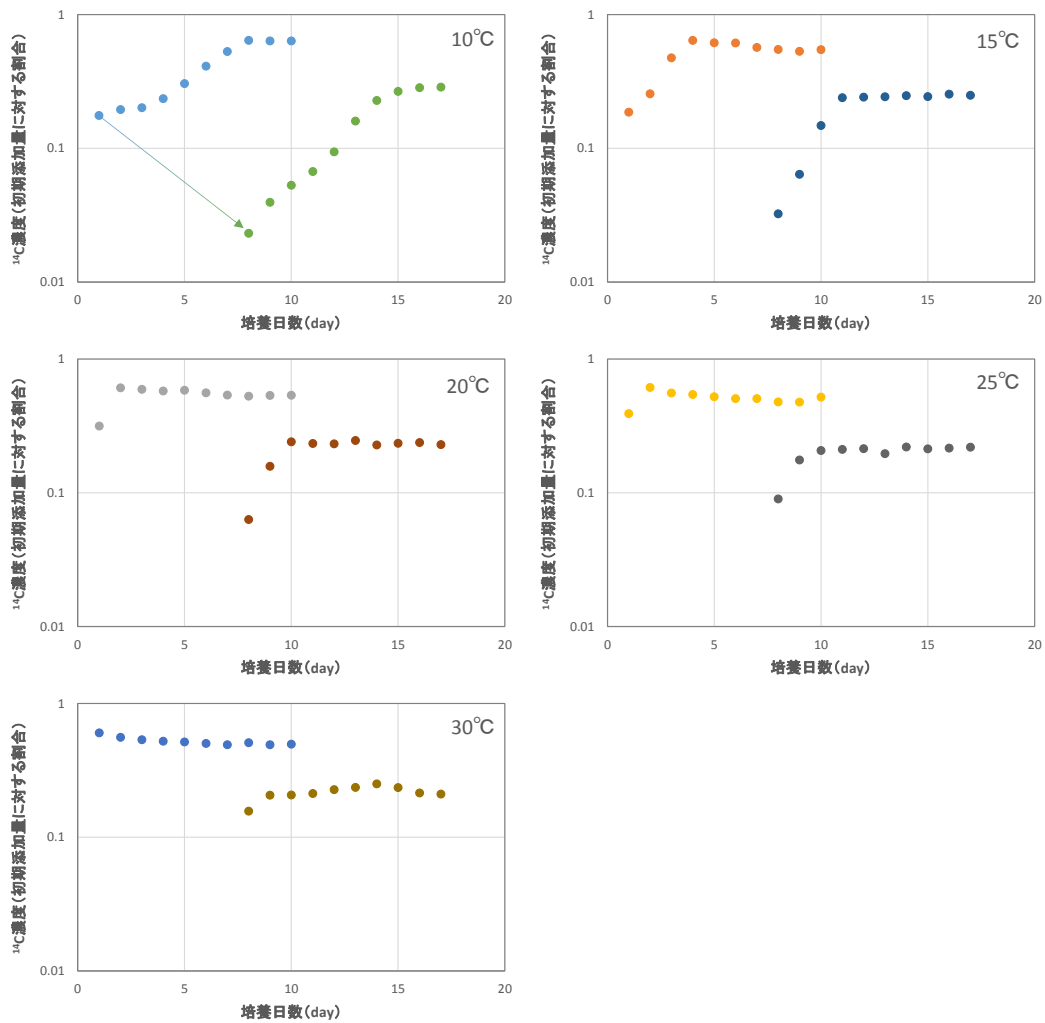


図 3.5-6 各培養温度における 7 日間培養後の ^{14}C 分解量

矢印は 10°C での初期培養後から 7 日後までに減少した ^{14}C 量の変化（傾き）を意味する。

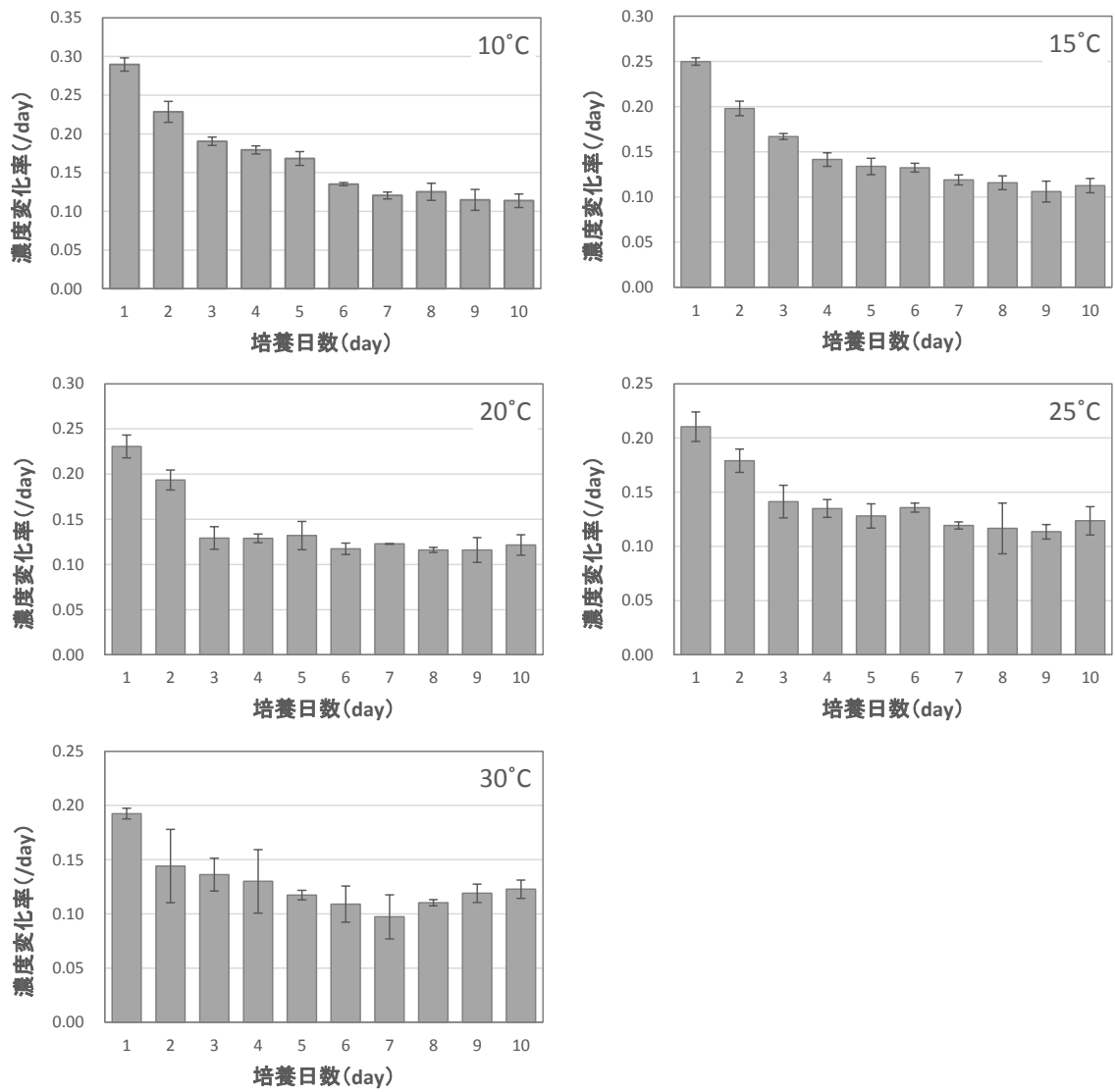


図 3.5-7 固相濃度から算出した各培養温度における固相における ^{14}C 分解速度
エラーバーは標準偏差 (n=3)

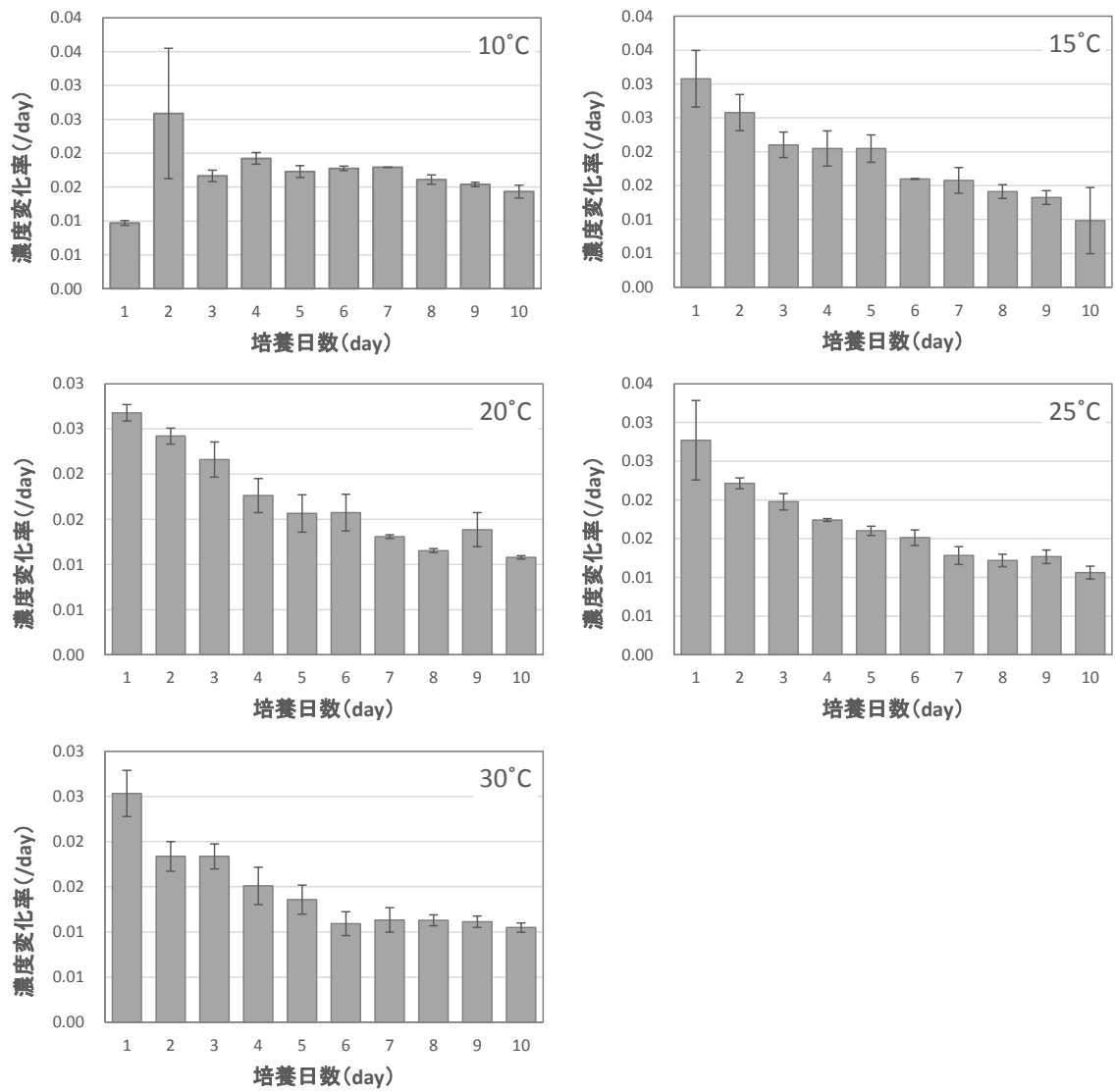


図 3.5-8 気相濃度と液相濃度から算出した各培養温度における固相における ^{14}C 分解速度

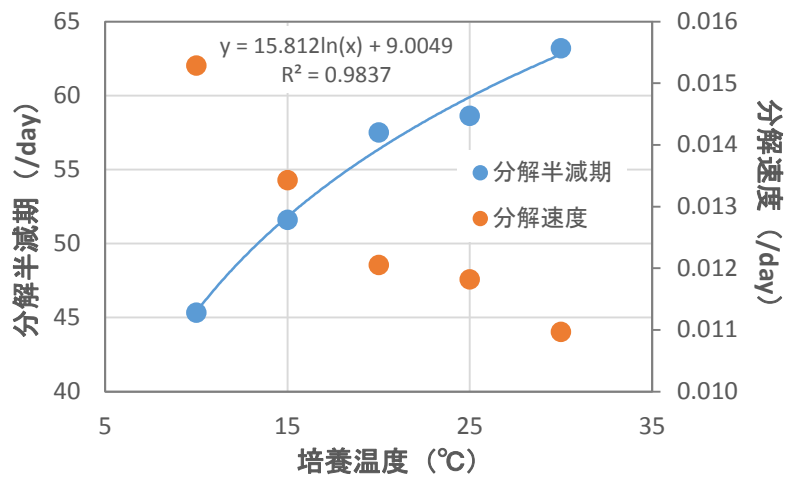


図 3.5-9 培養温度と分解半減期および分解速度との関係

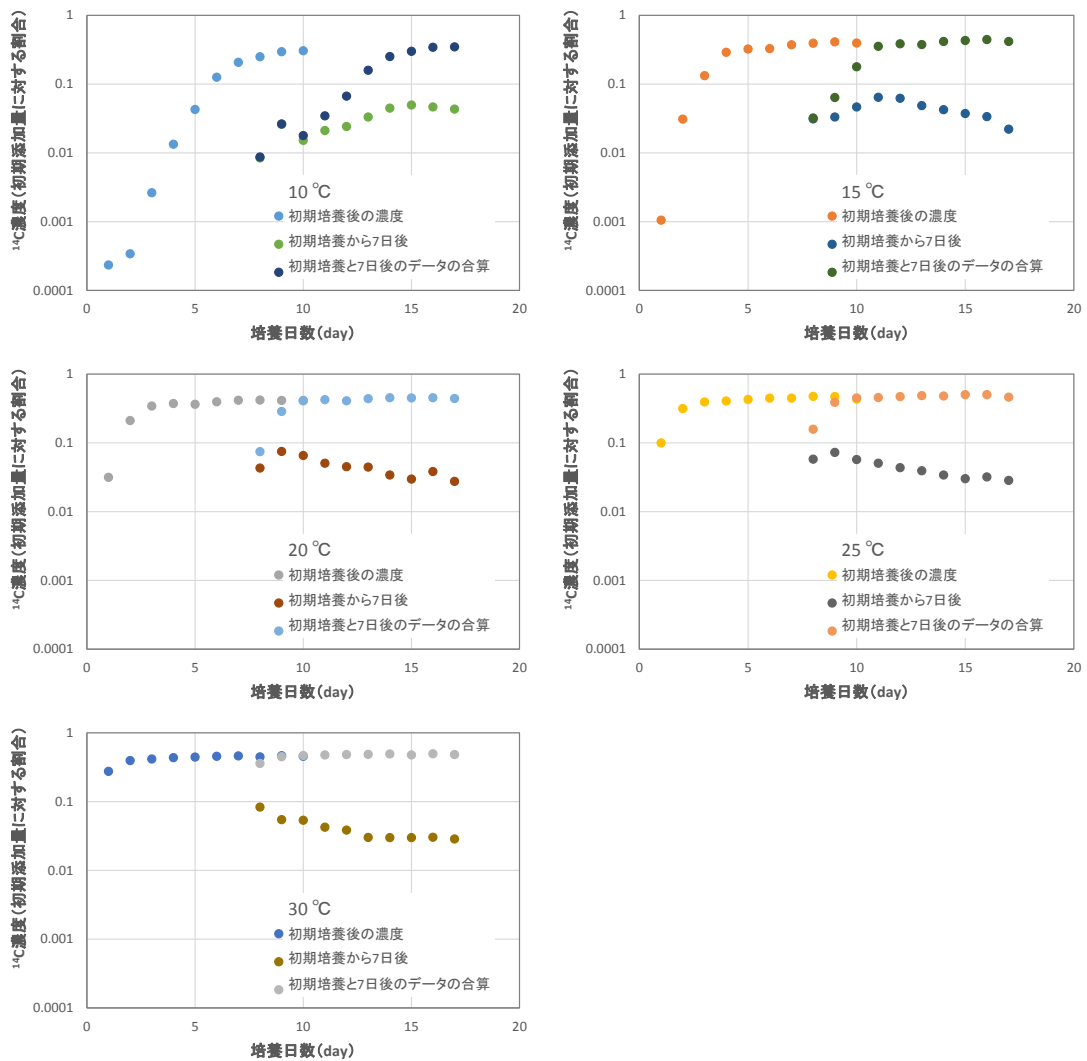


図 3.5-10 10日連続培養時の気相濃度と7日間培養時の気相濃度の関係

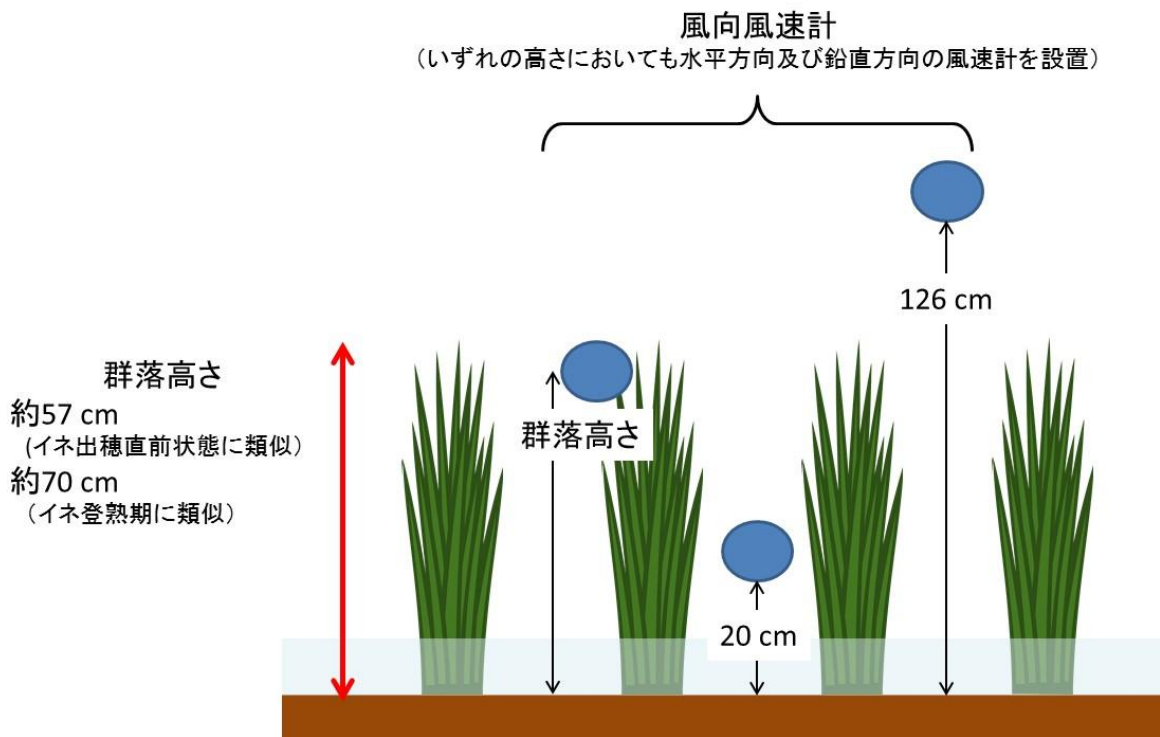


図 3.5-11 風速計設置位置のイメージ図

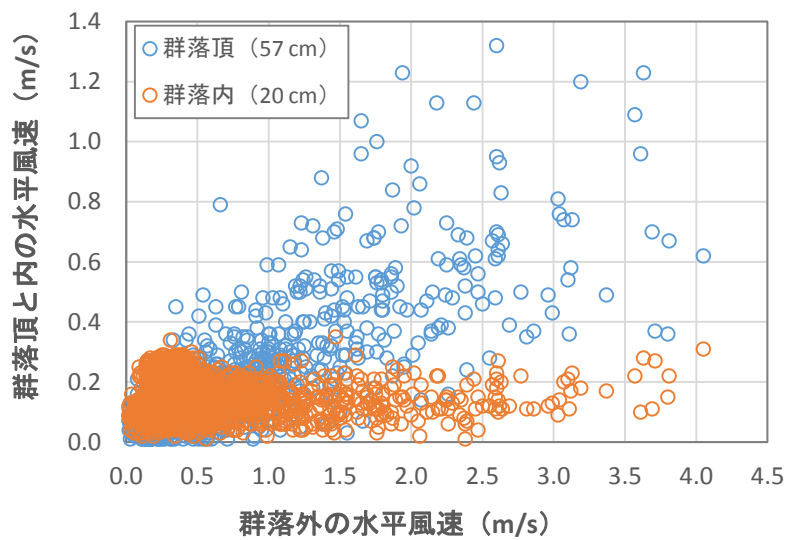


図 3.5-12 群落外水平風速に対する群落頂と内の水平風速 (57cm 群落)

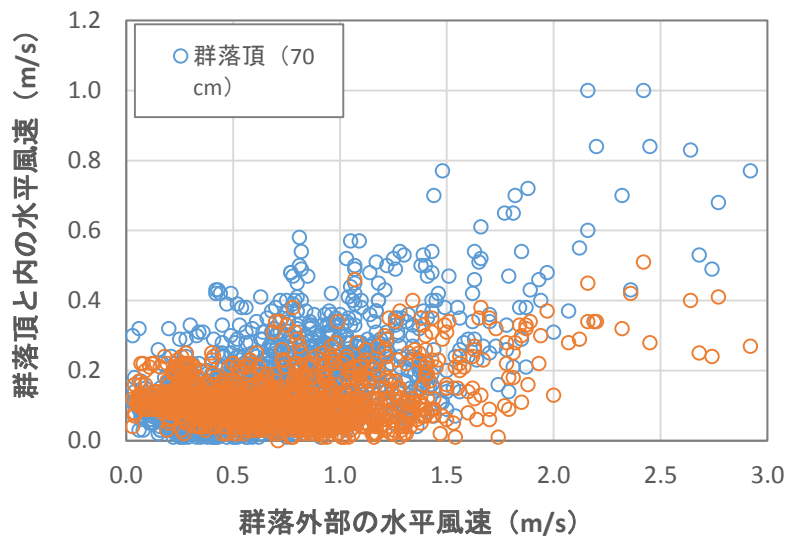


図 3.5-13 群落外水平風速に対する群落頂と内の水平風速 (70cm 群落)

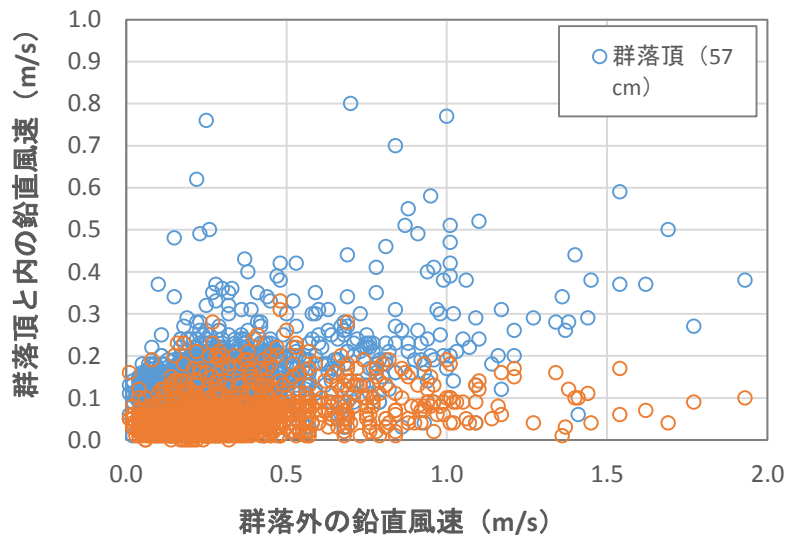


図 3.5-14 群落外鉛直風速に対する群落頂と内の鉛直風速 (57cm 群落)

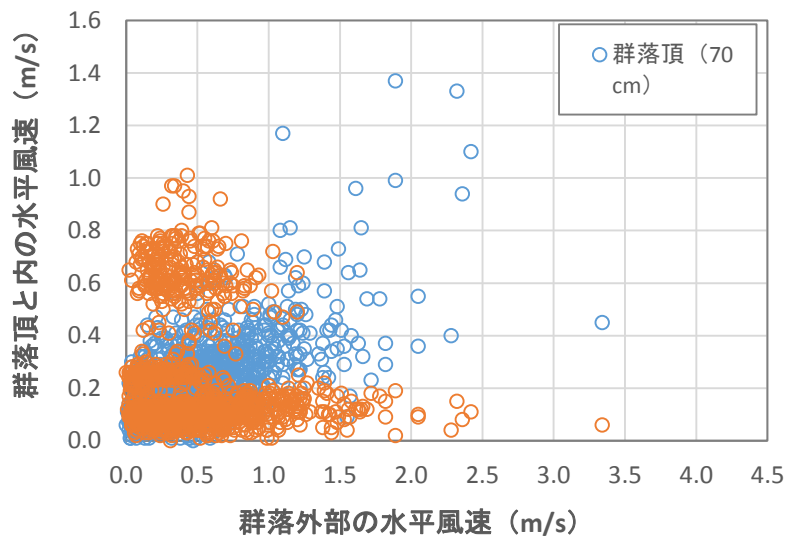


図 3.5-15 群落外鉛直風速に対する群落頂と内の鉛直風速 (70cm 群落)

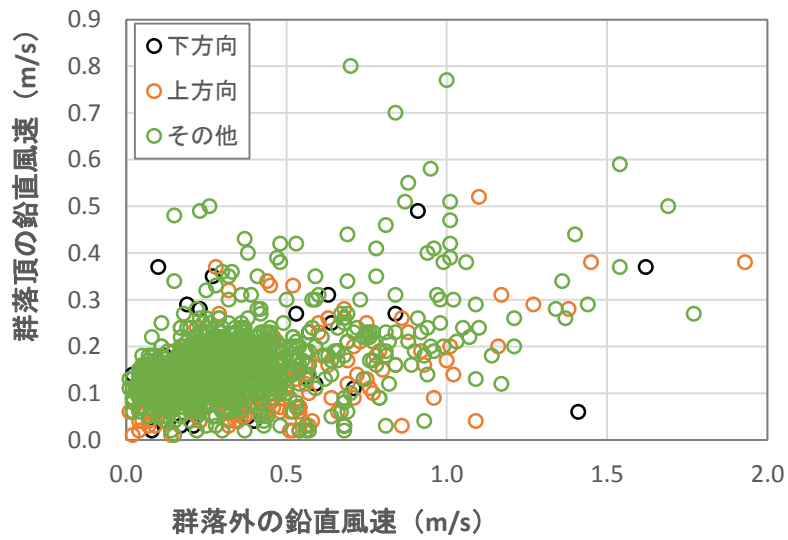


図 3.5-16 群落外鉛直風速に対する群落頂鉛直風速 (57cm 群落)

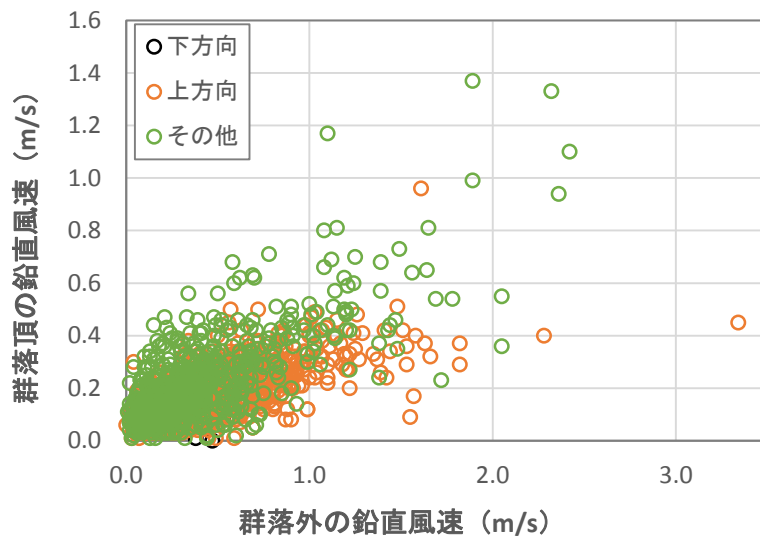


図 3.5-17 群落外鉛直風速に対する群落頂鉛直風速 (70cm 群落)

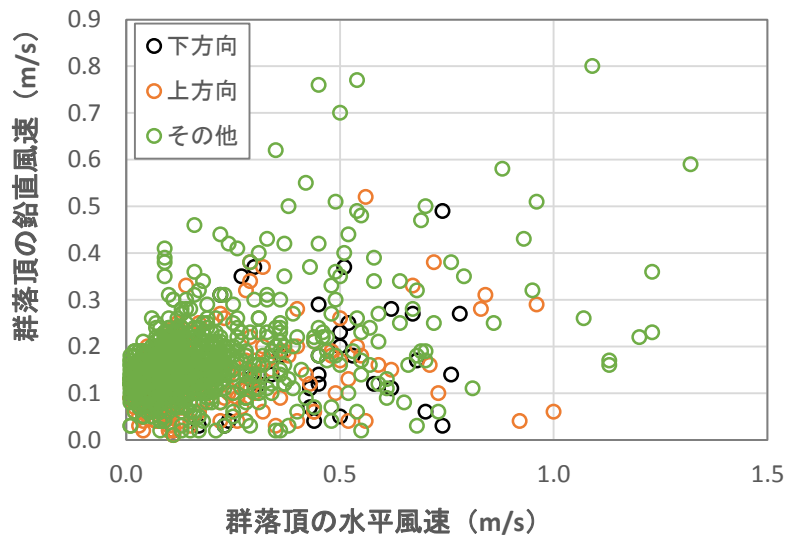


図 3.5-18 群落頂水平風速に対する群落頂鉛直風速 (57cm 群落)

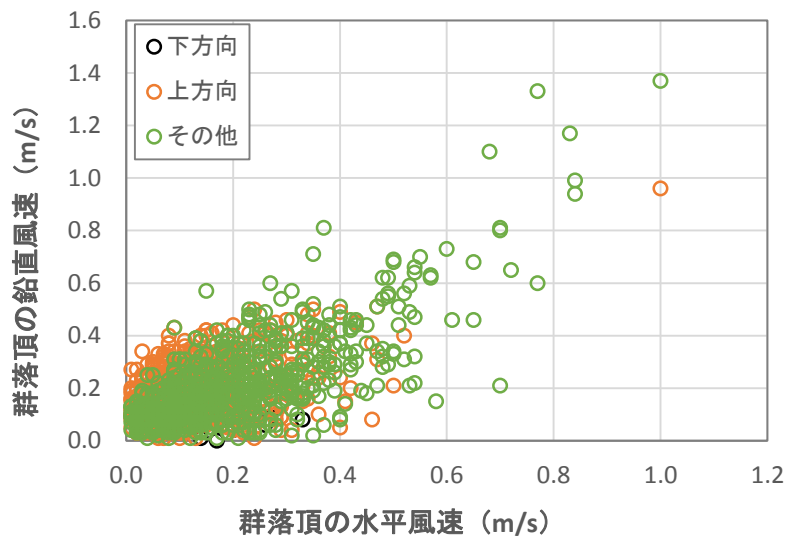


図 3.5-19 群落頂水平風速に対する群落頂鉛直風速 (70cm 群落)

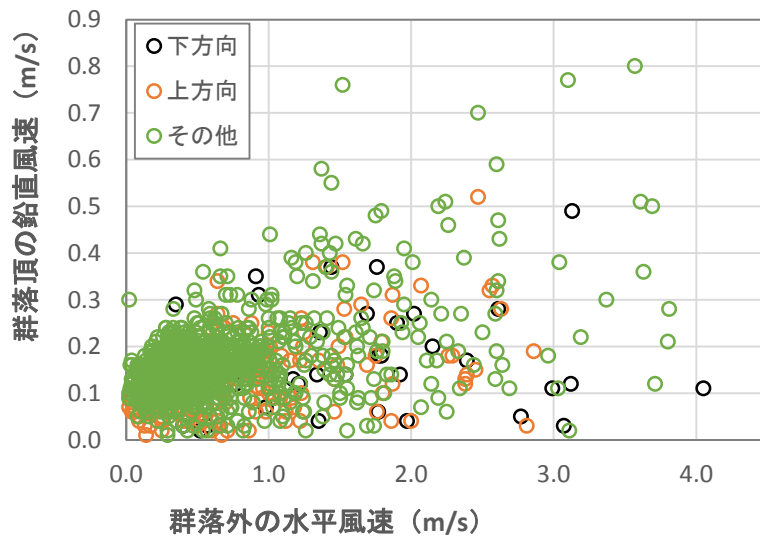


図 3.5-20 群落外水平風速に対する群落頂鉛直風速 (57cm 群落)

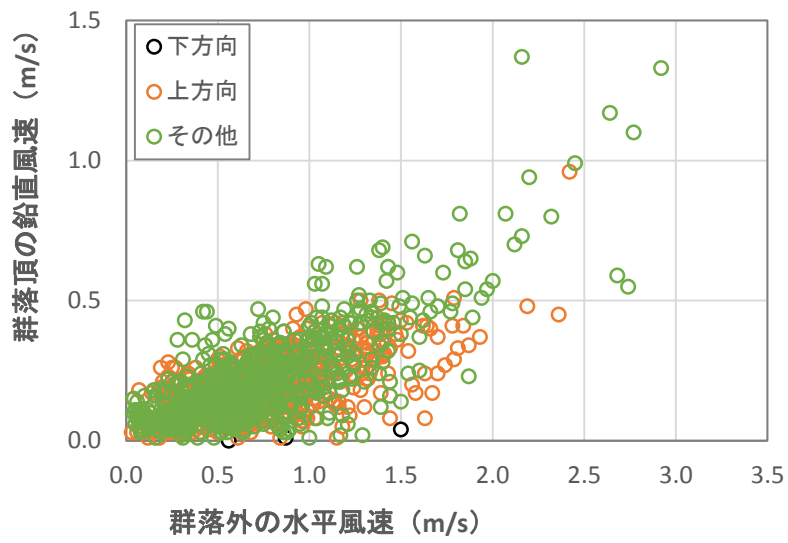


図 3.5-21 群落外水平風速に対する群落頂鉛直風速（70cm 群落）

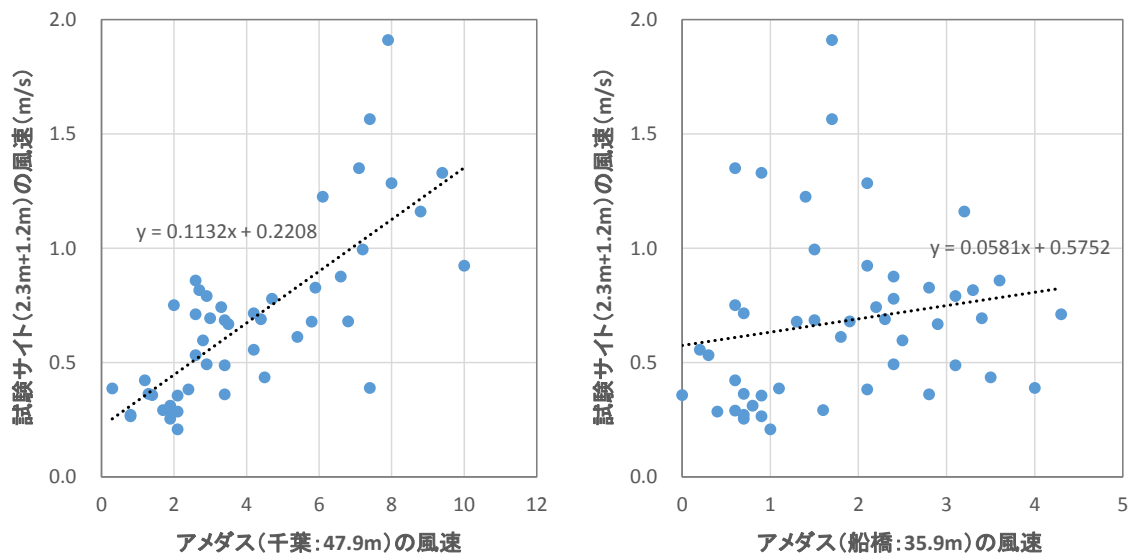


図 3.5-22 群落上部の水平方向風速とアメダス風速データの関係

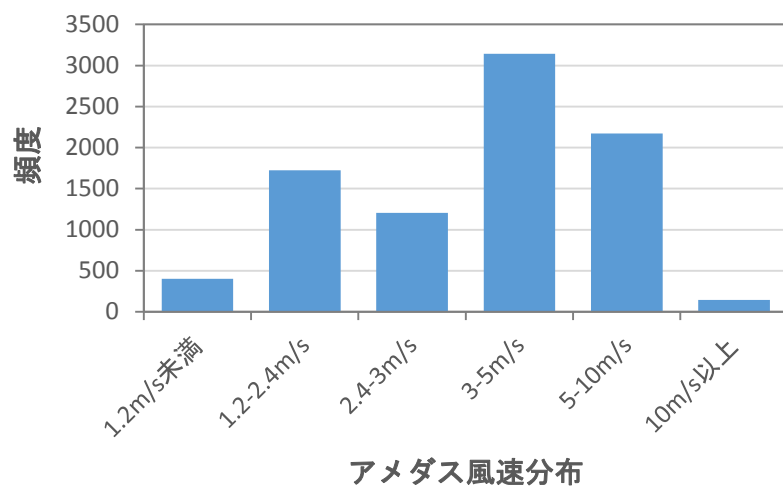


図 3.5-23 2014 年と 2015 年の 4 月 1 日～9 月 30 日におけるアメダス（千葉観測所）風速データの頻度分布

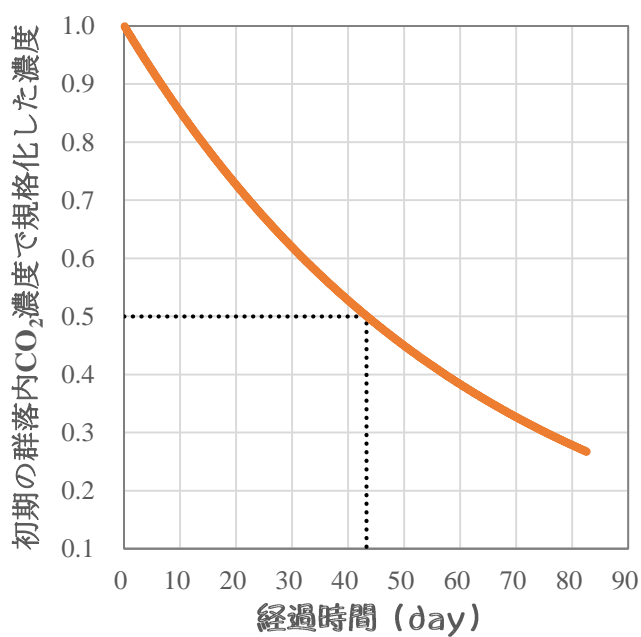


図 3.5-24 簡易計算による環境大気⇄近傍大気の移行半減期結果

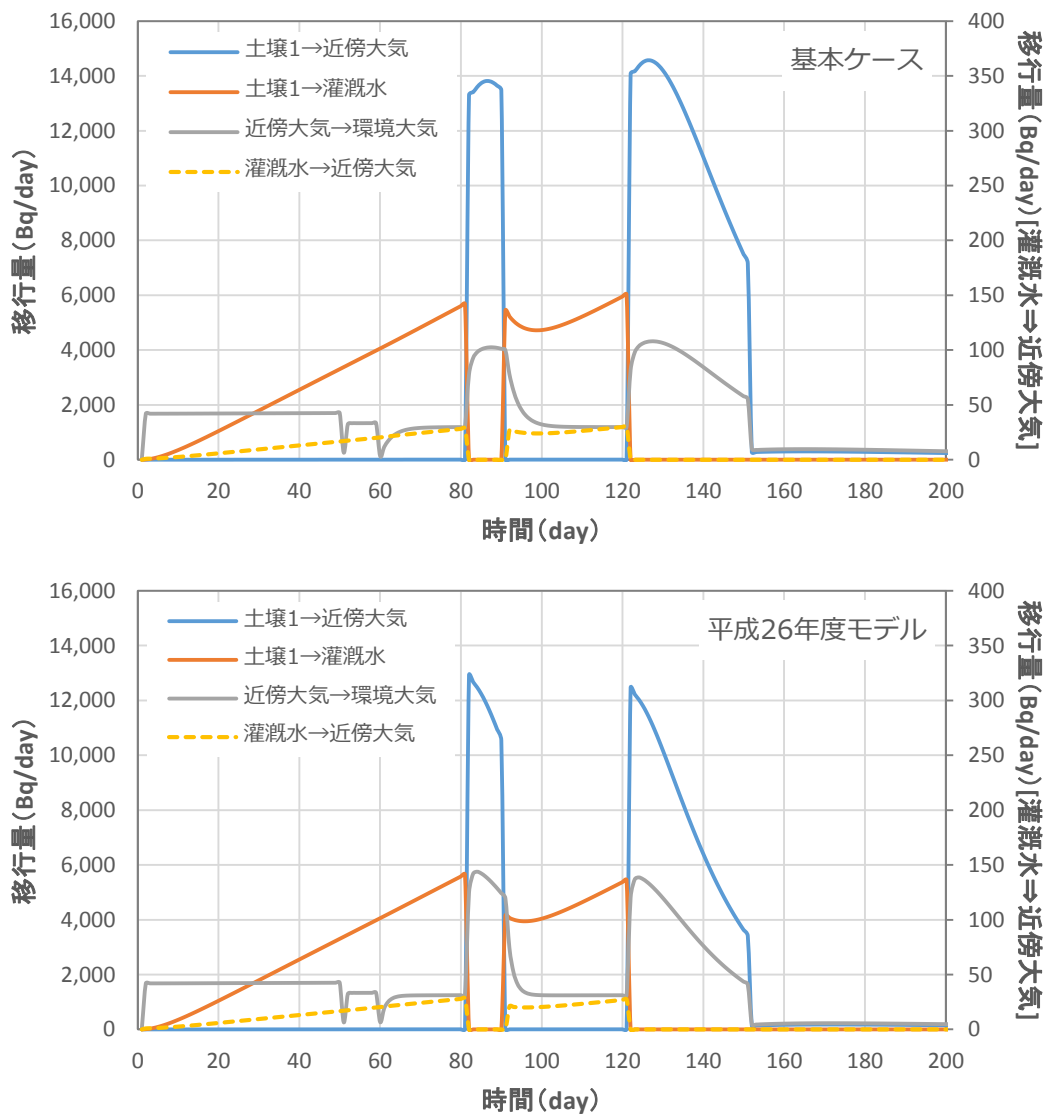


図 3.5-25 基本解析における環境コンパートメント間の ^{14}C 移行量変化
(上図；本年度モデル、下図；昨年度モデル)

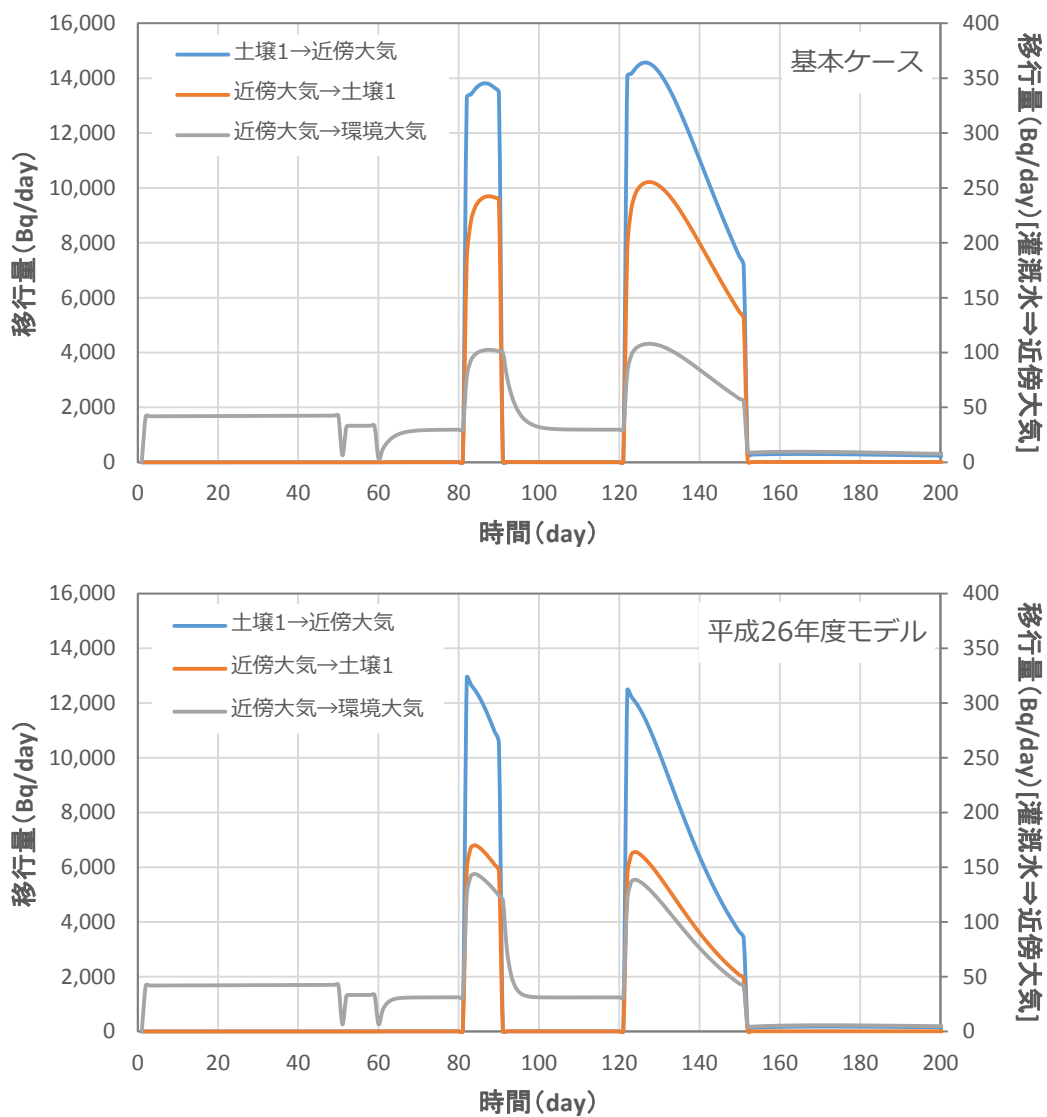


図 3.5-26 基本解析における近傍大気—土壌 1 間の ^{14}C 移行量変化
(上図 ; 本年度モデル、下図 ; 昨年度モデル)

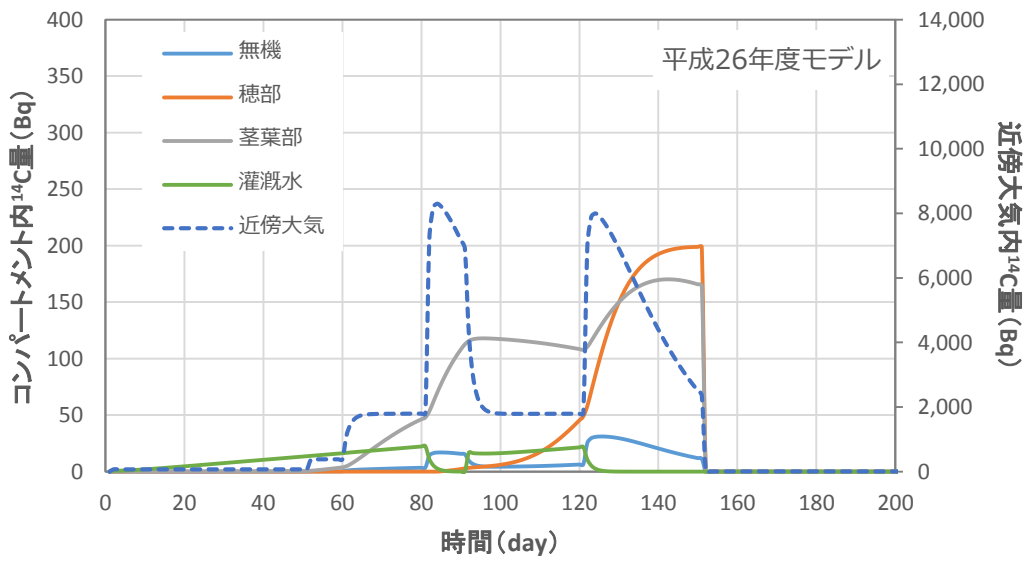
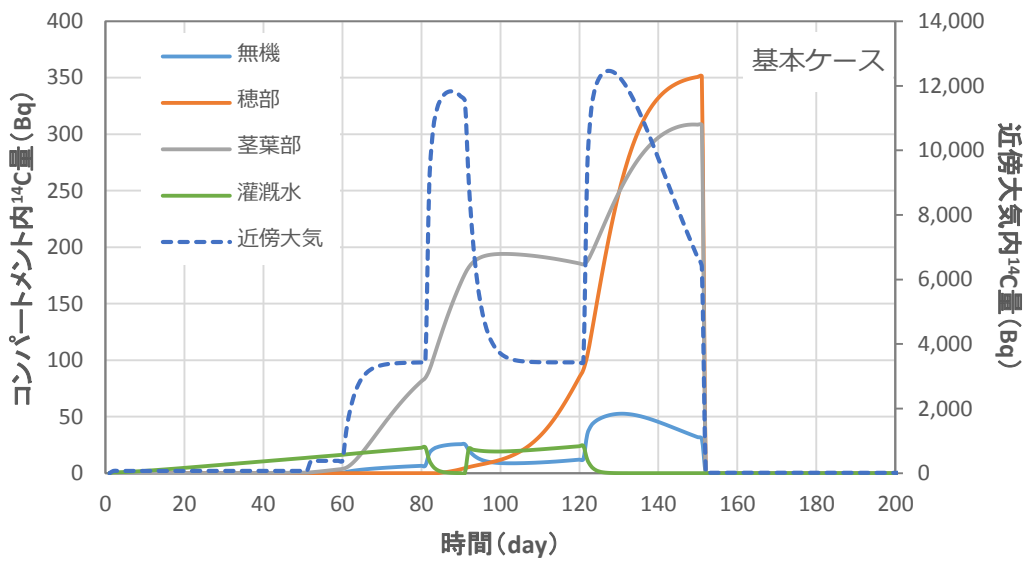


図 3.5-27 基本解析におけるコンパートメント内 ^{14}C 存在量
(上図；本年度モデル、下図；昨年度モデル)

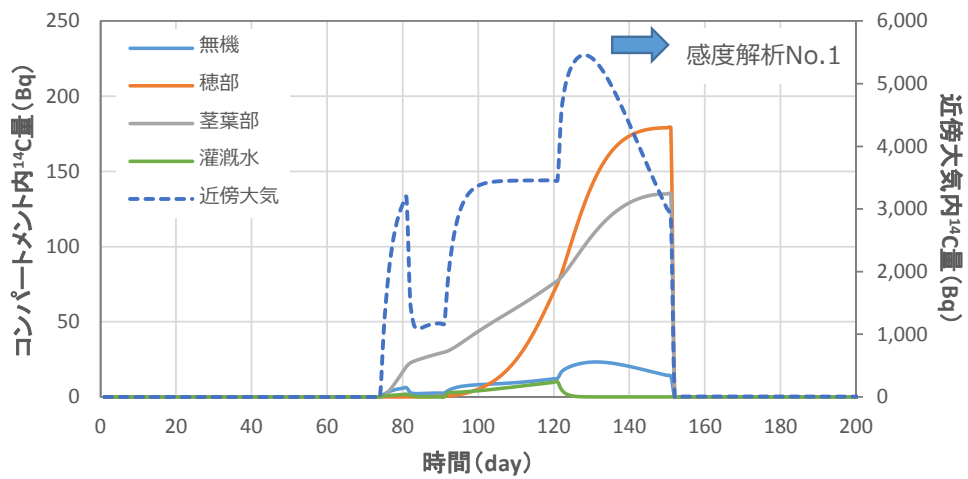
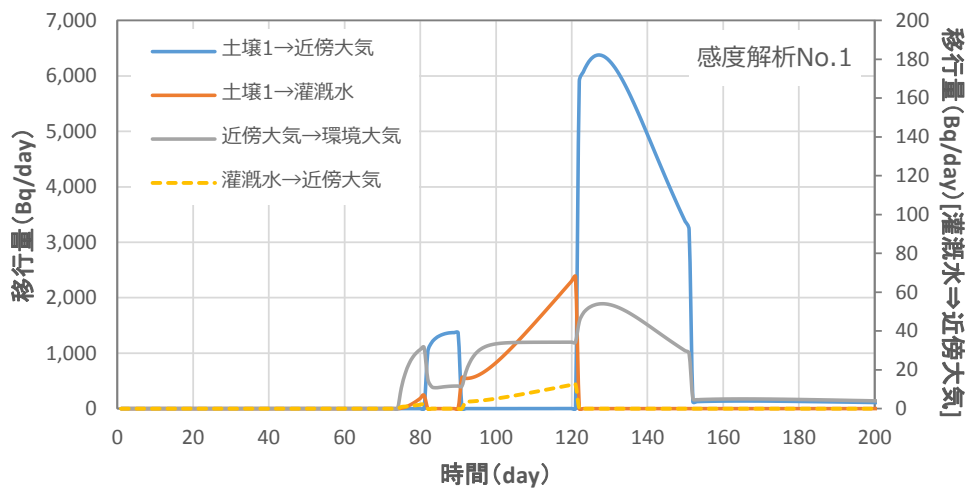


図 3.5-28 感度解析 No.1 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

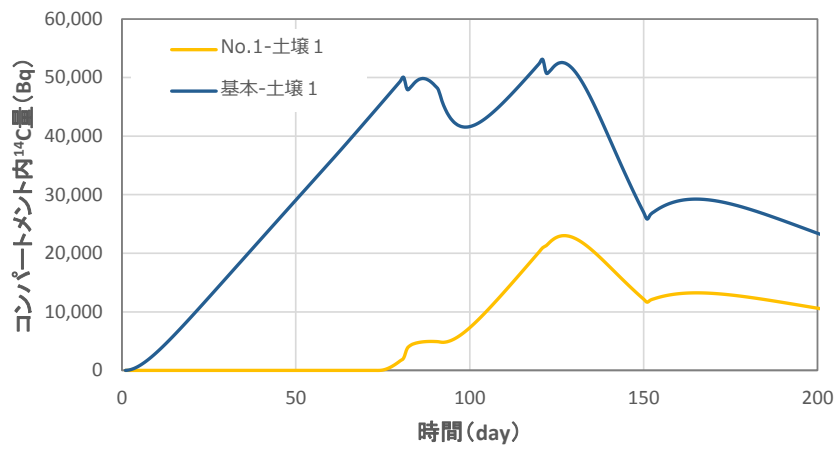


図 3.5-29 基本解析とケース No.1 における土壌 1 コンパートメント内 ^{14}C 存在量の比較

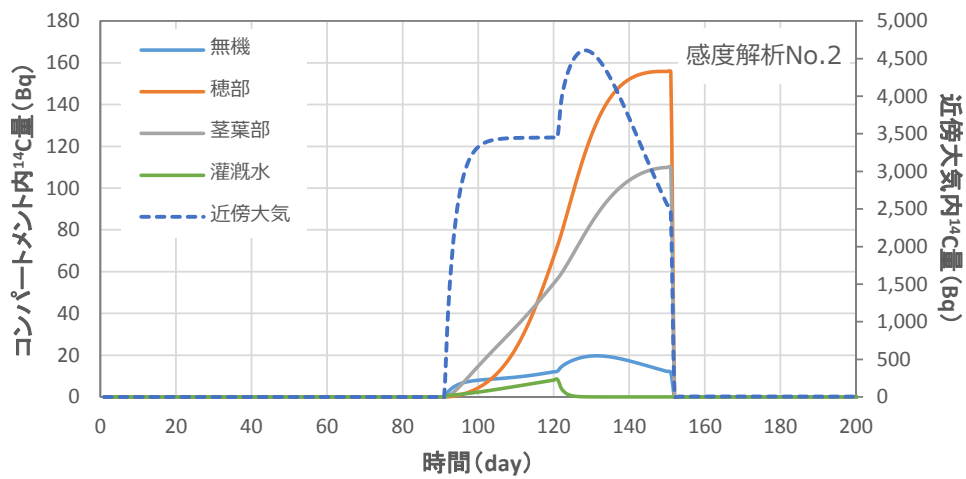
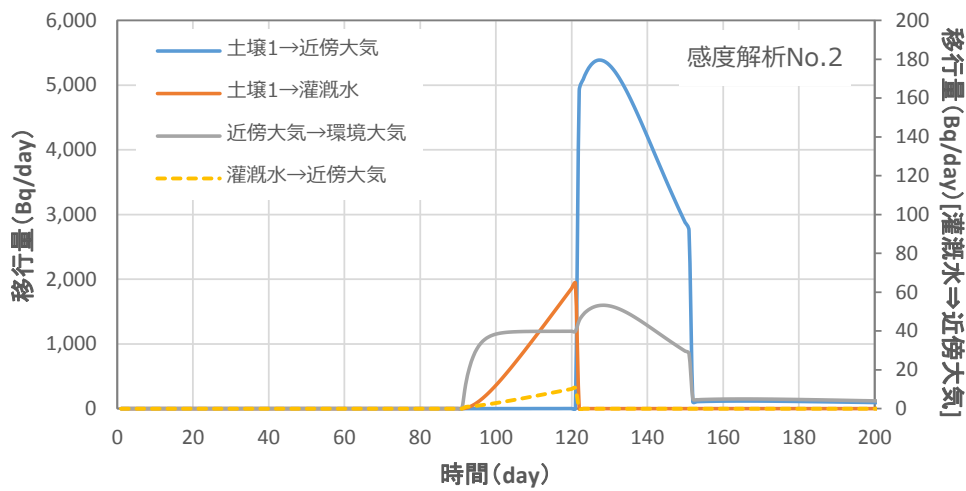


図 3.5-30 感度解析 No.2 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

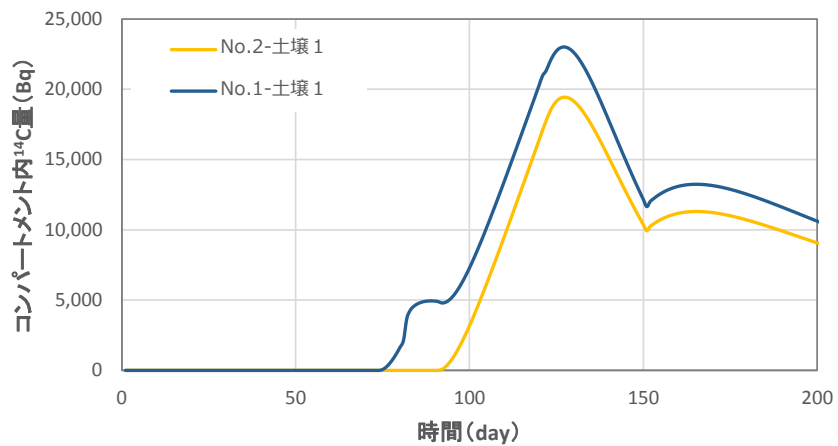


図 3.5-31 ケース No.1 とケース No.2 における土壌 1 コンパートメント内 ^{14}C 存在量の比較

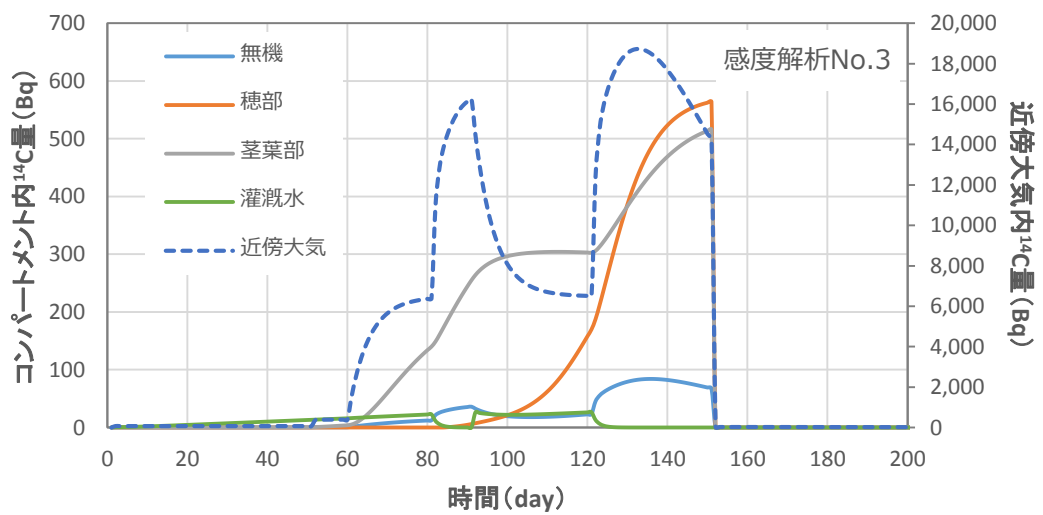
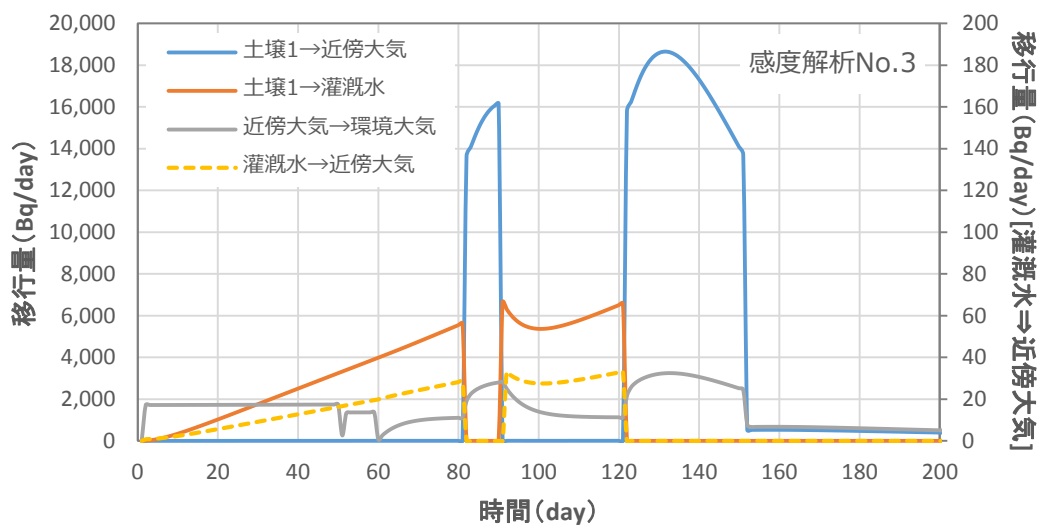


図 3.5-32 感度解析 No.3 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

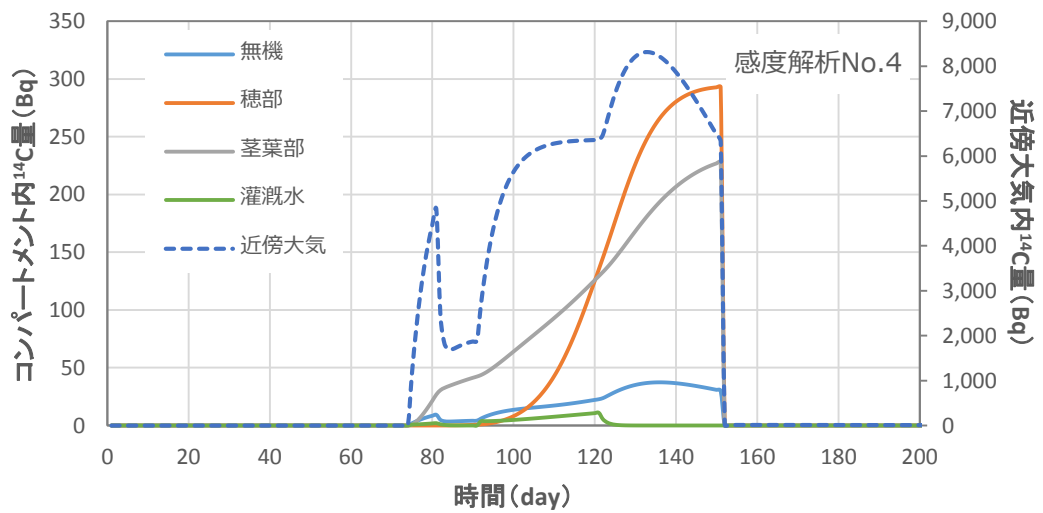
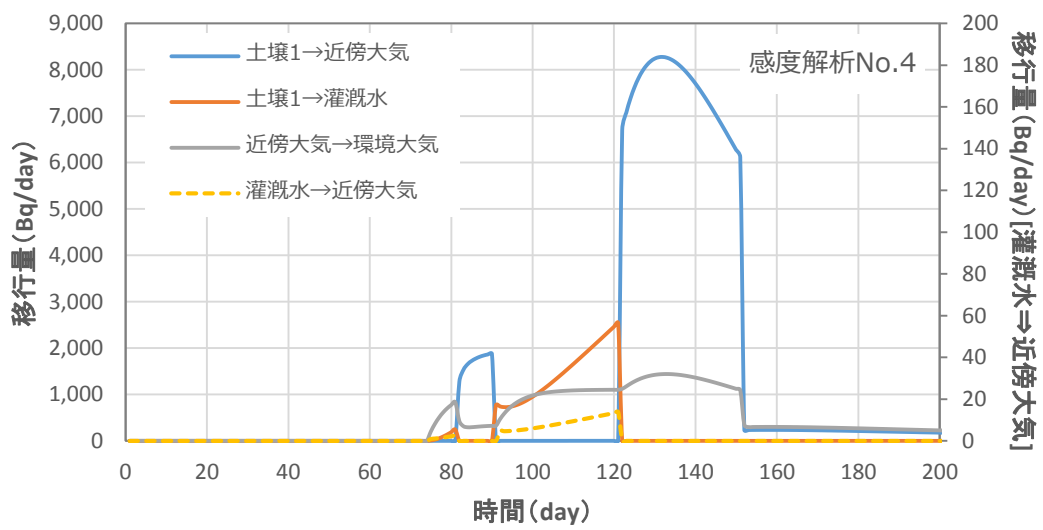


図 3.5-33 感度解析 No.4 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

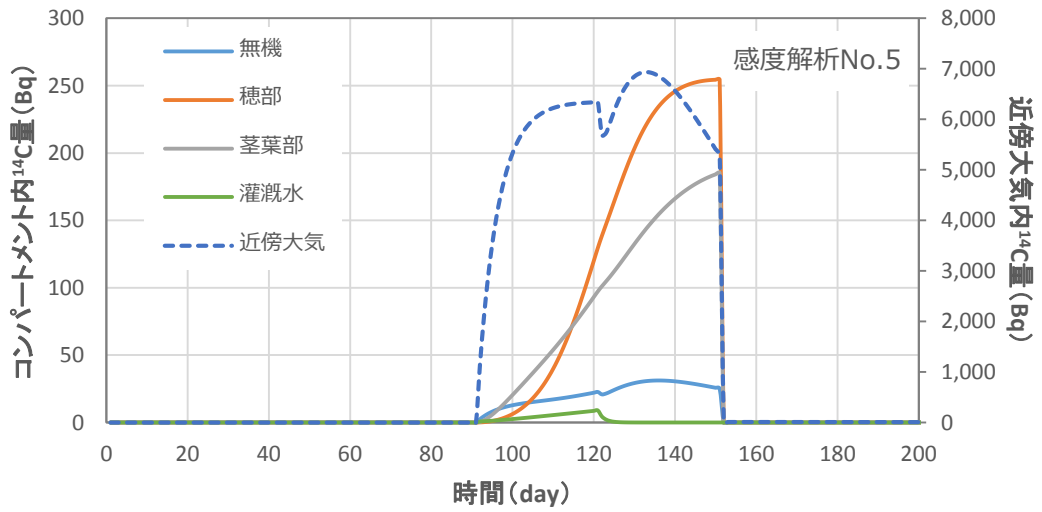
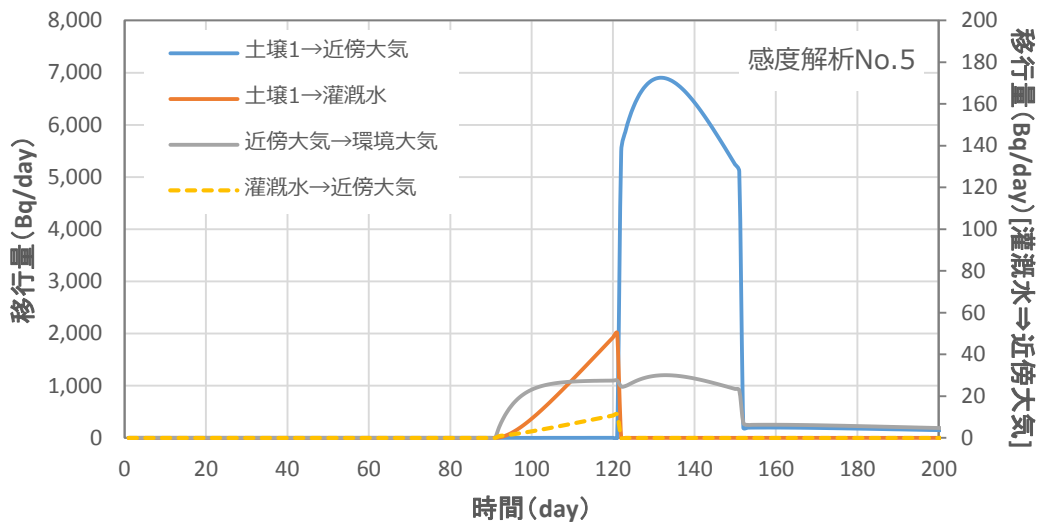


図 3.5-34 感度解析 No.5 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

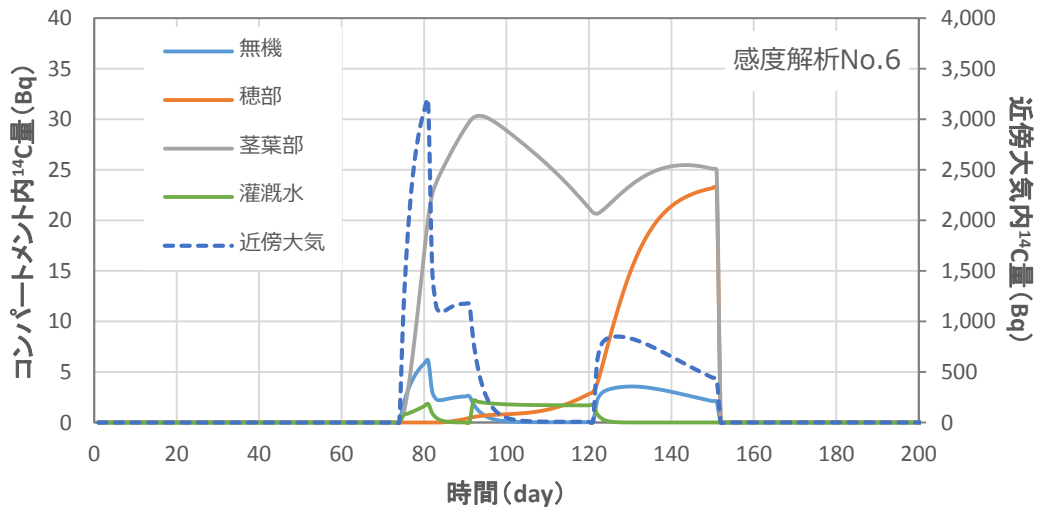
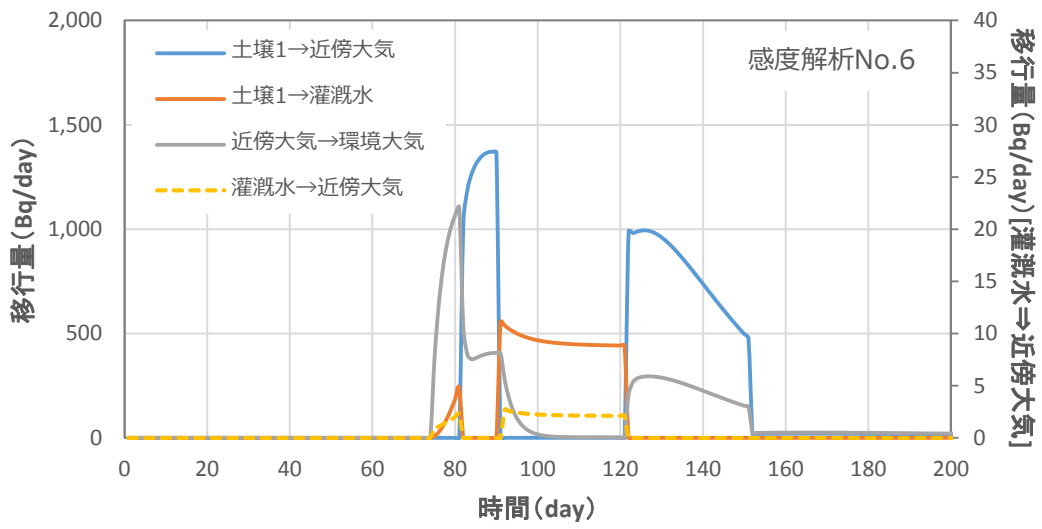


図 3.5-35 感度解析 No.6 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

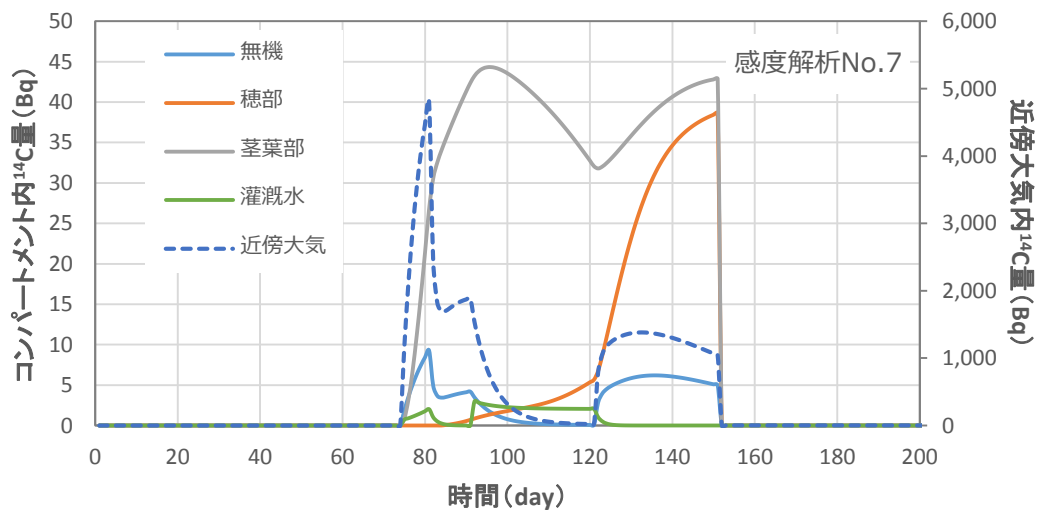
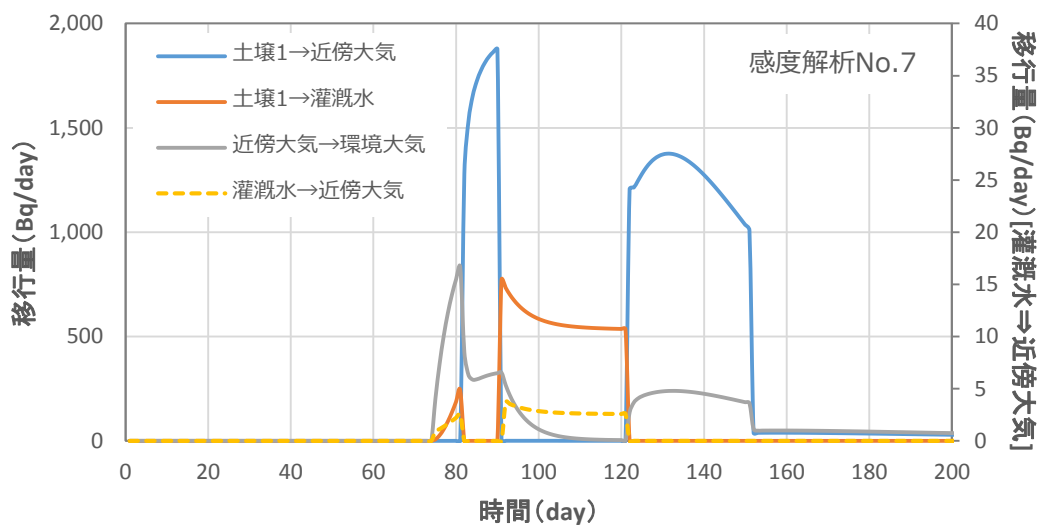


図 3.5-36 感度解析 No.7 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

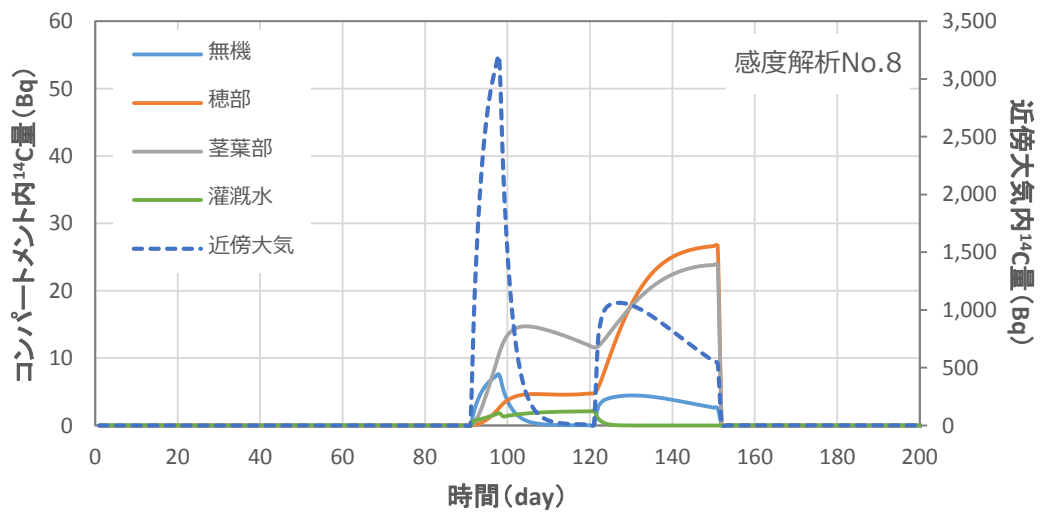
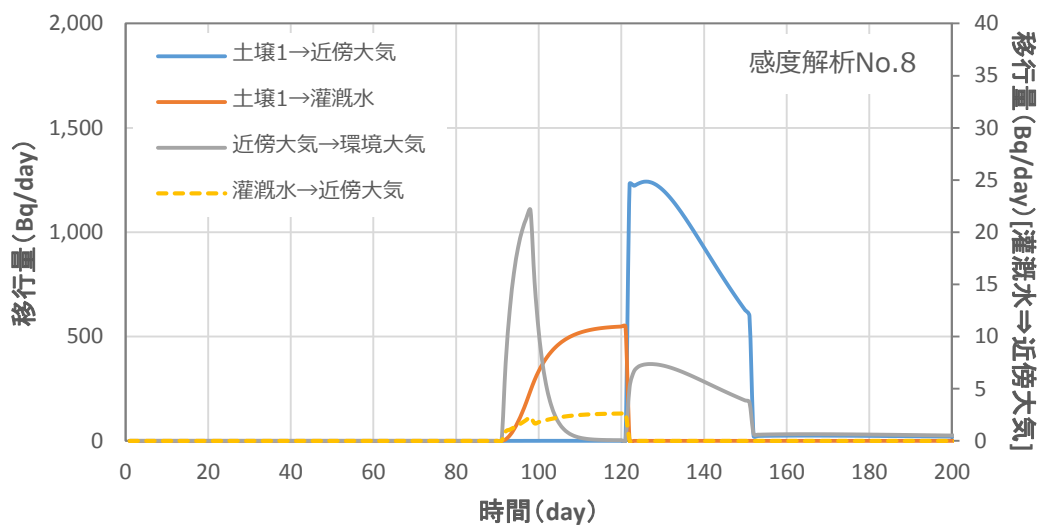


図 3.5-37 感度解析 No.8 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

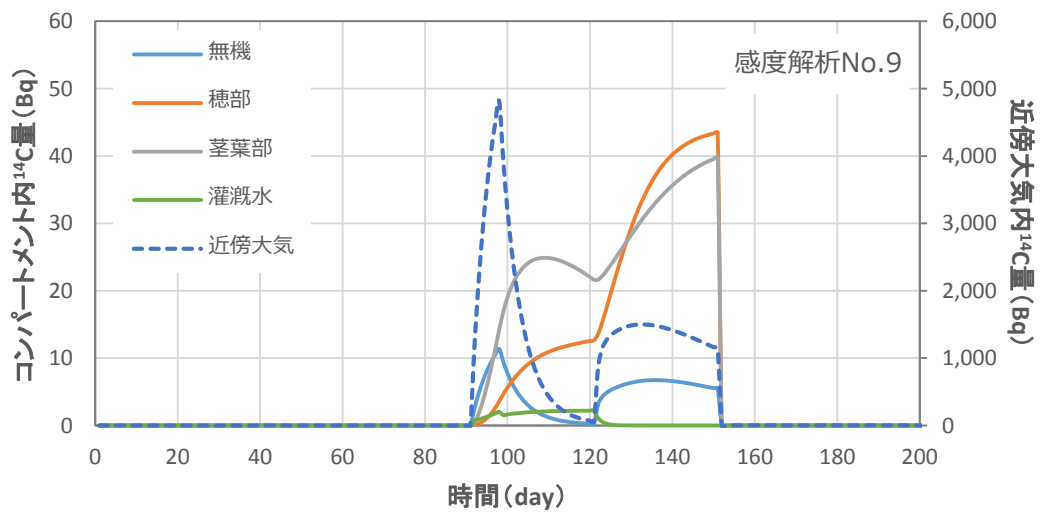
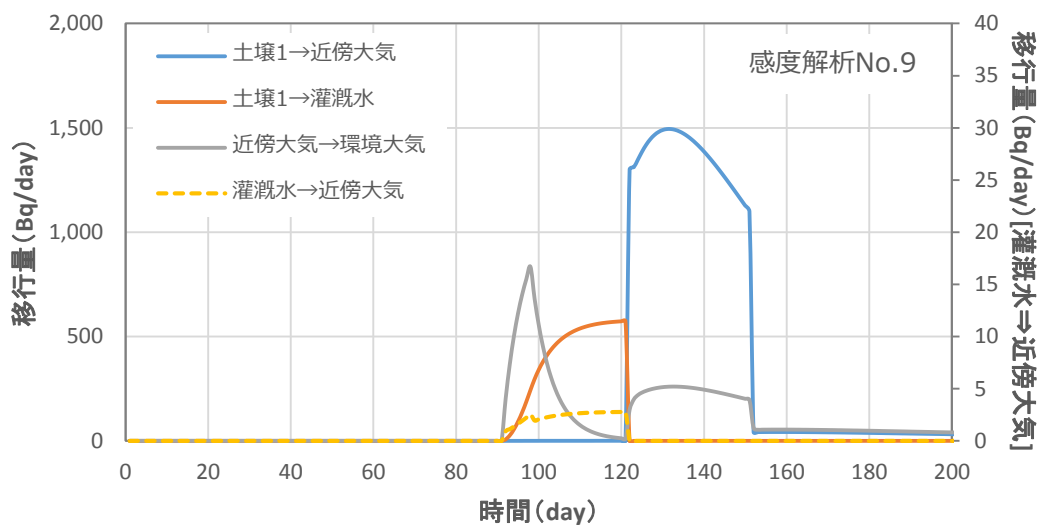


図 3.5-38 感度解析 No.9 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

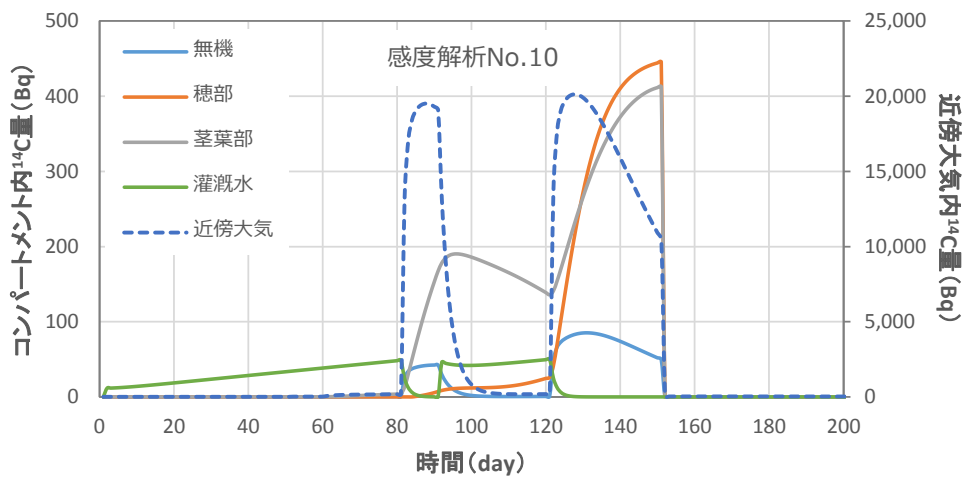
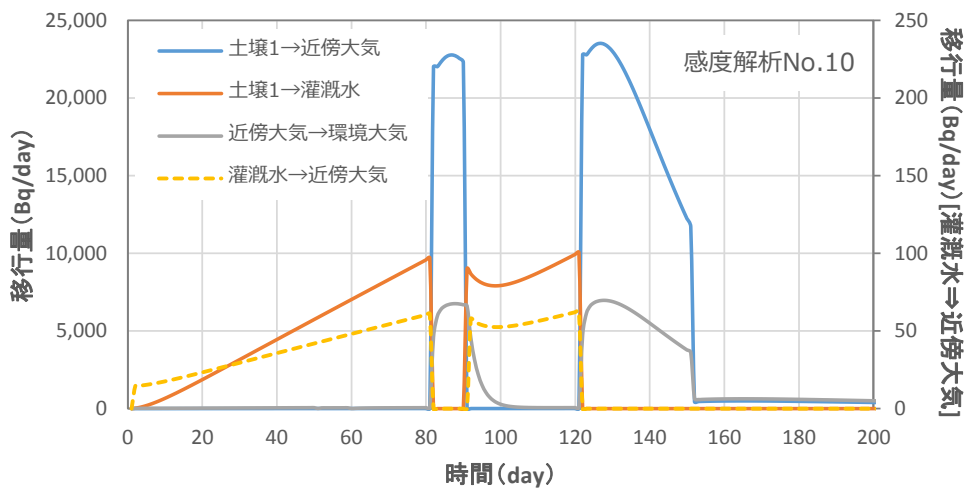


図 3.5-39 感度解析 No.10 における移行量とコンパートメント内 ^{14}C 存在量

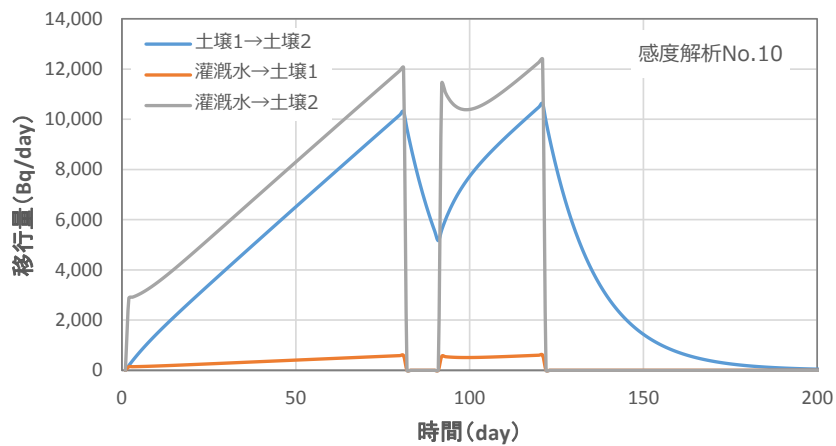


図 3.5-40 ケース No.10 における環境コンパートメント間の ^{14}C 移行量

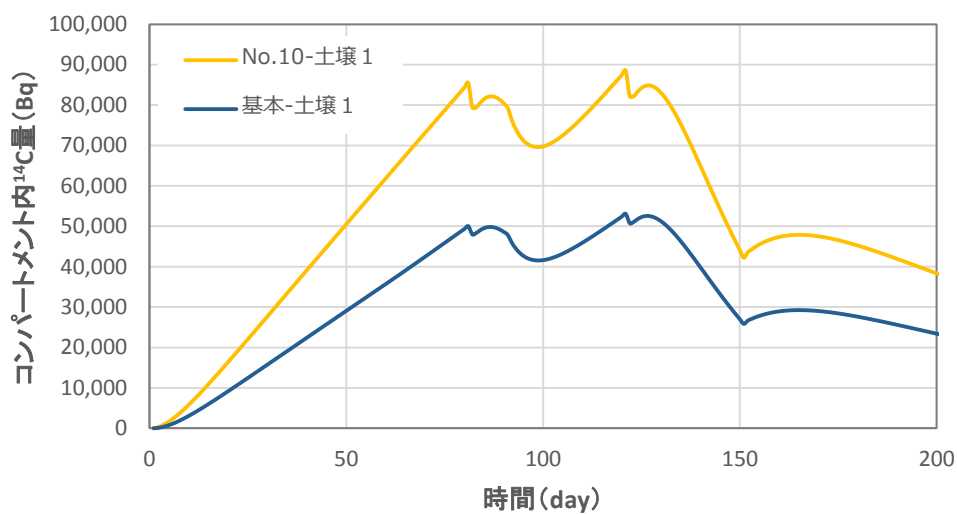


図 3.5-41 基本解析とケース No.10 における土壌 1 コンパートメント内 ^{14}C 存在量の比較

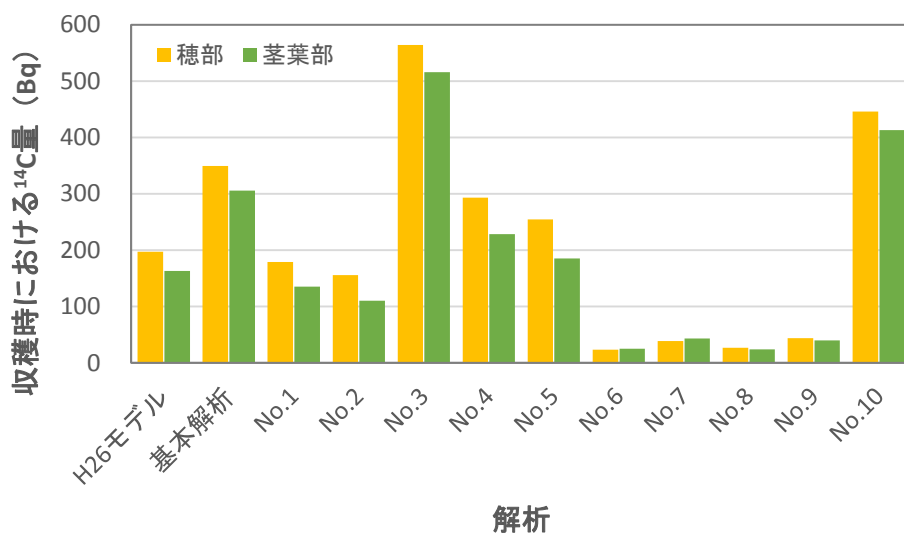


図 3.5-42 各解析ケースのイネの収穫時におけるイネ内 ^{14}C 存在量

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データを蓄積し、土壌-植物間移行係数（TF）や土壌-土壌溶液分配係数（Kd）の環境移行パラメータの導出並びにデータベース構築を行った。しかし、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、それら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、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 および塩素について、超高精度分析法を開発し、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としている。今年度は Am 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、H26年度の文献調査に続き、2014年から現在までに報告されている国内外の最新文献の調査を行なった。また、Am 同位体分析の化学分離法に関しては、高分解能 ICP-MS を用いて土壌中 Am 同位体の実用的な超高精度質量分析法を確立するため、いままでに報告されている国内外の最新文献の調査を行い、最新の分析法に関する情報を整理するとともに、得られた情報を基に、Am 同位体分析の化学分離法の開発を進めた。塩素については、今年度は土壌試料の溶液化条件の調査・研究を行った。さらに、開発した Pu と塩素の超高精度分析法を用いて、土壌および農作物中の微量 Pu 同位体および塩素の分析を行い、日本の土壌-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。また、Am 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が、放出量と環境分布は十分には解明されていない核種の一つであり、本事業で開発される分析法は、放出量と環境分布、並びに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 Am の超高精度分析法開発

4.2.1. 土壌試料中 Am 質量分析法についての文献調査

原子番号が95であるアメリシウム (Am) は、超ウラン元素3番目の元素である。物理的半減期が長いAmの同位体は ^{243}Am ($T_{1/2}=7400$ y), ^{241}Am ($T_{1/2}=433$ y) および $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($T_{1/2}=152$ y)があるが、それらの中でも、 ^{241}Am が最もよく知られている。その理由は、工業利用とそれによる環境への負荷によるものである (Holm and Persson, 1978; Schulz, 1976)。また、 ^{241}Am は人類の核の利用、例えば、大気圏内核実験や原子力事故により環境中に放出された核種でもある (UNSCARE, 2000; Yamamoto et al., 2014)。地球規模では、現在環境中において観察される ^{241}Am はグローバルフォールアウトによりもたらされたものである。すなわち、1950年代後半から1960年代前半に大規模に行われた大気圏内核実験により放出された ^{241}Pu ($T_{1/2}=14.4$ y)の β 崩壊により ^{241}Am が生成された結果である (Bennett, 1978)。局地規模においては、核実験場や原子力事故の近傍に局所的なフォールアウトとして存在するため、より高濃度に ^{241}Am により汚染されたという報告がある (Yamamoto et al., 2014; Agapkina et al., 1995)。

近年、環境中の ^{241}Am の動態研究について、次の2つの観点から大きな関心が持たれてきた。1つは、 ^{241}Am は α 線および γ 線を放出するが長半減期核種であるため、長期間被ばくする可能性があり、そのため環境中の ^{241}Am の濃度を調査・研究して、人への主な被ばく経路における移行割合を把握することは重要である (Bennett, 1978)。もう1つは、前述したような ^{241}Pu が ^{241}Am に崩壊することにより、徐々に ^{241}Am が増加するということが発生するためである。Zheng et al., (2012)は、福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故により環境中に放出された ^{241}Am の濃度は低い、ごく僅かではあるが ^{241}Pu が放出されたことを考慮すると、今後 ^{241}Am 濃度が上昇を続けることを予測している。このように、環境中におけるAmの研究は、直接的な放射線影響評価の目的だけではなく、Amの環境挙動研究を解明して将来Am濃度が上昇したときの被ばく線量評価のためにも重要性が増している。状況を連続的に監視することにより、環境中における ^{241}Pu および ^{241}Am の長期間の挙動に関する詳しい情報が得られる (Zheng et al., 2013)。

^{241}Am が沈着した土壌の分析は、放射線計測法と質量分析法の両方が用いられてきた (Amoli and Barker, 2012; Maxwell and Faison, 2008; Zheng and Yamada, 2008)。一般的に用いられる放射線計測法は α 線スペクトロメトリと γ 線スペクトロメトリであり、後者は高濃度レベルの ^{241}Am (0.1 – 1 Bq/kg 以上の濃度)の測定にのみ用いられる (Xiao et al., 2014)。 α 線スペクトロメトリは、安価で、高感度で、さらに操作が簡便であるため、最も一般的に ^{241}Am 測定に用いられる測定法である (Zheng et al., 2013b)。しかし、低濃度の環境試料に対しては、非常に長時間の測定が必要となる。Varga (2007)によると、3-10日が必要であると報告している。さらに、 α 線スペクトロメトリは同じような α 線放出核種 (例えば、 ^{238}Pu , ^{210}Po , ^{228}Th および ^{232}U) を分離するために、複雑な化学分離が必要である。そして、非常に短い飛程の α 放射線を確実に検出するために厚みの薄い試料 (10マイクロメートル以下の厚みの薄膜) を作成する必要がある (Vajda and

Kim, 2010)。原子数をカウントする質量分析技術の場合、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）と加速器質量分析装置（AMS）による ^{241}Am 分析が報告されている(Kazi et al., 2015; Li et al., 2010)。ICP-MSは、環境試料中のAm分析に対して多く用いられている(Hang et al., 2004; Truscott et al., 2001)。非常に高感度であるICP-MSは、 ^{241}Am の検出下限が α 線スペクトロメトリと同等か、それよりも低いことが報告されている(Varga, 2007; Zheng and Yamada, 2008)。さらに、質量分析法は α 線スペクトロメトリよりも幾つかの利点を有している。まず、質量分析における化学分離は α 線スペクトロメトリよりも容易であり、厳密に α 線だけの試料作成ということを気にせずに作成できる。また、ICP-MSとAMSによる ^{241}Am の測定はほんの数分で済むため、 α 線スペクトロメトリよりも非常に効率的である。このように、測定のために大量の試料が必要な場合や迅速な測定が必要な場合（例えば、事故直後に採取された環境試料）では、質量分析法は放射線計測法と比べるとメリットがある方法といえる。

ここ何十年にわたり、 ^{241}Am の化学分離に関する幾つかの総説、例えば、土壌や堆積試料に関するもの(Warwick et al. (1996))や全ての試料マトリックスに関するもの(Vajda and Kim (2010))が報告されている。しかし、これらの総説は、主として α 線スペクトロメトリによる ^{241}Am 測定のためのものである。測定原理が異なるため、測定妨害となる元素が異なることから、試料調製方法は、 α 線スペクトロメトリ法と質量分析法では違ってくる。すなわち、 α 線計測のための試料調製方法は質量数計測のためにはそのまま用いることが出来ない。

本節では、質量分析法により ^{241}Am を測定することを考慮して、土壌試料の前処理および放射化学分離に関するこれまでの知見をまとめるとともに、 ^{241}Am 測定精度に大きな影響を与えるマトリクス元素、さらに、同重体や多原子による妨害の除去効果について、各分離段階において評価を行った。また、本調査では ^{241}Am 分析における質量分析法と α 線スペクトロメトリ法の検出下限値についても比較を行った。質量分析法は、 α 線スペクトロメトリ法よりも幾つかの点において優れているが、 ^{241}Am 分析におけるマトリクス元素の影響や同重体や分子イオンによる妨害があるため完全ではない。マトリクス元素の影響は調製試料中の過剰塩濃度により生じるものであり、2つの方法で測定を妨害する。例を挙げると、最初に、沢山の塩がサンプリングコーンおよびスキマーコーンに沈着し、徐々にコーンの開孔部が狭くなる。その結果、機器を長時間使用する間に、コーンを通過できるイオンの量が減少、すなわち、感度が減少することで装置の安定性が失われることになる。二番目に、マトリクスに起因する高濃度の塩イオンが存在することで、目的元素のイオン化抑制を引き起こし、感度の損失を生じる。

同重体や分子イオンによる妨害は、低分解能モードでは対象イオンと分離することが出来ないシグナルである（高分解能モードでも分離できない場合もある）。それらは、主に測定対象イオン以外のイオンから導かれた同じ整数質量である単原子のシングルチャージイオン、または複数にチャージしたイオンから生じる(Prohaska et al., 2014)。 ^{241}Am 測定における潜在的な同重体や分子イオンによる妨害を表 4.2-1に示した。表中には、ICP-MSによりこれらの妨害を除

去するのに必要な質量分解能と妨害する同重体の相対的な存在量も示した。この表は、もし、ICP-MSの分解能モードが最大感度を得るために低分解能($m/\Delta m=300$)モードであったならば、PuやBi, Pb, Tl, Hg, Irのような元素は、 $m/z = 241$ に妨害を生じうるかも知れない、ということを示している。

土壌は多くの元素を含む複雑な混合物であることはよく知られている。1つの例として、図4.2-1に日本の土壌における微量および極微量元素の代表的な濃度を示した。土壌中の ^{241}Am 濃度(Yamamoto et al., (1983)は、0.032-0.263 mBq/g という値を報告している)を考慮した場合、分析機器の感度によるが、正確な ^{241}Am 濃度を測定するためには、通常、数グラムから数十グラムの試料が必要である。明らかに、そのような量の土壌は確実に多くのマトリクス元素と妨害となる元素を含んでおり、化学分離なしに質量分析装置で直接測定することは不可能である。マトリクス元素の除去と妨害元素の除去というゴールを達成するために、多くの化学分離法が提案されている(Rosa et al., 2005; Maxwell et al., 2015)。一般的に、Am分離法は図 4.2-2に示したように、4つの行程に分けることが出来る。それは、土壌の灰化、土壌からのAm溶出、Amの共沈およびAmの分離である。次の2つの節で各工程の詳しい説明を行う。

4.2.1.1 質量分析法による Am 測定のための試料前処理について

試料採取後、例えば、土壌試料は乾燥にして篩にかける等の物理的な処理を行った後に、化学的処理を行う。最初の工程は、乾燥灰化である。それは、その次の操作において分析対象物や試薬と複合物を形成する可能性がある土壌有機物を分解するためである。文献では、400 °C から 600 °C という異なった灰化温度が報告されている。例えば、Sill et al. (1974)および Riekkinen et al. (2002) は、400 °C で灰化しているが、Amoli et al. (2012), Fajardo et al. (2008) および Jakopic et al. (2007)は、550 °C で灰化している。Wang et al. (2015)は、Pu の正確な測定のため、灰化温度の影響を詳細に検討した。その結果、450 °C 以上の温度で灰化した場合、土壌中の一部の Pu は斜長石のような不溶性のシリカにトラップされており、硝酸抽出では溶出してこないことを明らかにした。不溶性のフラクションにトラップされる Pu 量は、灰化温度が上昇すれば増加し、600 °C で灰化すれば、約 40%の Pu は硝酸では抽出できなくなる。Wang らは、硝酸抽出法で土壌中の Pu を精度良く測定するために、最適な灰化温度として 450 °C を推薦している。もし、450 °C 以上の温度で土壌を灰化すれば、不溶性のフラクションが生成し、そこにトラップされた Am を溶出するためにもっと強い溶出法が必要となる。(次節参照)

4.2.1.2 Am の抽出と共沈澱濃縮

試料の分解の工程の目的は、Am を含む固形物を液体の形態に変化させることである。酸抽出、全分解、そして、アルカリ溶融等、様々な方法が用いられている。Am 溶出に良く用いられる方法を表 4.2-2 にまとめた(Maxwell et al., 2011; Lee et al., 2009; Harrison et al., 2011)。表には、それぞれの方法における長所および欠点も記入してある。硝酸抽出法は、最も簡単な方法であり、グロー

バルフオールアウト Am の抽出にも広く使用されている。王水($\text{HNO}_3 : \text{HCl} = 1:3$ 容積比)による抽出法も、グローバルフオールアウト Am に対して有効であり、この方法は同時に試料中に残っている有機物も分解することができる。しかし、これら 2 つの方法は、不溶性の Am、例えば、核実験場近傍で採取された土壤中に含まれている不溶性の Am を抽出することはできない。逆に、表 4.2-2 に示した残りの 3 つの方法、 $\text{HNO}_3 + \text{HF} (+\text{HCl})$ 抽出法(Thakur et al., 2011)、全分解法($\text{HNO}_3 + \text{HF} + \text{HClO}_4$) (Serdeiro and Marabini, 2004)、およびアルカリ熔融法(例えば、 NaOH fusion, LiBO_4 fusion) (Gagné et al., 2013)は、HF や HClO_4 の使用や複雑な操作という犠牲を払えば不溶性の Am を抽出することができる。さらに、多くの元素がこれら 3 つの方法を使用する際に添加される。例えば、 $\text{HNO}_3 + \text{HF} (+\text{HCl})$ 抽出法と全分解法による Si、アルカリ熔融法による Na または Li である。一般的に、最適な抽出法は、最小のマトリクス元素の抽出で含まれている全ての Am を抽出できることである。そのためには、より適切な Am 抽出法を選択するために、放出源に依存する Am の物理・化学的形態をまず第一に考慮しなければならない。グローバルフオールアウトが起源である場合、Am は単純に土壌粒子の表面に吸着しており、表 4.2-2 に示した全ての抽出法を用いることが出来る。その中で、硝酸抽出法が一番簡単である。一方、核事故や核実験場の近傍土壌の場合、また、高い温度($>450^\circ\text{C}$)で灰化した場合、不溶性の Am が存在しており、そのため表 4.2-2 の最後の 3 つの方法が望ましい。

共沈工程は試料の種類によって適宜行われるが、しかし、通常、 $\text{HNO}_3 + \text{HF}$ 抽出法、全分解法およびアルカリ熔融法を用いたあとに使われる。なぜならば、これら 3 つの方法では、前述したように、かなり多くの元素が添加されるからである。この工程では、Am を共沈させ、不要な元素を溶液中に残しておく場合が多いが、この溶液は、遠心分離を行った後、廃棄する。報告されている沈殿物質は共沈イオンに従い大別すると次の 4 つになる。すなわち、フッ化物(例えば、 CaF_2 , LaF_3 , NdF_3)、水酸化物(例えば、 $\text{Fe}(\text{OH})_2$, $\text{Fe}(\text{OH})_3$, $\text{La}(\text{OH})_3$, $\text{Ce}(\text{OH})_4$)、Ca または Ba の沈殿物(例えば、 CaCO_3 , $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$, CaC_2O_4 , BaSO_4)、およびそれら沈殿物の混合物(例えば、 $\text{Fe}(\text{OH})_3 + \text{CaC}_2\text{O}_4$, $\text{MnO}_2 + \text{Fe}(\text{OH})_3$)である。表 4.2-3 に一般的に用いられている共沈法を示すとともに、それぞれの方法により共沈する元素および除去される元素に関する情報を示した。表 4.2-3 に示した方法の中で、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$, CaF_2 および CaC_2O_4 の共沈は最も良く用いられる方法であり、最も研究されている。 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法は、十分に確立された方法であり、アクチノイドや希土類元素に対する共沈の高い選択性を有するため、アクチノイドの研究に広く使用されている。 CaF_2 および CaC_2O_4 共沈法も、Am 研究に広く用いられており、特に、共沈の後に TRU 抽出樹脂を用いて Am 分離を行う場合に用いられることが多い(Lee et al., 2005; Reis et al., 2010; Zheng, 2008)。

最適な Am 共沈法を選択する前に 3 つ考慮しなければならないことがある。最初に、選択した共沈法は、その後の Am 分離操作において妨害となる元素を十分除去できる能力を有していなければならない。第 2 は、共沈元素濃度は Am の共沈効率や元素除去効率に影響を与える(例えば、量的に不十分な金属イオンは Am を完全に共沈しない)ため、さらに、過剰の金属イオンは、必要でな

い多くの元素を共沈させるため、特に、土壌試料においては共沈のために最適の金属元素を選定することが重要である。そして、共沈に用いる元素濃度は土壌中でほぼ一定であり、またそれほど高くないことが必要である（添加量を試料毎に変える必要をなくすため）。第3に、選択された共沈法は、次の Am 分離や測定においてマイナスの効果を与えてはならない。例えば、Fe(III)は、TRU レジンにおける Am の選択性を減少させるため、Fe(OH)₃ を Am 分離のために TRU と一緒に使用すべきではない(Arginelli et al., 2005; Mihai and Hurtgen, 1997; Praveena et al., 2003)。

共沈法を決定した後、pH 値やイオン濃度、反応時間などの実験条件を最適に設定しなければならない。通常、これらの情報は公開された方法や系統的に行われた研究にすでに示されている。例えば、Harrison et al. (2011)は、詳細な Ca₃PO₄ 共沈法を報告している。その詳細は以下のようなものである。Ca(NO₃)₂, BaCl₂ and (NH₄)₂HPO₄ を 1L の試料水に添加し、しばらく静かに攪拌後、ホットプレート上において 90°C で加熱する。その後、濃 NH₄OH を添加し、pH を 10 に調製する。10-30 分間攪拌を続けた後、沈殿物と上澄み液を遠心分離する。Varga (2007)は、CaF₂ による Am の共沈法を発表している。100 mg の Ca²⁺を添加後、ゆっくりと HF を 7 mL 加え十分にかき混ぜる。そして、遠心分離により上澄み液を捨てる。Yamato (1982)は、CaC₂O₄ による共沈法に関して、様々な pH 値における Am の共沈効率を系統的に調査しており、pH 1.5 - 4.5 で形成された CaC₂O₄ が Am を効率よく共沈させることを明らかにした。一般的に、Am 共沈行程において、報告されている多くの方法は土壌試料に適用することが出来るが、pH、イオン濃度、および反応時間に依存する共沈効率等はまだ十分に明らかにされていない。これらの点に関する系統的な研究が必要である。

4.2.1.3 Am の化学分離

Am の分離工程は、共存元素や妨害元素から Am を選択的に分離することである。この目的を達成するために、様々な方法が報告されている。それらの方法は、液-液抽出法やイオン交換クロマトグラフィー法のように比較的古い技術も、また抽出クロマトグラフィー法のように比較的新しい技術も含まれている。これらの報告されている技術の長所と欠点について表 4.2-4 に纏めた。さらに、それぞれの技術の情報について、以下に簡単に紹介する。

A. 液-液抽出法 (LLE)

多くの溶媒抽出システムが Am 分離用に開発されてきた。報告されている抽出溶媒は、テノイルトリフルオロアセトン [tenoyl-tri-fluor acetone] (TTA) (Sekine et al., 1987), 1-フェニル-3-メチル-4-ベンゾイル-5-ピラゾロン [1-phenyl-3methyl-4-benzoyl-5-pyrazolone] (PMBP) (Jia et al., 1997), トリオクチルホスフィンオキシド [t-octylphosphine oxide] (TOPO) (Jia et al., 1998), ジ-2-エチルヘキシリン酸 [bis-2-ethylhexyl-phosphoric acid] (HDEHP) (Bernabee et al., 1980), dibutyN,N-diethylcarbonylphosphonate (DDCP) (Ballestra and Fukai, 1983), そして, octyl(phenyl)-N,N-di-isobutylcarbonylmethyl-phosphine oxide

(CMPO) (Horwitz et al., 1986)である。これらの抽出剤における Am (III)の分配係数は次の順で大きくなる。

TTA (pH \geq 4) < PMBP (0.1 M HNO₃) < TOPO (0.1 M HNO₃) < HDEHP (0.1 M HNO₃) < DDCP (12 M HNO₃) < CMPO-TBP (2 M HNO₃)

TTA の約 1 から始まり，最大は CMPO の約 100 である (Vajda and Kim, 2010)。

Am 分離のための LLE 技術に関するより詳細な概要は，Warwick et al. (1996) および Vajda and Kim (2010)による優れた解説に書かれている。総合的に，LLE は核産業における大規模処理に対しては優れた方法であるが，この技術は時間がかかり，かなり大量のやっかいな廃棄溶剤を産出する。この大量の廃棄溶剤は，抽出クロマトグラフィー法と比べると環境土壌試料の処理において，LLE の欠点となっている。

B. イオン交換クロマトグラフィー

B-1. 陽イオン交換

陽イオン交換樹脂，例えば Dowex 50 や AG 50 WX8 等，は酸溶液中の大量のマトリクス元素 (Ca, グループ I 及び II の遷移金属) から Am を分離するのに使用できると報告されている (Lee et al., 2000)。しかし，何回も陽イオン交換樹脂を使用することにより，他の様々な元素が様々な酸溶液 (例えば，HNO₃, HCl, および HBr) 中の Am (ランタノイドを含む) とともに収着する問題が生じる (Vajda and Kim, 2010)。Jernström et al. (2007)は，陽イオン交換樹脂 TCC-II を使って Pu と Am を分離することに成功した。彼らの実験において，Pu は錯体酸溶離液により最初に流出してくる。その後，シュウ酸と水酸化リチウムの混合溶液により Am が溶離される。Am を妨害元素から分離するのはかなり難しいので，Am 分離に陽イオン交換樹脂を用いるのはそれほど一般的ではない。

B-2. 陰イオン交換

HNO₃ および HCl 溶液中で，3 価の Am は陰イオン交換樹脂上で強い錯体を形成しない。陰イオン交換樹脂を用いて，Am をマトリクス元素や妨害元素から分離するのは困難である。ある研究者は， α 放射線計測のために陰イオン交換樹脂を用いて，Am をランタノイドから分離する研究を行った (Holm et al., 1979)。しかし，質量分析法という観点から，妨害となる元素，Pu, Bi, Pb, Tl, Hg, および Ir を除去する分離法はこれまで提案されていない。

C. 抽出クロマトグラフィー

抽出クロマトグラフィー，または固相抽出クロマトグラフィーと呼ばれている方法は，液-液抽出法の選択性とカラムクロマトグラフィーの簡便さを組み合わせたものである。この数十年において，この技術はアクチノイドの化学分離に非常に回収率がよく，再現性も良いため非常に一般的となってきた (Kim et al., 2007)。Vajda and Kim (2010b)が纏めているように，抽出クロマトグラフィーは液-液抽出法やイオン交換クロマトグラフィー法と比べて次のようなメリット

がある。反応物と十分な接触があること、早い交換速度、分離効率が低いこと、反応物や化学物質の使用が少なく済むこと、危険な廃棄物の生成が少ないこと、より経済的であること、等である。Am に関しては、幾つかの抽出樹脂（例えば、TRU 樹脂、DGA 樹脂、アクチノイド樹脂、そして LN 樹脂）は 3 価の Am に対して高い選択性を示す。これらの樹脂の中で、TRU と DGA 樹脂は、マトリクス元素をよく除去するため、そしてそれらの元素をカラムから簡単に除去できるため、環境試料の処理によく用いられている。

TRU 樹脂の抽出溶媒系は、tri-n-butyl phosphate (TBP) に溶かした CMPO である。TRU 樹脂は市販製品があるため、TRU 樹脂単独で、または他の樹脂と一緒に用いて、環境試料の Am の化学処理に関して、多くの適応事例が報告されている (Warwick et al., 2001; Sidhu, 2003; Tavčar et al., 2005; Dulanská et al., 2012)。Eichrom (2013) によると、TRU 樹脂は、1-5 M の硝酸溶液で 3 価の Am に対して強い吸着能力を示す (保持能 k' は、約 100 であり、それは強い吸着を意味する)。その条件下で、アルカリやアルカリ土類金属、さらに質量スペクトル分析において妨害となる同位体を有する鉛や水銀などは、洗い流されてしまう。この特性を基にして、2-3 M の硝酸溶液が Am 溶液をカラムに通水する際に良く用いられている。Pu に対しては、 ^{241}Pu は ^{241}Am と同じ質量数なので質量分析法では妨害となるが、4 M の塩酸を用いて TRU 樹脂から Am を脱離させることにより Pu と分離できる。その条件下では、3 価の Pu は強く樹脂に吸着する (図 4.2-3)。ビスマス (Bi) に関しては、残念ながら TRU 樹脂上で Am と同じ挙動をする。Bi の除去のために、Zheng ら (2008) は、Am の流出の前に、2 mL の濃塩酸、続いて 1 mL の 4 M 塩酸をカラムに通水することで Bi を樹脂から取り除いた。その結果、添加した Bi のほとんどは洗い流され、無視できるぐらい少量の Bi (約 0.2%) しか Am 流出フラクションには見いだされなかった。Varga (2007) は、 CaF_2 による共沈と TRU クロマトグラフィー法を連結した方法を堆積物および海藻試料の処理に用いた。全ての分析工程においては、Bi, Pb, Hg, および Ir に対して高い除染係数 (DFs) を示した。それぞれの DF は、18000 (Bi), 12000 (Pb), 8000 (Hg), および 24000 (Ir) である。なお、Ir については、他の妨害元素と比較すると土壤中濃度が極めて低いので、分子イオン干渉の可能性のある $^{193}\text{Ir}^{16}\text{O}_3$ は一般的に無視できると考えられている。したがって、TRU 樹脂上での Ir の除去については十分に究明されていない。

TRU 樹脂の Am に対する十分な選択性とマトリクス元素除去の優れた能力は、TRU 樹脂の応用範囲を広げたものの、しかし、この抽出樹脂は完全ではなく、ある欠点が報告されている。TRU 樹脂の Am に対する最大の保持能 k' は約 100 である (図 4.2-4)。この値自体は、上述の LLE で用いられた溶媒の中でも高い値であるが、試料を通水している最中や、マトリクス元素を洗い流している間に、ある程度の量の Am が流出してしまう危険がある、というものである。TRU 樹脂を用いた場合の報告されている Am 回収率は一般的に DGA 樹脂を用いた場合よりも低い、という結果は、多分この欠点のためであろう (表 4.2-5)。幸いにも、Am 溶液中に $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ を添加すると、塩析という効果により保持能 k' は、

添加する Al の濃度によるが数倍高くなる (Horwitz et al., 1993)。故に, Pilvio ら (1999), Fajardo ら (2008), Harrison ら (2011), Lee ら (2005), Praveena ら (2013), そして Sidhu ら (2003) は, Am の収着を向上させるために, 0.25 – 1 M の $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ を樹脂通水用の試料溶液に添加している。一方, 3 価の鉄 Fe (III) は Am の収着に対して負の影響があり, Am の収着を阻害する。この問題を打開するために, アスコルビン酸のような還元剤を添加し, Fe (III) を Fe (II) に還元しなければならない。しかしながら, 鉄の量が過剰の場合は Am の TRU 樹脂による保持をかなり制約してしまう (Horwitz et al., 1993)。したがって, TRU 樹脂を用いる場合, この妨害を避けるため, Am 分離においては Fe (OH)₃ または Fe (OH)₂ 共沈法をほとんど使わない。

2 種類の DGA 抽出樹脂が Eichrom 社から提供されている。ノーマルタイプ (DGA-N) とブランチタイプ (DGA-B) である。その抽出溶媒システムはそれぞれ N,N,N',N'-tetra-n-octyldiglycolamide (TODGA) と N,N,N',N'-tetrakis-2-ethylhexyldiglycolamide (HEHDGA) である。TRU 樹脂と比較すると, DGA 樹脂は 2005 年に Horwitz ら (2005) により最初のシステムティックな検討結果の報告が行われた比較的新しいものである。DGA 樹脂の最新の応用報告は TRU 樹脂よりも少ないけれども, DGA 樹脂は Am 収着における収着容量とマトリクス元素による妨害において TRU 樹脂よりも優れている幾つかの特性を示している。第 1 は, DGA 樹脂の Am 収着におけるマトリクス元素による妨害において, Horwitz ら (2008) は塩酸溶液中の 3 価の鉄, Ga, In, Tl または Bi が mg/L 量あることで, 3 価のアクチニドとランタノイドの抽出において数桁の向上が見込めると報告している。第 2 に, どちらのタイプの DGA 樹脂でも Am の最も高い保持能は 3 M 硝酸溶液で観測され, 20000 以上であり (図 4.2-4), さらに, DGA 樹脂の保持能は 0.5 から 5 M の硝酸溶液で TRU 樹脂よりも 30 から 500 以上高い (Eichrom, 2013)。その結果, Am の研究に DGA が広く使用されるようになることが将来期待される。

質量分析法による Am 研究における DGA 樹脂の長所を利用するために, マトリクス元素や妨害元素の除去の性能に注意する必要がある。Pourmand and Dauphas (2010) は, 異なる塩酸および硝酸の溶媒濃度条件で DGA-N 樹脂における金属元素の収着に関する体系的な調査を行った。図 4.2-5 に Am 分析開発において検討が必要な元素について彼らの結果の一部を抜粋した。図 4.2-5 に示したように, 共沈に良く用いられる Ca と Fe が, 最終の Am 流出溶液中に残ることを防ぐために, 濃塩酸および濃硝酸の洗浄を用いて DGA-N 樹脂から洗い流すことが出来る。全ての濃度の硝酸溶液において DGA-N 樹脂に対して弱い収着を示している Ir と Tl は, もし, Am 試料を通水する際, 硝酸溶媒を使うのであれば, 分離可能である。塩素は塩酸から供給されることに加えて土壌中存在量が多いため, 妨害元素の中で最も重要な元素である Pb と分子イオン (例えば $^{206}\text{Pb}^{35}\text{Cl}$, $^{204}\text{Pb}^{37}\text{Cl}$, $^{207}\text{Pb}^{34}\text{S}$, $^{208}\text{Pb}^{16}\text{O}_2^1\text{H}$ in $m/z=241$) を作るが, DGA-N 樹脂は, 高塩酸および硝酸溶液において Pb の保持能が非常に低い。逆に, これらの溶媒に対して Am は強い保持力を示す。図 4.2-4 および 図 4.2-5 に示したように, Pu, Hf, Pt および Bi については, 希釈した塩酸溶液強い保持が見られる

ため、Am 流出過程において Am からの分離が可能である。通常、Guerin ら (2011), Gagne ら (2012), Luisier ら (2009), および Dulanska ら (2015) が推奨している 0.1 – 0.5 M の塩酸溶液が用いられている。実際に使用する場合、これまで、上述した DGA-N の特性を基にした分析方法が検討されてきた。例えば、Maxwell ら (2011, 2015) は、Ca の除去に 3M の塩酸溶液を、Kazi ら (2014) は、Fe, Al, Ca の洗浄に 8 M, 3 M および 0.1 M の硝酸溶液を、Xiao ら (2014) は、Am から Pb, Tl および Hg を分離するために 5 M と 0.5 M の硝酸溶液を用いている。しかし、一般的に新しく DGA 樹脂を導入して開発された Am の化学分離法は、減少がなく、特に質量スペクトル分析のために開発された方法はほとんど無い。このように、新しい分析法の開発・利用に関する検討を行うことは、は DGA が示している Am 分離における優れた特性のメリットを将来利用するためにも非常に価値があるといえる。

Am の吸着特性を示す他の樹脂はアクチノイド樹脂と Ln 樹脂 (Ln, Ln2 and Ln3) である。アクチノイド樹脂は、全ての濃度の塩酸および硝酸溶液中で高い Am の吸着特性を示す (Eichrom, 2013; Gharibyan et al., 2014)。最も高い保持能は、0.1 M の塩酸溶液の場合で 10^7 である。ただし、アクチノイド樹脂からの Am の溶出を考慮すると、最も小さい保持能でも 100 以上であり、さらに、樹脂は時々さらなる分離操作を行うために樹脂を分解しなければならないため、非常に困難である (Maischak and Fachinger, 2001)。利用のしやすさを考慮すると、抽出カラムとしてアクチノイド樹脂を利用することは、実際的には一般的ではない。しかし、この特徴を活かして、この樹脂を大量の水試料からアクチノイドをバッチ法で予備濃縮をするために利用している (Burnett et al., 1997)。Ln 樹脂は、低濃度の硝酸および塩酸溶液中 (0.001 M から 0.01 M) で強い Am 吸着を示す (Gharibyan et al., 2014; McAlister and Horwitz, 2007) が、硝酸のモル濃度が上昇すると保持能 (k') は急激に減少し、硝酸濃度が 0.5 M になる前に k' は、1 になってしまうことから、ほぼ保持できない。残念ながら、Ba, Pb, および Fe のようなマトリクス元素は、硝酸溶液中で Am と同様の挙動を取る。これは、マトリクス元素が大量に存在するような土壌試料の Am 分離にとっては重要な問題である。

4.2.1.4 Am の質量分析

測定のための試料の形態は、質量分析法の種類に依存する。ICP-MS の場合、液状の Am 試料 (Am の流出溶液を蒸発乾固して、その後希硝酸溶液 0.5 -1.5 mL で溶解させたもの) が必要である (Varga et al., 2007; Zheng et al., 2007; Agarande et al., 2001)。一方、AMS では、固体の状態を導入が行われる。Kazi ら (2014) の報告によれば、Am は 48% の HF を 1 mL と 6 mg の Nd で共沈させ、AMS で測定前に沈殿物を乾燥させる。

表 4.2-5 に質量分析法を用いた Am 測定に関する研究を纏めた。表には、四重極 ICP-MS (Q-ICP-MS), セクターフィールド ICP-MS (SF-ICP-MS) および AMS が含まれている。試料タイプ、共沈方法、Am 分離方法、質量分析の種類、検出下限値 (LOD), Am の回収率および Pu の除染係数 (DF) を記載した。表 4.2-5

から、Am-241の分析は主に3種類の環境試料(尿および土壌/堆積物)で行われていることが分かる。土壌/堆積物の検出下限値(LOD)に関しては、通常 mBq/g または mBq/sample で表されるが、2つのファクターに依存する。すなわち、機器の感度と全ての分析行程の操作ブランクである(Bouvier-Capely et al., 2004)。表 4.2-5 に示したように、Q-ICP-MS および AMS による測定における土壌中 Am-241 の LOD は、それぞれ、200 mBq/sample および 1.4 mBq/sample である。報告されている α スペクトル分析の LOD と比較すると、例えば、Pimple and Higgy (2001)は 1.5 mBq/sample, Lee ら (2000)は、1 mBq/sample という値を報告しているが、AMS の LOD も同様の値である。一方、Q-ICP-MS はこれらの装置よりも低い検出感度であることから、LOD は2桁高い値であった。より検出感度が高い SF-ICP-MS の場合は、Q-ICP-MS よりも十分に低い 0.041 mBq/g to 2.9 mBq/g という値の LOD が報告されている。これらの LOD は、Pimple and Higgy (2001)により報告されている α スペクトル分析の LOD 値(0.03 mBq/g)や Jia ら (1997)が報告している値(0.034 mBq/g)に近いものである。すなわち、AMS と SF-ICP-MS は Am-241 分析において、Q-ICP-MS よりも優れており、 α スペクトル分析と同等の検出感度があることを示している。

表 4.2-5 に、分析法における Pu の除去係数 (DF) を幾つか示したが、その最も高い値は Varga ら (2007)が報告している値(1000)である。同重体妨害元素である Pu-241 の除去は質量分析法による Am-241 分析において重要である。しかし、Pu-241 濃度は放出源により異なるが、それは異なった DF が要求されるということに注意すべきである。Zheng ら (2013)がまとめたように、グローバルフォールアウトの $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比と福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故で放出された $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比はそれぞれ、0.00194 および 0.128-0.135 である。これは、グローバルフォールアウト起源の試料に比べて、FDNPP サイト近傍で採取した土壌試料では、Am-241 測定に際し、二桁高い DF (Pu) が必要となることを意味している。しかし、報告された方法の DF (Pu)は、FDNPP 起源の Pu を十分に除去できるものではない。このように、十分な DF (Pu)を備えた分離法が必要であり、FDNPP 起源の Am を分析するためには Pu 分離法を開発しなければならない。

4.2.1.5 まとめ

本調査研究において、質量分析法による Am 測定という面から、公開された土壌試料の前処理法の相互比較を行った。前処理は4つのステップから構成される。すなわち、乾燥・灰化処理、Am の溶出、共沈および Am の分離、である。それぞれのステップに対して、議論と比較を行った結果、質量装置による Am 分析・測定のために、次の化学分離法を提案した。

- (1) 土壌試料の最適灰化温度として 450°C を推奨
- (2) グローバルフォールアウト Am の分離に対しては、硝酸溶出法が適用可能な最も単純な方法である。一方、近傍フォールアウト Am 溶出に対しては、より強い分解方法(例えば、硝酸+フッ酸、全分解法およびアルカリ溶融法)が必要である。

- (3) 共沈過程において、Am の共沈効率、マトリクス元素の除去効率、土壌中の Ca, Fe および La 濃度、Am の連続抽出の操作性、を含む幾つかの課題を考慮すること
- (4) 抽出クロマトグラフィー法 (TRU および DGA 樹脂) は、Am 分離でよく使われる方法であり、新しい DGA 抽出樹脂は優れた Am の選択特性を示す。

土壌試料中の Am 分離のための将来的に必要な研究の方向もこの報告書に記載した。Am の共沈に対する体系的な研究は不完全であり、一般的に用いられている共沈法の多くのパラメータ(例えば、pH)の影響はまだよく分かっていないことから、さらなる研究が必要である。次に、新しく開発された DGA 抽出樹脂による Am 分離法に関する情報も纏めた。新しい DGA 抽出樹脂は Am に対して優れた選択特性を示し、Ca および Fe による妨害に影響されないために、この樹脂を用いた Am 分離の方法の開発や応用に関する研究が期待される。

引用文献

- Agapkina, G. I., Tikhomirov, F. A., Shcheglov, A. I., Kracke, W., & Bunzl, K. (1995). Association of Chernobyl-derived $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{90}Sr and ^{137}Cs with organic matter in the soil solution. *Journal of Environmental Radioactivity*, 29(3), 257-269.
- Agarande, M., Benzoubir, S., Bouisset, P., & Calmet, D. (2001). Determination of ^{241}Am in sediments by isotope dilution high resolution inductively coupled plasma mass spectrometry (ID HR ICP-MS). *Applied Radiation and Isotopes*, 55(2), 161-165.
- Arginelli, D., Montalto, M., Bortoluzzi, S., Nocente, M., Bonardi, M., & Groppi, F. (2005). Radioanalytical determination of americium in human urines by extraction chromatography and high resolution alpha-spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 263(2), 275-279.
- Ballestra, S., & Fukai, R. (1983). An improved radiochemical procedure for low-level measurements of americium in environmental matrices. *Talanta*, 30(1), 45-48.
- Bennett, B. G. (1978). Environmental aspects of americium. No. EML-348. Department of Energy, New York (USA).
- Bernabee, R. P., Percival, D. R., & Hindman, F. D. (1980). Liquid-liquid extraction separation and determination of plutonium and americium. *Analytical Chemistry*, 52(14), 2351-2353.
- Bouvier-Capely, C., Ritt, J., Baglan, N., & Cossonnet, C. (2004). Potentialities of mass spectrometry (ICP-MS) for actinides determination in urine. *Applied Radiation and Isotopes*, 60(5), 629-633.
- Burnett, W., Corbett, D., Schultz, M., Horwitz, E., Chiarizia, R., Dietz, M. & Fern, M.

- (1997). Pre-concentration of actinide elements from soils and large volume water samples using extraction chromatography. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 226(1-2), 121-127.
- Dulanská, S., Bilohuščin, J., Remenec, B., Galanda, D., & Mátel, L. U. (2015). Determination of ^{239}Pu , ^{241}Am and ^{90}Sr in urine using pre-filter material and combined sorbents AnaLig® Pu-02, AnaLig® Sr-01, DGA® Resin. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 304(1), 127-132.
- Dulanská, S., Remenec, B., Mátel, L. U., & Durkot, E. (2012). Rapid determination of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am and ^{90}Sr in radioactive waste using combined SPE sorbents AnaLig® Pu02, AnaLig® Sr01 and TRU® Resin. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 293(1), 81-85.
- Eichrom. (2013). Eichrom technologies' product catalog for 2013. <http://www.eichrom.com/PDF/eic-2013-product-catalog.pdf> (obtained on 2015/12/06).
- Fajardo, Y., Ferrer, L., Gómez, E., Garcias, F., Casas, M., & Cerdà, V. (2008). Development of an automatic method for americium and plutonium separation and preconcentration using an multisyringe flow injection analysis-multipumping flow system. *Analytical Chemistry*, 80(1), 195-202.
- Gagné, A., Surette, J., Kramer-Tremblay, S., Dai, X., Didychuk, C., & Larivière, D. (2013). A bioassay method for americium and curium in feces. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 295(1), 477-482.
- Gharibyan, N., Dailey, A., McLain, D. R., Bond, E. M., Moody, W. A., Happel, S., & Sudowe, R. (2014). Extraction Behavior of Americium and Curium on Selected Extraction Chromatography Resins from Pure Acidic Matrices. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 32(4), 391-407.
- Guérin, N., Calmette, R., Johnson, T., & Larivière, D. (2011). Multi-dimensional extraction chromatography of actinides for alpha and mass spectrometry. *Analytical Methods*, 3(7), 1560-1567.
- Hamato, A. (1982). An anion exchange method for the determination of ^{241}Am and plutonium in environmental and biological samples. *Journal of Radioanalytical Chemistry*, 75(1-2), 265-273.
- Hang, W., Zhu, L., Zhong, W., & Mahan, C. (2004). Separation of actinides at ultra-trace level from urine matrix using extraction chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 19(8), 966-972.
- Harrison, J. J., Zawadzki, A., Chisari, R., & Wong, H. K. (2011). Separation and measurement of thorium, plutonium, americium, uranium and strontium in environmental matrices. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102(10), 896-900.
- Holm, E., & Persson, R. B. R. (1978). Biophysical aspects of Am-241 and Pu-241 in the environment. *Radiation and environmental biophysics*, 15(3), 261-276.

- Holm, E., Ballestra, S., & Fukai, R. (1979). A method for ion-exchange separation of low levels of americium in environmental materials. *Talanta*, 26(9), 791-794.
- Horwitz, E. P., Chiarizia, R., Dietz, M. L., Diamond, H., & Nelson, D. M. (1993). Separation and preconcentration of actinides from acidic media by extraction chromatography. *Analytica Chimica Acta*, 281(2), 361-372.
- Horwitz, E. P., Dietz, M. L., Chiarizia, R., Diamond, H., Maxwell, S. L., & Nelson, M. R. (1995). Separation and preconcentration of actinides by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger: application to the characterization of high-level nuclear waste solutions. *Analytica Chimica Acta*, 310(1), 63-78.
- Horwitz, E. P., Martin, K. A., Diamond, H., & Kaplan, L. (1986). Extraction of Am from nitric acid by carbamoyl-phosphoryl extractants: The influence of substituents on the selectivity of Am over Fe and selected fission products. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 4(3), 449-494.
- Horwitz, E. P., McAlister, D. R., Bond, A. H., & Barrans Jr, R. E. (2005). Novel extraction of chromatographic resins based on tetraalkyldiglycolamides: characterization and potential applications. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 23(3), 319-344.
- Jakopič, R., Tavčar, P., & Benedik, L. (2007). Sequential determination of Pu and Am radioisotopes in environmental samples; a comparison of two separation procedures. *Applied Radiation and Isotopes*, 65(5), 504-511.
- Jernström, J., Lehto, J., & Betti, M. (2007). On-line separation of Pu (III) and Am (III) using extraction and ion chromatography. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 274(1), 95-102.
- Jia, G., Desideri, D., Guerra, F., Meli, M., & Testa, C. (1997). Determination of plutonium and americium in moss and lichen samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 220(1), 15-19.
- Jia, G., Testa, C., Desideri, D., Guerra, F., & Roselli, C. (1998). Sequential separation and determination of plutonium, americium-241 and strontium-90 in soils and sediments. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 230(1-2), 21-28.
- Kazi, Z. H., Cornett, R. J., Zhao, X., & Kieser, W. E. (2015). Comparison of the measurement of Pu and Am isotopes by AMS using fluoride and oxide anion beams. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 30(10), 2235-2240.
- Kim, C. S., Kim, C. K., Martin, P., & Sansone, U. (2007). Determination of Pu isotope concentrations and isotope ratio by inductively coupled plasma mass spectrometry: a review of analytical methodology. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 22(7), 827-841.
- La Rosa, J., Gastaud, J., Lagan, L., Lee, S. H., Levy-Palomo, I., Povinec, P. P., & Wyse, E. (2005). Recent developments in the analysis of transuranics (Np, Pu, Am) in seawater. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 263(2),

427-436.

- Larivière, D., Benkhedda, K., Kiser, S., Johnson, S., & Cornett, R. J. (2010). Rapid and automated sequential determination of ultra-trace long-lived actinides in air filters by inductively coupled plasma mass spectrometry. *Analytical Methods*, 2(3), 259-267.
- Lee, M., Jeon, Y., & Song, K. (2009). Determination of activity concentrations and activity ratios of plutonium, americium and curium isotopes in radioactive waste samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 280(3), 457-465.
- Lee, S. H., La Rosa, J., Gastaud, J., & Povinec, P. P. (2005). The development of sequential separation methods for the analysis of actinides in sediments and biological materials using anion-exchange resins and extraction chromatography. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 263(2), 419-425.
- Lee, Y. K., Bakhtiar, S. N., Akbarzadeh, M., & Lee, J. S. (2000). Sequential isotopic determination of strontium, thorium, plutonium, uranium, and americium in bioassay samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 243(2), 525-533.
- Li, C., Sadi, B., Benkhedda, K., St-Amant, N., Moodie, G., Ko, R. & Kramer, G. (2010). Method comparison for ^{241}Am emergency urine bioassay. *Radiation Protection Dosimetry*, 175.
- Luisier, F., Corcho Alvarado, J., Steinmann, P., Krachler, M., & Froidevaux, P. (2009). A new method for the determination of plutonium and americium using high pressure microwave digestion and alpha-spectrometry or ICP-SMS. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 281(3), 425-432.
- Maischak, S., Fachinger, J., & Tucson, A. Z. (2001). Solid-phase extraction for the separation of actinides from radioactive waste. In *Proceedings of the First Waste Management Symposium, WM (Vol. 1, No. 25, pp. 55-4)*.
- Maxwell III, S. L., & Faison, D. M. (2008). Rapid column extraction method for actinides and strontium in fish and other animal tissue samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 275(3), 605-612.
- Maxwell, S. L., Culligan, B. K., Kelsey-Wall, A., & Shaw, P. J. (2011). Rapid radiochemical method for determination of actinides in emergency concrete and brick samples. *Analytica Chimica Acta*, 701(1), 112-118.
- Maxwell, S. L., Culligan, B., Hutchison, J. B., & McAlister, D. R. (2015). Rapid fusion method for the determination of Pu, Np, and Am in large soil samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1-10.
- McAlister, D. R., & Horwitz, E. P. (2007). Characterization of Extraction of Chromatographic Materials Containing Bis (2 - ethyl - 1 - hexyl) Phosphoric Acid, 2 - Ethyl - 1 - Hexyl (2 - Ethyl - 1 - Hexyl) Phosphonic Acid, and Bis (2, 4, 4 - Trimethyl - 1 - Pentyl) Phosphinic Acid. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 25(6), 757-769.
- Mihai, S., & Hurtgen, C. (1997). Plutonium and americium in sediment samples

- along the Romanian sector of the Danube river and the Black Sea coast. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 222(1-2), 275-278.
- Philip Horwitz, E., McAlister, D. R., & Thakkar, A. H. (2008). Synergistic Enhancement of the Extraction of Trivalent Lanthanides and Actinides by Tetra - (n - Octyl) Diglycolamide from Chloride Media. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 26(1), 12-24.
- Pilviö, R., LaRosa, J. J., Mouchel, D., Wordel, R., Bickel, M., & Altzitzoglou, T. (1999). Measurement of low-level radioactivity in bone ash. *Journal of Environmental Radioactivity*, 43(3), 343-356.
- Pimpl, M., & Higgy, R. (2001). Improvement of Am and Cm determination in soil samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 248(3), 537-541.
- Pourmand, A., & Dauphas, N. (2010). Distribution coefficients of 60 elements on TODGA resin: application to Ca, Lu, Hf, U and Th isotope geochemistry. *Talanta*, 81(3), 741-753.
- Praveena, N., Santhanakrishnan, V., Sankaran, M. R., Purohit, R. G., & Tripathi, R. M. (2013). Sequential separation of uranium, americium and plutonium from urine by extraction chromatography. *Radiation Protection and Environment*, 36(4), 193.
- Prohaska, T., Irrgeher, J., Zitek, A., & Jakubowski, N. (Eds.). (2014). *Sector Field Mass Spectrometry for Elemental and Isotopic Analysis*. Royal Society of Chemistry.
- Reis, A., Temba, E., Kastner, G., & Monteiro, R. (2010). Combined procedure using radiochemical separation of plutonium, americium and uranium radionuclides for alpha-spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 287(2), 567-572.
- Sadi, B. B., Li, C., Masoud, A., Ko, R., & Kramer, G. H. (2010). An emergency urine bioassay method for ²⁴¹Am by extraction chromatography and liquid scintillation counting. *Radiation Protection Dosimetry*, 157.
- Salar Amoli, H., & Barker, J. (2012). New approaches for the separation and determination of americium in soil samples using short column chromatography and alpha spectroscopy. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 293(3), 731-734.
- Schulz, W. W. (1976). *Chemistry of americium* (No. TID-26971). Atlantic Richfield Hanford Co., Richland, Wash. (USA).
- Sekine, K., Imai, T., & Kasai, A. (1987). Liquid—liquid extraction separation and sequential determination of plutonium and americium in environmental samples by alpha-spectrometry. *Talanta*, 34(6), 567-570.
- Serdeiro, N. H., & Marabini, S. (2004, May). A rapid method for determination of uranium, americium, plutonium and thorium in soil samples. In 11th International congress on the international radiation protection association, Madrid, Spain.

- Sidhu, R. S. (2003). A robust procedure for the determination of plutonium and americium in seawater. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 256(3), 501-504.
- Sill, C. W., Puphal, K. W., & Hindman, F. D. (1974). Simultaneous determination of alpha-emitting nuclides of radium through californium in soil. *Analytical Chemistry*, 46(12), 1725-1737.
- 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 Chimica Slovenica* 52, 60.
- Thakur, P., Ballard, S., & Conca, J. L. (2011). Sequential isotopic determination of plutonium, thorium, americium and uranium in the air filter and drinking water samples around the WIPP site. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 287(1), 311-321.
- Truscott, J. B., Jones, P., Fairman, B. E., & Evans, E. H. (2001). Determination of actinide elements at femtogram per gram levels in environmental samples by on-line solid phase extraction and sector-field-inductively coupled plasma-mass spectrometry. *Analytica Chimica Acta*, 433(2), 245-253.
- UNSCEAR. (2000). *Effects of Ionizing Radiation*. United Nations, New York.
- Vajda, N., & Kim, C. K. (2010). Determination of ^{241}Am isotope: a review of analytical methodology. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 284(2), 341-366.
- Vajda, N., & Kim, C. K. (2010b). Determination of Pu isotopes by alpha spectrometry: a review of analytical methodology. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 283(1), 203-223.
- Varga, Z. (2007). Application of inductively coupled plasma sector field mass spectrometry for low-level environmental americium-241 analysis. *Analytica Chimica Acta*, 587(2), 165-169.
- Varga, Z., Surányi, G., Vajda, N., & Stefánka, Z. (2007). Rapid sequential determination of americium and plutonium in sediment and soil samples by ICP-SFMS and alpha-spectrometry. *Radiochimica Acta*, 95(2), 81-87.
- Wacker, J. (2001). New advances in inductively coupled plasma–mass spectrometry (ICP-MS) for routine measurements in the nuclear industry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249(1), 103-108.
- Wang, Z., Yang, G., Zheng, J., Cao, L., Yu, H., Zhu, Y., Tagami K. & Uchida, S. (2015). Effect of ashing temperature on accurate determination of plutonium in soil samples. *Analytical Chemistry*, 87, 5511-5515.
- Warwick, P. E., Croudace, I. W., & Carpenter, R. (1996). Review of analytical techniques for the determination of americium-241 in soils and sediments. *Applied Radiation and Isotopes*, 47(7), 627-642.
- Warwick, P. E., Croudace, I. W., & Oh, J. S. (2001). Radiochemical determination of ^{241}Am and Pu (α) in environmental materials. *Analytical Chemistry*, 73(14),

3410-3416.

- Xiao, G., Saunders, D., Jones, R. L., & Caldwell, K. L. (2014). Determination of ^{241}Am in urine using sector field inductively coupled plasma mass spectrometry (SF-ICP-MS). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 301(1), 285-291.
- Yamamoto, M., Komura, K., & Sakanoue, M. (1983). ^{241}Am and plutonium in Japanese rice-field surface soils. *Journal of Radiation Research*, 24(3), 237-249.
- Yamamoto, M., Sakaguchi, A., Ochiai, S., Takada, T., Hamataka, K., Murakami, T., & Nagao, S. (2014). Isotopic Pu, Am and Cm signatures in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 132, 31-46.
- Zheng, J., & Yamada, M. (2008). Isotope dilution sector-field inductively coupled plasma mass spectrometry combined with extraction chromatography for rapid determination of ^{241}Am in marine sediment samples: a case study in Sagami Bay, Japan. *Journal of Oceanography*, 64(4), 541-550.
- Zheng, J., Tagami, K., & Uchida, S. (2013). Release of plutonium isotopes into the environment from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: what is known and what needs to be known. *Environmental Science & Technology*, 47(17), 9584-9595.
- Zheng, J., Tagami, K., Homma-Takeda, S., & Bu, W. (2013b). The key role of atomic spectrometry in radiation protection. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 28(11), 1676-1699.
- Zheng, J., Tagami, K., Watanabe, Y., Uchida, S., Aono, T., Ishii, N. Ihara, S. (2012). Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident. *Scientific Reports*, 2.

4.2.2. 高分解能質量分析装置(Element XR)の Am 分析性能調査

4.2.2.1 Aridus II-Element XR 分析装置概要

使用した機器の概要を図 4.2-6 に示す。Aridus の脱溶媒システムは超微量の長半減期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メンブラン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 メンブラン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、メンブランの多孔質壁に溶媒が取り除かれる。非揮発性成分はメンブラン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メンブラン脱溶媒モジ

ジュールに導入するが、APEX-Qでは、加熱した霧状試料を一旦冷却装置に通過させて冷却し水を結晶化させている。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および200 $\mu\text{L}/\text{min}$)、本研究では50 $\mu\text{L}/\text{min}$ のネブライザーを用いた。H26年度はこの分析システムを用いて、重要核種Puの超微量同位体測定のパフォーマンス調査を実施した。今年度は重要核種Amの超微量同位体測定のパフォーマンス調査結果を報告する。

4.2.2.2 Am分析のための分析条件の最適化

本調査において超高精度分析を進めるために、今年度はElement XRのパフォーマンス調査およびElement XRと試料導入装置を連動させた場合のパフォーマンス向上試験を行った。特に、Aridus IIの脱溶媒システムの分析条件の最適化を検討した。

Aridus IIの脱溶媒試料導入装置と高分解能質量分析装置(Element XR)を連動させ、高分解能質量分析装置のRF powerと ^{243}Am 感度の関係を図4.2-7に示す。約1 fg/mL濃度の ^{243}Am 溶液をAridus IIの脱溶媒システムに導入させ、RF powerを1000 Wから1150 Wまで上げると、 ^{243}Am 感度は徐々に上昇する。RF powerをさらに上昇させると ^{243}Am 感度は低下することが観測された。RF powerの最適条件は1150 Wであることが分かった。

Aridus IIの脱溶媒システムは試料導入方向に対してスweepアルゴンガスを逆流させて、メンブランの多孔質壁に溶媒を吸収させることで、水を除去する。揮発性成分はメンブランの多孔質壁を通過できないが、揮発した成分はドライ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。スweepアルゴンガスの流量は ^{243}Am 感度に大きく影響する。図4.2-8から分かるように、スweepアルゴンガスの流量を4 L/minから7 L/minに増やすことにより、 ^{243}Am 感度はほぼ1桁上昇する。この結果から、最適なスweepアルゴンガスの流量は7 L/minであることが分かった。さらに感度を向上させるためには、Aridus II脱溶媒システムへ N_2 ガスを導入する方法も考えられる。図4.2-8(下部)に示すように、 N_2 ガスを導入することで、 ^{243}Am 感度は2.5倍の向上することが可能である。最適なガスの流量は4 mL/minであることがわかった。この感度向上の原因は、Amの原子が電荷移動の効用によるイオン化率の向上ではない。Amの非常に低い第一イオン化ポテンシャル(5.97 eV)を考慮すると、高温プラズマ中ではAmはほぼ完全にイオン化される。したがって、この感度の改善は、Am酸化物イオン形成を最小化した結果である(Lam and Horlick, 1990; Sesi et al., 1994)。

4.2.2.3 Am分析の感度、精度及び検出限界

Am同位体標準溶液を用いて、Aridus II/SF-ICP-MSシステムにおけるAm測定のパフォーマンス、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。Am分析における本解析システムで最適化した分析条件とそのパラメータを表

4.2-6 にまとめた。測定対象の質量数は、 ^{204}Hg , ^{205}Tl , ^{209}Bi , ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am 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。

図 4.2-9 に、Aridus II 試料導入システムを用いた Am 同位体質量領域 (m/z 241-243)におけるバックグラウンドレベル(cps)と Am 同位体標準溶液 (1 fg/mL と 5 fg/mL) のマススペクトルを示す。このバックグラウンド評価においては4%の希硝酸溶液を用いた。図から分かるように、Am 同位体質量領域において低バックグラウンド (*ca.* 2 cps) を示した。さらに Am 分析の感度については、ジェットインターフェイス (Jet-interface) を使用して Element XR で測定した場合、 ^{241}Am と ^{243}Am 濃度が 1 fg/mL と 5 fg/mL の溶液における信号強度はそれぞれ約 90 cps と 450 cps であった。これらの結果は、90 M/ppb の感度に相当する (M/ppb は 1 ng/mL に対する 1 秒あたりのメガカウント値)。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。

次に、ブランク溶液 (4% HNO_3) の 10 回測定における 3 倍の標準偏差という定義に従い、分析機器の検出下限値を評価した。その結果、Am 同位体分析において 0.024 fg/mL (^{241}Am) と 0.027 fg/mL (^{243}Am) 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) 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、Am 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 0.003 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 (2008) 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 (Christl et al., 2014)。

図 4.2-10 は Am 同位体比分析の精度に Am 濃度の影響を示す。Am の濃度は 1, 5, 10, 20, 50 および 100 fg/mL を用いて、それぞれの濃度に対して、Am 同位体比分析の精度を調べた。得られた $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比の精度 (RSD %) は、極めて低い Am の濃度 1 fg/mL に対して、27% と大きいのが、Am の濃度が 5 fg/mL 以上であれば、8% 以下の良い精度が得られることが分かった。この Aridus II/SF-ICP-MS (with Jet-interface) 分析システムを用いた Am 同位体比分析の精度と確度を、同位体標準溶液 ($^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比理論値 1.0934) 10 fg/mL の測定により評価した。比較のために、APEX-Q/SF-ICP-MS (Element 2) を使用して、110 fg/mL の 1 回測定で得られた結果 (Zheng and Yamada, 2008) も示す (図 4.2-11)。Aridus II/SF-ICP-MS (with Jet-interface) 分析システムで得られた $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比の精度 (RSD %) は 1 回測定 (runs x passes : 12 x 5) で 4.6–10 % の範囲であるが、10 回測定の平均値から得られた精度は 2.0%、確度は -1.2 % であった。一方、APEX-Q/SF-ICP-MS (Element 2) 分析システムを用いた 110 fg/mL 濃度 Am 分析結果は、精度が 1.6 %、確度が 0.39 % であった。開発した方法が、低濃度で $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比測定の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。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土壌試料中

^{241}Am 分析研究に十分適応できるものである。

引用文献

- Christl, M., Dai, X. X., Lachner, J., Kramer-Tremblay, S., and Synal, H. (2014). Low energy AMS of americium and curium. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res., Sect. B 331, 225-232.
- Lam, J. W. H. and Horlick, G. (1990). A comparison of argon and mixed gas plasma for inductively coupled plasma-mass spectrometry. Spectrochim. Acta B, 45, 1313-1325.
- Sesi, N. N., Mackenzie, A., Shanks, K. E., Yang, P. and Hieftje, G. M. (1990). Fundamental studies of mixed-gas inductively coupled plasma. Spectrochim. Acta B 49, 12-14.
- Zheng, J. and Yamada, M. (2008). Isotope dilution SF-ICP-MS combined with extraction chromatography for rapid determination of ^{241}Am in marine sediment samples: a case study in Sagami Bay, Japan. J. Oceanogr. 64, 541-550.

4.2.3. DGA 抽出樹脂による Am 分離法開発

4.2.3.1 はじめに

第 4.2.2 章にまとめたように、新しい DGA 樹脂は Am に対して優れた選択性を示すが、特に、マトリクス元素(例えば、Fe, Ca)による妨害に影響されない点は有効である。しかし、この樹脂を使った Am 分離法の開発に関する報告はほとんど無い。DGA 樹脂は 2 つの種類 (DGA-N と DGA-B) が有るが、表 4.2-7 に示したように DGA-N タイプの樹脂を使った研究が報告されているだけである。

環境中の Am 研究を行うため、DGA 樹脂の利用は今後ますます進むと期待される。表 4.2-7 に示したように、文献に報告されている方法は、主に α スペクトル分析のための方法である。質量分析装置を用いた Am 分析法については、DGA 樹脂の長所を利用した方法を開発する必要がある。例えば、ほとんどの方法では DGA-N から Am を溶出するために希塩酸を用いているが、これは、質量分析装置による Am 測定において、 $^{206}\text{Pb}^{35}\text{Cl}^+$ と $^{204}\text{Pb}^{37}\text{Cl}^+$ による同重体による妨害を増加させてしまう可能性がある。このように、Am の挙動やマトリクス元素の除去、妨害元素の除去、最適な溶離溶液といった、系統的な研究が必要である。このセクションでは、ICP-MS による土壌試料中の新しい Am 測定法の開発の準備のために、DGA 樹脂の特性について調査を行った結果について報告する。

4.2.3.2. DGA 抽出樹脂による Am の吸着特性

マトリクス元素や妨害元素から Am を分離するために、様々な条件下における Am の樹脂への収着の程度について知る必要がある。文献では、硝酸

は一般的に試料溶液の通水やマトリクス元素の洗浄に用いられている。従って、我々は様々な濃度の硝酸溶液で試料を通水し、マトリクス元素を洗浄した後の Am の流出フラクションを求める実験を行った。

実験は、次のような構成で行った。2 mL の硝酸溶液にある一定量の ^{243}Am をトレーサーとして添加した。硝酸溶液の濃度は、その影響を調べるため 0.01M, 0.05M, 0.1M, 0.5M, 1M, 3M, 5M および 8M の濃度を用いた。これらの ^{243}Am スパイク溶液を DGA-N と DGA-B 樹脂に流した後、同じ濃度の硝酸溶液 10 mL を通水して、マトリクス元素をカラムから洗浄した。この実験は 3 連で行った。DGA 樹脂を通過した溶液は、それぞれの実験毎に 1 つの試料として収集し、Am 分析に供した。ICP-MS 測定の前に、溶液はまず蒸発乾固を行い、それから 1 mL の HNO_3 (TAMA pure : Tokyo, Japan) で溶解した。この溶液を再度蒸発乾固して残存している有機物を完全に分解した後、乾固物は最後に、0.6 mL の 4% HNO_3 溶液で溶解し、試料導入装置である Apex-Q と連結させた SF-ICP-MS (Element XR, Thermo fisher scientific, Bremen, Germany) で Am を分析した。

その結果を図 4.2-12 (DGA-B) と 図 4.2-13 (DGA-N) に示す。DGA-B 樹脂を用いた場合、0.5 M から 8 M の硝酸溶液で Am はほとんど溶出してこないことがわかった (0.04% - 0.38%)。このことは、ほとんど全ての Am が使用した濃度範囲の硝酸溶液では強く DGA-B 樹脂に吸着していることを示している。つまり、これらの濃度の硝酸溶液であれば、DGA-B 樹脂に対して、Am 試料溶液の通水およびマトリクス元素の洗浄に使用できる。一方、0.01 M から 0.1 M 濃度の希硝酸では、添加した ^{243}Am がほとんど流出していた (67.7% から 78.8%) が、特により薄い硝酸溶液ほど流出する割合が高かった。原則として、これらの硝酸濃度、特に、0.01 M 濃度の硝酸は DGA-B 樹脂から Am を溶離させる溶剤として使用できることがわかった。

DGA-N 樹脂の場合、色々な希硝酸条件下において、Am は DGA-B 樹脂よりも強く吸着している傾向があった。例えば、流出した Am は、0.1 M の硝酸では 1%, 0.05 M の硝酸では 38% であり、DGA-B 樹脂よりも少なかった。しかし、0.01 M の硝酸だけは、Am に対して DGA-B よりも保持能が弱い結果を示した。以上のことから、本樹脂についても、DGA-B 樹脂の場合と同様に、Am が樹脂に対して 0.5 M から 8 M の硝酸で強い親和性があることがわかった。しかし、この現象は Janda ら (2015) が報告している結果 (図 4.2-13) と矛盾している。彼らの結果は、同様の分析過程を用いて得られたものであるが、この違いについて、図 4.2-13 から、以下のことが分かる。すなわち、2 つの樹脂について検討した実験から得られた結果は、硝酸濃度が 1M 以下の場合にはおおまかに一致していた。しかし硝酸濃度が 1M を超える場合、Janda らの結果から Am の流出は劇的に増加し、3-5 M の硝酸でほぼ 100% 近くになっていた。これは、DGA-N 樹脂がこれらの濃度の硝酸では Am を吸着しないことを意味する。この結果は本研究で得た実験結果を否定するだけでなく、Horwitz ら (2005) の報告とも一致しない。Horwitz らは、Am は 1 M 以上の濃度の硝酸で強く DGA 樹脂に吸着すると述べている。さらに、表 4.2-1 に示したように、幾つかの公表された報告は、3 M または 5 M の硝酸により樹脂に通水された Am は全ての分析過程に

においてほとんど溶離しないことを示している (Guérin et al., 2011; Maxwell et al., 2011; Maxwell et al., 2015; Dulanská et al., 2015; Habibi et al., 2015; Xiao et al., 2014)。このことは、本実験で得られた DGA-N 樹脂における Am 吸着の結果はより合理的であることを示すものである。

以上の実験結果から、2つの DGA 樹脂に対して、試料溶液の通水時、マトリクス元素の洗浄と Am 溶離のための硝酸濃度条件を選択する際に必要な情報を得ることができた。特に、0.5 M から 8 M の硝酸が DGA-B 樹脂に対して試料溶液の通水と、マトリクス元素の洗浄に使用できることを明らかにした。一方、DGA-N 樹脂に対しては、0.1 M から 8 M というより広い範囲の硝酸濃度に対して Am を樹脂に効果的に吸着させることができることを明らかにした。さらにマトリクス元素による分離上の妨害が無い状態で、0.01 M の硝酸が 2つの DGA 樹脂に対して Am の溶離に使えることから、この硝酸濃度は Am の溶離溶剤としても使える可能性がある。

4.2.3.3. DGA 抽出樹脂上妨害元素の吸着特性

上述の実験において、Am 分離が DGA 樹脂を用いて行える条件を得ることができた。すでに DGA-N 樹脂におけるマトリクス元素の洗浄効果については Pourmand and Dauphas (2010)によって十分に調査されている。その詳細は第 4.2.1.3 章に記載しているもので、そちらを参照されたい。しかしながら、分析および測定上妨害となる元素が DGA-B 樹脂から効率的に除去できるかどうかは分かっていない。そこで様々な濃度の硝酸による DGA-B 樹脂からのマトリクス元素の除去に関する実験を行った。実験の設定条件はこれまで述べてきたものと同じであるが、添加したのは ^{243}Am に代わって、U, Tl, Hg および Pb 等の測定上妨害となる元素である。様々な濃度の硝酸溶液を用いた溶離液を ICP-MS で測定することにより、溶出挙動を得た。結果を図 4.2-14 に示す。この図から、それぞれの元素に対して推奨される洗浄溶液が明らかとなった。

図 4.2-14 において、U は 3-8 M 濃度の硝酸では樹脂に対して強い保持能を示すが、より薄い濃度では溶離することから、洗浄効果が増加していることが分かる。ほとんどの U は 0.5-1 M の硝酸で洗浄可能であった。Pb については、U とは異なった濃度に対する保持能のパターンを示した。実験結果から、0.5 M, 5 M および 8 M の硝酸で十分に DGA-B 樹脂から Pb を溶離することが出来ることが分かる。Tl の場合、全ての濃度の硝酸 (0.5 - 8 M) で良好な洗浄効果が認められた。Hg の洗浄では、硝酸濃度が濃くなるほど DGA-B 樹脂への収着能が低下した。このことは、試料溶液を樹脂に通水して Am を吸着させる一方で、Hg は分離できてしまうことを示している。この結果から、0.5 - 1 M の硝酸は U の洗浄に、0.5 M と 5-8M の硝酸は Pb の洗浄に、0.5 - 8 M の硝酸は Tl の洗浄に、5-8 M の硝酸は Hg の洗浄に用いることができることがわかった。

4.2.3.4. Am の溶離条件の検討

試料溶液中の Am を樹脂に収着させ、適切な濃度の硝酸溶液を用いてマトリクス元素を除去した後は、通常 Am を樹脂から溶離しなければならない。原則

として、希塩酸、硝酸および臭化水素 (HBr) は、DGA 樹脂から Am を溶離することが出来ると報告されている (Gharibyan ら, 2014)。しかし、実際の試料の分析では、流出中に ^{241}Am 測定において妨害となる分子イオンを生成する元素の溶出を避けることに注意する必要がある。例えば、Am と希土類元素はよく似た挙動を示すので分離しにくい、特にジスプロシウム (Dy) は分子イオンである $^{162}\text{Dy}^{79}\text{Br}$ を形成する。そのため溶離液として HBr 溶液を用いると妨害イオンを発生させることになることから、実試料の測定には向かない。さらに、上述したように、塩酸の利用は $^{206}\text{Pb}^{35}\text{Cl}$ と $^{204}\text{Pb}^{37}\text{Cl}$ を形成することで妨害イオンとなる可能性がある。したがって、本研究においては、DGA 樹脂からの Am の溶離は 0.01 M HNO_3 を使用することにする。

実際の試料について 2 つの樹脂からの Am の溶離について、0.01 M の硝酸を用いて Am 溶離効率を評価するためにさらなる研究を実施した。実際の試料は、堆積物 (NIST-4357) を用いた。DGA-N と DGA-B 樹脂の溶離曲線をそれぞれ図 4.2-15 と 図 4.2-16 に示す。0.01 M 硝酸は、DGA-B 樹脂から Am を良く溶出する結果を示している。しかし、DGA-N 樹脂については、0.01 M の硝酸では実際の試料から効果的に Am を溶離することはできなかった。これを説明するには 2 つの理由が考えられる。一つは DGA-N 樹脂は希硝酸溶液条件においてより強い Am の保持能を持っていることである。Horwitz ら (2005) は、DGA-N 樹脂に対しては希塩酸溶液が効果的に Am の溶離に用いることができると報告している。しかし、DGA-B 樹脂に対しては、Am の溶離に希硝酸溶液を用いることができると提案している。2 つめに、実試料のマトリクス元素は DGA-N 樹脂からの Am 溶出に対して負の影響を及ぼしていることである。以上の結果から、DGA-B 樹脂は 0.01 M の硝酸を用いた Am の溶離に優れた選択性を有することが分かる。したがって、以下の実験においては、DGA-B 樹脂を選択することとした。

抽出樹脂から一緒に流出する可能性がある有機物を除去するために、プレフィルターと呼ばれている樹脂を用いて、流出溶液の濾過を行うことがある。そこで、DGA-B 樹脂に対する Am 回収率に及ぼすプレフィルターの影響を評価した。その結果を図 4.2-17 に示す。プレフィルターを付けた後、0.25 M の塩酸溶液と 0.01 M 硝酸溶液による Am 回収率が 4-13% 増加した。この増加は、恐らく ICP-MS による測定における有機物による妨害を除去出来たことによるものと思われる。故に、プレフィルター処理を本方法に追加することとした。

4.2.3.5. UTEVA 抽出樹脂を用いた Pu と U の分離

開発した分析方法において、可能な限り Pu の除去を行いつつ、U の除染係数を高めるために、UTEVA 抽出樹脂による分離を DGA-B 樹脂の上に組み込んだ。UTEVA 抽出樹脂は U と Pu に対する優れた吸着特性を有することが知られている。Eichrom (2013) によると、UTEVA 抽出樹脂の Pu (IV) および U (VI) の保持能 k' は、硝酸濃度の増加とともに増加し、2 M 以上の硝酸溶液の場合 100 を超えている (すなわち、強く吸着するということである。) 逆に、Am はどのような濃度の硝酸溶液でも UTEVA 抽出樹脂には保持されない。この特性を利

用するために、試料溶液の溶媒には 8 M の硝酸溶液を選択して樹脂カラムに通水した。試料を通水した後、UTEVA 抽出樹脂カートリッジを廃棄し、残った DGA-B 樹脂カートリッジのマトリクス元素の洗浄を行った。その結果、UTEVA 抽出樹脂を追加したことによって、ICP-MS 測定における Pu と U の検出シグナルは明らかに減少したことがわかった。特に、IAEA-soil-6 の土壌試料 2.5 g に対して、 ^{238}U から得られたシグナル強度は 10^7 (cps) から 10^4 (cps) になった。同様に、 ^{239}Pu のシグナル強度は 10^3 (cps) から 10^2 (cps) に減少した。これらの結果は、UTEVA 抽出樹脂によって Pu と U を効率的に除去できたことを示している。

4.2.3.6. まとめ

これまで述べてきた議論を基に、土壌中のマトリクス元素および妨害元素からの Am 分離に関する化学手法を確立することが出来た。分離法全体は図 4.2-18 に示した。操作の詳細は以下の通りである。

・UTEVA 樹脂カートリッジを上にして DGA-B 樹脂カートリッジと連結する。次に、これらのカートリッジの通水を補助するためのバキュームボックスにセットする。さらに溶液をカートリッジに連続的に入れられるように 20 mL のカートリッジ用リザーバーや自立を補助するサポートチューブ、廃液容器などをセットする。

・8M の硝酸溶液 10 mL で樹脂を前処理し、溶液流速は 2 mL/min (approx. 2 drop/second) に調整する。

・試料溶液(15-25 mL) [8M の硝酸溶液] を遅い流速、約 1 mL/min (approx. 1 drop/second) でカラムに通水する。通水中に、アルカリ、アルカリ土類金属、Hg のほとんどと Pb の一部はこれら 2 つの樹脂には保持されない。一方、Pu とほとんどの U は UTEVA 樹脂に保持される。結果として、Pu と U は DGA-B 樹脂に到達しないため、この樹脂に保持される Am と分離することができる。

・試料を通水後、UTEVA 樹脂を除去し、マトリクス元素の洗浄と Am 溶離のために DGA-B 樹脂だけを残す。

- 3 M の硝酸 15 mL により、DGA-B 樹脂から Ir と Tl を除去する。流速は、2 mL/min である。
- 1 M の硝酸 15 mL により、DGA-B 樹脂から U および Tl を取り除く。流速は、2 mL/min である。
- 0.5 M の硝酸 10 mL により、DGA-B 樹脂から U、Tl および Pb を取り除く。流速は、2 mL/min である。
- 最後に、0.01 M の硝酸 25 mL により、DGA-B 樹脂から Am を溶離する。流速は、1 mL/min である。溶離中に、残っている Pu は DGA-B 樹脂に保持される。
- 溶離液を ICP-MS 測定に用いる。

引用文献

- Dulanská, S., Bilohuščin, J., Remenec, B., Galanda, D., & Mátel, L. U. (2015). Determination of ^{239}Pu , ^{241}Am and ^{90}Sr in urine using pre-filter material and combined sorbents AnaLig® Pu-02, AnaLig® Sr-01, DGA® Resin. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 304(1), 127-132.
- Eichrom. (2013). Eichrom technologies' product catalog for 2013. <http://www.eichrom.com/PDF/eic-2013-product-catalog.pdf> (obtained on 2015/12/06).
- Gharibyan, N., Dailey, A., McLain, D. R., Bond, E. M., Moody, W. A., Happel, S., & Sudowe, R. (2014). Extraction Behavior of Americium and Curium on Selected Extraction Chromatography Resins from Pure Acidic Matrices. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 32(4), 391-407.
- Guérin, N., Calmette, R., Johnson, T., & Larivière, D. (2011). Multi-dimensional extraction chromatography of actinides for alpha and mass spectrometry. *Analytical Methods*, 3(7), 1560-1567.
- Habibi, A., Boulet, B., Gleizes, M., Larivière, D., & Cote, G. (2015). Rapid determination of actinides and ^{90}Sr in river water. *Analytica Chimica Acta*, 883(9), 109-116.
- Horwitz, E. P., McAlister, D. R., Bond, A. H., & Barrans Jr, R. E. (2005). Novel extraction of chromatographic resins based on tetraalkyldiglycolamides: characterization and potential applications. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 23(3), 319-344.
- Janda, J., Sas, D., & Tokárová, A. (2015). Characterization of the extraction properties of the selected extraction sorbents TRU, TEVA, UTEVA and DIPHONIX. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 304(1), 301-312.
- Maxwell, S. L., Culligan, B. K., Kelsey-Wall, A., & Shaw, P. J. (2011). Rapid radiochemical method for determination of actinides in emergency concrete and brick samples. *Analytica Chimica Acta*, 701(1), 112-118.
- Maxwell, S. L., Culligan, B., Hutchison, J. B., & McAlister, D. R. (2015). Rapid fusion method for the determination of Pu, Np, and Am in large soil samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1-10.
- Pourmand, A., & Dauphas, N. (2010). Distribution coefficients of 60 elements on TODGA resin: application to Ca, Lu, Hf, U and Th isotope geochemistry. *Talanta*, 81(3), 741-753.
- Xiao, G., Saunders, D., Jones, R. L., & Caldwell, K. L. (2014). Determination of ^{241}Am in urine using sector field inductively coupled plasma mass spectrometry (SF-ICP-MS). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 301(1), 285-291.

4. 3. Puの土壌-農作物の環境移行パラメータ

4.3.1. はじめに

地球の年代と比べると、Pu 同位体は比較的短い半減期であるために自然界には存在しない。近年、環境中に ^{239}Pu ($T_{1/2} = 2.4 \times 10^4 \text{ y}$), ^{240}Pu ($T_{1/2} = 6.5 \times 10^3 \text{ y}$) そして ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14.4 \text{ y}$) が存在しているが、それは核実験や核事故などによる人類の活動の結果である(UNSCEAR, 2000)。陸域環境において、人工の Pu は主に土壌に沈着し、そして、生態系内で移動する。例えば、Pu は経根吸収により作物に入り、その結果、食品中に含まれることになる。Pu は内部被ばくによる影響が大きい核種であることから、放射線影響評価のために土壌から作物への移行を調査することは重要である。放射性核種の土壌から植物への移行は、土壌-植物間移行係数 (TF) で評価される。TF は植物中の放射性核種濃度(Bq/kg dry weight)と土壌中濃度(Bq/kg dry weight)の比と定義されている(ICRU, 2001)。

2010年に国際原子力機関(IAEA)は technical reports series No. 472 (TRS 472) を出版した。この本には、文献調査により天然放射性核種や人工放射性核種の報告されている TF が纏められている(IAEA, 2010)。しかし、この本では、Pu の TF 値は非常に限定されており、米(一般的な水稻)や果物のような作物種の TF 値は入っていない(Wang et al., 2015a)。米はアジアの主要作物として重要であり、土壌-米間移行係数データが必要である。

日本においては、2つの局地的な Pu の沈着が環境中で観察されている。1つは、1945年の長崎の原爆によるもの(Yamamoto et al., 1983)であり、もう一つは、2011年に起きた福島原子力発電所事故によるものである(Zheng et al., 2012)。どちらの地域においてもグローバルフォールアウトに比べて著しい土壌中濃度の上昇は見られていない。しかし、Pu による内部被ばくが重要との認識から、TF は重要視されている。この TF については、土壌タイプ、気象条件等、幾つかの環境要因により支配される可能性がある(IAEA, 2010)。しかしながら、我が国の実環境中における TF データがないことから、我が国の環境下における Pu の人への移行についてはほとんど報告がない。

本研究では我が国で採取された農耕地土壌とそこで栽培された米について、化学分離を行って SF-ICP-MS により Pu を測定することにより、実環境中における Pu-TF を求めた。

4.3.2. 試料の前処理

4.3.2.1. 測定試料

Pu の土壌-米間移行係数 (TF) の調査において、福島第一原子炉発電所事故前に日本の5つの県の水田から採取した玄米と土壌試料(5点、試料番号 No.1 から No.5)を用いた。試料採取場所は図 4.3-1 に示す。また、福島第一原子炉発電所事故の2013年に、福島県北西方向のセシウム汚染地域(JAEA, 2013)における土壌-農作物間移行係数の調査のために、土壌試料(11点、試料番号 No.6-9; No.11-17)シイタケ菌床試料(1点、試料番号 No.10)、及び農作物(シイタケ、キュウリ、ジャガイモ、ダイズ、キャベツ、カボチャ等、合計10点)を測定試料として用いた。Pu 分析のクオリティ・コントロールのため、土壌標準物質試

料 IAEA Soil-6 を用いた。

4.3.2.2. 試薬

実験に使用したすべての試薬 (HCl, HNO₃, NaNO₂, NH₄I, H₂O₂, HBr, H₃BO₃, NH₃, FeCl₃) は分析用レベルである。イオン交換樹脂は Bio-Rad 社製の 2 種類のイオン交換樹脂, AG 1X8 (100-200 mesh, Cl⁻ form) と AG MP-1M (100-200 mesh, Cl⁻ form), を用いた。試料には ²⁴²Pu (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 MΩ cm⁻¹) である。²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比認定値付き(0.242)の混合 Pu 同位体標準溶液 (NBS-947) 用いて, マスバイアス補正に使用した。

4.3.2.3. Pu の化学分離と分析

土壌試料の Pu 分析では, H25 年度に本事業で開発した土壌 Pu 分析法を用いた。まず土壌試料 1-3g を秤量し, 約 1 pg の ²⁴²Pu 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において H26 年度調査で得られた最適化温度 450⁰ C (Wang et al., 2015b) に設定して, 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う。そこで, 密閉可能な 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, 上澄み液をガラス繊維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, この洗液もビーカーに移した。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 HNO₃ 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。

この試料溶液を開発した二段階陰イオン交換クロマトグラフィー分離法を用いて, Pu の分離と精製を行い, 最後に 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 (Bu et al., 2014)。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。

農作物については, 灰化試料約 10g に約 1 pg の ²⁴²Pu を回収率モニターとして各試料に添加した。上述土壌に用いた方法と同じ方法で Pu の分離と精製を行い, SF-ICP-MS 測定用の試料を作成した。

米試料については, H26 年度に開発した米 Pu 分析法を用いた。Pu の分離と精製工程詳細は, H26 年度事業報告書第 4.2.3.5 を参照されたい (放射線医学総合研究所, 2015)。

土壌中の Pu 分析のために, SF-ICP-MS(Element XR)と APEX-Q で測定を行っ

た。農作物と米試料中の Pu 分析については、SF-ICP-MS(Element XR)と Aridus II で測定を行った (Zheng, 2015)。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 0.02 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。SF-ICP-MS を用いて、Pu 測定の詳細は H26 年度事業報告書の表 4.2-1 を参照されたい (放射線医学総合研究所, 2015)。

4.3.3. 結果および考察

4.3.3.1. 土壌サンプル中の Pu 汚染源の識別

プルトニウムは人類活動から環境に導入されることがよく知られている。日本の環境については、いくつかのプルトニウム汚染源が報告されている。すなわち、1945 年に長崎に降下された原子爆弾に由来する Pu 同位体汚染 (Yamamoto et al., 1983; Saito-Kokubo et al., 2008), 1950 年代後半から 1960 年代前半のグローバルフォールアウト汚染 (UNSCEAR, 1982; Kelley et al., 1999), 中国の大気圏内核実験による比較的ローカルな汚染, また、2011 年に起きた福島第一原子力発電所事故による微量 Pu 同位体汚染 (Zheng et al., 2012) である。Pu の汚染ソースを区別するために、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の原子比を、ソースフィンガープリントとして使用できる。表 4.3-1 に示すように、これらの Pu 汚染源の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比は明らかに異なっていることが分かる (中国の核実験の影響については、グローバルフォールアウトに含むこととする)。したがって、収集された土壌試料の Pu 汚染源識別は、それらの $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比を調べることによって可能となる。

$^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の測定結果を表 4.3-2 に示す。調査した秋田、新潟、富山と岐阜の土壌の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.162 から 0.182 の範囲であり、それら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事がわかる。

長崎で採取された土壌試料については、長崎原爆によって汚染された可能性があるが、本調査で得られた $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の原子比 (0.160 ± 0.011) は、報告されている長崎原爆に起因する Pu 比の値 (0.028 から 0.037) よりもはるかに高く、グローバルフォールアウトの比に近い。これは、この土壌サンプルに含まれる Pu は、主にグローバルフォールアウト起源であり、長崎原爆による汚染は無視できる程度であるといえる。

日本原子力研究開発機構による調査 (JAEA, 2013)によると、福島事故由来 Pu が FDNPP サイトから 50km 以上離れた地域で観測されている。本研究では、FDNPP サイトから離れた広い地域 (10km 未満から 100km まで、図 4.3-1) で採取した 11 点の畑土壌サンプル (No.6-No.9, No. 11 and No.17) も分析した。これら畑土壌の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.163 から 0.197 の範囲であった。福島の原発事故により環境中に放出された Pu は調査した土壌サンプルには観

されなかった。これは、おそらく福島原発事故から放出された Pu が微量であること、また、畑土壌を耕すことによって、グローバルフォールアウト Pu と混合し相対的に希釈されたと考えられる。不均一に存在している可能性もあるが、本研究では 11 地点を分析したことを考えると、原発事故由来の影響は、ごく低い頻度でしか観察されない可能性がある。

本研究において分析した全ての土壌試料中の主な Pu 汚染源は、グローバルフォールアウト Pu である。また、本研究で得られた $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、これまでに報告されている日本の農耕土や森林土の典型的なグローバルフォールアウトの Pu 濃度 (Muramatsu et al., 2003) の範囲内であった。

4.3.3.2 農作物中 Pu 濃度

土壌サンプル中の Pu 濃度に比べて、農作物試料の Pu 濃度は相対的に低いため、農作物試料中の Pu の測定はより困難である。この問題を克服するために、大量の農作物試料を Pu 測定試料調製のために使用した。しかし、サンプルサイズが大きくなれば、よりマトリクスも多くなり、Pu の化学的分離において回収率が低下する。本研究において、農作物サンプルの典型的な Pu の回収率は土壌サンプル(45-76%)より、はるかに低く、約 20~30%であった。したがって、ICP-MS 測定で ^{239}Pu と ^{240}Pu 信号強度は低かった。特に、 ^{240}Pu の信号強度は極めて低く、バックグラウンドに近い値であった。そこで表 4.3-3 に示すように、農作物試料では ^{239}Pu 濃度のみを報告することとした。農作物試料 No. 11 から No. 16 については、Pu 濃度は極めて低いため、 ^{239}Pu 濃度も正確に測定できなかったため、推定最大濃度のみを示すにとどめた。

表 4.3-3 から分かるように、カボチャ、食用菊、大豆、および柿の ^{239}Pu 濃度は、 $1.14 - 6.85 \times 10^{-5} \text{ mBq/g}$ の範囲であり、土壌試料より約 4 桁低い。菌床で育ったシイタケ試料については、ほかの農作物よりすこし高い ^{239}Pu 濃度 ($3.04 \times 10^{-4} \text{ mBq/g}$) であった。米試料については、最も低い ^{239}Pu 濃度 (4.48×10^{-6} から $19.3 \times 10^{-6} \text{ mBq/g}$ の範囲) であり、平均値は $9.90 \times 10^{-6} \text{ mBq/g}$ である。

4.3.3.3. Pu の土壌-米間移行移行係数

前述したように、Pu の土壌-米間移行係数のデータは、ほとんど報告されていない。本研究では、新たなデータが水田から採取された米サンプルおよびそれらに対応する土壌サンプルの ^{239}Pu 濃度を分析することによって得られた。この Pu はグローバルフォールアウト起源の Pu である。表 4.3-3 に示すように、Pu の土壌-米の TF は 2.0×10^{-5} から 8.2×10^{-5} の範囲であり、その平均値は 3.7×10^{-5} であった。以前に公表されたデータ (表 4.3-4) と、これらのデータを比較すると、本研究における TF データが 1~2 桁低いことがわかった。これはおそらく、異なる Pu のソース及び採取地点環境が影響した結果と考えられる。また、表 4.3-4 に示すように、以前報告されたデータはいずれも $^{239,240}\text{Pu}$ 汚染サイト (Duffa ら, 2002)、核実験サイト (Zhang ら, 1989) または ^{238}Pu のスパイク実験により (Adriano et al., 1981) 得られたものである。汚染地域から得られた移行係数には、土壌-米間の移行以外のプロセス、例えば、re-suspension と表面

汚染などにより (Wang et al., 2015a), 米試料中の Pu 濃度が上昇するために過大評価される可能性がある。これに対し, 本研究によって示されたデータは, 汚染された地域の実験ではなく, 実環境中の非汚染水田から得られたものである。

IAEA TRS472 では, Pu の土壌-米間 TF データは提示されていないが, 土壌-穀物 (穀物, 食用部分) 間 TF データについては幾何平均値 (GM) は 9.5×10^{-6} (N=105) であると報告されている。作物の中で, 米は穀類に分類されるため, このデータは Pu の土壌-米間 TF の類似情報と考えられる。本研究で得られた土壌-米間 TF データの GM 値 (3.2×10^{-5}) と TRS-472 に報告されている土壌-穀物間 TF データの GM 値 (9.5×10^{-6}) を比較すると, 約 3 倍の差があることがわかった。二つのデータセットは, 異なる作物の種類, 土壌の種類であるため, 3 倍の変化は有意でないと考えられる。そのため, 本研究で得られた 6 のデータは信頼性があり, Pu の土壌-米間 TF データベースへ補完することができると考えられる。しかし, 将来的にこのデータベースをさらに充実させるためには, 我が国の様々な地域で採取した土壌-米間 TF を蓄積してゆく必要がある。

4.3.3.4. Pu の土壌-農作物間移行係数

Pu の土壌-農作物間 TF データも表 4.3-3 に示したように, それぞれ, カボチャ (2.9×10^{-4}), 大豆 (6.7×10^{-4}), 柿 (1.1×10^{-4}), 食用菊 (7.5×10^{-4}) およびキノコ (2.3×10^{-1}) が得られた。野菜や果物の TF データは, 10^{-4} 桁であり, 土壌-米間の TF 値により一桁高いことがわかった。分析したすべての農作物の中で, キノコの TF は, 他の作物よりも約 3~4 桁高い値を示した。この現象は, 報告された知見, すなわち, キノコが放射性核種に対して, 高い蓄積する能力を持つという報告と一致している (IAEA, 2009)。しかし, キノコの場合は培地が他の作物と異なり, 土壌ではないので, 単純に他の作物と TF を比較することは困難であり, Pu の化学形態が土壌中と異なっていると考えられる。しかしながら, まだデータ数が少ないため, さらにデータを収集する必要がある。

本研究で得られた Pu の土壌-農作物間 TF データを TRS-472 に掲載された値と比較する。図 4.3-2 に, IAEA が報告している葉菜類, 非葉菜類, マメ科の野菜類やキノコに対応する TF データ範囲とデータ数を示す。TRS-472 では土壌-フルーツ間 TF データがないため, 果物のデータはプロットしていない。比較のため, 図 4.3-2 に本研究で得られた土壌-農作物間 TF データをプロットした。本研究で得られた TF 値はキノコを除くすべての種に対して IAEA が報告している値よりも高いが, その変動は 1 桁以内である。この理由として 2 つの可能性が考えられる。1 つは, 土壌の種類や植物栽培法の違いが影響している。もう一つは, 図 4.3-2 に示したように, IAEA のデータ (Pu) 範囲は非常に限られたものであり, TF の推奨値の代表性が低い可能性がある。土壌-米の移行も似たような状況であり, したがって, 本研究で得られたこれらの報告値は, データの拡充という観点で重要であり, 様々な条件のデータセットとして提供するためにも, さらにデータを追加する必要がある。

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. Sci.* 132(1), 83-88.
- Bu, W.T., Fukuda, M., Zheng, J., Aono, T., Ishimaru, T., Kanda, J., Yang, G.S., Tagami, K., Uchida, S., Guo, Q.J., Yamada, M. (2014). Release of Pu isotopes from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident to the marine environment was negligible. *Environ. Sci. Technol.* 48(16), 9070-9078.
- Duffa, C., Renaud, P., Goutelard, F. (2002). Activities and transfers of Pu and Am in rice samples from Camargue, France. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 252 (2), 247-248.
- IAEA (2009). Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA TECDOC-1616, Vienna.
- IAEA (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. IAEA-TRS-472, Vienna.
- ICRU (2001). International commission on radiation units and measurements, Quantities, units and terms in radioecology, ICRU Report 65, J. ICRU 1/2.
- JAEA (2013). <http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat03/pdf06/1-8.pdf> (obtained on 2015/11/02).
- Kelley, J.M., Bond, L.A., Beasley, T.M. (1999). Global distribution of Pu isotopes and ²³⁷Np. *Sci. Total Environ.* 237, 483-500.
- Muramatsu, Y., Yoshida, S., Tanaka, A. (2003). Determination of Pu concentration and its isotope ratio in Japanese soils by HR-ICP-MS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 255(3), 477-480.
- Saito-Kokubo, Y., Yasuda, K., Magara, M., Miyamoto, Y., Sakurai, S., Usuda, S., Yamazaki, H., Yoshikawa, S., Nagaoka, S., Mitamura, M., Inoue, J., Murakami, A. (2008). Depositional records of plutonium and ¹³⁷Cs released from Nagasaki atomic bomb in sediment of Nishiyama reservoir at Nagasaki. *J. Environ. Radioactiv.* 99, 211-217.
- UNSCEAR (1982). Ionizing Radiation: Sources and biological effects. In United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1982 Report to the General Assembly, New York.
- UNSCEAR (2000). Sources and effects of ionizing radiation, New York.
- Wang, Z.T., Zheng, J., Tagami, K., Uchida, S. (2015a). Newly derived transfer factors for Th, Am, Pu, and Cl since publication of IAEA TRS No. 472: a review. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 306 (1), 11-20.
- Wang, Z.T., Yang, G.S., Zheng, J., Cao, L.G., Yu, H.J., Zhu, Y.B., Tagami, K., Uchida, S. (2015b). Effect of ashing temperature on accurate determination of plutonium in soil samples. *Anal. Chem.* 87, 5511-5515.
- Yamamoto, M., Komura, K., Sakanoue, M. (1983). Discrimination of the plutonium due to atomic explosion in 1945 from global fallout plutonium in Nagasaki soil.

- J. Radiat. Res. 24, 250–258.
- Zhang, J.J., Wei, J.G., Xu, H., Zhou, W.L. (1989). The plutonium (Pu) radiation level in food in the residential areas around the nuclear testing site in Xinjiang. Res. Environ. Sci. 2(2), 27 – 31 (In Chinese).
- Zheng, J., Tagami, K., Watanabe, Y., Uchida, S., Aono, T., Ishii, N., Yoshida, S., Kubota, Y., Fuma, S., Ihara, S. (2012). Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident. Sci. Rep. 2, 304.
- Zheng, J. (2015). Evaluation of a new sector-field ICP-MS with Jet Interface for ultra-trace determination of Pu isotopes: from femtogram to attogram levels. J. Nucl. Radiochem. Sci. 15(1) (2015) 7-13.
- 放射線医学総合研究所 (2015). 平成26年度放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化開発. 千葉.

4. 4. 土壤中塩素の超高精度分析開発

4.4.1 はじめに

塩素-36 (^{36}Cl) は物理学的半減期 30.1 万年の長半減期核種であり、安定同位体である ^{35}Cl (天然存在度 75.78%) の中性子放射化によって生成される。陰イオンで存在することから地質環境中や生活圏において易動性が高く放射性廃棄物処分の安全評価において重要核種とされている。 ^{36}Cl の土壌-農作物間移行係数 (TF) はデータが少ないことから収集の必要があるが、 ^{36}Cl の TF は安定塩素をアナログとすることで代用できることがわかっている (放射線医学総合研究所, 2014)。一般に塩素は中性子放射化法により測定できるが、この分析法は原子炉が必要であり、容易に計測することができない。また、イオンクロマトグラフィを用いることで水溶液中 (中性) の溶液中の塩素濃度定量は行うことができるが、固体試料の分析は困難である。固体試料の溶解には酸やアルカリ試薬を用いることが多く、それらが妨害になってイオンクロマトグラフィでの計測はできない。

近年では、ICP 発光分光分析 (ICP-OES) が塩素分析に使用され始めたが、検出下限値は 4-5 mg/L である (Wheal and Palmer, 2010)。仮に土壌試料 100 mg を、塩素を含まない無機酸試薬 (硝酸等) により溶解し、20 mL に定容した場合、元の試料中濃度に比べて 200 倍に希釈されていることになるが、これらの結果から、試料中に含まれる量として 1000 mg/kg が検出下限値となる。土壌中濃度として数十~数百 mg/kg であることから (Yuita, 1982a, 1982b, 1983)、測定できない。より低い検出下限値の分析法を開発する必要がある。

そこで以下にトリプル四重極 ICP-MS の適用と、測定のための試料溶液化について追加の検討を行い、土壌と作物試料を分析して移行係数を求めた。

4.4.2. ICP-質量分析装置 (ICP-MS) による塩素分析条件について

ICP-MS (8800, Agilent) は四重極質量篩部 (mass または MS) を 2 つもち、その間にリアクションセルを配する装置であり、Triple Q と呼ばれる (図 4.4-1)。一般の ICP-MS は四重極質量篩部 1 つでイオン化した元素の質量を分け、検出器で測定するので検出器までの透過率が高い。Triple Q ではこのような一般的な使い方も Single mass モード (他の機能を使わない) でできるが、2 つの四重極質量篩部を使う MS/MS モード、さらにはリアクションセルにリアクションガスを用いて化学変化を起こしてから測定する方法も用いることができる。

塩素測定の最適条件を検討するために、下記のような組み合わせの測定を行った。

Reaction gas mode	Single mass	MS/MS	MS/MS
Non-gas	○ (35)	○ (35->35)	○ClO (35->51)
He	○ (35)	○ (35->35)	○ClO (35->51)
O ₂	-	○ (35->35)	○ClO (35->51)
H ₂	-	○ (35->35)	○ClH ₂ (35->37)

(かっこ内は測定質量数)

各測定条件は以下の通りである。

Single mass (non-gas) は通常モードであり、質量数 35 を 1 度だけ選択する。妨害イオンも含めた通過イオン数が多いため、バックグラウンドも高い。

Single mass + He では、リアクションガスの導入で選択した質量数のイオン透過率（特に低分子側）を下げることができ、バックグラウンドを減らせる。

MS/MS モード (non-gas) は、質量数 35 を通過させた後、再び質量数 35 を選択することで、より選択性の高い測定ができる。カウント数が減少し、バックグラウンドも減らせる方法である。

MS/MS + He は、透過率を下げた上で、さらに質量数 35 を選択するのでバックグラウンドが低い。

MS/MS + O₂ は、質量数 35 を通過したイオンの中で、O₂ とリアクション性の高いイオンを除去し、再び質量数 35 を選択するので、バックグラウンドが低い。ただし、塩素の測定において妨害となるイオンはほとんどないので、He の時と同様の効果があると考えられる。

MS/MS + H₂ は、H₂ をリアクションガスとして導入しており、O₂ の時と同様であるが、He の時と同様の効果があると考えられる。

MS/MS モード (35->51) (non-gas) は、最初の四重極質量篩部で 35 を選択し、次の mass で酸素 (¹⁶O) とリアクション後の ³⁵Cl¹⁶O を想定して質量数 51 を選択する方法であり、リアクションガスを導入していないことから、³⁵Cl¹⁶O の生成率が低く、カウント数が得られないはずであり、したがって、検出下限値が高いと考えられる。

MS/MS モード (35->51) + He は、リアクションガスとして He を入れることから、³⁵Cl¹⁶O が生成せず、カウント数が得られないため、検出下限値が高いと考えられる。

MS/MS モード (35->51) + O₂ は、³⁵Cl¹⁶O の生成を想定している。生成量が低いため、バックグラウンドカウントが著しく低い。

MS/MS モード (35->37) + H₂ は、³⁵Cl¹H₂ の生成を想定したものである。³⁵Cl¹H の生成が多いはずだが、質量数 36 にはプラズマ生成で使用されるアルゴンの同位体 ³⁶Ar (天然存在度 0.3365%) があるため、選択しない。

各条件において、Cl または反応生成物を測定し、0-10 mg/L の標準溶液 (0, 0.08, 0.4, 10ppm) の測定 2 回の結果を用いて装置の検出下限値を求めた。その結果を表 4.4-1 に示す。最も DL が低いのは MS/MS + H₂ モード (35 -> 37) の 0.13 mg/L であり、続いて MS/MS + He (35 -> 35) であった。条件を決定するための一連の測定において、Cl カウントの安定性が悪く、より低い検出下限値を得ることができなかつたが、2 回の測定結果を用いず、1 回の標準溶液測定結果を用いれば数十 μg/L 検出下限値が低かつた。すなわち、注意しなければならないのは、塩素の測定値の安定性である。この測定と同時に Br と I も測定を行ったが、どちらも安定性が良く、良い検出下限値が得られている (表 4.4-2)。したがって、塩素測定時の安定性を確保することが重要である。

以上の結果の中から、Br や I も同時に計測することを考慮し、MS/MS + He (35 → 35) を選択した。このモードで測定したとき、装置安定性が良い場合に 0.01-0.06 mg/L の低い検出下限値が得られた。また、イオンクロマトグラフィにより定量した土壤溶液試料を ICP-MS により適用した条件で測定を行い、結果を比較した (図 4.4-2) と同様、良く一致しており、本分析条件で塩素を正確に分析できることがわかった。

4.4.3. 塩素分析のための土壤試料の溶液化について

土壤溶液化について TMAH を用いて検討した結果 (放射線医学総合研究所, 2015), 岩石試料の場合は有機物結合塩素濃度が低いことが影響し、良い定量結果が得られなかった。そこで、硝酸抽出法および加熱気化法について検討を行った。

加熱気化法については、昨年度 1 分間加熱気化による分析では不十分であるとの結論から、新たに加熱気化装置 (図 4.4-3) を作成し、関谷ら (2010) が記載しているように 1000°C で 30 分間、酸素気流下で加熱し、超純水にトラップし、トラップ液を ICP-MS で測定した。試料には JSd-1, JSd-3 (河川堆積物) を用い、200 mg を燃焼ボードに乗せ、管状炉が 500°C に達した段階で試料を石英管内に封入し、上流側から酸素気流を流し、下流において洗气瓶にてトラップした。

硝酸抽出では、Cl の他に Br, I を測定できるかどうか確認するために、小型密封 PTFE 容器を用い、試料 100 mg に対し 8M 硝酸 (超高純度 Tamapure AA-100 より作成) を 3 mL 点かし、140°C において 3 時間加熱抽出を行った。

2 つの抽出法による定量結果を表 4.4-3 に示す。加熱気化法では JSd-1 は定量が難しく、JSd-3 は放射化法に比べて 1/5 程度の濃度となった。Br および I も定量結果は硝酸抽出法等に比べて低い。試料は堆積物であり、溶解性の高いハロゲン元素はすでに失われている。残留している画分は鉱物中に結晶質として含まれていると考えられる。したがって、加熱しても容易に揮散しなかった可能性がある。また、ヨウ素分析の場合には五酸化バナジウム等の酸化剤を添加しているが、単に堆積物を加熱しただけではハロゲン元素は揮散しない可能性がある。したがって、昨年度得られた結果と同様に、堆積物中の濃度を加熱気化法で測定することは困難であることがわかった。硝酸抽出法では、Cl は濃度が高くなる、または低くなる結果が得られ、必ずしも一定の傾向は見られなかった。Br は参考値と同等であるが、ヨウ素はやや低いことから、ヨウ素については酸処理によって失われた可能性がある。

塩素が定量された土壤標準物質がないため堆積物標準物質を使って上記のような検討を行ってきたが、堆積物と異なり、有機物の多い土壤では、塩素は Cl⁻ または有機態 Cl として保持されている可能性が高い (例えば Gustavsson, et al., 2012)。また、結晶質に含まれる塩素は移動性が低く、植物移行という観点からは寄与が少ないと考えられる。したがって、今回は Cl⁻ または有機態 Cl を測定対象にすることとした。これまで水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) を用いて溶出する手法を検討しており、これについてはすでに検討しているが、

改めて Triple Q タイプ ICP-MS と組み合わせるということから、TMAH 抽出-ICP-MS 測定による結果について検討を行った。植物標準物質を用いて分析した結果を表 4.4-4 に示した。結果は保証値または参考値とよく合っていたことから、TMAH 抽出法により分析を進めることとした。

4.4.4. 農作物および土壌試料中の塩素分析と TF

上述のように検討した結果を受けて、試料前処理法を以下の通りとした。まず、土壌および植物試料を 100 mg 分取し、密閉型テフロン容器 (Savillex 製) に 25% TMAH (多摩化学, Tama pureAA-100) を 2 mL, Milli-Q 水を 1 mL 添加して封入した。これを 60°C の電気乾燥器を用いて 16 時間加熱した。室温まで冷却後、全量を Milli-Q 水を用いて 50 mL 遠沈管に移した。遠心分離 (3000 rpm, 10 min.) を行い、上澄みをさらに 0.45 μ m の PTFE フィルター (Millipore, マイレクス) を用いてろ過し、試料溶液とした。

今年度は植物-土壌試料 9 試料を分析した。植物試料は以前ヨウ素と臭素の定量分析に用いたが、今回得られたヨウ素と臭素の値は良く一致していた (比較データ記載せず)。塩素定量結果を表 4.4-5 に示す。2 回繰り返し分析を行ったが、植物試料は 1 試料を除き誤差 5% 以内であり、塩素を高精度で分析できた。土壌試料については、濃度が低いことから誤差が大きいものの、定量結果が得られた。

これらの定量結果から TF を導出し、同じく表 4.4-5 に示した。TF の平均値は 42 であり、IAEA Tecdoc-1616 に記載の塩素 TF と同様の結果が得られている。また、Br や I についても同時にデータを得ることができた。ヨウ素の TF については IAEA TRS-472 に報告がある。そのデータと比較したところ、同様の結果が得られた。

本年度、塩素の移行係数を得るために、新たに Triple Q ICP-MS を用いた分析条件を検討した。その結果、塩素の分析には MS/MS モードにおいて He をリアクションガスとして導入する条件が適当であり、0.01-0.06 mg/L の装置定量下限値を得ることができた。この結果は昨年検討した ICP-OES の 1/100 以下であり、より低濃度まで測定できるようになった。また、土壌分析法としては、土壌中の塩素の化学形を考慮し、TMAH 法による抽出を用いることとした。

装置条件の最適化により植物試料中の塩素については高精度に測定することができるようになった。一方、塩素濃度が低い土壌については、検出下限値に近い状況が起こりうる。特に、ICP-MS の塩素分析では、Br や I と比べてバックグラウンドと感度のドリフトが発生しやすい。最も安定性が高くなる条件の検討は必要であるが、本年度までの検討で移行係数を導出するために必要な分析方法の検討は終了した。

引用文献

- Gustavsson, M., Karlsson, S., Öberg, G., Sandén, P., Svensson, T. Valinia, S., Thiry, Y., Bastviken, D. (2012). Organic matter chlorination rates in different boreal soils: the role of soil organic matter content. *Environ. Sci. Technol.* 46, 1504-1510.
- 放射線医学総合研究所 (2014).放射線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
- 放射線医学総合研究所 (2015).放射線核種生物圏移行評価高度開発 (平成26年度報告書)
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2014/26fy_kyoutuu_seibutuken.pdf
- IAEA (2009): Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. Tecdoc-1616.
- IAEA (2010): Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series No.472.
- 関谷, 安齋, 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)
- Wheal, M.S., Palmer, L.T. (2010). Chloride analysis of botanical samples by ICP-OES. *J. Anal. Atom. Spectrom.* 25, 1946-1952.
- Yuita, K. (1983): Iodine bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. III Iodine, bromine and chlorine contents in the andosols and in plants of central Honshu. *Soil Sci. Plant Nutr.* 29, 403-428.
- Yuita, K. (1982b): Iodine bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. II Iodine, bromine and chlorine contents in the soils and in plants of the basin of the Nagara River. *Soil Sci. Plant Nutr.* 28, 499-515.
- Yuita, K. (1982a): Iodine bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. II Iodine, bromine and chlorine contents in the soils and in plants of the basin of the Miomote River. *Soil Sci. Plant Nutr.* 28, 315-336.

4.5. 文献調査による Pu, Am, Th および Cl の土壌-農作物の環境移行パラメータ

4.5.1. はじめに

2010年に、国際原子力機関は天然及び人工放射性核種の土壌から作物への核種移行係数(TF)を提供するために、Technical Reports Series No. 472 (TRS 472) 「Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments」を出版した(IAEA, 2010)。TRS-472のTFデータは、本や論文、会議のプロシーディングス、研究所報告所、国際および国内のデータベース等、様々な情報からまとめられている。最新の文献は2007年である。本パラメータ集は放射線影響評価のために多くのモデルで使われる広い範囲のデータをカバーしてきた重要な情報源である。

しかし、文献情報を基にしたデータベースは限界がある。すなわち、TRS-472で推奨されているいくつかの元素のTF値は限られたデータソースから計算されている。多くの場合、世界的に用いることのできるTF値とはいえない。IAEA-TECDOC-1616(IAEA, 2009)によると、土壌-農作物間移行係数における適切なデータ数があるのは、CsやSrなどほんの少数の元素に限られる。他の元素、特に超ウラン元素、例えば、Th, Am, Pu等に関しては、ほとんどデータが無い(おおよそ100-500のデータ)。また、Cu, Ag, Na, およびWについては、データ数は100以下である。その結果、TRS-472でこれらのTF値は不適切なものとなっている可能性がある。Th, Am, Pu および Cl は、長半減期の放射性核種があり、それらは高レベル放射性廃棄物を地下に埋設後、数千年以上経過してから環境中に放出される可能性があるため、特に重要な元素である。これらの漏洩した核種は、地下水により拡散しながら割れ目内を移動していく。長期間をかけて長半減期核種が地表に到達し、土壌から作物への移行を通じて食物連鎖に入り込むことから、安全評価を行う必要がある。そのために用いられる評価モデル中でTF値は重要であり、現在のデータベースを補足することが必要である。

2007年以降、土壌-農作物間移行係数(TF)に関する膨大な研究が行われている。炭素, Th, I, Am, K, Pu, Cl, Tc, Te等の新しいTF値が求められている。TRS-472のように重要なデータベースであれば、このような情報を常に最新のものにし、最新の文献情報を取り込むことは重要である。Wangら(Wang et al., 2015)は、これら4つの元素に関して、新しく報告された2007年~2014年までのデータを収集し、纏めている。本調査では、2015年から2016年に公開されたデータとWangらが纏めたデータを1つに纏めて解析を行った。解析方法は、Wangらが用いた手法と同じである。

4.5.2. データ収集および統計解析

この研究において、論文誌、会議のプロシーディングス、研究所報告書、そして中国のデータベースを調査した。その結果8編の最近公開された論文と2編の中国語の論文を収集した。特に、Nie, et al. (2010), Tuovinen et al. (2016), Matveyeva et al. (2015), Asaduzzaman et al. (2015), Hossen and Ferdous (2015),

Alsaffar et al. (2015) and Chauhan and Kumar (2015)の論文は Th, Todorov and Djingova (2015) and Li et al. (1994)は Am の TF のデータである。Froehlich et al. (2016)は牧草試料とそれが生育していた土壌中の ^{239}Pu を AMS により測定し、Pu の TF を求めている。今回得られた全てのデータは、Wang ら(2015)の方法と同じ手法で解析を行った。概略を説明すると、植物の種類毎に異なったソースの TF 値を纏め解析したものである。幾何平均(GM)と算術平均(AM)の両方を、不確実性、幾何標準偏差(GSD)および標準偏差(SD)とともに計算を行った。最小および最大値の範囲もまた、データ数(N)および文献と同様、示されており、値の評価に用いた。さらに、植物種毎に GM 値(全ての土壌タイプ)をこれまでに報告されているデータと比較した。ある植物種、すなわち、米と非葉菜類については、可食部の TF 値と非可食部の TF 値の両方を示した。

Th, Am および Pu の得られた結果をそれぞれ、表 4.5-1 から表 4.5-3 に示した。表 4.5-1 から分かるように、牧草、葉菜類および米のグループは、Th の TF 値に新しいデータを追加することが出来た。牧草では、ほとんどの研究は、Nie ら(2010)がウラン鉱山の処分場において収集した牧草と土壌試料中の Th と U を分析したものである。ICP-MS により測定した 36 の TF 値が求められており、その範囲は 2.0×10^{-3} から 4.2×10^{-1} であり、その平均値は 3.6×10^{-2} である。このような高い TF が得られた理由として、測定対象が牧草であり、土壌を付着させていることも考えられる。(Yasuda, H. and Uchida, S., 1994)

Tuovinen ら (2016)は別の方法で TF を求めている。彼らは、U が多く含まれているサイトから 0.5 m^3 の土壌を用い、温室でライシメータ実験を行った。ICP-MS 測定を基にした彼らの TF 値は、 1.0×10^{-2} から 5.8×10^{-1} (植物根)とやや高い TF であるが、これは根に付着した土壌粒子を過大評価しているものと考えられた。Matveyeva ら(2015)は、 α スペクトル分析により、ウラン鉱山付近の湖沼緩衝帯における雑草(オナモミ、ヨシ等)の ^{232}Th , ^{228}Th および ^{230}Th 濃度を測定した。 ^{232}Th の結果は、Th の TF 値として 2.0×10^{-3} から 1.9×10^{-1} の範囲で根に集積しており、Nie ら(2010)が報告している値に近いものである。しかし、 ^{228}Th から得られた TF 値は、同じ試料の TF 値よりもほぼ 1 桁高い値であった。著者らはこの結果について適切な説明をしていないが、 ^{228}Th の親核種は ^{228}Ac (6.15 h) であり ^{228}Ra (5.75 y) から減衰する。したがって、 ^{228}Th は Ra の移行係数を間接的に観察していると推察される。土壌から米の Th の TF (可食部)については、Asaduzzaman ら(2015)および Alsaffar ら(2015)がそれぞれ 23 および 3 つの新しいデータを報告している。Alsaffar らの実験は、自然環境中の試料を採取し、 γ 線スペクトル分析により Th を測定して、TF を求めたものである。TF の範囲は、 4.0×10^{-3} から 1.4×10^{-2} である。彼らは、また水稻中の Th の分布も求めており、米粒 (grain) (8%), 粃殻 (11%), 茎 (straw) (24%) および 根 (57%) である。この結果は、ほとんどの Th が根に存在していることを示している。しかし、Asaduzzaman らの実験で求められた TF 値は 0.17 から 0.48 であり、非常に高い。これは、Wang ら(2015)が以前に指摘しているように、測定法によると思われる。今年度の調査において、10 個の葉菜類の TF 値が Hossen and Ferdous (2015)から得られているが、彼らは γ 線スペクトル分析により土壌

からアマランス (red amaranth) の TF を求めた。報告された TF 値は、0.14 から 0.5 であり、表 4.5-1 に示した IAEA の推奨値よりも 2 桁高い値である。これは、彼らが用いた ^{232}Th 分析法が影響しているためと思われる。したがって正しい値ではない。

表 4.5-2 に、Li ら(1994) および Todorov and Djingova (2015)により得られた Am の TF 値をまとめて示す。Li らは 3 つの原子力発電所近傍の農業フィールドで土壌と野菜を収集し、 α 線スペクトル分析により ^{241}Am 濃度を測定している。収集した農作物は、ニンジン、アブラナ (rape), 胡椒, ナス, 豆, キュウリ, およびトマトである。得られた TF 値は、 6.2×10^{-4} から 5.1×10^{-4} の範囲である。Todorov and Djingova は、ライシメータ実験により 5 種類の土壌を用いて、牧草への Am の TF 値を報告している。実験に用いた土壌は、牧草の栽培前に ^{241}Am (2000-2500 Bq/kg) を添加したものであり、6 ヶ月後に牧草を収穫し、 γ 線スペクトル分析により ^{241}Am 濃度を求めた。彼らの結果 (TF: 9.0×10^{-5} - 9.3×10^{-3}) は、様々な土壌から牧草への Am の TF は土壌中に含まれるフルボ酸とフミン酸濃度に依存することを示している。全般的に、この調査で入手した TF データは、添加実験または汚染された土壌を用いた実験で得られたものである (ICRP, 2010; Todorov and Djingova, 2015; Gomez and Brown, 2013)。

Pu については、2 種類の土壌から牧草への TF 値が Froehlich ら(2016)により報告されており、表 4.5-3 に付け加えた。これらの値は森林環境における土壌から牧草への移行を表しており、TRS-472 で推奨されている値よりも 1 桁高い値である。

4.5.3. IAEA TRS 472 との比較

本調査と以前の調査の結果を併せ、TRS-472 と視覚的に比較するために、Th, Am および Pu の TF を図 4.5-1, 4.5-2 および 4.5-3 にプロットした。図中の三角形は本調査で集められたそれぞれの文献の TF の幾何平均値を表している。黒丸は、以前の調査で集められた TF の幾何平均値を、そして灰色のゾーンは TRS-472 の TF 値の範囲である。図 4.5-1 から、新しく纏めたデータはほとんどのケースで不適切な前処理・測定法に起因する過大評価の値を含んでいること、可食部としては不適切な値も含まれていることに注意しなければならない。

図 4.5-2 において、Am の新しいデータは TRS-472 のデータの範囲内か非常に近い値であった。データ拡充するために重要なものであるが、前処理方法や分析条件について精査し、データの利用については慎重に検討する必要があると考えられる。本調査により、追加的なデータは得られたが、可食部という観点からのデータが不十分であり、植物群によってはデータが得られていないものもある。したがって、Th, Am, Pu および Cl の TF データを取得する必要がある。

引用文献

Alharbi, A., & El-Taher, A. (2013). A Study on Transfer Factors of Radionuclides

- from Soil to plant. *Life Science Journal*, 10(2): 532-539
- Alsaffar, M. S., Jaafar, M. S., Kabir, N. A., & Ahmad, N. (2015). Distribution of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K in rice plant components and physico-chemical effects of soil on their transportation to grains. *Journal of Radiation Research and Applied Sciences*. 8 (3), 300-310.
- Asaduzzaman, K., Khandaker, M. U., Amin, Y. M., & Mahat, R. (2015). Uptake and distribution of natural radioactivity in rice from soil in north and west part of peninsular malaysia for the estimation of ingestion dose to man. *Annals of Nuclear Energy*, 76, 85-93.
- 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): 85-92
- Rodríguez, P. B., Tomé, F. V., Lozano, J. C., & Fernández, M. P. (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., Štok, 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. K. M. 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
- Chauhan, R. P., & Kumar, A. (2015). Soil to plant transfer of alpha activity in potato plants: impact of phosphate fertilizers. *Journal of Environmental Health Science and Engineering*, 13(1), 1-9.
- 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.
- Froehlich, M. B., Dietze, M. M. A., Tims, S. G., & Fifield, L. K. (2016). A comparison of fallout ^{236}U and ^{239}Pu uptake by Australian vegetation. *Journal of environmental radioactivity*. 151 (3), 558-562.
- Gomez, A., & Brown, J. (2013) Determination of Root Uptake to Vegetables Grown in Soil Contaminated for Twenty-five Years. Health Protection Agency, Oxfordshire
- Hossen, M. A., & Ferdous, N. (2015). Determination of Radiological Hazards and the Transfer Factors of Radionuclides from Soil to Vegetables in the Southwestern District of Bangladesh. *Journal of Physical Science*, 26(1), 83-98.
- IAEA (2009) Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA TECDOC-1616, Vienna
- IAEA (2010) Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides

- Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. IAEA-TRS-472, 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: 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). (2008). Impact of tropical ecosystem on the migrational behavior of K-40, Cs-137, Th-232 U-238 in perennial plants. *Water, Air, & Soil Pollution*, 192: 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, Y. (1994). Investigation of ^{241}Am in environmental soil and some biological specimens around China Institute of Atomic Energy. *Journal of Isotopes*, 7 (2), 86-91. (In Chinese)
- Matveyeva, I., Jacimovic, R., Planinsek, P., Smodis, B., & Burkitbayev, M. (2015). Uptake of uranium, thorium and radium isotopes by plants growing in dam impoundment Tasotkel and the Lower Shu region (Kazakhstan). *Radiochimica Acta*. DOI: 10.1515/ract-2015-2457
- Mheemeeed, 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
- Nie, X., Ding, D., Li, G., Gao, B., Wu, Y., Hu, N., & Liu, Y. (2010). Soil radionuclide contamination and radionuclide accumulation characteristics of competitive plants in a uranium tailings repository in south China. *Research of Environmental Sciences*. 23 (6), 719-725. (In Chinese)
- 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
- Rodríguez, P. B., Tomé, F. V., Lozano, J. C., & Fernández, M. P. (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
- 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. *Romanian Journal of Physics*, 57(9-10): 1417-1424
- Shanthi, G., Maniyan, C. G., Raj, G. A. G., & Kumaran, J. T. T. (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
- Todorov, B., & Djingova, R. (2015). Fractionation and Soil-Plant Transfer of ^{241}Am in Different Soil Types. *Pedosphere*, 25(2), 212-219.
- Tuovinen, T. S., Kasurinen, A., Häikiö, E., Tervahauta, A., Makkonen, S., Holopainen, T., & Juutilainen, J. (2016). Transfer of elements relevant to nuclear fuel cycle from soil to boreal plants and animals in experimental meso-and microcosms. *Science of the Total Environment*, 539, 252-261.
- Wang, Z. T., Zheng, J., Tagami, K., & Uchida, S. (2015). Newly derived transfer factors for Th, Am, Pu, and Cl since publication of IAEA TRS No. 472: a review. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 306(1), 11-20.
- Yasuda, H. and Uchida, S.: Statistical Analyses of Soil-to-Plant Transfer Factors: Strontium and Cesium, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 32, 1308-1313, 1994.
- Zhang, Z. Q., Chen, Y.D., 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 Am および Cl の超高精度分析

4.6.1.1. Am の超高精度分析

^{241}Am 定量分析には通常放射能測定法が用いられるが、その場合、測定時間が長く、かつカウント数も不十分であるため、精度が低くなる。そこで、一昨年度導入した SF-ICP-MS を用いて超高精度分析を行うための分析法の開発および SF-ICP-MS の条件設定について検討した。

分析法では、試料の灰化温度のコントロール、灰試料から抽出して溶液化した試料からの Am のカラムクロマト法による分析条件の最適化を行った。これまでの分析法では、測定機器が放射能測定法であることから、妨害となるのは放射線を発生する核種である。一方、ICP-MS では、測定対象とする ^{241}Am のカウントを妨害しないように、同じ重量の分子イオンを形成する元素の除去、また同重体を含む Pu を除去する必要がある。様々なマトリクス元素も、測定感度を低下させることが懸念されるため、これらの元素の除去についても検討を行った。まず、放射線測定法でよく用いられる DGA 抽出樹脂に着目したが、その際、塩酸溶離液を用いて DGA 抽出樹脂から ^{241}Am 分離するものであった。この場合、塩素に起因する妨害分子イオン $^{204}\text{Pb}^{37}\text{Cl}^+$ が生成し、質量数 241 の測定の妨害になることから、塩素を含む試薬の使用をしない方法を検討した。今回は硝酸溶液を用いて、マトリクス元素と妨害元素を Am から分離する方法を開発した。来年度はさらに TRU 抽出樹脂を用いて、Am の分離法を検討し、実試料中 ^{241}Am 分析法を確立する予定である。

SF-ICP-MS を用いた条件設定においては、感度の向上に加え、 $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比測定精度についても確認を行った。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ところ、Am 同位体質量領域において低バックグラウンド (*ca.* 2 cps) であることがわかった。さらに Am 分析の感度については、ジェットインターフェイス (Jet-interface) を使用して SF-ICP-MS (Element XR) で測定したところ、90 M/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)、非常に高い感度が得られた。なお、検出下限値は 0.024 fg mL^{-1} であり、 ^{241}Am 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 0.003 fg ということになる。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 $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比分析の精度と確度を調べたところ、Am の濃度が 5 fg mL^{-1} 以上ならば、8% 以下の良い精度を得られることがわかった。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土壌試料中 ^{241}Am 分析研究に十分適応できるものである。

4.6.1.2. 塩素の超高精度分析

塩素の移行係数を得るために土壌および農作物試料中の塩素定量が必要である。本年度は新たに Triple Q ICP-MS を用いて、分析条件を検討し、さらに試料溶液化について追加の検討を行った。塩素は質量数 35 の安定同位体を選択し、

その分析には MS/MS モードにおいて He をリアクションセルガスとして導入する条件が適当であることがわかった。検出下限値は昨年検討した ICP-OES の 1/100 以下とすることができ、より低濃度まで測定できるようになった。試料の溶液化については、加熱気化では十分に塩素を抽出することができなかった。既存の研究によれば、土壌中の塩素の化学形は主に無機イオンと有機態であることから、水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) による抽出法を用いることとした。

以上の分析方法を用いて、土壌と作物試料の塩素の定量を行い、塩素の移行係数を得た (幾何平均値 : 42, 範囲 : 9-138)。

4.6.2 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

日本の 6 つの県から採取した土壌と作物試料を Pu 分析に供した。土壌試料中の Pu 同位体比 ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比) は、これらの土壌中の Pu が主にグローバルフォールアウトの Pu であることを示した。得られた Pu 濃度から Pu の土壌-作物間移行係数 (TF) を求めた。米の TF の範囲は、 2.0×10^{-5} から 8.2×10^{-5} であった。日本において、米の TF-Pu が得られたのは初めてである。野菜 (カボチャ, 大豆, シュンギク) および果物 (柿) の TF-Pu も求めたが、米の値よりも 1 桁高い値であった (1.1×10^{-4} から 7.5×10^{-4})。最も TF が高かったのは、キノコで、 2.3×10^{-1} という値であったが、キノコは他の農作物とは異なり培地で栽培されたものであることから、TF を他の農作物と単純に比較できない。培地中の Pu の化学形が影響している可能性があることから、キノコの TF については、さらに検討が必要であろう。

一般に、Pu の TF のデータ数は十分ではないため、本調査のように実環境試料で得られた Pu の TF は重要である。さらにデータを収集し、データが無い作物種のデータを提供するとともに、存在するデータの代表性を向上させてゆく必要がある。また、本調査では文献調査も引き続き行い、データの蓄積も行うことができた。

以上のようなデータ収集を通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。

表 4.2-1 質量分析による ^{241}Am 分析で妨害となる同重体元素およびマトリクス元素

同重体／分子イオン	Total mass	分離に必要な分解能 ICP-MS (m/ Δ m)	存在度
^{241}Pu	241.05685	11400000	
$^{240}\text{Pu}^1\text{H}$	241.06163	50122	
$^{209}\text{Bi}^{32}\text{S}$	240.95246	2310	100%
$^{209}\text{Bi}^{16}\text{O}_2$	240.97022	2784	100%
$^{206}\text{Pb}^{35}\text{Cl}$	240.94331	2124	24.1%
$^{204}\text{Pb}^{37}\text{Cl}$	240.93894	2045	1.4%
$^{205}\text{Tl}^{36}\text{Ar}$	240.94197	2099	70.5%
$^{207}\text{Pb}^{34}\text{S}$	240.94376	2132	22.1%
$^{201}\text{Hg}^{40}\text{Ar}$	240.93268	1942	13.2%
$^{179}\text{Hf}^{14}\text{N}^{16}\text{O}_3$	240.93363	1957	13.6%
$^{178}\text{Hf}^{14}\text{N}^{16}\text{O}_3^1\text{H}$	240.93934	2052	27.3%
$^{193}\text{Ir}^{16}\text{O}_3$	240.94767	2208	62.7%
$^{195}\text{Pt}^{14}\text{N}^{16}\text{O}_2$	240.95769	2432	33.8%
$^{194}\text{Pt}^{14}\text{N}^{16}\text{O}_2^1\text{H}$	240.96340	2580	33.0%
$^{204}\text{Hg}^{37}\text{Cl}$	240.93939	2053	6.9%
$^{208}\text{Pb}^{16}\text{O}_2^1\text{H}$	240.97430	2921	52.4%

表 4.2-2 文献において一般に用いられている様々な Am 抽出法の比較

方法	長所	短所	References
HNO_3	Simple operation Effective for global fallout Am	Incapable for refractory particles	Zheng, 2008 Lee, 2009
HNO_3 + HCl	Simple operation Effective for global fallout Am Destroy organic matter	Incapable to refractory particles + Environment unfriendly	Maxwell, 2008 Riekkinen, 2002
HNO_3 + HF (+ HCl)	Effective for global fallout Am Capable for refractory particles	Careful handle with HF	Thakur, 2011 Amoli, 2012
HNO_3 + HF + HClO_4	Complete Am release	Complex operation More matrix introduced	Serdeiro, 2004 Harrison, 2011
Alkaline fusion	Fast operation Complete Am release	More matrix introduced Need high temperature	Maxwell, 2011 Gagne, 2012

表 4.2-3 文献で報告されている Am 共沈法の比較

化学種	除去元素	Elements co-precipitated	References
Fe(OH) ₃	Sr, Ca, Mg, etc.	Actinides, REE	Michel, 2003
CaF ₂	Alkali, transition metals	Actinides, etc.	Varga, 2007
CaC ₂ O ₄	Fe, Al, Mg, Ni, Na, K, U, etc.	Sr, transuranium, lanthanides	Yamato, 1982
La(OH) ₃		Am, Cm, REE, etc.	Ageyev, 2005
Ca ₃ (PO ₄) ₂		Actinides, etc.	Arginelli, 2008
LaF ₃		Am, etc.	EPA, 2014
NdF ₃		Am, etc.	Jakopic, 2007

表 4.2-4 文献で報告されている Am 分離法の比較

方法	長所	短所	References
Liquid-liquid extraction	Suitable for large-scale operation	Less effective separation More hazardous waste	Vajda, 2010
Ion-exchange chromatography (Dowex 50)		Poor matrix remove efficiency	Warwick, 1996
Extraction chromatography (TRU)	Selectively absorb Am (III), with $k' > 100$ in 1-5 M HNO ₃ Less hazardous waste	Am selectivity decrease with elevated Fe(III) content	Eichrom, 2014
Extraction chromatography (DGA)	k' is 30-500 higher than TRU k' of Am(III) increased with elevated Fe(III) content		Luisier, 2009 Eichrom, 2014

表 4.2-5 近年報告された質量分析による Am 分析法

No	Ref.	試料	溶液化の方法	共沈	Am 分離樹脂	Sample loading	Washing on DGA / TRU
1	Hang et al., 2004	尿			TRU	30 mL 3M HNO ₃	
2	Epov et al., 2005	尿			TRU		
3	Guerin et al., 2011	0.2 g 土壌	LiBO ₂ fusion		TEVA DGA	25 ml 3M HNO ₃	10 ml 3M HNO ₃
4	Agarande et al., 2001	10-100 g 堆積物	HNO ₃ /H Cl	CaC ₂ O ₄ Fe(OH) ₃ CaC ₂ O ₄	AG1X8 TRU AG1X4	2M HNO ₃ / 0.5M Al(NO ₃) ₃	
5	Truscott et al., 2001	0.5 g 生物灰; 10 g 堆積物; 6 g 土壌	4ml HNO ₃ - 1ml HCl		TRU	6 mL 2M HNO ₃	1.75 ml 2M HNO ₃
6	Boulyga et al., 2003	1-2 g コケ	30 ml 6M HCl		LLE (HDEHP)		
7	Ayranov et al., 2005	1-5 g 土壌・堆積物	LiBO ₂ /Li ₂ B ₄ O ₇ fusion		TEVA TRU TEVA	3M HNO ₃	30 ml 2M HNO ₃
8	Varga et al., 2007	0.5-3g 堆積物	10 ml HNO ₃	CaF ₂	UTEVA TRU	15 ml 4M HNO ₃ -0.5 g H ₃ BO ₃	8 ml 4M HNO ₃ 5 ml 4M HNO ₃ - 0.1M NaNO ₂
9	Varga, 2007	0.5-10 g 堆積物・海藻	HNO ₃ + H ₂ O ₂	CaF ₂	TRU	15 ml 3M HNO ₃	8 ml 3M HNO ₃ 1 ml 3M HNO ₃ - 0.1M NaNO ₂ 10 ml 3M HNO ₃
10	Zheng, 2008	1-5 g 土壌・堆積物	50 ml 8M HNO ₃	CaF ₂	TRU	15 ml 3M HNO ₃	8 ml 3M HNO ₃ 1 ml 3M HNO ₃ - 0.1M NaNO ₂ 10 ml 3M HNO ₃ 2 ml conc. HCl 1 ml 4M HCl
11	Lariviere et al., 2010	0.2 g 粒子状物質	6 ml HNO ₃		DGA	10 ml 3M HNO ₃	3 M HNO ₃
12	Li et al., 2010	20 mL 尿			DGA	10 ml 3M HNO ₃	3M HNO ₃
13	Xiao et al., 2014	10 mL 尿			DGA	15 ml 5M HNO ₃	15 ml 5M HNO ₃ 45 ml 0.5M HNO ₃ 45 ml 0.5M HNO ₃
14	Kazi et al., 2014	0.5-2 g 土壌	10 ml HNO ₃		DGA	20 ml 8M HNO ₃	10 ml 8M HNO ₃ 10 ml 3M HNO ₃ 10 ml 0.1M HNO ₃

(つづき)

No.	Am Elution from DGA/TRU	Instrument	LOD of ²⁴¹ Am	Am yield	DF Pu
1	9 ml 50% 2M HCl + 5% H ₂ O + 40% H ₂ C ₂ O ₄	Q-ICP-MS (AS50 - Elan 6100)	19.1 mBq/mL	95%	
2		Q-ICP-MS (ApexQ - Elan DRC II)	0.11 - 1.02 mBq/g		
3	20 ml 0.1M HCl	Q-ICP-MS (Varian 800 MS)	200 mBq / sample	91%	
4	< 0.05 M HNO ₃	SF-ICP-MS (MCN 6000- Axiom SC)	0.11 mBq/g	35-70%	
5	0.1M NH ₄ HC ₂ O ₄ or 0.006M TiCl ₃ - 4M HCl	SF-ICP-MS (Element I)	0.15 mBq/g	62%	
6		LA-ICP-MS (LSX200 - Element I)	0.47 mBq/g		
7	20 ml 9 M HCl 30 ml 4 M HCl	SF-ICP-MS (Element II)	1.1 mBq/g	81%	
8	3 ml 9M HCl 20 ml 4M HCl	ICP-MS (Aridus-Element II)	2.9 mBq/g	81-94%	> 1000
9	2 ml conc. HCl 20 ml 4M HCl	SF-ICP-MS (Aridus-Element II)	0.11 mBq/g	72-94%	
10	9 ml 4M HCl	SF-ICP-MS (ApexQ-Element II)	0.041 mBq/g	60-90%	
11	3 ml 0.1M (NH ₄) ₂ C ₂ O ₄	SF-ICP-MS (ApexQ-Element II)	0.006 mBq/mL	97%	
12	3 mL 0.1M (NH ₄) ₂ C ₂ O ₄	SF-ICP-MS (ApexQ-Element II)	0.02 mBq/mL		
13	5 ml 0.5M HCl	SF-ICP-MS (Aridus II - Element XR)	0.028 mBq/mL	99%	100
14	15 ml 0.1M HCl	AMS (Isotrace Laboratory)	1.4 mBq / sample	>95%	200

表 4.2-6 SF-ICP-MS (Element XR)と 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	1150 W
Nebulizer	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)	0.97-1.10 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	²⁴¹ Am ⁺ , ²⁴³ Am ⁺ , ²⁰⁴ Hg ⁺ , ²⁰⁵ Tl ⁺ , ²⁰⁹ Bi ⁺ , ²³⁹ Pu ⁺
No. of scans (runs x passes)	12 x 5
Mass window	10 %
Samples per peak	100
Sample time	20 ms for ²⁴¹ Am ⁺ and ²⁴³ Am ⁺ , 10 ms for ²⁰⁴ Hg ⁺ , ²⁰⁵ Tl ⁺ , ²⁰⁹ Bi ⁺ , ²³⁹ Pu ⁺
Integration type	Average
Total time of analysis	150 s
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)	7 L min ⁻¹
N ₂ gas	4 mL min ⁻¹

表 4.2-7 DGA-N 樹脂を用いた Am 測定のための分離法

No.	Ref.	試料	分解	共沈	分離樹脂	前処理	試料導入
1	Guerin et al., 2011	0.2 g 土壌	LiBO ₂ fusion		TEVA DGA-N	10 mL 2M HNO ₃	25 mL 3M HNO ₃
2	Maxwell et al., 2015	10 g 土壌	NaOH fusion	Fe(OH) ₃ CaF ₂ /LaF ₃	TEVA DGA-N		20 mL 3M HNO ₃
3	Maxwell et al., 2011	1g コンクリート /レンガ	NaOH fusion	Fe(OH) ₃ CaF ₂ /LaF ₃	TEVA TRU DGA-N		25 mL 3M HNO ₃
4	Luisier et al., 2009	200 L 水 20 g 土壌	50 ml HNO ₃ + 3ml H ₂ O ₂	CaC ₂ O ₄ Fe(OH) ₃	TEVA DGA-N	10 mL 8M HNO ₃	8M HNO ₃
5	Dulanska et al., 2015	25 mL 尿			Pu02 gel Sr01 gel DGA-N		10 mL 3M HNO ₃
6	Kazi et al., 2014	0.5-2 g 土壌	10 ml HNO ₃		DGA-N	10 mL 8M HNO ₃	20 mL 8M HNO ₃
7	Habibi et al., 2015	10 mL 河川水			TEVA DGA-N		10 mL 3M HNO ₃
8	Gagne et al., 2012	100 g 調整便	LiBO ₂ fusion	HTiO	AG MP-1M UTEVA DGA-N		20 mL 8M HNO ₃
9	Xiao et al., 2014	10 mL 尿			DGA-N	15 mL 5M HNO ₃	15 mL 5M HNO ₃

No.	Washing on DGA	Am 溶離	Am 測定	Am 回収率	DF Pu
1	10 ml 3 M HNO ₃	20 ml 0.1M HCl	α spectrometry ICP-MS	53% for α spect. 91% for ICP-MS	
2	15 ml 3M HNO ₃ 10 ml 3M HCl 3 ml 1M HNO ₃ 15 ml 0.1M HNO ₃ 25 ml 3M HNO ₃ -0.25M HF 5 ml 4M HCl	12 ml 0.25M HCl	α spectrometry	89%	
3	13 ml 3M HNO ₃ 10 ml 0.1M HNO ₃ 5 ml 3M HCl 3 ml 1M HNO ₃ 5 ml 0.05M HNO ₃	10 ml 0.25M HCl	α spectrometry	85% コンクリート 94% レンガ	
4	10 ml 8M HNO ₃	15 ml 0.5M HCl /0.03M NaNO ₂	α spectrometry	73%	
5	5 ml 2M HNO ₃ 3 ml 1M HNO ₃ 10 ml 0.05M HNO ₃	10 ml 0.1M HCl	α spectrometry	98%	
6	10 ml 8M HNO ₃ 10 ml 3M HNO ₃ 10 ml 0.1M HNO ₃	15 ml 0.1M HCl	α spectrometry AMS	>95%	200
7	10 ml 3M HNO ₃ 20 ml 0.1M HNO ₃	20 ml 2.5mM HEDPA	ICP-MS	97%	
8	15 ml 8M HNO ₃ 15 ml 5M HNO ₃	15 ml 0.1M HCl	α spectrometry	83%	
9	45 ml 0.5M HNO ₃ 45 ml 0.5M HNO ₃	5 ml 0.5M HCl	ICP-MS	99%	100

表 4.3-1 Pu ソース毎の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の代表的数値

Pu source	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio	Reference
Nagasaki atomic bomb	0.028-0.037	Yamamoto et al., 1983
Global fallout	0.166-0.194 (30-71°N) 0.159-0.197 (0-30°N)	UNSCARE, 1982
FDNPP accident	0.303-0.330	Zheng et al., 2012

表 4.3-2 収集した土壌試料中の Pu 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比

採取場所 (Sample ID)	県名	^{239}Pu activity (mBq/g)	$^{239+240}\text{Pu}$ activity (mBq/g)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio
1 (EP-SD-64)	秋田	$5.55 \pm 0.15 \times 10^{-1}$	$8.85 \pm 0.30 \times 10^{-1}$	0.162 ± 0.008
2 (EP-SD-65)	新潟	$2.78 \pm 0.09 \times 10^{-1}$	$4.48 \pm 0.02 \times 10^{-1}$	0.166 ± 0.010
3 (EP-SD-66)	富山	$2.20 \pm 0.09 \times 10^{-1}$	$3.57 \pm 0.10 \times 10^{-1}$	0.171 ± 0.008
4 (EP-SD-67)	岐阜	$3.62 \pm 0.15 \times 10^{-1}$	$6.04 \pm 0.31 \times 10^{-1}$	0.182 ± 0.013
5 (EP-SD-68)	長崎	$1.47 \pm 0.06 \times 10^{-1}$	$2.34 \pm 0.11 \times 10^{-1}$	0.160 ± 0.011
6 (OK-K2)	福島	$2.36 \pm 0.12 \times 10^{-1}$	$3.93 \pm 0.30 \times 10^{-1}$	0.167 ± 0.012
7 (2013AP-4)	福島	$9.10 \pm 0.60 \times 10^{-2}$	$1.46 \pm 0.06 \times 10^{-1}$	0.163 ± 0.014
8 (2013AP-8)	福島	$8.50 \pm 0.80 \times 10^{-2}$	$1.39 \pm 0.10 \times 10^{-1}$	0.171 ± 0.016
9 (2013AP-9)	福島	$1.02 \pm 0.10 \times 10^{-1}$	$1.71 \pm 0.18 \times 10^{-1}$	0.184 ± 0.025
10 ^a (2013AP-2)	福島	$1.33 \pm 0.42 \times 10^{-3}$		
11 (2013AP-3)	福島	$3.30 \pm 0.30 \times 10^{-2}$	$5.40 \pm 0.40 \times 10^{-2}$	0.178 ± 0.031
12 (2013AP-5)	福島	$5.10 \pm 0.70 \times 10^{-2}$	$1.05 \pm 0.16 \times 10^{-1}$	0.197 ± 0.032
13 (2013AP-6)	福島	$3.40 \pm 0.20 \times 10^{-2}$	$5.50 \pm 0.40 \times 10^{-2}$	0.174 ± 0.035
14 (2013AP-7)	福島	$2.30 \pm 0.20 \times 10^{-2}$	$3.80 \pm 0.50 \times 10^{-2}$	0.177 ± 0.044
15 (2013AP-1)	福島	$1.66 \pm 0.17 \times 10^{-1}$	$2.78 \pm 0.23 \times 10^{-1}$	0.184 ± 0.026
16 (OK-K3)	福島	$2.19 \pm 0.18 \times 10^{-1}$	$3.61 \pm 0.24 \times 10^{-1}$	0.177 ± 0.013
17 (OK-K1)	福島	$2.36 \pm 0.12 \times 10^{-1}$	$3.93 \pm 0.30 \times 10^{-1}$	0.181 ± 0.012

a: 菌床

表 4.3-3 作物中の ^{239}Pu 測定結果と Pu の土壌-農作物間移行係数

採取場所 (Sample ID)	試料	^{239}Pu activity (mBq/g)	TF of Pu (^{239}Pu で評価)
1 (EP-SD-64)	玄米	$1.93 \pm 1.71 \times 10^{-5}$	$3.5 \pm 3.1 \times 10^{-5}$
2 (EP-SD-65)	玄米	$7.99 \pm 2.91 \times 10^{-6}$	$2.9 \pm 1.1 \times 10^{-5}$
3 (EP-SD-66)	玄米	$4.48 \pm 1.71 \times 10^{-6}$	$2.0 \pm 0.8 \times 10^{-5}$
4 (EP-SD-67)	玄米	$8.98 \pm 2.15 \times 10^{-6}$	$2.5 \pm 0.6 \times 10^{-5}$
5 (EP-SD-68)	玄米	$1.21 \pm 0.65 \times 10^{-5}$	$8.2 \pm 4.5 \times 10^{-5}$
6 (OK-K2)	玄米	$6.55 \pm 2.54 \times 10^{-6}$	$2.8 \pm 1.1 \times 10^{-5}$
7 (2013AP-4)	シュンギク	$6.79 \pm 1.03 \times 10^{-5}$	$7.5 \pm 1.1 \times 10^{-4}$
8 (2013AP-8)	ダイズ	$5.67 \pm 2.65 \times 10^{-5}$	$6.7 \pm 3.1 \times 10^{-4}$
9 (2013AP-9)	カキ	$1.14 \pm 1.21 \times 10^{-5}$	$1.1 \pm 1.2 \times 10^{-4}$
10 (2013AP-2)	キノコ	$3.04 \pm 0.56 \times 10^{-4}$	$2.3 \pm 0.4 \times 10^{-1}$
11 (2013AP-3)	キュウリ	$< 8.69 \times 10^{-6}$	$< 2.6 \times 10^{-4}$
12 (2013AP-5)	玄米	$< 6.10 \times 10^{-7}$	$< 1.2 \times 10^{-5}$
13 (2013AP-6)	ジャガイモ	$< 5.60 \times 10^{-6}$	$< 1.6 \times 10^{-4}$
14 (2013AP-7)	ニンジン	$< 8.69 \times 10^{-6}$	$< 3.8 \times 10^{-4}$
16 OK-K3)	キャベツ	$< 2.50 \times 10^{-5}$	$< 1.1 \times 10^{-4}$
17 (OK-K1)	カボチャ	$6.85 \pm 1.14 \times 10^{-5}$	$2.9 \pm 0.5 \times 10^{-4}$

表 4.3-4 Pu の土壌-米間移行係数値の比較

Country	Pu 源と栽培環境	TF of Pu	Reference
France	$^{239,240}\text{Pu}$ 汚染地域	1.4×10^{-3}	Duffa et al., 2003
China	核実験場と比較対象地域	2.0×10^{-3}	Zhang et al., 1989
America	^{238}Pu 添加ポット実験	1.7×10^{-4}	Ariano et al., 1981
Japan	グローバルフォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$ を含む水田	$2.0 \times 10^{-5} - 8.2 \times 10^{-5}$	This study

表 4.4-1 塩素測定装置の検出下限値 (mg/L)

Reaction gas mode	Single Mass	MS/MS (35 -> 35)	MS/MS (35 -> 51)
Non-gas	0.27	0.35	14.4
He	0.28	0.21	4.8
O ₂	-	0.50	0.37
H ₂	-	0.41	0.13*

*35 -> 37

表 4.4-2 同時計測の Br と I の装置検出下限値 (µg/L)

Reaction gas mode	Br		I	
	Single Mass	MS/MS (79 -> 79)	Single Mass	MS/MS (127 -> 127)
Non-gas	0.152	0.072	0.010	0.011
He	0.073	0.103	0.015	0.016
O ₂	-	0.105	-	0.015
H ₂	-	0.070	-	0.018

表 4.4-3 硝酸抽出法および加熱気化法による堆積物中の塩素, 臭素およびヨウ素定量結果

試料	硝酸抽出 (100 mg sample + 8M HNO ₃ 3mL 3 h heating @ 140°C in PTFE vessel)			加熱気化 (200 mg sample @ 1000°C for 30 min. + O ₂ , Trap in DW)		
	Cl, mg/L	Br, ppm	I, ppm	Cl	Br	I
JSd-1	144	2.3	0.8	D.L.	0.07	0.14
	107	2.2	0.9	1.3	0.04	0.03
	(62, 73)	2.3 (1.3, 2)	0.9	5.1 (62, 73)	0.19 (1.3, 2)	0.07
JSd-3	94	5.0	3.6	8.8	0.20	0.80
	82	5.2	3.7	8.7	0.60	0.58
	92 (33, 45)	5.2 (3, 4.8)	3.6	6.1 (33, 45)	0.42 (3, 4.8)	0.31
JLk-1	90	9.9	7.4			
	66	10.0	7.6			
	57 (190)	6.0 (8.1, 9.3)	7.4 (25)	-	-	-

カッコ内：中性子放射化（参考値）

表 4.4-4 TMAH-ICPMS 法による塩素, 臭素およびヨウ素定量結果

NIST SRM	Cl, mg/kg-dry	Br, mg/kg-dry	I, mg/kg-dry
Pine needles	Measured: 406±3	Measured: 2.58±0.03	Measured: 0.241±0.004
1575a	Certified: 421±7	Certified: -	Certified: -
Peach leaves	Measured: 315±7	Measured: 10.9±0.1	Measured: 0.291±0.007
1547	Certified: 360±19	Information: 11	Information: 0.3

表 4.4-5 農作物および土壤中 Cl, Br, I 濃度と移行係数

Code	種類	Chlorine mg/kg	Bromine mg/kg	Iodine mg/kg
EF-CF-1	ジャガイモ	1930 ±76	28.3 ±0.8	0.1185 ±0.020
EF-CF-2b	ネギ	1530 ±26	3.23 ±0.06	0.0290 ±0.007
EF-CF-3	キャベツ	2231 ±34	1.13 ±0.01	0.0288 ±0.005
EF-CF-4	キャベツ	1747 ±64	21.0 ±0.3	0.0303 ±0.005
EF-CF-5	ハクサイ	9823 ±415	6.52 ±0.09	0.0890 ±0.004
EF-CF-6	キャベツ	2067 ±60	3.31 ±0.03	0.0245 ±0.008
EF-CF-7b	ネギ	2383 ±85	2.79 ±0.05	0.0330 ±0.010
EF-CF-8	ハクサイ	4187 ±1469	15.9 ±1.6	0.0559 ±0.006
EF-CF-10b	ダイコン	2514 ±105	7.15 ±0.05	0.0536 ±0.012
EF-SD-1	黒ボク土	110 ±110	46.0 ±0.2	15.8 ±0.2
EF-SD-2	多湿黒ボク土	66 ±86	65.9 ±0.3	10.2 ±0.1
EF-SD-3	灰色低地土	57 ±70	2.4 ±0.0	0.75 ±0.02
EF-SD-4	黒ボク土	192 ±71	45.6 ±1.2	18.0 ±0.6
EF-SD-5	黒ボク土	71 ±59	45.1 ±0.8	14.8 ±0.1
EF-SD-6	グライ低地土	71 ±61	3.7 ±0.1	1.19 ±0.02
EF-SD-7	黒ボク土	53 ±37	13.5 ±0.1	2.36 ±0.01
EF-SDF-8	褐色低地土	86	4.9 ±0.1	7.4 ±0.1
EF-SD-10	黒ボク土	83 ±57	77.7 ±3.7	30.1 ±1.2
EF-CF-1	TF	18	0.62	0.007
EF-CF-2b	TF	23	0.05	0.003
EF-CF-3	TF	39	0.47	0.038
EF-CF-4	TF	9	0.46	0.002
EF-CF-5	TF	138	0.14	0.006
EF-CF-6	TF	29	0.89	0.021
EF-CF-7b	TF	45	0.21	0.014
EF-CF-8	TF	49	3.24	0.008
EF-CF-10b	TF	30	0.09	0.002
Average	TF	42	0.69	0.011
Tecdoc-1616 or TRS-472	TF, Leafy vegetables	26 (14-48)	-	0.0065

表 4.5-1 2008 年から 2016 年にかけて文献に報告された Th の土壌-植物間移行係数
注：データベースに追加するためには、測定方法，部位，サンプル前処理方法について精査が必要

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS 472 GM	Remark
Grass	171	1.3×10^{-1}	1.4×10^{-1}	5.9×10^{-2}	4.6	2.0×10^{-3}	9.0×10^{-1}	4.2×10^{-2}	a, c
Leafy Vegetable	10	2.8×10^{-1}	1.0×10^{-1}	2.6×10^{-1}	3.0	1.4×10^{-1}	3.4×10^{-1}	1.2×10^{-3}	a
Fruit									
edible part	18	1.5×10^{-1}	4.5×10^{-1}	6.0×10^{-2}	7.0	2.5×10^{-4}	1.3		a
inedible part	7	1.2×10^{-1}	7.7×10^{-2}	9.2×10^{-2}	6.3	1.0×10^{-3}	0.7		
Non-leafy Vegetable									
edible part	43	2.3×10^{-1}	3.7×10^{-1}	2.6×10^{-2}	13	1.9×10^{-4}	1.7	7.8×10^{-4}	a
inedible part	11	3.4×10^{-1}	2.7×10^{-1}	2.4×10^{-1}	3.7	3.8×10^{-2}	9.1×10^{-1}	2.2×10^{-3}	a
Cereal (except rice)	8	8.5×10^{-2}	5.2×10^{-2}	4.5×10^{-2}	6.5	3.6×10^{-4}	1.7×10^{-1}	2.1×10^{-3}	a, b
Rice									
edible part	40	5.5×10^{-2}	1.1×10^{-1}	1.5×10^{-2}	8.1	3.1×10^{-5}	4.8×10^{-1}	1.6×10^{-4}	a
inedible part	3	3.0×10^{-3}	2.0×10^{-3}	2.5×10^{-3}	2.0	1.0×10^{-3}	5.0×10^{-3}		
Tuber									
edible part	9	1.7×10^{-1}	3.0×10^{-1}	3.8×10^{-2}	21	2.5×10^{-3}	1.9×10^{-1}	2.0×10^{-4}	a
inedible part	10	3.6×10^{-2}	2.9×10^{-2}	2.9×10^{-2}	14	1.3×10^{-2}	1.2×10^{-1}	1.9×10^{-2}	
Root crop	6	5.9×10^{-1}	5.5×10^{-1}	4.6×10^{-1}	2.4	2.8×10^{-1}	1.7	8.0×10^{-4}	a
Tree	17	1.5×10^{-2}	2.5×10^{-2}	2.8×10^{-3}	12	4.6×10^{-5}	1.0×10^{-1}		b, d

- a: Under natural field conditions, TFs were obtained by examining ^{232}Th concentrations in the plant and corresponding soil samples.
b: In an abandoned uranium mine, TFs were obtained by examining ^{230}Th (or ^{232}Th) concentrations in the plant and corresponding soil samples.
c: In U-mill tailing disposal sites, TFs were obtained by examining ^{230}Th concentrations in the plant and corresponding soil samples.
d: In a wetland site contaminated by radioactive waste discharged from a nuclear research facility, TFs for ^{232}Th were determined.

引用文献

- Grass: Nie, et al., 2010; Tuovinen, et al., 2016; Matveyeva, et al., 2015; ICRP, 2009; Alharbi and El-Taher., 2013; Kristsanauwat et al., 2014; Cerne et al., 2010; Dragovic et al., 2010; Khan et al., 2011; Oufni et al., 2011; Pallavicini, 2011; Smadis et al., 2012; Chakraborty et al., 2013; Strok and Smadis 2013.
Leafy Vegetable: Hossen, 2015
Fruit: Alharbi and El-Taher, 2013; Kristsanauwat et al., 2014; Kumar et al., 2008; Shanthi et al., 2012
Non-Leafy vegetable: Kristsanauwat et al., 2014; Zhang et al., 2011; Shanthi et al., 2012; Aswood et al., 2013; Mheemeed et al., 2014.
Cereal: Alharbi 2013; Khan 2010; Mihaylova, 2013
Rice: Asaduzzaman, et al., 2015; Alsaffar, et al., 2015; Kristsanauwat et al., 2014; Shanthi et al., 2012; Saeed et al., 2012.
Tuber: Asaduzzaman, 2014, Khan 2010; Chauhan, 2015
Root crop: Asaduzzaman, 2014; Shanthi, 2012
Tree: Rodriguez, 2010; Popic, 2011; Zhang, 1989

表 4.5-2 2008 年から 2016 年の文献に報告された Am の土壌-植物間移行係数
注：データベースに追加するためには、部位、サンプル前処理方法について精査が必要

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS-472 GM	Remark
Grass	28	0.24	0.57	2.6×10^{-3}	103	9.0×10^{-5}	1.4	3.3×10^{-2}	a, b
Leafy Vegetable	4	1.2×10^{-3}	2.4×10^{-3}	6.3×10^{-5}	19	3.6×10^{-6}	4.9×10^{-3}	2.7×10^{-4}	b, d
Non-leafy Vegetable									
edible part	7	1.4×10^{-3}	1.4×10^{-3}	6.9×10^{-4}	11	9.0×10^{-5}	3.7×10^{-3}	3.6×10^{-4}	c, d
inedible part	3	3.7×10^{-4}	1.5×10^{-4}	3.4×10^{-4}	1.5	2.0×10^{-4}	5.0×10^{-4}		
Tuber	3	1.1×10^{-5}	2.3×10^{-6}	1.0×10^{-5}	1.2	8.4×10^{-6}	1.3×10^{-5}	2.1×10^{-4}	b
Root crop	4	1.3×10^{-3}	2.5×10^{-3}	6.2×10^{-5}	22	6.9×10^{-6}	5.1×10^{-3}	6.7×10^{-4}	b, d

a: In a dune adjacent to Sellafield and a low level waste disposal site, TFs for ^{241}Am were determined.

b: In lysimeters spiked with ^{241}Am , TFs for Am were obtained by examining the ^{241}Am concentration in plant and soil samples.

c: In natural conditions, aggregated TFs were obtained by examining ^{241}Am concentrations in the plant and corresponding soil samples.

d: In natural conditions, TFs were obtained by examining ^{241}Am concentrations in the plant and corresponding soil samples.

引用文献

Grass: ICRP, 2009; Todorov, 2015

Leafy vegetable: Gomeze, 2013; Li, 1994

Non-leafy vegetable: Lehto, 2013; Li, 1994

Tuber: Gomeze, 2013

Root crop: Gomeze, 2013; Li, 1994

表 4.5-3 2008 年から 2016 年の文献に報告された Pu の土壌-植物間移行係数
注：データベースに追加するためには、部位、サンプル前処理方法について精査が必要

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS-472 GM	Remark
Grass	20	2.5×10^{-2}	7.8×10^{-2}	2.3×10^{-4}	44	1.1×10^{-6}	3.3×10^{-1}	1.6×10^{-4}	a, b, c
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}	d
Non-leafy Vegetable edible part	1	3.0×10^{-5}							
inedible part	3	1.9×10^{-4}	1.2×10^{-4}	1.5×10^{-4}	2.0	6.0×10^{-5}	3.0×10^{-4}	6.5×10^{-5}	e
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}	d
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}	d

a: In a dune adjacent to Sellafield and a low level waste disposal site, TFs was determined by examining the $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations in plant and soil

b: In a contaminated area near a decommissioned nuclear facility, Pu TFs were determined.

c: In natural environment, TFs were determined by examining ^{239}Pu concentrations in the plant and corresponding soil samples

d: In lysimeters spiked with $^{239,240}\text{Pu}$, TFs for Pu were obtained by examining the $^{239,240}\text{Pu}$ concentration in plant and soil samples.

e: In natural conditions, aggregated TFs were obtained by examining $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations in the plant and corresponding soil samples.

引用文献

Grass: ICRP, 2009; Xu, 2009; Li, 2011; Froehlich, 2015

Leafy vegetable: Gomeze, 2013

Non-leafy vegetable: Lehto, 2013

Tuber: Gomeze, 2013

Root crop: Gomeze, 2013

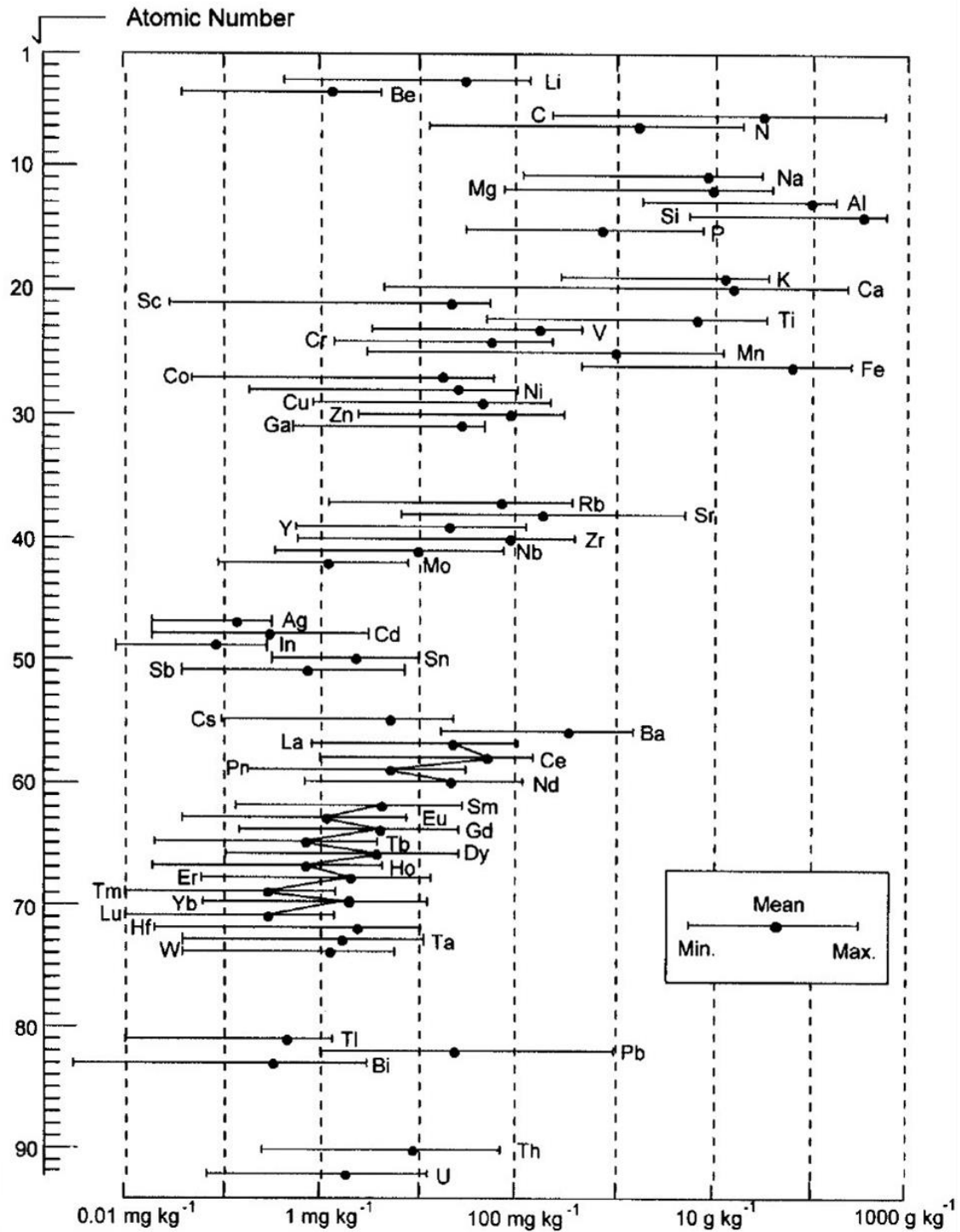


図 4.2-1 我が国の土壌中微量および極微量元素の濃度範囲
(Yamasaki et al., 2001 のデータ引用)

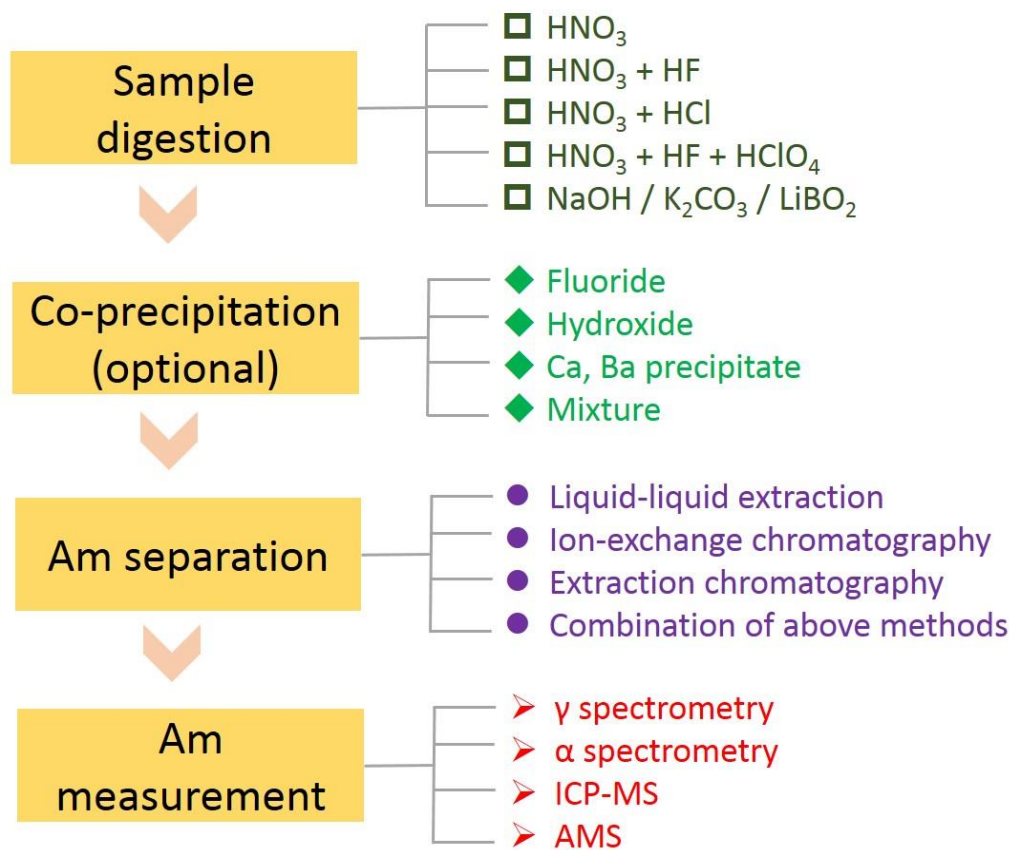


図 4.2-2 環境試料中の Am 分析法のアウトライン

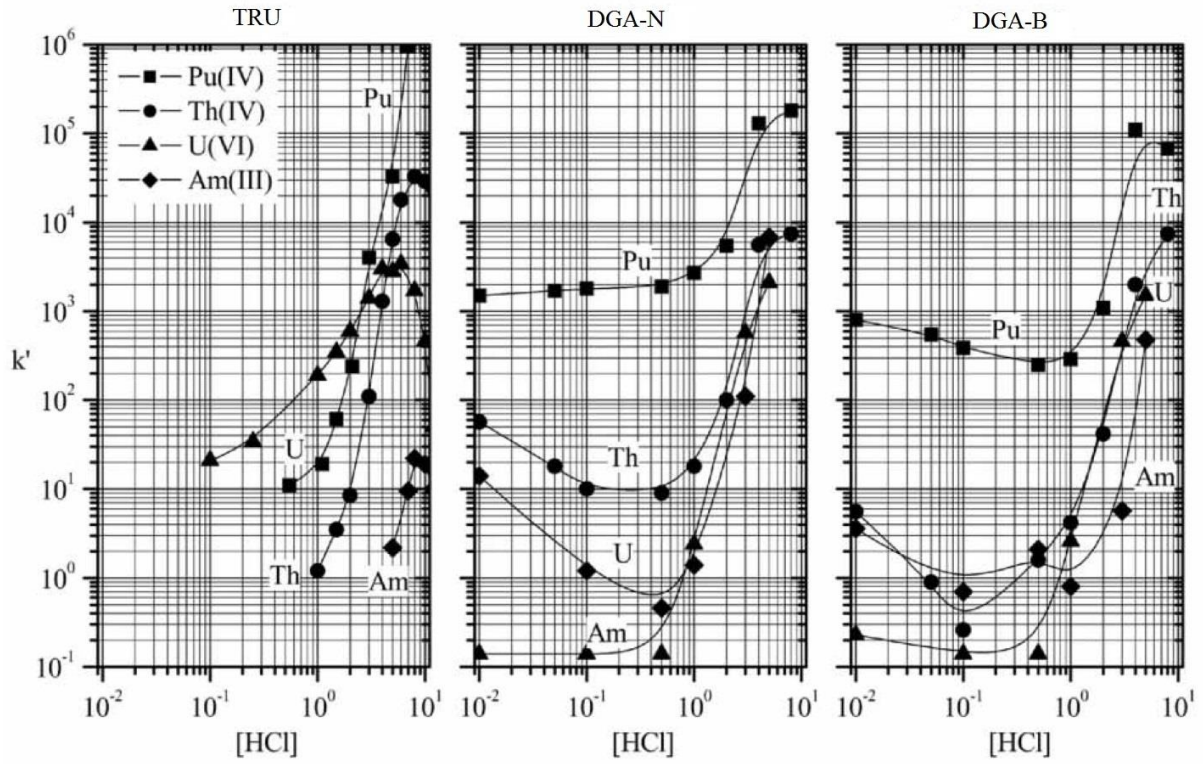


図 4.2-3 塩酸による TRU, DGA-N および DGA-B における Th (IV), U (IV), Am (III) および Pu (IV) の retention factor k' (Horwitz et al., 2015 から抜粋)

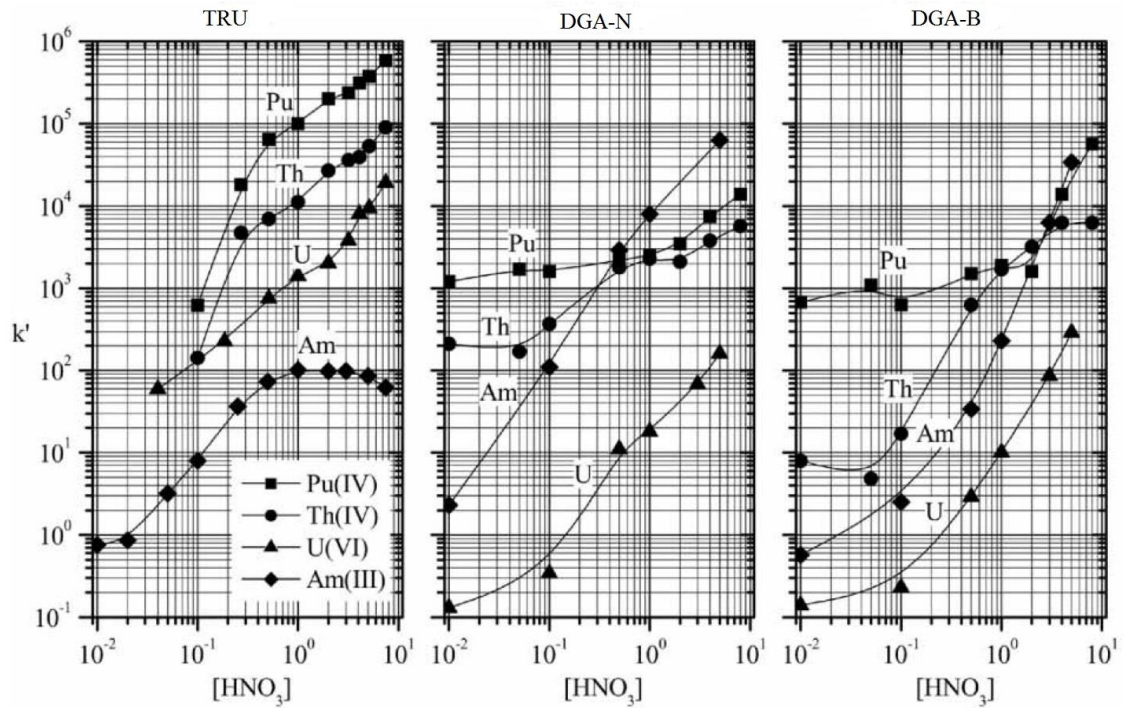


図 4.2-4 硝酸による TRU, DGA-N および DGA-B における Th (IV), U (IV), Am (III) および Pu (IV) の retention factor k' (Horwitz et al., 2015 から抜粋)

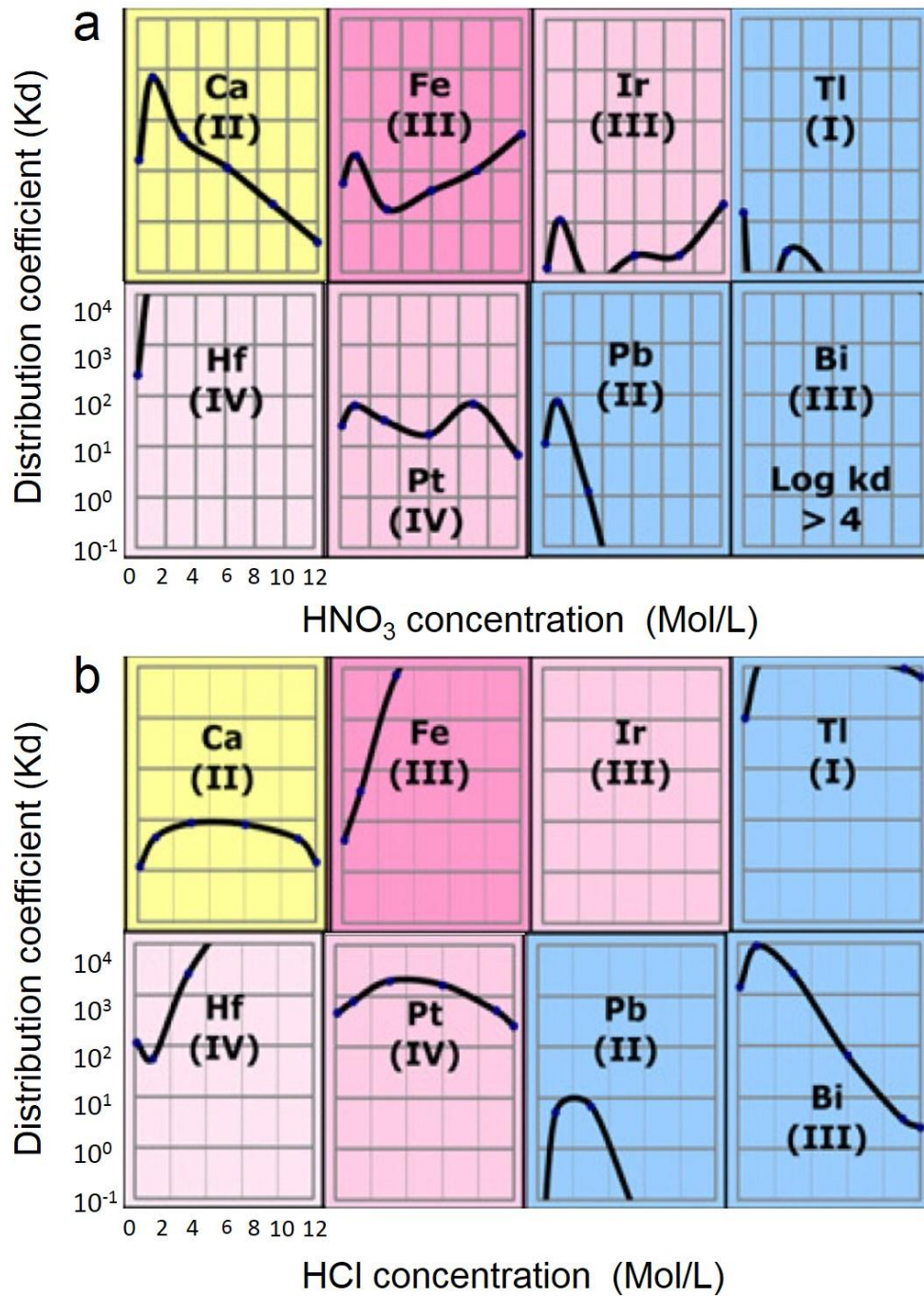


図 4.2-5 様々な濃度の硝酸および塩酸溶液による DGA-N 樹脂の妨害元素の収着特性 (Pourmand and Dauphas, 2010 から抜粋)

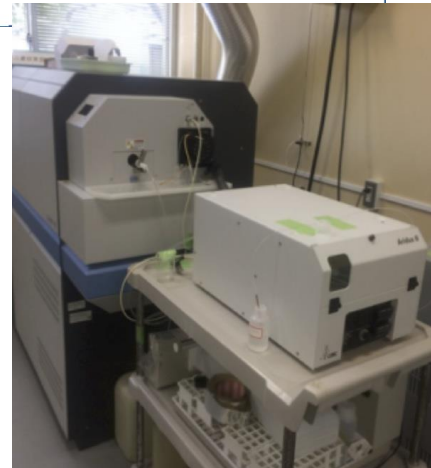
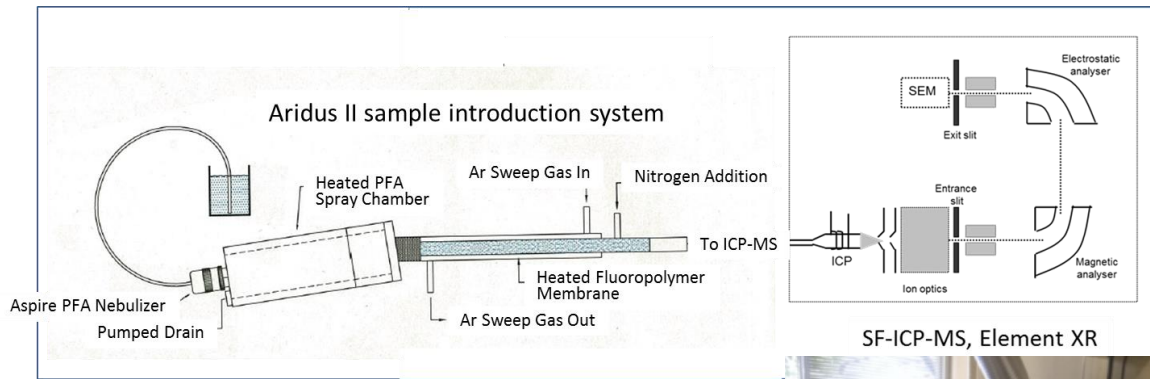


図 4.2-6 高効率試料導入システム (Aridus II) と結合した SF-ICP-MS (Element XR) の概略図

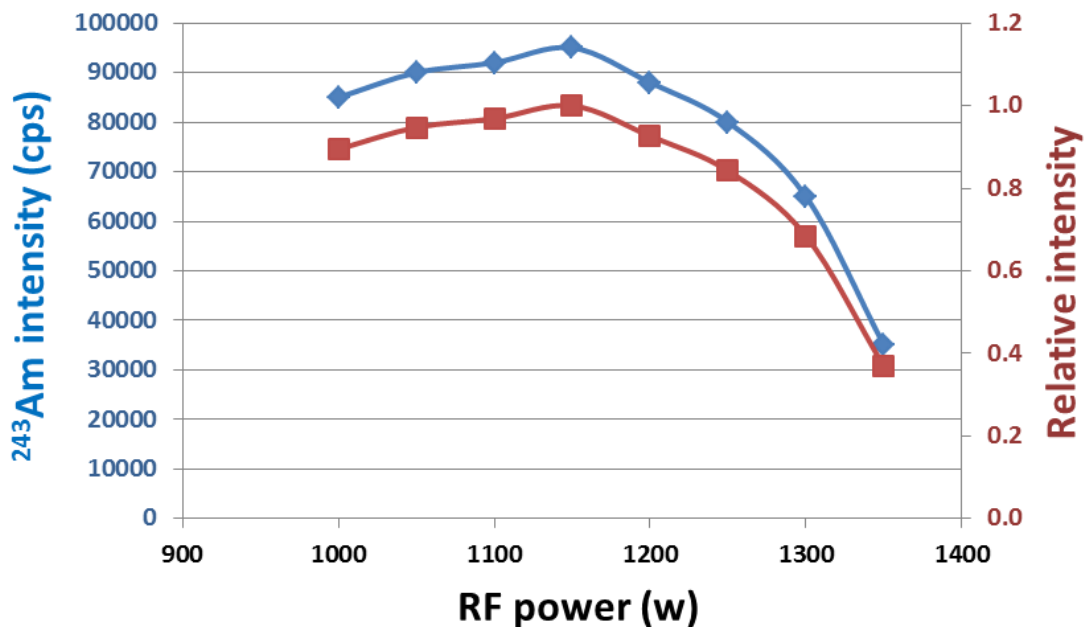


図 4.2-7 試料導入装置 Aridus II を最適条件下でセットした場合の Am 感度 (²⁴³Am, 1.07 pg/mL) に及ぼす RF パワーの効果 (N₂ gas flow 4 mL/min; Ar sweep gas flow 7 L/min; Nebulizer gas flow 1.09 L/min).

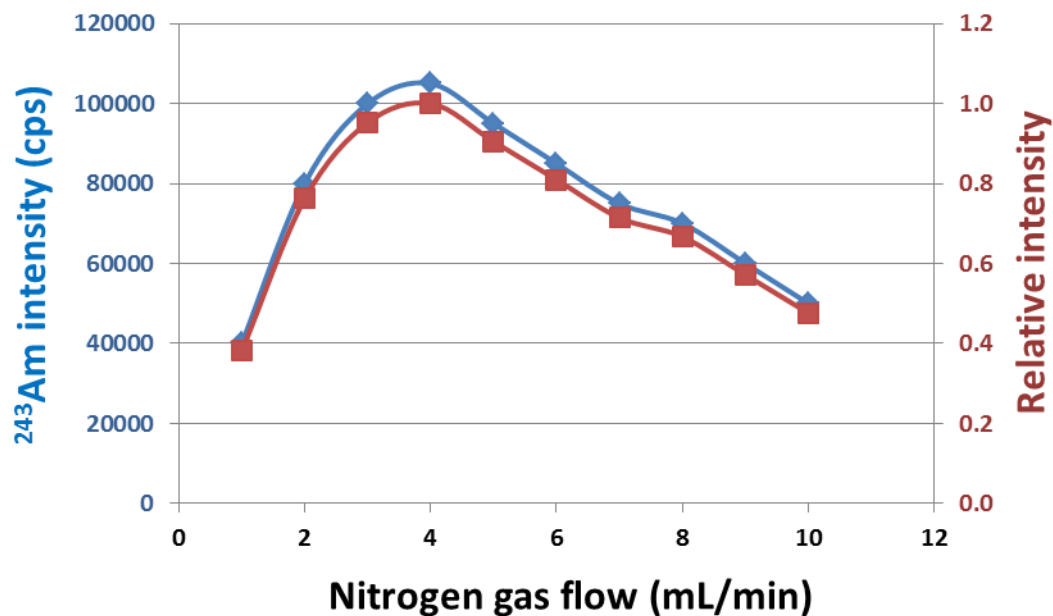
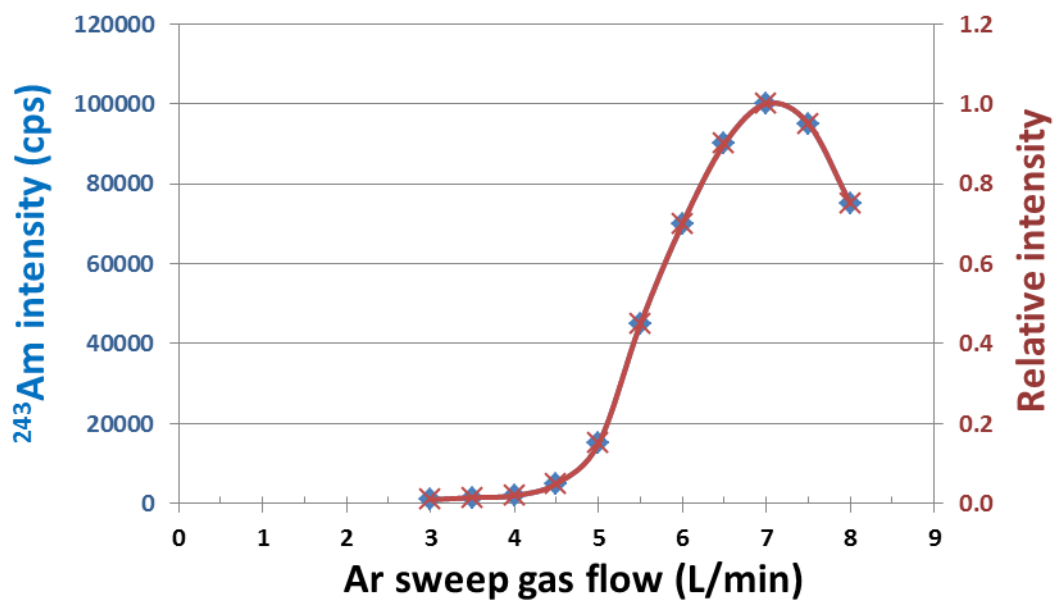


図 4.2-8 試料導入装置 Aridus II を最適条件下でセットした場合の Am 感度 (^{243}Am , 1.07 pg/mL) に及ぼす Ar ガス流量と窒素ガス流量の影響 (RF 1150 W; Nebulizer gas flow 1.09 L/min).

Am intensity (cps)

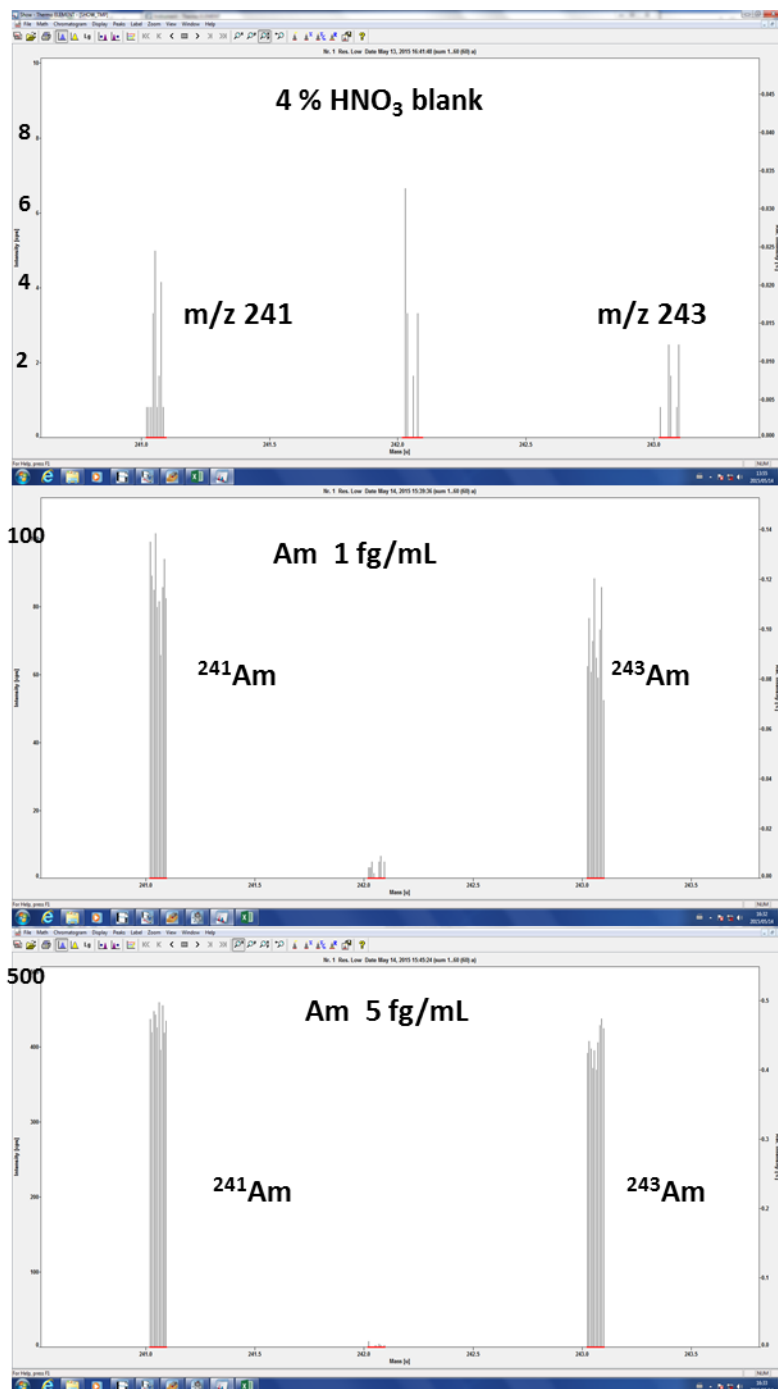


図 4.2-9 Aridus II-Element XR 分析システムによる Am 標準溶液 (1 fg/mL と 5 fg/mL) の測定スペクトル

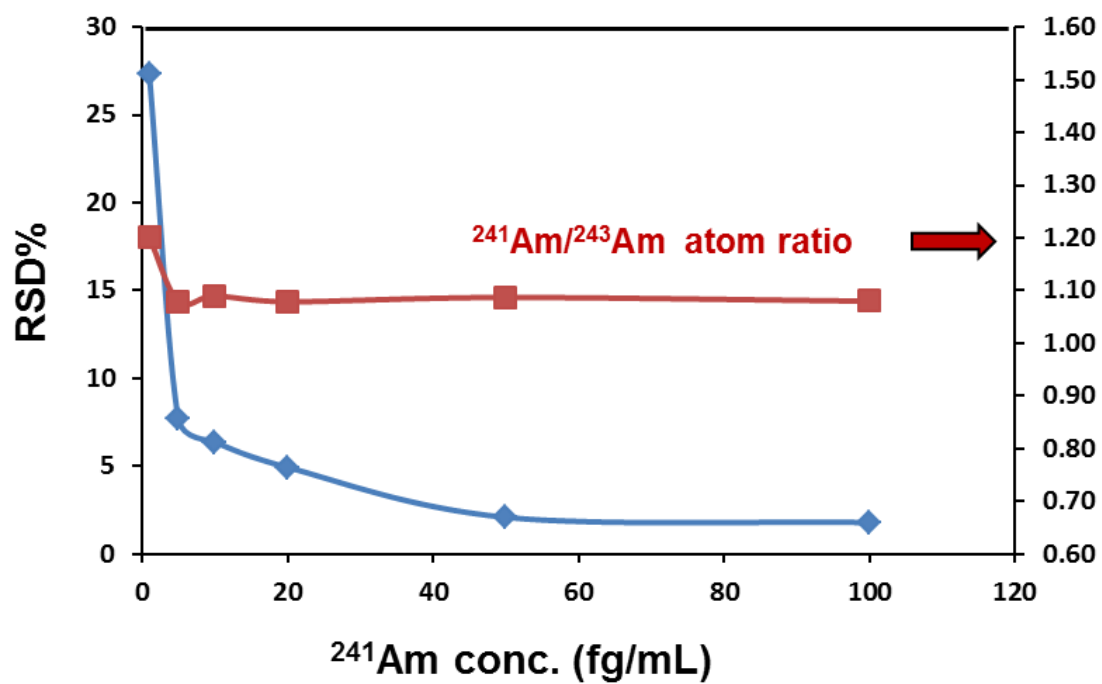


図 4.2-10 $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比測定に及ぼす Am 濃度の影響

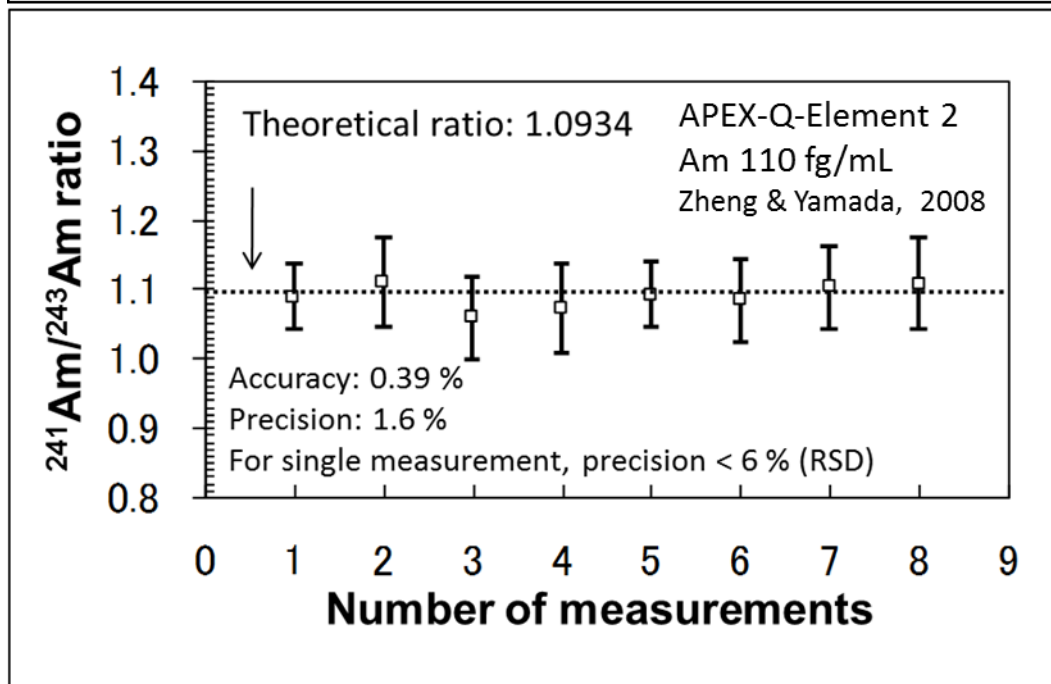
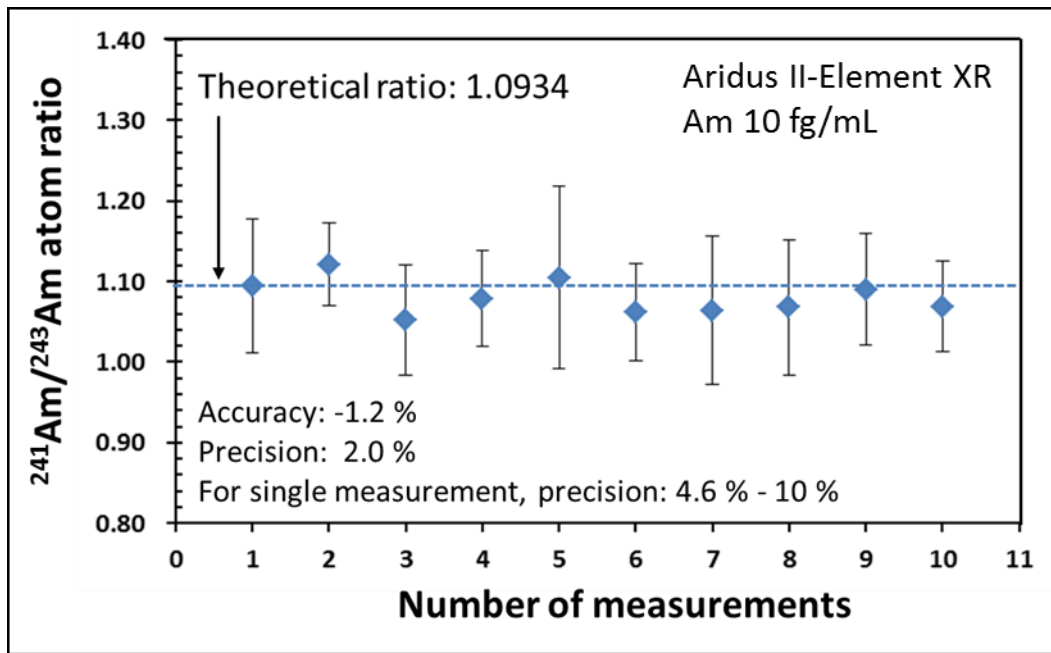


図 4.2-11 Aridus II-Element XR システムと APEX-Q-Element 2 システムによる $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比測定と比較 (APEX-Q-Element 2 のデータは Zheng and Yamada, 2008 より引用)

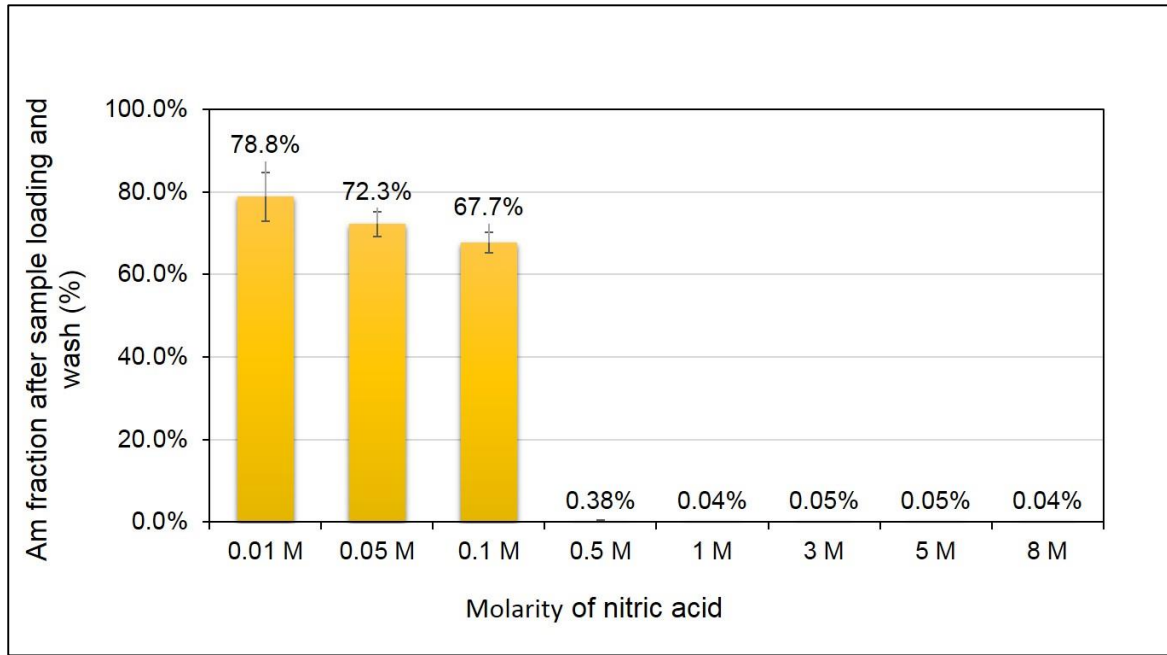


図 4.2-12 DGA-B 樹脂に試料を負荷しマトリックス元素を様々な濃度の硝酸溶液で洗浄を行った場合の Am の溶出

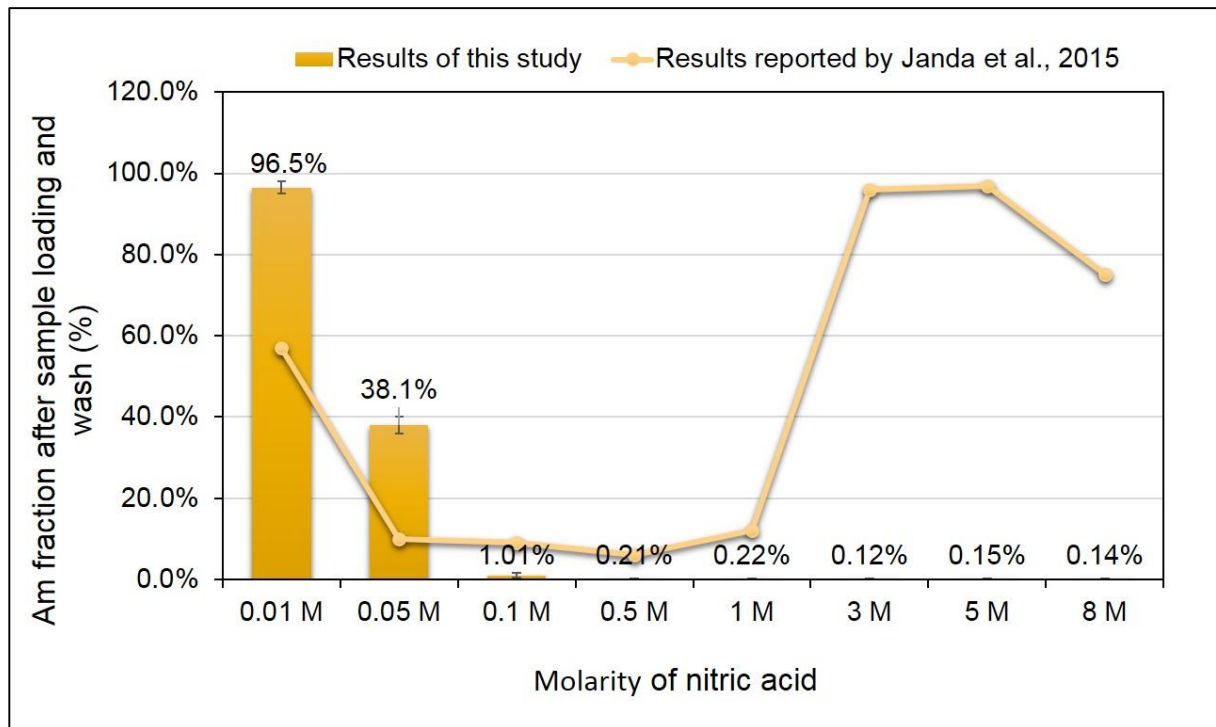


図 4.2-13 DGA-N 樹脂に試料を負荷しマトリックス元素を様々な濃度の硝酸溶液で洗浄を行った場合の Am の溶出 (本研究の結果と Janda et al., (2015)のデータのプロット)

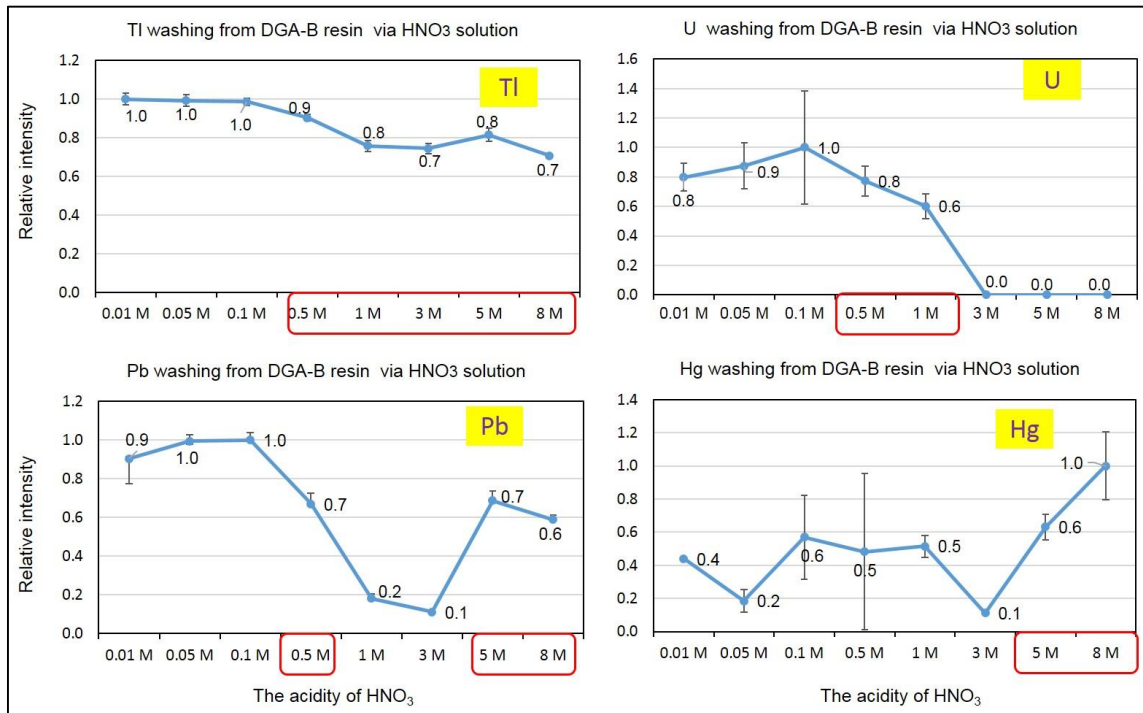


図 4.2-14 DGA-B 樹脂から様々な濃度の硝酸溶液で洗浄した場合の妨害元素、U, Pb, Tl および Hg の洗浄効率
 相対強度 (relative intensity) は、最大のシグナル強度に対するそれぞれの酸濃度におけるシグナル強度の比である。

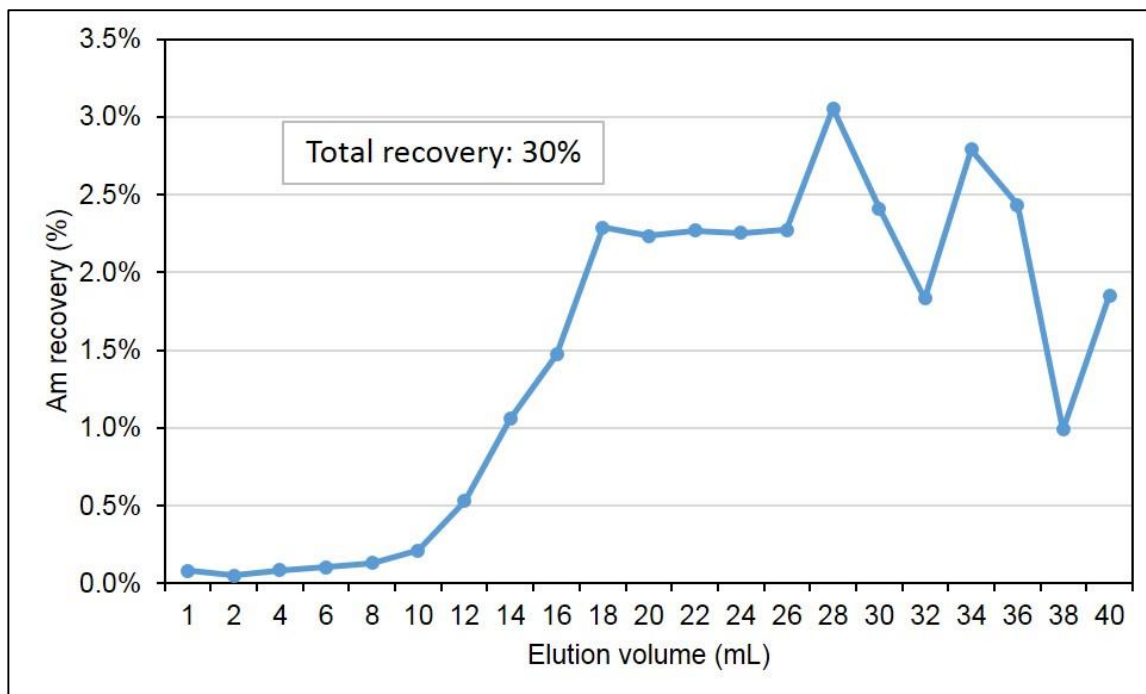


図 4.2-15 堆積物試料 (NIST-4357) を DGA-N 樹脂から 0.01 M の硝酸で Am を溶離した場合の溶出曲線

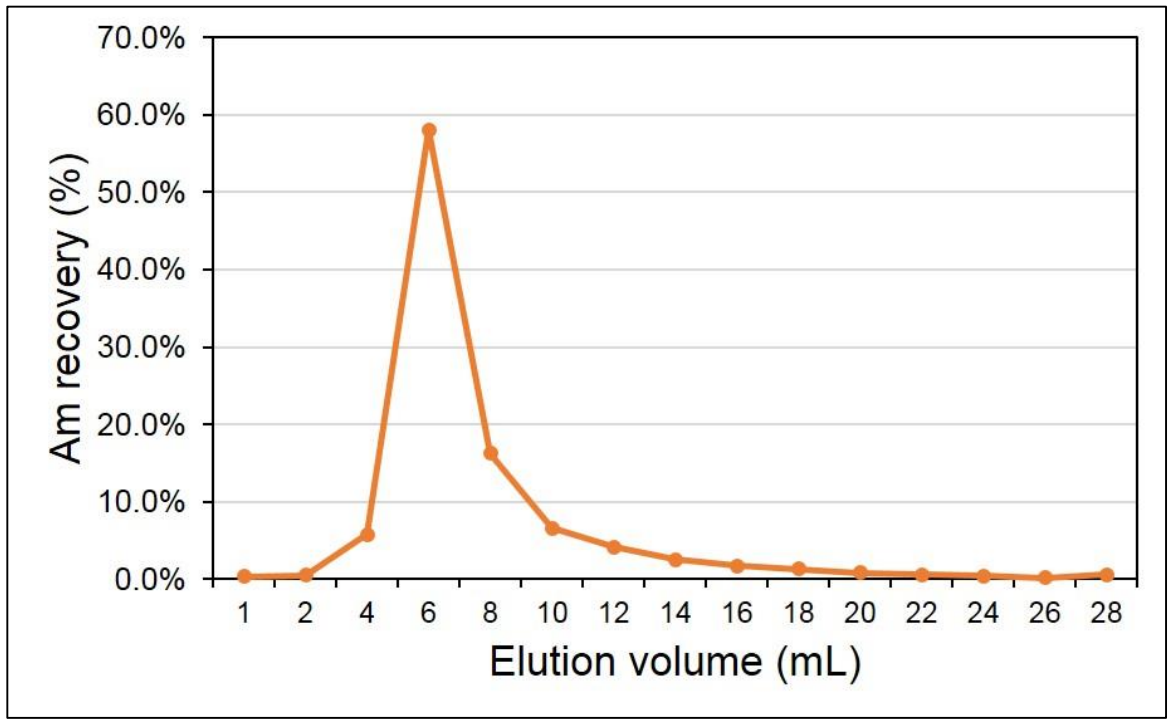


図 4.2-16 NIST-4357（堆積物標準物質）を用いたときの DGA-B レジンからの 0.01M HNO₃ による Am 溶出曲線

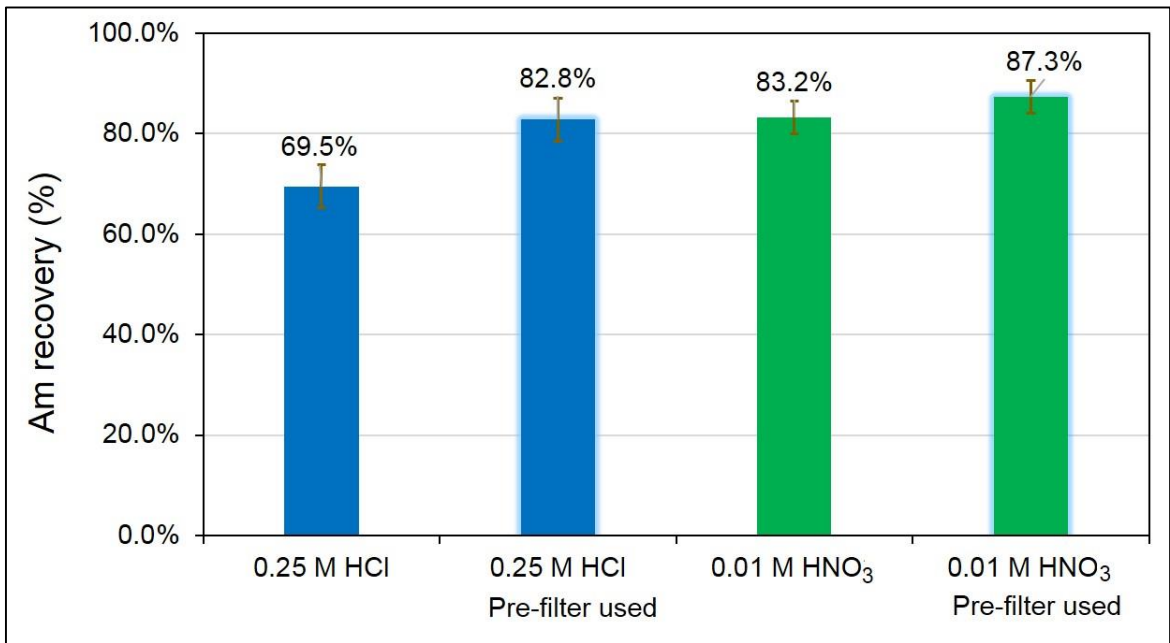


図 4.2-17 塩酸および硝酸溶液による Am 溶離の際に回収率に及ぼすプレフィルターの効果

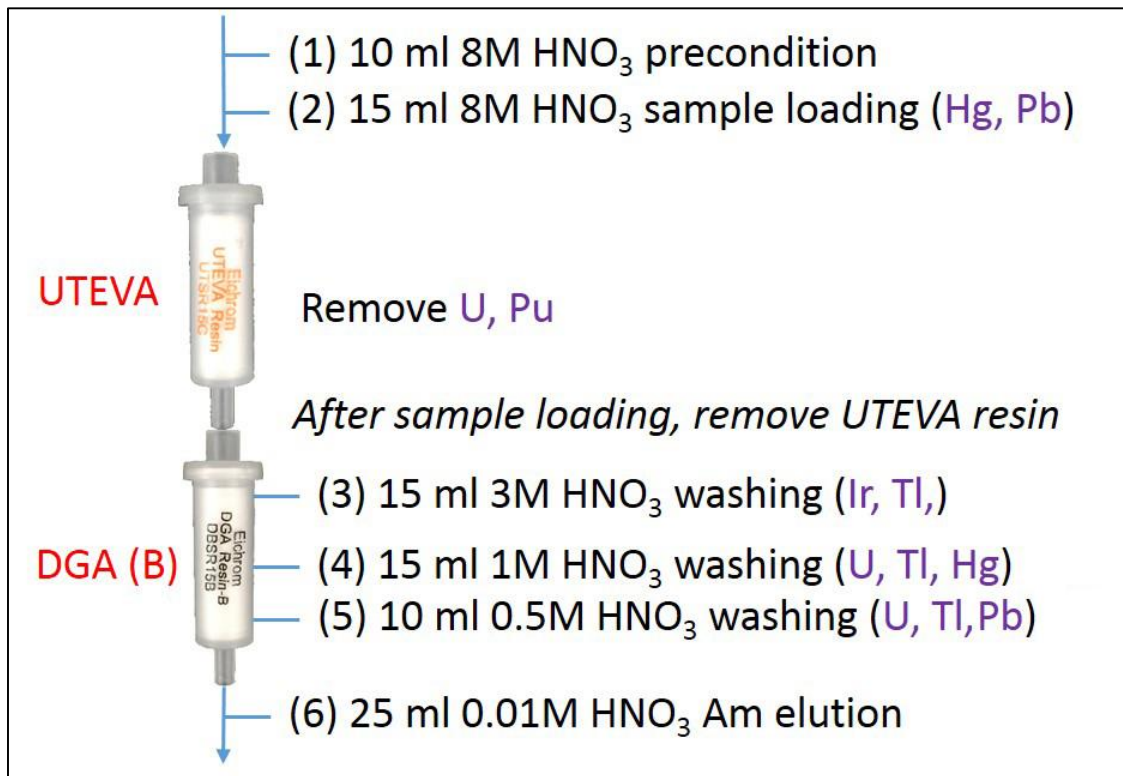


図 4.2-18 DGA-B 樹脂を用いた Am 分離のために開発した方法

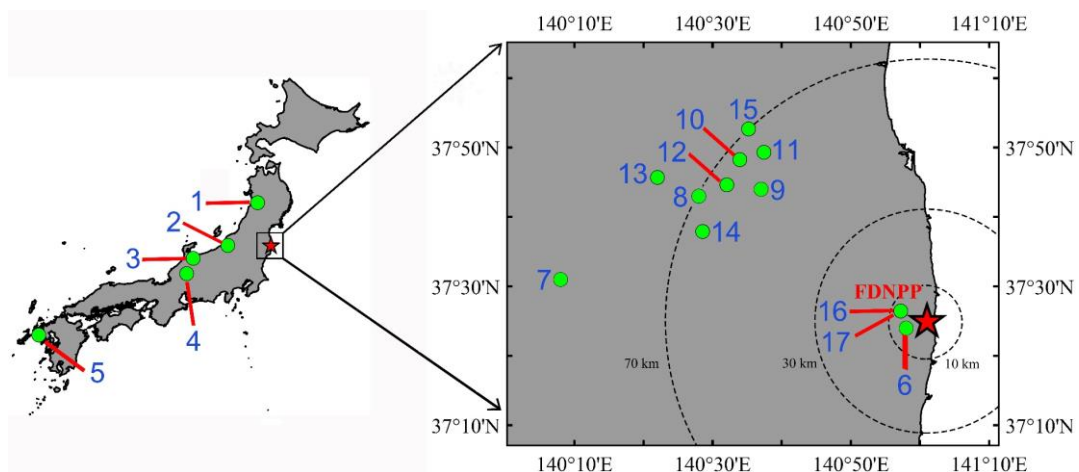


図 4.3-1 本研究における土壌および作物試料採取地点

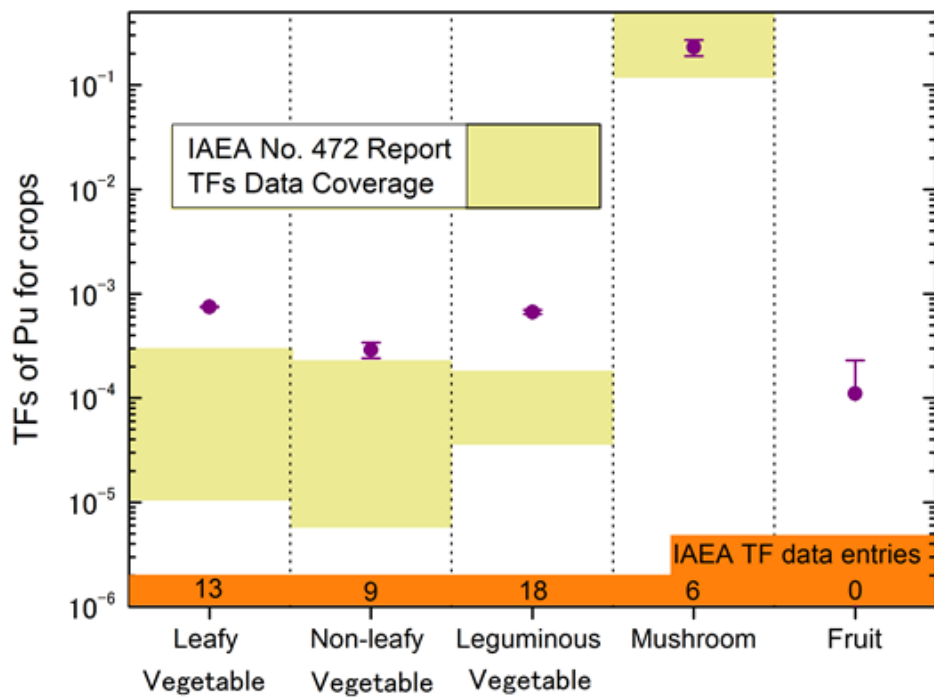


図 4.3-2 Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較

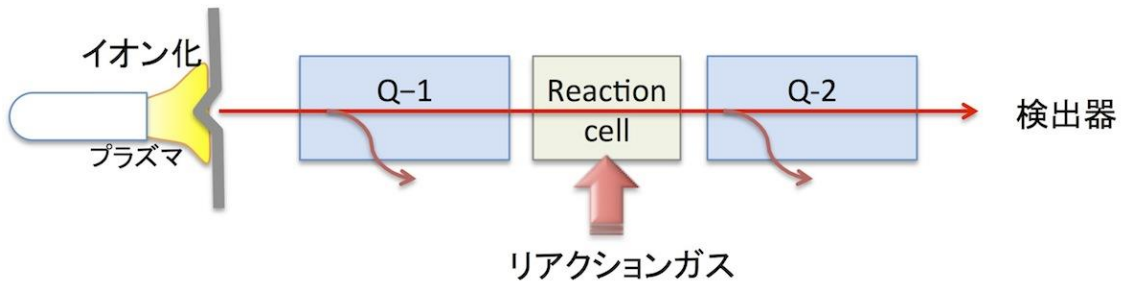


図 4.4-1 トリプル四重極 ICP-MS の模式図

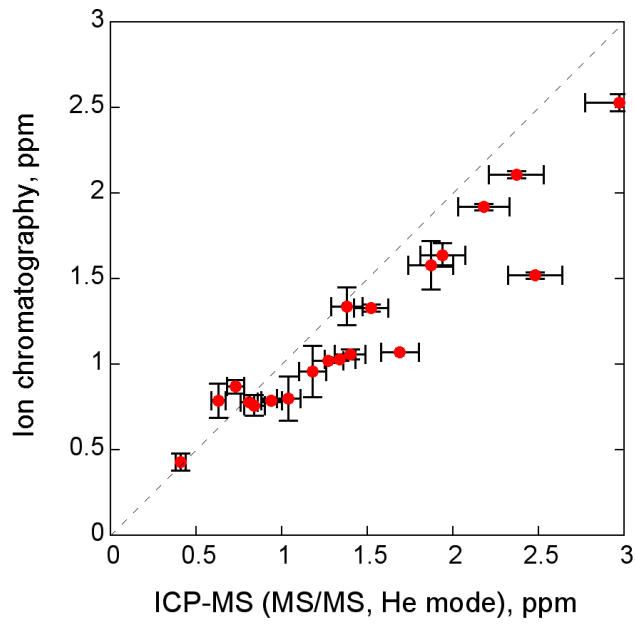


図 4.4-2 ICP-MS (MS/MS + He) とイオンクロマトグラフィによる
土壌溶液中の塩素分析結果の比較

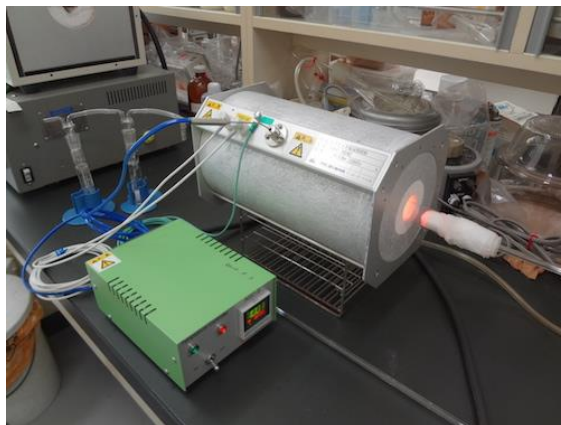


図 4.4-3 管状加熱気化装置

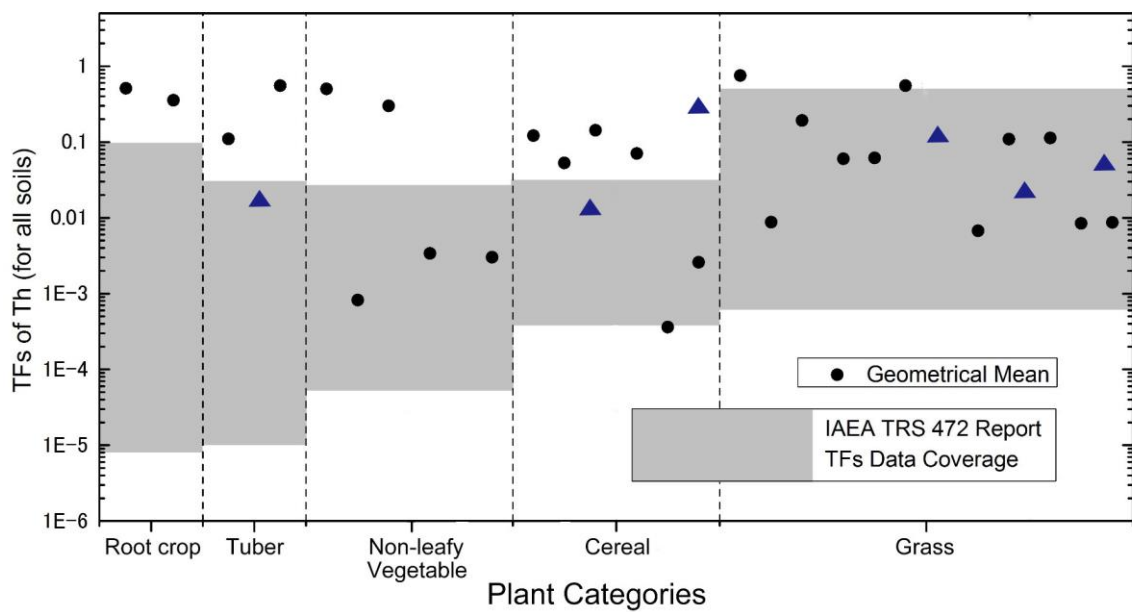


図 4.5-1 2008 年から 2016 年に報告された Th の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較

注：各ドットは文献値の幾何平均値。▲は 1 年間で追加された文献値の幾何平均値

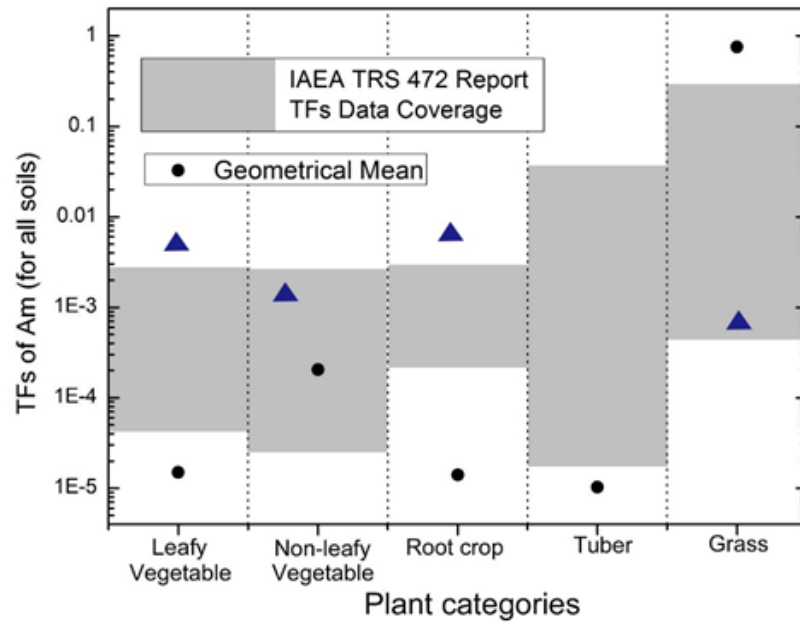


図 4.5-2 2008 年から 2016 年に報告された Am の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較

注：各ドットは文献値の幾何平均値。▲は 1 年間で追加された文献値の幾何平均値

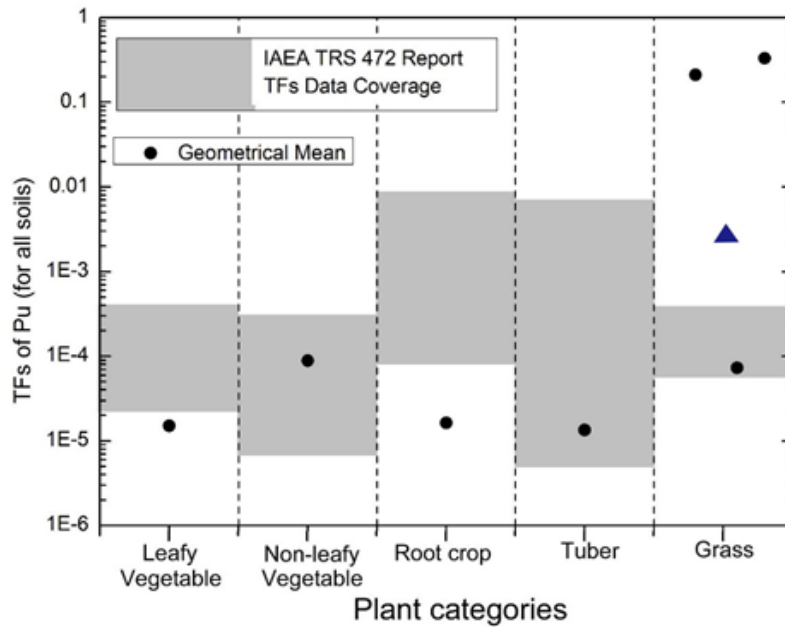


図 4.5-3 2008 年から 2016 年に報告された Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較

注：各ドットは文献値の幾何平均値。▲は 1 年間で追加された文献値の幾何平均値

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。

本章で報告した調査研究の目的は、環境移行パラメータ (TF, Kd) に及ぼす気温等の影響評価を行うこと、もし変動の影響を受けるのであれば、それを考慮したデータベースを構築することである。そのためには質の揃ったデータセットが必要であることから、土壌・農作物試料収集を行い、元素分析・定量し、TF データを蓄積している。また、Cs の Kd について、温度を考慮した検討を本年度より開始した。さらに本章では、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。

5.2.1. TF に対する気温の影響調査

農作物の生育に地温が影響することが指摘されていることから、気温と地温の関係を実測により明らかにした。年間を通した結果では、農作物の根圏域となる地下 20cm における畑条件土壌の地温は、気温とほぼ一致していた。日陰の状態においても気温と同様になることがわかった。これにより、寒冷地と温暖地を気温によって区分することが妥当であることが示された。

文献調査により、作物の元素濃度と気温に関する情報を収集した。一部の多量元素の結果が直接気温に関わるデータとして示されただけであったことから、多量～微量元素については情報が不十分であることがわかった。なお、気温が下がることによって植物の生育が抑制されても、無機元素は吸収されるので、必然的に植物中の元素濃度が高まると予測されている。したがって、寒冷化により TF が高くなると予想された。

そこで、実測データによりこの傾向を我が国のグローバルフォールアウトのデータを用いて、昨年度に引き続き、TF の変動要因を明らかにするために、陸水中の濃度変化に着目した。その結果、陸水中の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度の経年変化は土壌の減少割合と類似していることがわかった。すなわち、土壌-陸水は 1982 年から 2010 年の間、ほぼ平衡状態であったことを示している。陸水中の濃度は、寒冷地および温暖地とも ^{90}Sr が ^{137}Cs よりも高い結果であった。

また、グローバルフォールアウトデータより、葉菜類および根菜類について、土壌中の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度を推測することにより見かけの TF を求めた。その結果、 ^{137}Cs については葉菜類、根菜類とも、温暖地と寒冷地で得られた結果に差がなかったが、 ^{90}Sr の結果は寒冷地と温暖地で有意な差があり、葉菜類、根菜類とも温暖地で高くなった。これは降水量が多いことと間接的に関連している可能性がある。詳細に検討するためには、農作物と収穫時の土壌をセットで採取・分析し、データベースを作成する必要があることが示された。

5.2.2. 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)

本年度は昨年度に引き続き、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を行い、土壌特性分析をするとともに、元素濃度定量を農作物および土壌それぞれについて 20 元素程度行い、濃度データを得た。さらに、得られた濃度データを用い、農作物中濃度 (乾重) / 土壌中濃度 (乾重) により TF を導出してデータベースに追加し、前年度のデータと併せて幾何平均値を算出し TF を比較した。玄米とジャガイモのどちらの TF でも Sr および Ba が温暖地においてやや高い傾向が見られた。それぞれの条件でのデータ蓄積は 10 データずつであり、統計処理を行うためにはより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 TF データベースに蓄積することで、これらの情報が TF 変動要因の解析に役立つと期待されることから、これらについてのデータ採取も必要である。

今年度はまた、平成 26 年度に採取した土壌および作物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することができた。

5.2.3 環境移行パラメータ (TF) の変動要因の解析

本年度は移行係数に着目し，Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Gd, Pb, Th, U の 37 元素について検討を行った。葉菜類については，栽培期間が短いこと，季節によって栽培時の気温が大きく変動することから，単純に栽培地の年間平均気温による分類をせず，栽培時の平均気温が重要と考え，収穫日の 1 ヶ月前月の平均気温を用いて分類を試みた。栽培期間温度が寒冷条件（平均 11°C）と温暖条件（平均 21°C）に 14 データずつを得ることができた。これらのデータを用いて統計解析を行ったところ，全ての元素で有意差が認められなかった。そこで，Th と U について葉菜類でも作物種別に検定したところ，U で有意差が確認され，その結果から，結球性・非結球性の分類についてさらに検討を行った。その結果，この分類においても栽培条件による影響よりも，作物種（結球性・非結球性）によって TF が影響を受けることが明らかになった。特に非結球性で TF が高くなることがわかった。しかしながら，より長期間栽培される米やジャガイモについて同様結果が得られるかどうかは不明であるため，さらにデータを蓄積して統計解析を行い，TF に変動を与える要因を明確にしていく必要がある。

5.2.4. 寒冷条件下における K_d - ^{137}Cs の測定結果

本年度は有機物含量に変動を与えない低温条件（10°C）において，Cs の K_d 値は 23°C と大きく異ならないと仮定し，水田土壌 20 試料，畑土壌 20 試料について K_d を求め，過去に 23°C で得られた結果と比較した。その結果，仮定した通り 10°C で得られた K_d 値は 23°C と有意差がなかった。また，土壌試料を水田土壌と畑土壌に分けても同様に有意差なしの判定であった。したがって， K_d -Cs は低温条件では変化せず，ヨウ素で見られたような微生物活性の直接的な影響はないと言える。

一方，より高温条件では，微生物活性が高まり，有機物分解等が促進されると考えられる。したがって，例えば 30°C における K_d を測定することで， K_d -Cs への温度の影響の有無を明らかにすることができると考えられる。この際，有機物分解が進むことで，より細かい粒径の有機物が発生する可能性があるため，Cs 吸着サイトの有機物によるマスキング効果が考えられる。諸条件を考慮すると，このような高温条件の実験においては，トレーサー添加量やフィルター取扱等に注意が必要である。

5.2.5 福島第一原発事故後の放射性 Cs の環境移行調査研究のまとめ

福島第一原発事故により環境中に放出された放射性セシウムの環境移行に関し，実環境試料中のデータ収集を行うことにより，環境移行パラメータを得ることを目的として調査研究を実施している。今回は植物，海水魚（底生魚）および淡水魚に関わるデータを報告した。

植物については，放射性 Cs 濃度の減少速度が緩やかになってきていることから，速い成分と遅い成分の二成分の指数関数フィッティングを試みた。その結果，マメ科の草本植物では，すでに平衡に達していることが示され，草本植物については TF データ収集が可能であることが示されたが，木本植物では平衡に達していないことがわかった。

海水魚については，生物学的半減期に着目して水温の違いの影響をモデル計算により検討した結果，海水温が低い場合には Cs 濃度が高まる結果となった。次に福島第一原発事故後の福島沖水域での底生魚の ^{137}Cs 濃度減少率が，実験室レベルよりも遅くなることについて

て検討を加えた。その結果、食物連鎖も影響している可能性があるが、魚からの排出が極めて遅い成分がある可能性を明らかにした。

淡水魚では、海水魚よりも¹³⁷Csを濃縮する機構があること、生物濃縮も重要なファクターであることから、新たに印旛沼において測定を開始し、安定同位体比を食物連鎖の指標に用いつつ徐々にデータの蓄積を進めているが、年間を通じた変動や魚の年齢についての情報も追加する必要があることから、調査の継続が必要である。

以上のような検討を行うことで、長期的な環境安全評価を行う上で必要な環境移行パラメータの収集を行い、周辺情報と併せてデータベース化することによって、いろいろな環境条件における情報を蓄積することができる。TFやKdデータ収集は未だ不十分でありしたがって今後さらにフィールドでのサンプリングと定量分析を行いながら、我が国の環境移行パラメータデータベースを構築する必要がある。

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、ガス化を考慮した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、日本の15地点から採取した水田土壌を用いて95種類の炭素資化性についてデータを収集した。また、¹⁴Cガス発生量および炭素資化性に対する気温の影響についてもデータを収集した。ガス発生に対する気温の効果は、水稻全体モデルのパラメータ設定のための基礎データとして利用し、モデルの精緻化を行った。近傍大気と環境大気とのガス交換は水稻に蓄積される¹⁴C量に影響する。そのため、模擬水田環境およびイネ科草本植物群落内で、ガス交換のデータ取得のための予備実験を開始した。本年度取得した実測データに基づき、水稻全体モデルのパラメータを変更し、改良モデルの妥当性および各パラメータの感度解析を行った。以上の結果をこの章でまとめ、今後の課題について述べる。

日本の北と南の地区から15地点の水田土壌を選定し、土壌微生物による95種類の炭素資化能について調査した。利用できる炭素の種類、および利用速度は水田土壌により異なることが明らかとなった。限られた土壌での試験結果ではあるが、我が国の水田土壌において資化されやすい炭素源はMaltose, α -D-Glucose, D-Galactose, Tween 80, およびSucroseであった。逆に、資化されにくい炭素源はギ酸, Thymidine, Glucose-6-Phosphate, N-Acetyl-D-galactosamine, およびD-Serineであることが分かった。金属TRU廃棄物から酢酸が発生する可能性が示唆されており、本事業においても特に重要な化学種としてデータが蓄積されてきている。この酢酸であるが、95種の有機物のうち14番目に利用し難い有機物であることが分かった。さらに、酢酸は土壌微生物活性を抑制している可能性も示唆された。炭素はありとあらゆる生物にとって必須元素である。したがって、TRU廃棄物処分場から生活圏に移行した¹⁴Cは様々な生物に取り込まれ、代謝されることにより多様な炭素分子に変換される可能性がある。今後はより多様な炭素のガス化についても検討する必要がある。そのために、炭素資化能とガス化との関係を明らかにし、最終的にパラメータ化することが重要である。

酢酸による微生物活性の抑制であるが、これまでの本事業における試験結果から、トレーサーレベルの微量な酢酸は炭酸ガスとして大気に放出することが示されている。一方、本年度の試験結果から、水田環境に存在するレベルの酢酸の添加は炭酸ガスの発生を抑制

することが示された。つまり、初期濃度によりその挙動が変わることを示している。 ^{14}C のガス化に対する初期濃度の効果については、ほとんど知見が得られていないので、この効果についても調査する必要がある。

^{14}C の特徴的な環境挙動であるガス化は、主に微生物の活動により引き起こされていると考えられている。微生物の活動は気温に影響されるため、 ^{14}C のガス化に対する気温の効果について検討した。その結果、気温は $^{14}\text{CO}_2$ 放出速度に影響するが、最終的な放出量にはほとんど影響しないことが示された。しかしながら、本年度の試験は 10 日間の試験であり、長期間異なる気温にさらされた場合、微生物群集構造が変化するかもしれない。土壌が異なれば炭素資化能が異なるように、微生物群集構造が変化すれば $^{14}\text{CO}_2$ ガス放出量にも影響すると考えられる。気温の変化と微生物群集構造の変化の関係は、今後の検討課題である。微生物細胞に取り込まれた ^{14}C の再放出についても同様の結果が得られた。つまり、気温は ^{14}C の再放出にも影響しないことが分かった。再放出される ^{14}C 量は、むしろ細胞内に取り込まれた ^{14}C 量が重要であった。

本事業で開発した水稻全体モデルにおいて、近傍大気と環境大気の移行半減期が、イネによる ^{14}C の蓄積に影響することが示唆されている。水稻全体モデルをより現実的に精緻化するためには近傍大気と環境大気の移行半減期の精度を高める必要がある。これまでは文献調査による文献値を参考に移行半減期を決定してきたが、本年度は模擬水田およびイネ科草本植物群落において群落内、群落頂、群落外の風向風速を求め、近傍大気と環境大気の移行半減期試算のための基礎データとした。風向風速の観測結果であるが、群落頂付近で吹いている水平方向の風が蓋となり、群落内の大気は群落外へは移行しにくい状況となっていることが確認された。

水稻全体モデルの精緻化では、気温の変化対応できるモデルとするため、本年度実施した ^{14}C のガス化に対する気温効果のデータを、そして近傍大気と環境大気の半減期をより現実的な値に近づけるために模擬水稻群落における風向風速観測データ取り入れた。解析の結果、気温の効果はモデルのパラメータを変更するほどの顕著な影響がないことが分かった。一方、風向風速観測結果は、成長したイネ群落で、近傍大気と環境大気の移行半減期を長くする可能性が示された。この結果を反映してパラメータを設定したところ、基本解析および感度解析において、やはり近傍大気から環境大気への移行半減期がイネへの ^{14}C 移行量に強く影響することがわかった。本年度は群落が十分成長した時期の実測データを用いており、群落成長期のデータは十分とはいえない。近傍大気→環境大気の移行半減期については、イネ群落の成長段階に合わせた、より実際的な値を設定することが重要である。

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

5.4.1 Am および Cl の超高精度分析

5.4.1.1. Am の超高精度分析

^{241}Am 定量分析には通常放射能測定法が用いられるが、その場合、測定時間が長く、かつカウント数も不十分であるため、精度が低くなる。そこで、一昨年度導入した SF-ICP-MS を用いて超高精度分析を行うための分析法の開発および SF-ICP-MS の条件設定について

検討した。

分析法では、試料の灰化温度のコントロール、灰試料から抽出して溶液化した試料からの Am のカラムクロマト法による分析条件の最適化を行った。これまでの分析法では、測定機器が放射能測定法であることから、妨害となるのは放射線が発生する核種である。一方、ICP-MS では、測定対象とする ^{241}Am のカウントを妨害しないように、同じ重量の分子イオンを形成する元素の除去、また同重体を含む Pu を除去する必要がある。様々なマトリクス元素も、測定感度を低下させることが懸念されるため、これらの元素の除去についても検討を行った。まず、放射線測定法でよく用いられる DGA 抽出樹脂に着目したが、その際、塩酸溶離液を用いて DGA 抽出樹脂から ^{241}Am 分離するものであった。この場合、塩素に起因する妨害分子イオン $^{204}\text{Pb}^{37}\text{Cl}^+$ が生成し、質量数 241 の測定の妨害になることから、塩素を含む試薬の使用をしない方法を検討した。今回は硝酸溶液を用いて、マトリクス元素と妨害元素を Am から分離する方法を開発した。来年度はさらに TRU 抽出樹脂を用いて、Am の分離法を検討し、実試料中 ^{241}Am 分析法を確立する予定である。

SF-ICP-MS を用いた条件設定においては、感度の向上に加え、 $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比測定精度についても確認を行った。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ところ、Am 同位体質量領域において低バックグラウンド (*ca.* 2 cps) であることがわかった。さらに Am 分析の感度については、ジェットインターフェイス (Jet-interface) を使用して SF-ICP-MS (Element XR) で測定したところ、90 M/ppb の感度に相当する (M/ppb は 1 ng/mL に対する 1 秒あたりのメガカウント値)、非常に高い感度が得られた。なお、検出下限値は 0.024 fg/mL であり、 ^{241}Am 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 0.003 fg ということになる。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 $^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$ 同位体比分析の精度と確度を調べたところ、Am の濃度が 5 fg/mL 以上ならば、8% 以下の良い精度を得られることがわかった。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土壌試料中 ^{241}Am 分析研究に十分適応できるものである。

5.4.1.2. 塩素の超高精度分析

塩素の移行係数を得るために土壌および農作物試料中の塩素定量が必要である。本年度は新たに Triple Q ICP-MS を用いて、分析条件を検討し、さらに試料溶液化について追加の検討を行った。塩素は質量数 35 の安定同位体を選択し、その分析には MS/MS モードにおいて He をリアクションセルガスとして導入する条件が適当である。検出下限値は昨年検討した ICP-OES の 1/100 以下とすることができ、より低濃度まで測定できるようになった。試料の溶液化については、加熱気化では十分に塩素を抽出することができなかった。既存の研究によれば、土壌中の塩素の化学形は主に無機イオンと有機態であることから、水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) による抽出法を用いることとした。

以上の分析方法を用いて、土壌と作物試料の塩素の定量を行い、塩素の移行係数を得た (幾何平均値 : 42, 範囲 : 9-138)。

5.4.2 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

日本の 6 つの県から採取した土壌と作物試料を Pu 分析に供した。土壌試料中の Pu 同位体比 ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比) は、これらの土壌中の Pu が主にグローバルフォールアウトの

Puであることを示している。得られた Pu 濃度から Pu の土壌-作物間移行係数 (TF) を求めた。米の TF の範囲は、 2.0×10^{-5} から 8.2×10^{-5} であった。日本において、米の TF-Pu が得られたのは初めてである。野菜 (カボチャ, 大豆, シュンギク) および果物 (柿) の TF-Pu も求めたが、米の値よりも 1桁高い値であった (1.1×10^{-4} から 7.5×10^{-4})。分析を行ったすべての作物で、最も TFが高かったのは、キノコである。キノコの TF-Pu は 2.3×10^{-1} という値であった。(キノコは他の農作物とは異なり、培地が土壌ではないため、TFを他の農作物と単純に比較することは出来ない。培地中の Pu の化学形が影響している可能性があることから、キノコの TFについては、さらに検討が必要であろう。

一般に、Pu の TF は十分ではないため、本調査で得られた Pu の TF は公表されている TF のデータベースを補足するものではあるが、さらにデータを収集し、データが無い作物種のデータを提供するとともに、存在するデータの代表性を向上させてゆく必要がある。また、本調査では文献調査も引き続き行い、データの蓄積も行うことができた。

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27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27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

石川 奈緒：岩手大学工学部 社会環境工学科 助教

小嵐 淳：国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
環境動態研究グループ 研究主幹

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 原子力基礎工学研究部門 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

中尾 淳 京都府立大学大学院生命環境科学研究科 助教

百島 則幸：九州大学 アイソトープ統合安全管理センター 教授 (委員長)

平成27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27年10月20日～21日

第2回：平成28年2月1日～2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、嵐 大輔氏および菊池 洋好氏の協力を得た。農作物採取および農地採取では日本土壌協会の、農作物の前処理・分析および土壌分析では東レテクノ株式会社の、さらに、放射性炭素の水稲移行解析モデルの精緻化においてはy-ファーストの協力を得た。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る。

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