

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

5年間（平成25年度～平成29年度）のまとめ

平成30年3月

国立研究開発法人

量子科学技術研究開発機構

放射線医学総合研究所

放射性核種生物圏移行評価高度化開発

5 年間（平成 25 年度～平成 29 年度）のまとめ

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 K_d) データベースの構築.....	5
2. 1. はじめに	5
2. 2. 気候変動と環境移行パラメータに関する文献調査.....	6
2.2.1. 海外の事例.....	7
2.2.2. 国内の事例.....	10
2.2.2.1. TF に関する文献値	10
2.2.2.2. 土壌および農作物中濃度の経時変化による TF の推定と地域間の比較.....	11
2.2.2.3. 近接データを使用した見かけの TF の推定と地域間の比較	13
2. 3. 土壌-植物間移行係数に対する気温の影響調査 ～国内の寒冷地と温暖地の移行係数～	14
2.3.1. 調査概要.....	14
2.3.2. 試料採取および調査方法.....	14
2.3.2.1. 試料採取地点の選択.....	14
2.3.2.2. 試料採取方法.....	14
2.3.3. 測定対象元素および化学成分とその分析法.....	18
2.3.3.1. 土壌試料の前処理方法.....	18
2.3.3.2. 農作物試料の前処理方法.....	18
2.3.3.3. 土壌の物理化学的特性.....	18
2.3.3.4. 農作物中の安定元素の分析.....	20
2.3.4. 濃度データ.....	20
2.3.5. 玄米の移行係数.....	23
2.3.6. ジャガイモの移行係数.....	24
2.3.7. 葉菜類の移行係数.....	25
2. 4. 土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査.....	26
2.4.1. 試料および調査方法.....	26
2.4.1.1. 10℃における調査方法.....	26
2.4.1.2. 30℃における調査方法.....	28
2.4.2. 10, 23, 30℃における K_d -Cs の結果.....	28
2.4.3. 10, 23, 30℃における K_d -Cs の考察.....	30
2. 5. 変動要因の解析.....	31
2.5.1. ヨウ素の K_d	31
2.5.2. 炭素の K_d	33
2.5.3. 炭素の TF.....	34

2.5.4.	玄米の TF	35
2.5.5.	ジャガイモの TF	37
2.5.6.	葉菜類の TF	39
2. 6.	まとめ	41
2.6.1.	気候変動と環境移行パラメータに関する文献調査	41
2.6.2.	土壌-植物間移行係数に対する気温の影響調査	41
2.6.3.	土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査	41
2.6.4.	温度に影響される可能性のある TF や K_d を用いた変動要因の解析	42
	引用文献	43
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	45
3. 1.	はじめに	45
3. 2.	土壌微生物活性と放射性炭素のガス化との関係	46
3.2.1.	微生物活性調査の全体計画	46
3.2.2.	放射性炭素のガス化	46
3.2.2.1.	^{14}C ガスの回収と測定方法	46
3.2.2.2.	キャリア溶液の効果	47
3.2.2.3.	CO_2 吸収剤の検討	47
3.2.2.4.	^{14}C ガス直接測定法	47
3.2.2.5.	水田土壌の ^{14}C ガス化率	48
3.2.3.	土壌微生物活性	50
3.2.3.1.	微生物活性測定対象となる酵素	50
3.2.3.2.	土壌呼吸活性の多試料同時分析法の開発	50
3.2.3.3.	水田土壌の土壌呼吸活性	50
3.2.4.	土壌微生物量	51
3.2.4.1.	微生物量の測定方法	51
3.2.4.2.	水田土壌の微生物量	51
3.2.5.	土壌微生物活動と放射性炭素のガス化との関係	52
3.2.6.	ガス化の統括的指標	53
3. 3.	土壌微生物活動に影響する要因	54
3.3.1.	影響要因調査の全体計画	54
3.3.2.	水田土壌微生物群集による炭素資化	55
3.3.3.	$^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する酢酸濃度の効果	56
3.3.4.	$^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する気温の効果	57
3.3.5.	水田土壌微生物の群集構造と気温の効果	57
3. 4.	水稻による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果	59
3.4.1.	水稻栽培	59
3.4.2.	水稻による ^{14}C の取り込み	60
3. 5.	放射性炭素の水稻移行モデルの構築	62
3.5.1.	モデル構築の全体計画	62
3.5.2.	平成 25 年度作業	63
3.5.2.1.	水稻の生長に対する気温と CO_2 濃度の効果	63

3.5.2.2. モデルへの適用.....	64
3.5.3. 平成 26 年度作業.....	64
3.5.3.1. 近傍大気-環境大気移行半減期.....	64
3.5.3.2. 土壌微生物活性に関するモデルパラメータの設定.....	65
3.5.3.3. 水稲全体モデルによる試解析.....	65
3.5.4. 平成 27 年度作業.....	66
3.5.4.1. 微生物による炭素の取り込みおよび分解.....	66
3.5.4.2. 微気象パラメータ.....	67
3.5.4.3. 調査結果のモデルへの適用.....	67
3.5.5. 平成 28 年度作業.....	68
3.5.5.1. 環境コンパートメントの不確かさ伝播解析.....	68
3.5.5.2. 近傍大気 - 環境大気の放射性炭素移行半減期の精緻化.....	69
3.5.6. 平成 29 年度作業.....	70
3.5.6.1. 水稲内部コンパートメントの不確かさ伝播解析.....	70
3.5.6.2. 多年解析における不確かさ伝播解析.....	71
3.5.6.3. 水稲全体モデルにおけるモデルパラメータの重要度評価.....	72
3. 6. まとめ.....	74
3.6.1. 水稲による放射性炭素取り込みに対する環境要因の影響.....	74
3.6.2. 水稲全体モデル.....	74
引用文献.....	75
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.....	79
4. 1. はじめに.....	79
4. 2. 重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の超高精度分析法開発.....	79
4.2.1. 土壌試料中 Pu 高精度同位体分析法開発.....	79
4.2.1.1. 前処理の見直し: 土壌灰化温度と Pu 同位体測定関連調査.....	80
4.2.1.2. 化学分離法の最適化: 抽出樹脂用いてマトリックスと干渉元素の迅速分離の検討.....	81
4.2.1.3. 試料導入装置による高感度化: アトグラム (ag) の Pu 測定.....	83
4.2.2. 土壌試料中 Am 高精度分析法開発.....	86
4.2.2.1. 土壌中 Am 高精度分析法の確立: 実験手順.....	86
4.2.2.2. 土壌中 Am 高精度分析法の確立: 妨害元素の除染係数, Am の回収率, および Am の検出下限値測定.....	88
4.2.2.3. 土壌中 Am 高精度分析法の確立: 分析法の妥当性.....	88
4.2.3. 玄米試料中 Pu 高精度同位体分析法の開発.....	89
4.2.3.1. 玄米試料中 Pu 高精度同位体分析法の開発: 実験手順.....	90
4.2.4. 土壌および米試料中 Th 高精度分析法の確立.....	91
4.2.4.1. 土壌試料中 Th 高精度分析法の確立.....	91
4.2.4.2. 米試料中 Th 高精度分析法の確立.....	92
4.2.5. 土壌-および農作物試料中 Cl 高精度分析法の確立: 実験手順.....	93
4.2.5.2. 土壌および農作物試料中 Cl 高精度分析法の確立: 土壌試料からの TMAH による 塩素抽出率.....	94
4.2.5.3. 土壌および農作物試料中 Cl 高精度分析法の確立: 土壌と植物試料高精度 Cl 測定.....	95

4.2.6.	まとめ	96
4.2.6.1.	土壤中 Pu の高精度同位体分析法のまとめ	96
4.2.6.2.	土壤中 Am の高精度分析法のまとめ	96
4.2.6.3.	玄米試料中 Pu の高精度同位体分析法のまとめ	96
4.2.6.4.	土壌および米中 Th の高精度分析法のまとめ	96
4.2.6.5.	塩素の高精度分析法のまとめ	97
4. 3.	環境移行パラメータデータ	97
4.3.1.	重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の移行係数の文献調査	97
4.3.1.1.	はじめに	97
4.3.1.2.	データ収集および統計解析	98
4.3.1.3.	IAEA TRS 472 との比較	98
4.3.2.	Pu の土壌-玄米の移行係数データ	104
4.3.3.	塩素の土壌-農作物の移行係数データ	104
4.3.4.	Th の土壌-米の移行係数データ	109
4.3.5.	土壌中 Am の濃度とその分布	109
4.3.6.	重要核種 (Pu, Th および Cl) の移行係数と文献値の比較	115
4.3.6.1.	土壌-玄米間 Pu の移行係数と文献値の比較	115
4.3.6.2.	塩素の土壌-農作物間の移行係数と文献値の比較	116
4.3.6.3.	Th の土壌-米間の移行係数と文献値の比較	117
4.3.7.	まとめ	118
4.3.7.1.	Pu の土壌-玄米間移行係数データの収集	118
4.3.7.2.	土壌および玄米中の塩素定量と移行係数の導出のまとめ	118
4.3.7.3.	Th の土壌-米間移行係数データの収集	119
4.3.7.4.	土壌中 ²⁴¹ Am の濃度濃度とその分布	119
	引用文献	119
第 5 章	東電福島第一原発事故後の環境測定によって導出した移行パラメータ	127
5. 1.	はじめに	127
5. 2.	土壌	127
5. 3.	植物	129
5.3.1.	草本植物	129
5.3.2.	木本植物	130
5.3.3.	キノコ	130
5. 4.	野生動物	131
5.4.1.	イノシシ	131
5.4.2.	ニホンジカ	131
5.4.3.	ツキノワグマ	131
5.4.4.	淡水魚	132
5.4.5.	海水魚	133
5. 5.	調理加工	133
	引用文献	133

5. 6. おわりに.....	134
引用文献.....	134
第6章 おわりに.....	137
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.....	143
謝辞.....	145

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、 ^{14}C 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、これまでほとんどデータが得られていない核種 (Pu, Am, Th および Cl) についても、超高精度分析法を開発してパラメータを収集する必要がある。

本事業は、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 K_d) 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

さらに、本調査では、東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種の移行メカニズムや除染に関するデータを収集し、解析も試みた。これらのデータは、東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種の挙動予測や除染に役立つだけでなく、他の原子力発電所や廃棄物処分の施設安全評価の高度化に資するものである。

以下、平成25年度から平成29年度の5年間に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 K_d) データベースの構築

本課題では、処分場閉鎖後長期の安全性について現実的な安全評価を行うため、気候変動を考慮した我が国独自のデータベースを構築することを目的として研究を進めてきた。すなわち、土壌-植物間移行係数 (TF) と土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) の収集と、これらに変動を与える要因の解析を実施した。具体的には以下の通りである。

- ・気温と環境移行パラメータに関する文献調査を行い、データ解析を実施した。
- ・実測値が重要であることから、5年間にわたり国内の比較的寒冷地と温暖地においてフィールド調査を行い、土壌と農作物 (玄米, ジャガイモ, 葉菜類) を採取した。土壌および農作物試料中の希土類元素を含む20以上の安定元素を測定し、移行係数を導出しデータベース化した。
- ・土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査を Cs について行った。
- ・温度に影響される可能性のある TF や K_d の変動要因解析を行った。

- (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

- ・土壌微生物活性と放射性炭素のガス化との関係

本課題は、土壤微生物の活動を指標として ^{14}C ガス化のパラメータ化の可能性について検討することを目的とした。 ^{14}C のガス化は主に微生物が担っているが、微生物の活動は様々な環境因子に影響される。そこで、微生物活動と ^{14}C ガス化の関係を明らかにすることで、微生物の活動が環境因子も含めた ^{14}C のガス化に対する統括的指標になるのではないかと想定し、以下の実験を行った。

ガス化した ^{14}C を直接測定する方法について検討し、さらに、発生した ^{14}C ガスの化学形態についても調査した。また、土壤活性は微生物の生物量にも依存することから、アデノシン三リン酸 (ATP) を指標とする生物量測定法についても開発した。最後に、これら開発した方法を用いて土壤微生物活性と放射性炭素のガス化量との関係について調査した。そして、これまでに得られた ^{14}C ガス化データを用いて、微生物の活動がガス化を考慮した移行パラメータとなりうる可能性があるか検討した。

・土壤微生物活動に影響する要因調査

^{14}C のガス化に微生物が関与しているにもかかわらず、これまでの調査では ^{14}C のガス化との関係は見いだせていない。そこで、その原因を探るための基礎情報を得ることを目的として、水田微生物の炭素資化性について調査した。また、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する酢酸濃度と気温の効果についても検討した。土壤が異なれば ^{14}C ガス化率も異なるが、その原因として各土壤に生息する微生物種の違いが考えられる。そこで、ガス発生率が異なる土壤の微生物群集構造を明らかにするとともに、微生物群集構造に対する気温の効果についても調査した。

・水稲による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果

本課題では微生物活動と ^{14}C のガス化との関係に着目した調査を行ってきた。これは、水稲による ^{14}C の取り込みに対し微生物の活動が間接的に重要な役割を担っているからである。微生物の活動は気温等の環境因子にも影響されるので、これら環境因子を統括した指標として、微生物活動が水稲による ^{14}C の取り込みに対するパラメータになる可能性がある。この様な水稲による ^{14}C の取り込みに対する微視的な調査の一方で、実際に気温等の環境因子が水稲による ^{14}C の取り込みに影響するのか、巨視的な調査は行われていなかった。そこで、水稲による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果について調査を行った。

・ ^{14}C の水稲移行モデルの構築

シミュレーションモデルを用いて水稲による ^{14}C の取り込みに対する重要因子の抽出を行った。TRU 廃棄物の地層処分に関わる安全評価において、生物圏における ^{14}C の移行プロセスと被ばく経路について適切にモデル化を行い、ヒトへの影響を評価することが重要である。水稲は我が国の主要作物であることから、本課題では水田における ^{14}C の移行プロセスに着目し、水稲への ^{14}C 取り込みに対する環境因子の影響について調査を行ってきた。この移行プロセスに影響する因子は気温、pH、酸化還元電位等様々であるが、微生物活動がこれらの因子を統括する指標となりうる可能性について検討するため、実験データを蓄積した。微生物活動を考慮したこれらの実験データおよび文献から得られた情報を基に、 ^{14}C の水稲移行モデルを構築し、水稲による ^{14}C の取り込みに対する重要因子の抽出を行った。

(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

本課題では、データが少なくかつ放射性廃棄物処分における重要核種、すなわち、Pu, Am, Th および Cl について、超高精度分析を開発し、実際の環境試料を分析して、環境移行パラメータ、特に TF を求めることを目的の一つとしている。土壤中 Pu, Am と Th の超高精度分析法の開発研究については、土壤の前処理法、化学分離法の調査・研究を実施し、実用的な超高精度質量分析法を確立し、日本の畑土と水田土中の Pu, Am と Th 濃度データを収集した。米試料中 Pu 同位体と Th の超高精度分析法の開発研究については、高分解能 ICP-MS を用いて、玄米と白米中の超微量 Pu と Th 分析法を確

立した。日本の米中の Pu と Th 濃度データを収集し、日本の土壌-米間移行係数を追加した。CI については、開発した超高精度分析法を用いて、土壌および農作物中の塩素の分析を行い、日本の土壌-植物間 TF を収集した。さらに、Pu, Am, Th および Cl の TF について、国内外の最新文献の調査を行ない、本事業で作成した TF データベースに追加した。

(4) 東電福島第一原発事故後の環境測定から導出した移行パラメータ

長半減期核種である ^{135}Cs ($2.3 \times 10^6 \text{ y}$) は放射性廃棄物処分後長期の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、その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を導出した。また、これまでに一般に公表されているデータを用いても同様に環境移行パラメータを導出した。

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 K_d) 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の閉鎖後長期に渡る安全評価では、廃棄物処分場から放射性核種が移動して生物圏に到達しても、それらからの人の被ばく線量は十分低いことを示す必要性がある。長期間経過の間には、放射性廃棄物の地層処分システムは地球規模で周期的に起こる気候変動の影響を受ける。ドイツ、オランダ、スウェーデン等の海外の事例でも温暖化および寒冷化に対する考慮が行われている (Pröhl et al., 2004; SKB, 2014; Hart et al., 2017)。原子力発電環境整備機構 (NUMO) においても、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 を含む生物圏モデルの開発を挙げており (NUMO, 2011)、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。すなわち、今後予想される気候条件における環境移行パラメータを予め整備しておくことで、不確実性を減らすことに貢献することができる。また、パラメータ値がどの程度変動するのかについて情報を得ておくことは重要である。

放射性廃棄物の地層処分が進められつつある欧米諸国での食生活は、野菜や魚介類の摂取率が高い我が国と異なり、家畜の肉や乳製品等を多く摂取する。参考のため、FAO による統計値 (FAO, 2018) から、2013 年の米、小麦、トウモロコシ、ジャガイモ、野菜類、家畜肉、乳、卵、魚介類について、我が国と世界および各地域の平均についてまとめた結果を図 2.1-1 に示す。欧米では、肉や乳製品からの線量寄与が高いことから多くのデータ取得がなされているが、我が国の生活様式や食習慣に見合ったものではない。気候変動を考慮した生物圏評価を行うために、IAEA (2010) は気候の違いも考慮してデータを収集しパラメータ集として報告しているが、データの質が揃っていないため、気候の違いにより環境移行パラメータが異なるのかどうかを統計的に比較検討することは難しいのが実情である。

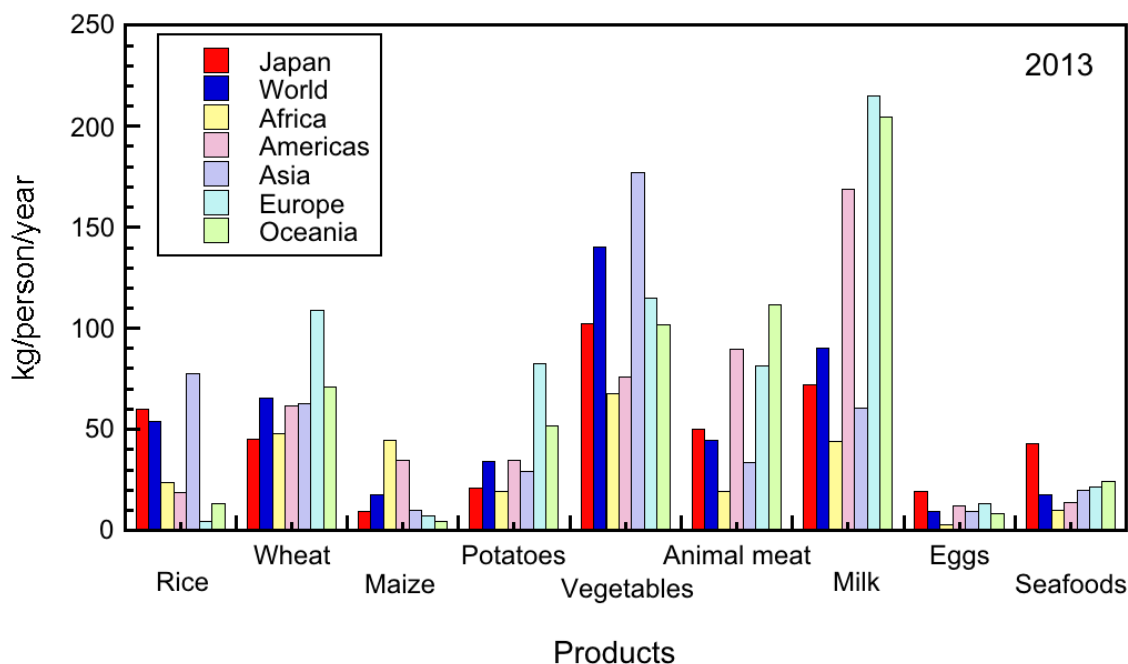


図 2.1-1. 2013 年における一人当たり 1 年間の食料供給量 (FAOSTAT からデータ抽出)

環境移行パラメータの中でも、例えば炭素の土壌—土壌溶液間分配係数 (K_d)、ヨウ素 K_d 、土壌—植物間移行係数 (TF) には、気温によって値が変動するものがあることが知られている (炭素については第3章で詳しく検討している)。例えばドイツ GRS (2008) の地下水上昇シナリオでは、土壌が還元化することによりヨウ素が I に還元されて易動性が高くなり植物吸収が高まること、また、さらに寒冷化した場合、Cs については、土壌 pH の低下と有機物結合態が増えることによって TF が高くなることが指摘されており、TF の変動は、 K_d の変化も反映しているといえる。

本課題では、閉鎖後長期の安全性について現実的な安全評価を行うため、気候変動を考慮した我が国独自のデータベースを構築することを目的として研究を進めてきた。そのため、TF と K_d の収集と、これらに変動を与える要因の解析を実施した。具体的には以下の通りである。

- ・ 気温と環境移行パラメータに関する文献調査を行い、データの解析を行う。
- ・ 実測値が重要であることから、5年間にわたり国内の比較的寒冷地と温暖地においてフィールド調査を行い、土壌と農作物 (玄米、ジャガイモ、葉菜類) を採取する。土壌および農作物試料中の希土類元素を含む 20 以上の安定元素について測定し、TF を得てデータベース化する。
- ・ K_d に対する気温の影響調査を Cs について行う。
- ・ 温度に影響される可能性のある TF や K_d を用いた変動要因の解析を行う。

本章では、上記の項目に係る 5 年間の研究結果について、以下に報告する。

2. 2. 気候変動と環境移行パラメータに関する文献調査

土壌-植物間移行係数 (TF) は、廃棄物処分場から生物圏に到達した放射性核種が、土壌から経根吸収により農作物に吸収され、その農作物を人が摂取すること、もしくは、放射性核種を吸収した牧草等を給餌された家畜を介して人が摂取することを評価するために必要なパラメータである。TF は次式によって表され、dimensionless である。

$$TF = \text{植物中濃度 (Bq/kg-dry or mg/kg-dry)} / \text{土壌中濃度 (Bq/kg-dry or mg/kg-dry)} \dots(1)$$

TF の範囲は同じ元素でも 2-5 桁程度となることもあることが、IAEA の Technical Report Series No. 472 (以下、TRS-472 と記す。IAEA, 2010) で示されている。原因として、TF は単に土壌中の総濃度に対する植物中の濃度を示すため、化学的かつ植物生理学的なプロセスが考慮されていないことが挙げられているが、一方で、全ての放射性核種に対して植物への可給態の量を評価することも困難である。このような不確実性を含む数値であることを考慮しつつも、環境安全評価に用いられる際には、保守的に評価する観点から比較的高い値 (土壌から吸収されやすい状況における値) が用いられる。しかしながら、今後、実際の廃棄物処分場を考慮したときの安全評価において、現実的な評価を行うためには、もっとも確からしいパラメータ値を把握しておくことが求められると想定される。例えば「余裕深度処分の管理期間終了以後における安全評価に関する考え方 (原子力安全委員会, 2010)」は、基本シナリオの安全評価の考え方として「発生の可能性が高く、通常起きるものと考えざるをえないようなシナリオに基づき、確からしい状態設定のもとで確からしいパラメータを用いた評価を行うものである。ここで確からしいパラメータとは十分な統計的データが存在する場合には、例えばその確率分布の中央値を意味し、確からしい設定が困難な場合には、その不確かさが評価結果に及ぼす影響を

勘案し、合理的で尤もらしく、それぞれのシナリオに対して適切な範囲で保守側になるように設定することを意味する。ただし、これらの不確かさの影響は変動シナリオで詳細に評価されるので、基本シナリオにおいては過度に保守的に設定する必要はない。」と記述している。

気候変動（気温や降雨量の変化）は、現在の気候帯の分類にあてはめることができ、将来的な変動については、現在の気候帯から別の気候帯に変わることカバーする考え方がある。TF と変動要因について、これまで IAEA から出された環境移行パラメータでは土壌の特徴別（有機質土壌、粘土質土壌、砂質土壌、壤土）に報告されているが、TRS-472 では、気候帯の違いにも着目し、温帯、熱帯、亜熱帯および寒帯で分類したデータの取りまとめが行われている。そこで気候帯の区分で重要な気温の違いに着目した。

2.2.1. 海外の事例

高レベル廃棄物処分施設からファー・フィールドと生物圏経路における気候変動の影響に関わる GRS レポート(2008)では、TF に影響する要因として降水量、温度、土壌が挙げられており、TF は重要としながらも、現状における温帯の TF と上記の要因から考慮した TF 変換係数を求めてそれぞれの地域における TF として利用している。

Staudt ら(2013)は、気候帯の違いを反映した安全評価のための換算係数を導出する際において、IAEA (2009) の Tecdoc-1616 に記載された寒帯、温帯、熱帯・亜熱帯の TF を用いたところ、換算係数が変動する要因に TF が含まれることから、TF が重要であることを示している。Tecdoc-1616 やそれを取りまとめた TRS-472 に記載されたデータは実測ということであっても、必ずしもデータの質が揃った状態ではないことは考慮しておく必要があるが、本調査で得られるデータと国際データとの比較は重要であることから、表 2.2-1 に TRS-472 に記載されている熱帯、亜熱帯および温帯の TF を作物群毎にまとめたものを示す。熱帯で得られた幾何平均値 (GM) は、いずれにしても、Cs の TF が温帯よりも 5 倍以上高く、葉菜類、果菜類等、根菜類および豆類では 10 倍以上の差が見られた。ただし、データ数そのものが少ないことが多く (n<10)、数値の代表性が確保できているかどうかは無視できない。データ数が少ない現状においては、比較そのものが難しいといえる。

気温と植物中元素濃度の関係性について、Jarrell and Beverly (1981)は、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続けるので、必然的に植物中の元素濃度が高まることを指摘している。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の吸収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ということに関しては、今後の研究が必要であると報告している。膨大な数の植物中元素濃度データの整理を Kabata-Pendias and Mukherjee (2007)が行っており、平均的な値が示されているものの、気候と関連する情報については十分検討されていない。Han ら (2011) は中国全土 752 地点の乾燥帯や寒帯を含む多様な気候における土壌と植物試料の主要 11 元素を測定し、降水量、気温、土壌 pH などを指標として植物葉中濃度との相関を調べたところ、土壌 pH や降水量に比べて気温の影響は低いことを示している。特に土壌 pH の影響は大きいものの、通常植物が生育する pH5-8 では植物葉中の変化は小さい。

平成 28 年度に土壌中元素濃度データについて収集し、また作物は玄米に限定して品種間差に関する文献値を当たった結果、世界的に元素濃度がそれぞれほぼ差がなかった。もし玄米への TF に地域間差が生じるのであれば気候が影響する可能性がある一方で、その差が数倍以内であれば、品種間差が要因の可能性もある。すなわち、気候影響による TF の変動を解析しようとした場合、ある作物種だけを対象にした場合は、個体間差や品種間差を考慮しなければならない。さらに国際的に利用され

る IAEA の文献値では、表 2.2-1 で示すような植物群分類で示されており、この場合にはさらに作物間差も考慮に入れなければならないことから、気候影響を見るためにはさらにバイアスがかかることになる。したがって、できるだけ作物種は揃えた方が良い（作物間差については第 2.5.5 項でも触れる）。以上のような要因を考慮しても、気候間での変動は数倍程度である可能性が TRS-472 のデータから示唆された。

表 2.2-1. TRS-472 に記載されている熱帯、亜熱帯および温帯の TF の比較

Element	Tropical				Sub-tropical				Temperate				
	n	GM	min	max	n	GM	min	max	n	GM	min	max	
穀類													
Co										61	8.5E-3	4.0E-4	7.2E-1
Cs	4	2.3E-1	6.0E-2	1.0E+0	23	3.1E-3	1.0E-3	2.6E-2	470	2.9E-2	2.0E-4	9.0E-1	
I					1	1.5E-4			13	6.3E-4	1.0E-4	1.1E-2	
Pb	1	2.5E-3							9	1.1E-2	1.9E-3	4.8E-2	
Ra	3	3.5E-3	1.7E-3	1.0E-2					24	1.7E-2	8.0E-5	6.7E-1	
Sr	2	6.0E-1	4.4E-1	7.6E-1	8	5.1E-2	3.6E-2	6.5E-2	282	1.1E-1	3.6E-3	1.0E+0	
Tc					1	3.0E-2			2	1.3E+0	1.8E-1	2.4E+0	
U	3	1.8E-2	6.0E-4	8.2E-1					59	6.2E-3	1.6E-4	8.2E-1	
Zn	2	2.2E+1	1.8E+1	2.6E+1					89	1.8E+0	2.0E-2	1.4E+1	
葉菜類													
Ag					8	2.1E-2	2.0E-3	1.2E-1	5	1.8E-4	5.9E-5	1.3E-3	
Co	41	9.2E-2	3.2E-2	2.8E-1	19	1.1E-1	4.8E-3	1.5E+0	185	1.7E-1	1.3E-2	1.0E+0	
Cs	49	9.8E-1	1.1E-1	2.9E+0	35	3.8E-2	1.1E-3	1.4E+0	290	6.0E-2	3.0E-4	9.8E-1	
I					8	3.0E-2	6.7E-3	8.0E-2	12	6.5E-3	1.1E-3	1.0E-1	
Mn					4	1.0E+0	2.3E-1	1.3E+1	103	4.1E-1	5.2E-2	3.0E+0	
Pu					2	1.1E-3	1.9E-4	2.0E-3	13	8.3E-5	1.0E-5	2.9E-4	
Ra*	22	2.7E-2	3.0E-3	4.3E-1					73	6.6E-2	1.8E-3	5.9E-1	
Sr	34	3.6E+0	1.4E+0	1.2E+1	36	9.8E-1	5.2E-2	5.0E+0	217	7.6E-1	3.9E-3	7.8E+0	
Tc					6	7.2E-1	1.7E-1	1.3E+0	10	1.8E+2	4.5E+0	3.4E+3	
Th	6	3.4E-5	1.8E-5	7.6E-5					24	1.2E-3	9.4E-5	2.1E-1	
U	19	4.8E-2	4.4E-3	4.1E-1					108	2.0E-2	7.8E-5	8.8E+0	
Zn	41	1.7E+0	7.3E-1	4.8E+0	18	8.9E-1	1.1E-1	1.4E+1	112	2.4E+0	1.0E-1	1.7E+1	
果菜類等													
Ag					1	3.0E-3			5	6.4E-4	2.5E-4	2.0E-3	
Co	7	1.4E-1	5.7E-2	2.3E-1	3	7.9E-1	7.3E-1	8.8E-1	28	3.1E-1	1.4E-1	6.9E-1	
Cs	38	7.0E-1	5.0E-2	1.1E+1	13	1.9E-2	2.3E-3	3.0E-1	38	2.1E-2	7.0E-4	7.3E-1	
I					3	1.2E-3	6.5E-4	2.7E-3	1	1.0E-1			
Pu	1	1.7E-5			2	8.2E-4	4.3E-4	1.2E-3	9	6.5E-5	6.0E-6	2.0E-4	
Pb	2	7.0E-3	7.0E-3	7.0E-3					5	1.5E-2	1.5E-3	3.9E+0	
Ra*	9	3.2E-3	5.2E-4	7.0E-2					41	1.2E-2	2.4E-4	3.4E-1	
Sr	16	1.2E+0	2.6E-1	4.2E+0	15	1.1E-1	1.9E-2	6.5E-1	19	3.6E-1	7.1E-3	7.9E+0	
Tc					2	3.0E-1	3.0E-1	3.0E-1					
Th	2	5.3E-6	3.3E-6	7.3E-6					17	7.8E-4	6.2E-5	1.6E-2	
U	14	2.6E-2	4.3E-3	1.8E-1					38	1.5E-2	5.2E-4	2.0E-1	
Zn	28	1.7E+0	5.8E-1	3.4E+0	3	1.3E+0	1.2E+0	1.5E+0	3	4.2E-1	1.0E-1	9.5E-1	

赤：温帯の TF の 5 倍以上。太字：10 倍以上。青：温帯の TF の 1/5 以下。太字：1/10 以下。

*:訂正值 (corrigendum 参照)

表 2.2-1. TRS-472 に記載されている熱帯，亜熱帯および温帯の TF の比較（続き）

Element	Tropical				Sub-tropical				Temperate			
	n	GM	min	max	n	GM	min	max	n	GM	min	max
根菜類												
Ag					2	2.3E-2	2.3E-2	2.3E-2	6	1.3E-3	5.7E-4	3.9E-3
Co	7	1.2E-1	6.3E-2	2.1E-1	10	1.3E-3	1.9E-4	8.4E-3	14	1.1E-1	4.7E-2	7.2E-1
Cs	9	4.3E-1	1.3E-1	8.1E-1	10	3.5E-2	3.9E-3	3.5E-1	81	4.2E-2	1.0E-3	8.8E-1
I					2	5.6E-2	5.1E-2	6.1E-2	28	7.7E-3	1.4E-3	4.7E-2
Mn					11	6.0E-3	4.7E-4	1.5E+0	13	4.2E-1	1.5E-2	3.9E+0
Pb	3	2.4E-3	1.8E-3	4.0E-3					27	1.5E-2	2.4E-4	3.3E+0
Pu					2	4.6E-3	5.3E-4	8.6E-3	5	3.9E-4	7.0E-5	5.8E-3
Ra*									<u>54</u>	<u>3.9E-2</u>	<u>2.0E-3</u>	<u>3.8E-1</u>
Sr	4	1.8E+0	1.2E+0	2.8E+0	12	4.1E-2	3.2E-3	8.7E-1	56	7.2E-1	3.0E-2	4.8E+0
Tc					1	1.9E+0			2	4.6E+1	1.4E+1	7.9E+1
Th	5	1.9E-5	9.0E-6	3.9E-5					33	8.0E-4	8.2E-6	9.5E-2
U	6	4.7E-2	8.3E-3	2.6E-1					46	8.4E-3	4.9E-4	2.6E-1
Zn	7	1.2E+0	5.6E-1	2.2E+0	11	1.1E-1	2.4E-2	1.4E+0	56	7.2E-1	3.0E-2	4.8E+0
芋類												
Co	4	3.7E-1	3.6E-1	3.9E-1					56	5.4E-2	1.0E-2	6.7E-1
Cs	8	4.3E-1	6.0E-2	3.0E+0	34	6.5E-2	9.0E-3	4.1E-1	138	5.6E-2	4.0E-3	6.0E-1
K	1	2.7E+0			18	2.4E-1	1.0E-1	4.1E-1				
Pb	16	5.7E-4	1.5E-4	2.3E-3					30	1.5E-3	1.5E-4	2.6E+0
Pu					6	1.5E-3	6.2E-4	4.8E-3	87	1.1E-4	3.8E-6	5.0E-3
Ra*	42	1.9E-3	2.6E-4	1.9E-1					<u>44</u>	<u>8.6E-2</u>	<u>2.4E-4</u>	<u>6.2E-1</u>
Sr	2	6.8E-1	6.6E-1	7.0E-1	29	4.5E-1	5.3E-2	3.6E+0	106	1.6E-1	7.4E-3	1.6E+0
Tc					3	5.0E-1	8.0E-2	4.0E+0	8	2.3E-1	1.3E-2	6.5E-1
Th	13	8.9E-6	2.9E-6	3.5E-5					24	2.0E-4	1.3E-5	1.8E-2
U	4	2.0E-2	7.3E-3	4.3E-2					28	5.0E-3	1.8E-4	8.0E-2
Zn	4	1.1E+0	9.2E-1	1.5E+0					20	3.0E-1	5.0E-2	6.3E-1
豆類												
Ag					2	8.0E-3	8.0E-3	8.0E-3				
Co	19	6.6E-1	2.0E-3	3.6E+0	3	1.1E-1	8.0E-2	1.8E-1	105	3.6E-2	5.0E-3	5.0E-1
Cs	7	1.1E+0	1.9E-1	4.1E+0	31	1.6E-2	2.0E-3	3.1E-1	126	4.0E-2	1.0E-3	7.1E-1
I					1	3.0E-3			23	8.5E-3	2.0E-4	1.4E-1
Mn					1	1.0E-1			92	2.2E-1	2.2E-2	2.8E+0
Pb	9	3.3E-3	6.5E-4	8.9E-3					17	5.3E-3	4.6E-4	4.9E+0
Ra*	31	2.1E-2	7.6E-4	2.7E-1					<u>40</u>	<u>1.0E-2</u>	<u>3.2E-4</u>	<u>2.6E-1</u>
Sr	6	3.7E+0	1.8E+0	8.2E+0	26	2.8E-1	2.0E-2	2.5E+0	148	1.4E+0	1.3E-1	6.0E+0
Tc					2	5.0E-1	2.0E-1	8.0E-1	5	4.3E+0	1.1E+0	3.0E+1
Th	4	6.3E-5	2.6E-5	2.1E-4					22	5.3E-4	2.5E-5	4.8E-1
Zn	2	1.8E+1	1.5E+1	2.0E+1					86	9.1E-1	2.5E-1	1.3E+1

赤：温帯の TF の 5 倍以上。太字：10 倍以上。青：温帯の TF の 1/5 以下。太字：1/10 以下。

*:訂正值 (corrigendum 参照)

2.2.2. 国内の事例

文献検索システム（例えば J-STAGE, Web of Science, Google Scholar）を用いた検索では、気温と作物に関する文献は得られるものの、TF に直接関わる研究は我が国では行われていないことがわかった。そこで、TF の収集、またグローバル・フォールアウトデータの解析を通じて、気温に係る情報の整理を行った。

2.2.2.1. TF に関する文献値

我が国の TF に関しては「放射性核種生物圏移行評価高度化調査」において全国の農耕地 142 地点の TF が収集されている（放射線医学総合研究所, 2013）が、気候を考慮するとデータ数がそれほど多くないため、本課題においてデータ追加を行い、気温影響評価を行なった。詳細については後述する。他にも Komamura ら (2005) が 1959~2000 年まで全国 17 地点から採取した玄米や小麦へのグローバル・フォールアウト ^{90}Sr と ^{137}Cs の TF がある。Tsukada と Nakamura (1998) が青森県内で 150 地点から収集した TF もあり、寒冷地のデータとして利用可能であるが、個別データが報告されていない。佐々木ら (2002) も多くの TF を報告しているが、採取場所が記載されていない。そこで、以下に Komamura ら(2005)の玄米データに着目して解析結果を示す。

報告されているサンプリング地点のうち、年平均気温の低い 3 地点（北海道, 秋田, 岩手: 1971 年から 2000 年までの平均気温として, $8.5\text{-}11.4^\circ\text{C}$ ）と高い 3 地点（東京, 大阪, 福岡: 1971 年から 2000 年までの平均気温として, $15.9\text{-}16.6^\circ\text{C}$ ）について比較を行った。用いたデータは 1980 年から 2000 年である。1986 年については、チェルノブイリ原発事故の影響も懸念されたが、1986 年における濃度の変化は顕著ではなかった。出穂期に穂に付着した ^{137}Cs が米穀粒の濃度に影響及ぼすことが知られているが (Ichikawa et al., 1962, Uchida and Ohmomo, 1999), チェルノブイリ原発事故時のイネは幼苗であり、急激な成長はフォールアウトがほとんど無くなってからであったため、植物体への直接沈着による吸収と玄米への移行は少なく、TF の評価には影響していなかったと考えられる。

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

一方、 ^{137}Cs の TF については、気温が低い地域で得られたデータ数 $n=80$, $\text{GM}=1.02 \times 10^{-2}$ (範囲: $(0.11\text{-}3.84) \times 10^{-2}$) あり、気温が高い地域で得られたデータ数 $n=58$, $\text{GM}=3.66 \times 10^{-3}$ (範囲: $(0.39\text{-}50.3) \times 10^{-3}$) であった。気温の低い地域の TF の方が 3 倍程有意に高かった ($p<0.01$)。TRS-472 では、熱帯で Cs の穀類 TF ($\text{GM}=2.3 \times 10^{-1}$) の方が温帯 ($\text{GM}=2.9 \times 10^{-2}$) よりも高い。ただし、温帯と亜熱帯 ($\text{GM}=3.1 \times 10^{-3}$) での比較では、亜熱帯の方が低くなる (気温の低い温帯の TF の方が高い) 結果であること、また、GRS (2008) でも寒冷帯の方が Cs の TF が高くなると想定していることから、本調査の結果と同じ傾向であった。

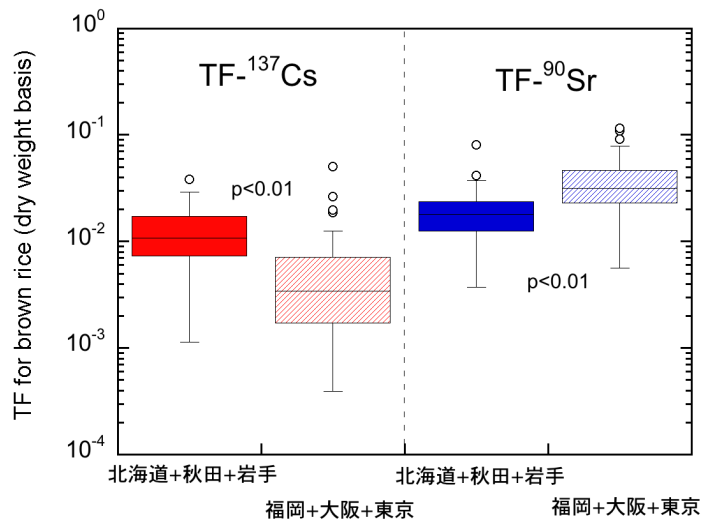


図 2.2-1 玄米への ^{90}Sr および ^{137}Cs の移行係数の気温の影響
(○は外れ値)

2.2.2.2. 土壌および農作物中濃度の経時変化による TF の推定と地域間の比較

長期間に渡って放射性物質が観測されている例として、グローバルフォールアウト起源の核種を挙げることができる。全国的に最もよく測定されているのは ^{137}Cs および ^{90}Sr であり、47 都道府県のデータを、環境放射能調査結果を収録したデータベース（原子力規制庁，2018）から入手可能である。まず ^{137}Cs の土壌中濃度と農作物濃度の経年変化に気温の影響を確認するために、土壌および農作物それぞれについて環境半減期（Environmental half-life, T_{env} ）を求めて比較を行った。ある環境コンパートメントからそのコンパートメント外へ放射性核種が移動する速度は、指数関数で近似できることが経験的に知られている。 T_{env} を導出するためには、まず実効半減期（Effective half-life, T_{eff} ）を導出しなければならないが、実効半減期を求める前に、指数関数近似を行う必要があり、次式で表される。

$$A_t = A_0 \times \exp(-\lambda_{\text{eff}} \times t) \dots\dots\dots(2)$$

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

$$\lambda_{\text{eff}} = \ln(2) / T_{\text{eff}} \dots\dots\dots(3)$$

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

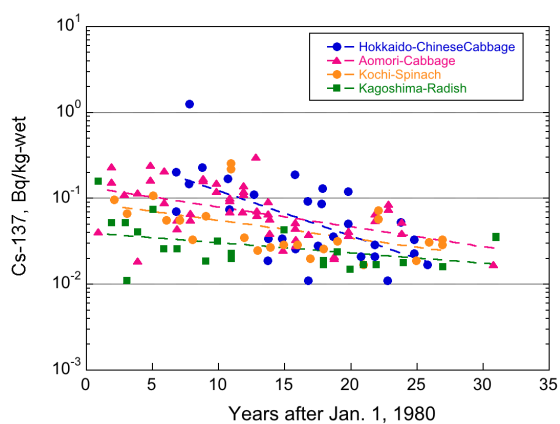
$$1/T_{\text{eff}} = 1/T_{\text{env}} + 1/T_{\text{phy}} \dots\dots\dots(4)$$

これらの式から、 T_{env} を導出した。解析対象データは、比較的寒冷地として北海道から宮城県までのエリア、また比較的温暖地として九州地方+高知県のエリアとした。選択した道県の県庁・道庁所在地

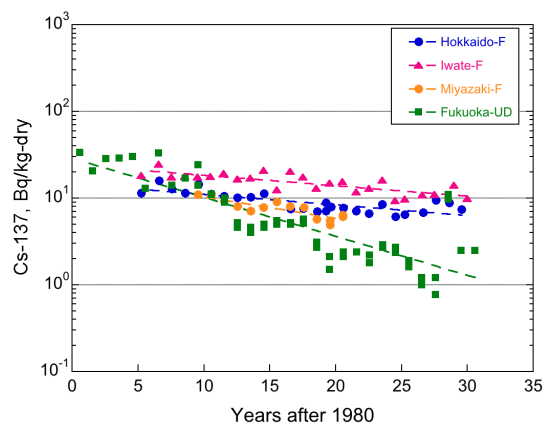
における 1980 年から 2010 年における年平均気温は、比較的寒冷地においては 10.7°C（範囲：8.9-12.3°C）、比較的温暖地では 18.2°C（範囲：16.4-23.0°C）であった（気象庁ホームページ，2018）。解析対象期間は 1980 年 1 月 1 日以降とした。

得られたデータについてフィッティングした例を図 2.2-2 に示す。解析の結果、比較的寒冷地では土壌の ^{137}Cs の T_{env} は幾何平均で 103 年（範囲：34-302 年）、温暖地では 27 年（範囲：9-74 年）と評価された。作物については、比較的寒冷地では T_{env} が幾何平均で 34 年（範囲：4-302 年）、温暖地では 37 年（範囲：4-159 年）であり、比較的寒冷地では作物中の ^{137}Cs 濃度減少が土壌に比べて相対的に早い傾向があるため、長期的には温暖地の方が寒冷地よりも TF が高くなると考えられた。この傾向については、TRS-472（2010）において報告されている温暖地と熱帯の Cs の TF データのように、熱帯の Cs の TF の方が温暖地よりも高い、という結果とは一致しているが、玄米とは逆の傾向となった。

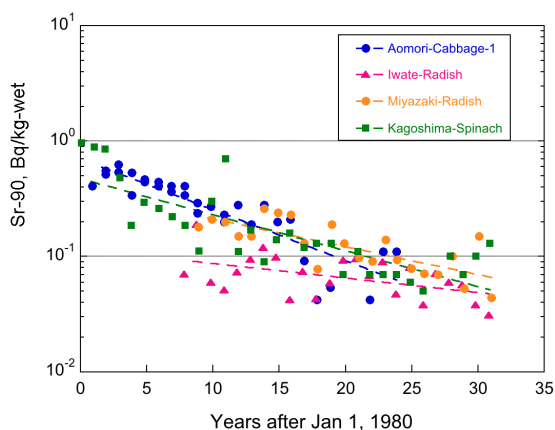
野菜の ^{90}Sr の TF についても ^{137}Cs と同様に解析した。比較的寒冷地では土壌の ^{90}Sr の T_{env} は幾何平均で 60 年（範囲：13-287 年）、温暖地では 23 年（範囲：11-79 年）と評価された。作物については、比較的寒冷地では T_{env} が幾何平均で 14 年（範囲：6-143 年）、温暖地では 22 年（範囲：7-63 年）であり、 ^{137}Cs の場合と同様に比較的寒冷地では作物中の ^{90}Sr 濃度減少が土壌に比べて相対的に早い傾向があるため、温暖地域の TF の方が高くなる結果が得られた。したがって、Sr のように土壌中を比較的動きやすい元素については、温暖地域における TF が高くなる可能性が示された。土壌中で動きやすい核種である Sr の TF は気温の影響を受けている可能性が示唆された。



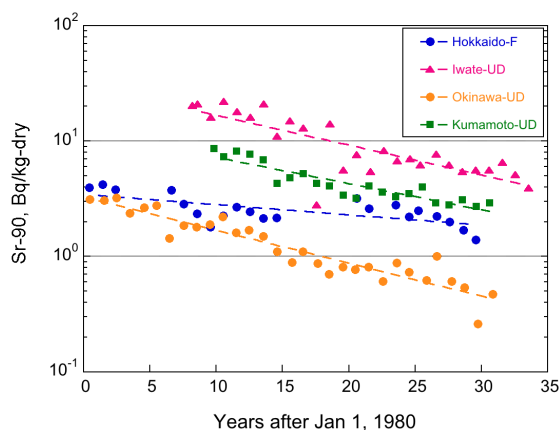
野菜中 ^{137}Cs 濃度の経時変化



土壌中 ^{137}Cs 濃度の経時変化



野菜中 ^{90}Sr 濃度の経時変化



土壌中 ^{90}Sr 濃度の経時変化

図 2.2-2 グローバル・フォールアウト ^{137}Cs と ^{90}Sr の土壌および作物中濃度の経時変化

2.2.2.3. 近接データを使用した見かけの TF の推定と地域間の比較

上述のような T_{env} を用いた間接的な推定に加え、以下の条件を設定し、TF 値の推定も試みた。

- ・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）。
- ・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。
- ・土壌中濃度の経年変化を指数関数でフィッティング。
- ・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。

農作物中の ^{137}Cs および ^{90}Sr 濃度は Bq/kg-生なので、日本食品成分表（文部科学省科学技術・学術審議会資源調査分科会, 2011）から各作物の代表的な水分含量を使って Bq/kg-乾に換算した。

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。なお、この 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。幾何平均値(GM)と範囲を以下に示す。

TF- ^{137}Cs

<寒冷地> 葉菜類 (n=14) : GM=0.027 (0.010-0.18), 根菜類 (n=9) : GM=0.021 (0.009-0.042)

<温暖地> 葉菜類 (n=24) : GM=0.028 (0.014-0.14), 根菜類 (n=5) : GM=0.019 (0.014-0.030)

TF- ^{90}Sr

<寒冷地> 葉菜類 (n=42) : GM=0.14 (0.05-0.63), 根菜類 (n=41) : GM=0.22 (0.03-0.58)

<温暖地> 葉菜類 (n=7) : GM=0.80 (0.10-2.1), 根菜類 (n=8) : GM=1.2 (0.46-2.2)

全データをプロットした結果を図 2.2-3 に示す。比較のために 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 はいずれも TRS-472 の温暖地のデータ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 ($p<0.01$)。選択された温暖地の雨量は寒冷地よりも多く、そのため土壌溶液に溶出した ^{90}Sr が多いことが要因ではないかと考えられる。

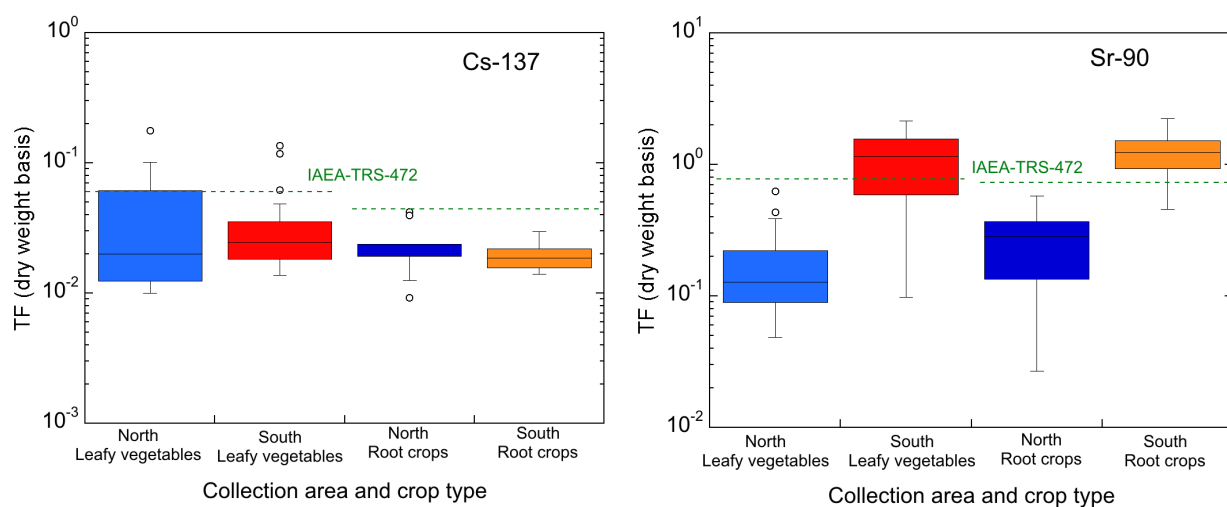


図 2.2-3. 比較的寒冷地と温暖地におけるグローバル・フォールアウト ^{137}Cs と ^{90}Sr の葉菜類および根菜類への見かけの移行係数の比較

2. 3. 土壌-植物間移行係数に対する気温の影響調査 ～国内の寒冷地と温暖地の移行係数～

2.3.1. 調査概要

主食として重要な米（玄米）と温暖地から寒冷地まで生育可能なジャガイモに着目し、それぞれについて、比較的寒冷地および温暖地の産地から採取することで、気温差のある試料セットを収集した（平成 26～29 年度）。また、葉菜類を平成 25 年度の冬期（12 月から 1 月）に収集したが、その目的は、全国調査を平成 14-18 年度の夏期～秋期に行っていることから、比較的気温の低い冬期のデータを取得するためである。採取した土壌および農作物はそれぞれ前処理を行い、30 元素以上の濃度データを収集し、移行係数を導出した。これらのデータは土壌の種類、土壌特性と共にデータベース化し、フィルターをかけることで目的のデータを抽出できるようにした。各地域の代表的な農家に協力を依頼し、試料を採取した。

2.3.2. 試料採取および調査方法

2.3.2.1. 試料採取地点の選択

【玄米およびジャガイモ】比較的寒冷地および温暖地の選択は年平均気温を指標とした。寒冷地域として、北海道、青森県、岩手県および秋田県を、温暖地域として、沖縄県、鹿児島県、宮崎県、熊本県、長崎県、福岡県、高知県を選択した。試料採取は、玄米については平成 26-28 年の 3 年間、ジャガイモについては平成 26～29 年度の 4 年間行い、各作物とも各年度において寒冷地および温暖地から 5 地点ずつ採取している。したがって、玄米については、寒冷地および温暖地においてそれぞれ 15 検体、合計 30 試料、またジャガイモについては寒冷地および温暖地においてそれぞれ 20 検体、合計 40 試料を調査した。

【葉菜類】土壌-農作物の採取については、葉菜類に着目した。サンプリング期間は平成 25 年度の冬期（12 月から 1 月）である。過去の放射性核種生物圏移行評価高度化調査においてデータベース化した試料の採取は、全国規模であり、かつ夏から秋にかけての暖かい時期にサンプリングを行っている。この期間においては降水量も多く、また高温・高日射量であるため、植物の生長が早い。一方、冬期においては、気温が下がり、日射量も減ることから、植物の生長が遅く、したがって栽培期間は夏～秋期よりも長くなる。つまり冬期は非必須元素を長期的に吸収することになるため、元素によっては TF に気温の影響が見られる可能性がある。冬期の栽培は比較的温暖地に限られ、20 試料を土壌とともに採取した。

2.3.2.2. 試料採取方法

土壌は作物の根が広がる表層の作土層のみを作物の採取時期に合わせて採取した。サンプリングはシャベル、スコップ等を用いて作土層（水田では 0-15cm、畑では 0-20cm 程度）から分析用として生土を一試料あたり総量約 5 kg（5 地点から約 1 kg ずつ採取し混合）を採取し、ポリエチレン袋に封入した。その他に同一スポットから土壌密度測定用に生土を 100 mL 容コアサンプラーで採取した。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。

農作物の採取は同一耕作地で平均的に生育している作物の可食部を対象として行った。サンプリングは作物の収穫時期に合わせて、葉菜類については水分含量を考慮して総量約 15 kg（生重量）を、玄米およびジャガイモは 5 kg 採取ずつした。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、下記の前処理を行った後、土壌の物理化学的特性の測定、土壌および農作物の元素分析に供した。サンプル発送時と到着時の状態は各年度の報告書に記述した。収集した試料のリストを表 2.3-1 に示す。

表 2.3-1. 採取試料リスト (1/3)

番号	土地利用	都道府県名	市町村名	土壌採取日	作物採取日	土壌群	土壌亜群	土壌統群	仮比重	作物名	品種名
1	水田	鹿児島	南さつま市	2014/8/19	2014/8/7	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	1.06	水稲玄米	コシヒカリ
2	水田	鹿児島	鹿児島市	2014/8/19	2014/8/2	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.91	水稲玄米	イクヒカリ
3	水田	高知	南国市	2014/8/26	2014/8/26	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	1.17	水稲玄米	コシヒカリ
4	水田	北海道	瀬棚郡今金町	2014/10/23	2014/9/18	泥炭土	低位泥炭土	典型	0.68	水稲玄米	ふっくりんこ
5	水田	北海道	江別市	2014/9/24	2014/10/1	グライ低地土	斑鉄型グライ低地土	細粒質	0.94	水稲玄米	ななつぼし
6	水田	秋田	大仙市	2014/9/30	2014/9/22	グライ低地土	表層灰色グライ低地土	細粒質	0.74	水稲玄米	秋田こまち
7	水田	青森	黒石市	2014/10/2	2014/9/30	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	1.13	水稲玄米	つがるロマン
8	水田	岩手	北上市	2014/10/3	2014/9/22	グライ台地土	腐植質グライ台地土	-	0.87	水稲玄米	ひとめぼれ
9	水田	熊本	菊池市	2014/10/11	2014/10/11	灰色低地土	腐植質灰色低地土	細粒質	1.04	水稲玄米	ヒノヒカリ
10	水田	宮崎	都城市	2014/10/21	2014/9/28	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	腐植質	0.72	水稲玄米	ヒノヒカリ
11	水田	沖縄	名護市	2015/7/3	2015/7/1	黄色土	台地黄色土	細粒質	1.30	水稲玄米	ひとめぼれ
12	水田	宮崎	西都市	2015/8/4	2015/7/27	低地水田土	灰色化低地水田土	中粒質	1.41	水稲玄米	コシヒカリ
13	水田	高知	四万十市	2015/8/17	2015/8/12	低地水田土	灰色化低地水田土	細粒質	0.99	水稲玄米	コシヒカリ
14	水田	鹿児島	曾於郡大崎町	2015/8/14	2015/8/6	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	1.18	水稲玄米	イクヒカリ
15	水田	秋田	南秋田郡八郎潟町	2015/10/8	2015/10/8	グライ低地土	還元型グライ低地土	粗粒質	0.88	水稲玄米	あきたこまち
16	水田	岩手	九戸郡軽米町	2015/10/7	2015/10/7	多湿黒ボク土	下層低地多湿黒ボク土	典型	0.87	水稲玄米	いわてっこ
17	水田	青森	つがる市	2015/10/13	2015/10/5	グライ低地土	表層灰色グライ低地土	細粒質	0.81	水稲玄米	まっしぐら
18	水田	熊本	菊池郡菊陽町	2015/10/14	2015/10/11	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	腐植質	0.86	水稲玄米	ヒノヒカリ
19	水田	北海道	札幌市	2015/10/16	2015/9/16	火山放出物未熟土	湿性火山放出物未熟土	典型	0.66	水稲玄米	ななつぼし
20	水田	北海道	上川郡比布町	2015/11/2	2015/9/11	灰色低地土	普通灰色低地土	礫質	1.14	水稲玄米	ななつぼし
21	水田	宮崎	日南市	2016/7/30	2016/7/28	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	0.82	水稲玄米	コシヒカリ
22	水田	鹿児島	日置市	2016/8/2	2016/7/28	灰色低地土	普通灰色低地土	礫質	1.06	水稲玄米	コシヒカリ
23	水田	高知	安芸郡田野町	2016/8/17	2016/8/13	低地水田土	灰色化低地水田土	中粒質	0.15	水稲玄米	ヒノヒカリ
24	水田	沖縄	石垣市	2016/9/5	2016/6/10	黄色土	台地黄色土	細粒質	1.49	水稲玄米	ひとめぼれ
25	水田	北海道	磯谷郡蘭越町	2016/9/20	2016/9/17	灰色低地土	普通灰色低地土	粗粒質	0.90	水稲玄米	ゆめびりか
26	水田	青森	南津軽郡田舎館村	2016/9/27	2016/9/21	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.66	水稲玄米	晴天の霹靂
27	水田	北海道	北斗市	2016/10/14	2016/9/17	褐色低地土	普通褐色低地土	中粒質	1.05	水稲玄米	ふっくりんこ
28	水田	熊本	山鹿市	2016/10/20	2016/10/11	グライ低地土	表層灰色グライ低地土	細粒質	1.15	水稲玄米	ヒノヒカリ
29	水田	秋田	由利本荘市	2016/10/22	2016/9/25	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.74	水稲玄米	ひとめぼれ
30	水田	岩手	盛岡市	2016/10/20	2016/10/20	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.10	水稲玄米	どんびしゃり

表 2.3-1. 採取試料リスト (2/3)

番号	土地利用	都道府県名	市町村名	土壤採取日	作物採取日	土壤群	土壤亜群	土壤統群	仮比重	作物名	品種名
1	畑地	高知	土佐市	2013/12/4	2013/12/4	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	1.22	ネギ	あいぐろ
2	畑地	高知	南国市	2013/12/4	2013/12/4	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	1.05	ハクサイ	黄ごころ85
3	畑地	熊本	合志市	2013/12/4	2013/12/4	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.62	キャベツ	豊光
4	畑地	熊本	合志市	2013/12/4	2013/12/4	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.70	ハクサイ	晴黄75
5	畑地	熊本	合志市	2013/12/5	2013/12/5	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.60	ホウレンソウ	ミストラル
6	畑地	熊本	合志市	2013/12/5	2013/12/5	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.60	レタス	シスコ
7	畑地	鹿児島	鹿屋市	2013/12/12	2013/12/12	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.66	キャベツ	T532
8	畑地	鹿児島	鹿屋市	2013/12/12	2013/12/12	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.71	ネギ	夏扇4号
9	畑地	鹿児島	鹿児島市	2013/12/12	2013/12/12	黒ボク土	淡色黒ボク土	礫質	0.70	ホウレンソウ	プログレス
10	畑地	宮崎	都城市	2013/12/12	2013/12/12	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.65	ホウレンソウ	サブライズ7
11	畑地	沖縄	糸満市	2013/12/24	2013/12/24	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.12	キャベツ	早どりかんらん
12	畑地	沖縄	糸満市	2013/12/25	2013/12/25	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.05	ネギ	黒泉夏用
13	畑地	沖縄	糸満市	2013/12/25	2013/12/25	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.08	ホウレンソウ	ビジョン
14	畑地	沖縄	糸満市	2013/12/25	2013/12/25	暗赤色土	石灰型暗赤色土	礫質	1.04	チンゲンサイ	沖縄チンゲンサイ
15	畑地	宮崎	都城市	2013/12/25	2013/12/25	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.56	キャベツ	若峰
16	畑地	宮崎	都城市	2013/12/25	2013/12/25	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.61	ネギ	吉蔵
17	畑地	宮崎	都城市	2013/12/25	2013/12/25	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	多腐植質	0.72	ハクサイ	黄ごころ90
18	畑地	高知	南国市	2014/1/14	2014/1/14	灰色低地土	普通灰色低地土	礫質	1.15	キャベツ	おきな
19	畑地	高知	高岡郡四万十町	2014/1/28	2014/1/28	黄色土	台地黄色土	細粒質	1.16	タカナ	コブタカナ
20	畑地	鹿児島	南さつま市	2014/1/28	2014/1/28	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.79	ハクサイ	黄葉90α
21	畑地	鹿児島	志布志市	2014/5/22	2014/5/22	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.72	ジャガイモ	トヨシロ
22	畑地	鹿児島	鹿児島市	2014/5/22	2014/5/22	黒ボク土	厚層黒ボク土	多腐植質	0.65	ジャガイモ	トヨシロ
23	畑地	宮崎	都城市	2014/5/27	2014/5/27	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.61	ジャガイモ	トヨシロ
24	畑地	高知	吾川郡いの町	2014/6/10	2014/6/10	赤色土	普通赤色土	礫質	0.97	ジャガイモ	男爵
25	畑地	熊本	合志市	2014/6/16	2014/6/16	多湿黒ボク土	厚層多湿黒ボク土	腐植質	0.53	ジャガイモ	メークイン
26	畑地	秋田	大仙市	2014/7/10	2014/7/10	灰色低地土	普通灰色低地土	細粒質	0.85	ジャガイモ	キタアカリ
27	畑地	北海道	瀬棚郡今金町	2014/7/28	2014/7/28	泥炭土	低位泥炭土	典型	0.88	ジャガイモ	男爵
28	畑地	青森	上北郡六戸町	2014/8/6	2014/8/6	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.67	ジャガイモ	メークイン
29	畑地	岩手	北上市	2014/8/19	2014/8/19	多湿黒ボク土	普通多湿黒ボク土	典型	0.90	ジャガイモ	男爵
30	畑地	北海道	江別市	2014/9/24	2014/9/17	褐色森林土	台地褐色森林土	細粒質	0.85	ジャガイモ	男爵

表 2.3-1. 採取試料リスト (3/3)

番号	土地利用	都道府県名	市町村名	土壌採取日	作物採取日	土壌群	土壌亜群	土壌統群	仮比重	作物名	品種名
31	畑地	高知	安芸郡田野町	2015/6/10	2015/6/10	黄色土	山地黄色土	細粒質	0.84	ジャガイモ	出島
32	畑地	鹿児島	鹿屋市	2015/6/10	2015/6/10	黒ボク土	厚層黒ボク土	腐植質	0.58	ジャガイモ	トヨシロ
33	畑地	宮崎	東諸県郡綾町	2015/6/12	2015/6/12	灰色低地土	普通灰色低地土	礫質	0.75	ジャガイモ	メークイン
34	畑地	福岡	筑後市	2015/6/16	2015/6/16	低地水田土	灰色化低地水田土	細粒質	0.95	ジャガイモ	メークイン
35	畑地	熊本	球磨郡あさぎり町	2015/6/17	2015/6/17	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	0.64	ジャガイモ	メークイン
36	畑地	岩手	陸前高田市	2015/7/15	2015/7/15	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.81	ジャガイモ	メークイン
37	畑地	秋田	秋田市	2015/7/21	2015/7/21	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	0.95	ジャガイモ	メークイン
38	畑地	青森	むつ市	2015/7/27	2015/7/24	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.77	ジャガイモ	きたあかり
39	畑地	北海道	河東郡士幌町	2015/8/21	2015/8/21	褐色低地土	普通褐色低地土	中粒質	0.68	ジャガイモ	トヨシロ
40	畑地	北海道	斜里郡小清水町	2015/8/24	2015/8/24	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.69	ジャガイモ	アーリースターチ
41	畑地	鹿児島	出水郡長島町	2016/5/29	2016/5/29	赤色土	普通赤色土	細粒質	0.87	ジャガイモ	ニシユタカ
42	畑地	宮崎	延岡市	2016/5/31	2016/5/31	褐色低地土	普通褐色低地土	中粒質	0.90	ジャガイモ	北海黄金
43	畑地	長崎	諫早市	2016/6/1	2016/6/1	黄色土	山地黄色土	細粒質	0.80	ジャガイモ	アイユタカ
44	畑地	福岡	みやま市	2016/6/2	2016/6/2	灰色低地土	グライ化灰色低地土	粗粒質	0.92	ジャガイモ	メークイン
45	畑地	高知	高岡郡四万十町	2016/6/9	2016/6/9	黄色土	湿性黄色土	細粒質	0.81	ジャガイモ	男爵
46	畑地	岩手	一関市	2016/7/4	2016/7/4	黄色土	山地黄色土	細粒質	0.72	ジャガイモ	キタアカリ
47	畑地	青森	上北郡東北町	2016/7/12	2016/7/12	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.65	ジャガイモ	メークイン
48	畑地	秋田	能代市	2016/8/6	2016/8/6	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	0.73	ジャガイモ	メークイン
49	畑地	北海道	上川郡和寒町	2016/8/9	2016/8/9	グライ低地土	表層灰色グライ低地土	細粒質	0.86	ジャガイモ	男爵
50	畑地	北海道	勇払郡むかわ町	2016/8/10	2016/8/10	多湿黒ボク土	下層低地多湿黒ボク土	礫質	0.92	ジャガイモ	メークイン
51	畑地	鹿児島	出水市	2017/5/27	2017/5/27	褐色低地土	水田化褐色低地土	礫質	0.93	ジャガイモ	トヨシロ
52	畑地	長崎	雲仙市	2017/5/29	2017/5/29	黄色土	ぼん土質黄色土	細粒質	0.88	ジャガイモ	アイユタカ
53	畑地	高知	室戸市	2017/5/31	2017/5/31	黄色土	ぼん土質黄色土	細粒質	1.05	ジャガイモ	メークイン
54	畑地	熊本	八代市	2017/6/5	2017/6/5	グライ低地土	斑鉄型グライ低地土	中粒質	1.04	ジャガイモ	メークイン
55	畑地	宮崎	宮崎市	2017/6/15	2017/6/15	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.74	ジャガイモ	男爵
56	畑地	青森	八戸市	2017/7/28	2017/7/28	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.73	ジャガイモ	キタアカリ
57	畑地	秋田	大館市	2017/7/31	2017/7/31	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	0.99	ジャガイモ	男爵
58	畑地	岩手	紫波郡紫波町	2017/8/4	2017/8/4	褐色森林土	山地褐色森林土	細粒質	0.62	ジャガイモ	きたかむい
59	畑地	北海道	稚内市	2017/9/13	2017/9/12	褐色森林土	台地褐色森林土	典型	0.51	ジャガイモ	アンデスレッド
60	畑地	北海道	標津郡中標津町	2017/9/11	2017/9/30	黒ボク土	普通黒ボク土	礫質	0.60	ジャガイモ	ワセシロ

2.3.3. 測定対象元素および化学成分とその分析法

測定対象元素は土壌では 43 元素 (Li, Be, B, C, N, Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Gd, Hg, Pb, Th, U) に加え、pH や陽イオン交換容量等の土壌特性についても測定を行なった。作物試料は土壌の測定対象元素から B および Hg を除く元素である。濃度は全て乾重ベースで求めた。詳細な分析方法は以下の通りである。

2.3.3.1. 土壌試料の前処理方法

土壌試料をよく混合して均一化したのち、石や根などの大きな固形物を除去、指で潰せる土塊については破碎し、この時点で生重量を測定した。通常は室温にて風乾する方法が用いられるが、本分析では、大気起源のコンタミを避けるため、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。恒量時の重量を測定して生土に含まれていた水分含量を求めた。乾燥土壌は孔径 2mm の標準ふるいを通させたものを風乾細土試料とし、室温で保管した。この試料から 50 g 程度を分取し、ボールミルでさらに粉碎して微量元素測定用試料とした。

2.3.3.2. 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、スポンジ等を用い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。皮は可食部として取り扱った。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。

玄米試料は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。

葉菜類は質量測定 (生重) を行い、さらに可食部・非可食部に分離したうえで各部の質量測定 (生重) を行い、廃棄率を測定した。ネギの 2 検体 (宮崎ネギと鹿児島ネギ) については、白ネギ部分と青ネギ部分に分け、計 4 検体とした。可食部のホコリ等を落とすために軽く水洗いし、最後に純水ですすぎ、水切りした。ハウレンソウは根のみ切除 (茎の根元の赤い部分は残した)、ネギは根を切除、白ネギは表面の皮 1 枚を除き、キャベツの芯部分は非可食部とした。その後、セラミック製の包丁で小片 (0.5cm~数 cm 大程度) に細断して、よく混合した。質量約 1 kg については真空凍結乾燥し、セラミックミルを用いて粗く粉碎後、メノウ乳鉢を用いて均一にし、一部 (約 10 g) を分取して安定元素分析に供した。凍結乾燥用試料を採取した後の残り試料 (可食部) は清浄なポリプロピレン製カゴに入れ、80℃ の電気乾燥器中に数日間置き、恒量 (偏差 1g 程度以下) を確認した後、ビニール袋に入れて保管した。

2.3.3.3. 土壌の物理化学的特性

(1) pH(H₂O)

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

(2) 陽イオン交換容量 (CEC : Cation Exchange Capacity, meq/100g)

洗浄液容器に 1M 酢酸アンモニウム溶液を 100 mL 入れ、脱脂綿及びセルロースパウダーを詰めた

浸透管（内径 13 mm，高さ 120 mm）に洗浄液容器から 1M 酢酸アンモニウム溶液を 2/3 程度入れたのち，採取した試料を浸透管内に約 8 cm の厚さとなるよう，気泡が入らないように落下沈降させて充てんした。浸透管下端のコックを開け，1M 酢酸アンモニウム溶液を洗浄液容器から滴下した。4～20 時間程度で浸透が終了するようにコックで滴下速度を調整した。酢酸アンモニウム溶液滴下終了後，受け器を取り替えて少量の 80 %エタノールで浸透管上部内壁及び洗浄液容器内壁を洗浄した。次に洗浄液容器に 80 %エタノール 50 mL を入れて浸透管に接続し，滴下しながら余剰の酢酸アンモニウムを除去した。再び受け器を取り替え，また洗浄容器には 10 %塩化ナトリウム溶液 100 mL を入れ滴下した。滴下終了後，浸透液を 200 mL の全量フラスコに洗い込み定容とした。浸透塩化ナトリウム溶液から正確に一定量をとり，水蒸気蒸留法によりアンモニウムイオンを定量し CEC を算出した。

(3) 置換性 Ca 及び K (mg/100g)

上述の CEC の操作で得られた酢酸アンモニウム浸透液を 200 mL の全量フラスコに洗い込み定容とした。この溶液の一定量をとり，Sr 濃度が 1000 mg/L となるように塩化 Sr 溶液を加え，超純水で定容し，原子吸光光度計により Ca を測定した。また，別途，酢酸アンモニウム浸透液を適宜超純水で希釈したのち，原子吸光光度計により K を測定した。

(4) 活性 Al, Fe (mg/100g)

試料 1.0 g を 250 mL のプラスチック容器に量りとり，0.2 M 酸性シュウ酸溶液 (pH3.0) 100 mL を加えて室温・暗条件で 4 時間往復振とうした。この溶液約 25 mL を 50 mL の遠沈管にとり，凝集剤として Superfloc を 1 滴加えて振り混ぜてから 10 分間遠心分離 (3000 rpm) し，上澄み液を得た。上澄み液を適宜希釈し，ICP 発光分析装置により Al 及び Fe を測定した。

(5) Si (mg/kg)

試料 0.1-0.2 g を白金皿に量りとり，500 °C で灰化した後，炭酸ナトリウム 5 g を加え 900 °C で 20 分間融解した。放冷後，HCl(1+1)で中和し，更に HCl(1+1)を 20 mL 加え水浴上で蒸発乾固させた。次に HCl (1+1)を 20 mL 加え 10 分間加温後，No.5C のろ紙でろ過した。ろ液中に塩化物イオンの反応がなくなるまで内容物を洗浄後，残渣をろ紙ごと白金皿に移して灰化し 900 °C で 20 分間強熱し，放冷後重量(W₁)を測定した。内容物を超純水で湿らして H₂SO₄ を 2～3 滴及び HF10 mL を加え，蒸発乾固したのち電気炉へ移し灰化した。放冷後，再び重量(W₂)を測定した。2 つの重量差(W₁-W₂)から Si 含量を算出した。

(6) B (mg/kg)

試料 0.2 g を白金るつぼに量りとり，550 °C で 2 時間灰化した後に，炭酸ナトリウム 1 g を加え，徐々に温度を上昇させ 900 °C で 20 分間融解した。放冷後，超純水を加え 155 °C で加温したのち，更に 5 %HNO₃ を 50 mL 加えて加温して固形物を溶解させた。得られた溶液を No.5C のろ紙でろ過し，さらに超純水で 100 mL に定容したものを ICP 発光分析装置で B を測定した。

(7) Hg (mg/kg)

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

(8) 希土類元素を含むその他の元素

粉碎試料を約 100 mg 秤量し、テフロン製分解容器に入れて、HNO₃を 7 mL、HF を 7 mL 加えた。分解容器をマイクロウェーブ分解装置 (CEM 社製, MARS5) で約 15 分の加熱を 1 回行った。放冷後、HClO₄ 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 HNO₃ と 0.5 mL の H₂O₂ 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% HNO₃ を 2.5 mL 加え 50 mL ポリプロピレン製容器に移し、超純水を用いて全量を 50mL とした。この試料母液の HNO₃ 濃度は 2% である。適宜希釈し測定には ICP 発光分光分析装置および ICP 質量分析装置を用いた。

(9) C, N (mg/kg)

総炭素濃度および窒素濃度については 10 mg を Element Analyzer と連結した同位体比質量分析装置 (EA-IRMS, サーモフィッシャー・サイエンティフィック, Delta-V advantage) により測定した。

2.3.3.4. 農作物中の安定元素の分析

(1) Si

試料 0.2~3 g を白金るつばに量りとり、500 °C で灰化したのち炭酸ナトリウム 5 g を加え 900°C で 20 分間融解した。放冷後、水を加えて加温し、No.5C のろ紙でろ過した。超純水を加えて定容したのち適宜希釈して ICP 発光分析装置により Si を測定した。

(2) 希土類元素を含むその他の元素

試料を 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、HNO₃ 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 HNO₃ と 0.5 mL の H₂O₂ を添加して残さを溶かした後、再度乾固し、最終的に 40%HNO₃ 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 HNO₃ 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。測定には ICP 発光分光分析装置および ICP 質量分析装置を用いた。

(3) C, N (mg/kg)

総炭素濃度および窒素濃度については 1 mg を EA-IRMS により測定した。

2.3.3.3 の土壌、2.3.3.4 の農作物の分析は、全て 1 試料から 2 サブサンプルを作成して測定した。土壌試料と農作物試料ではそれぞれ含まれている元素濃度が異なるために、希釈倍率及び、測定条件をそれぞれの試料に合わせて設定している。

2.3.4. 濃度データ

全 90 試料を FAO の基準による土壌群に分類した結果は以下の通りである。

Fluvisol (29 試料) グライ低地土 : 7, 低地水田土 : 4, 灰色低地土 : 18

Andosol (35 試料) 黒ボク土 : 28, 多湿黒ボク土 : 7

Cambisol (18 試料) 黄色土 : 9, 赤色土 : 2, 褐色低地土 : 4, 褐色森林土 : 3,

その他 (8 試料) 暗赤色土 : 4, 泥炭土 : 2, 火山放出物未熟土 : 1, グライ台地土 : 1

濃度データの幾何平均値 (土壌 pH のみ平均値) を、土壌 (利用形態別) と作物 (玄米, ジャガイモ,

葉菜類) について表 2.3-2 と表 2.3-3 にそれぞれ示す。個別データは別途報告している。

表 2.3-2. 水田土および畑土の土壤特性および元素濃度 (乾重ベース)

項目	単位	水田土	畑土	項目	単位	水田土	畑土
pH (H ₂ O)		5.7	6.2	Cu	mg/kg	26	31
塩基置換容量	meq/100g	15	22	Zn	mg/kg	94	110
置換性 Ca	mg/100g	140	240	As	mg/kg	7.2	8.7
置換性 K	mg/100g	18	31	Se	mg/kg	0.38	0.49
活性 Al	g/kg	3.9	9.6	Rb	mg/kg	42	26
活性 Fe	g/kg	6.0	7.7	Sr	mg/kg	96	70
Li	mg/kg	15	24	Y	mg/kg	16	17
Be	mg/kg	1.1	1.2	Zr	mg/kg	110	110
B	mg/kg	23	33	Nb	mg/kg	8.2	8.1
Na	mg/kg	11000	9300	Mo	mg/kg	0.65	0.96
Mg	mg/kg	5500	6300	Cd	mg/kg	0.28	0.27
C	mg/kg	23000	33000	Sn	mg/kg	1.8	2.1
N	mg/kg	2300	2800	Sb	mg/kg	0.67	0.61
Al	mg/kg	64000	61000	Cs	mg/kg	3.5	3.1
Si	mg/kg	260000	230000	Ba	mg/kg	280	220
P	mg/kg	1600	2400	La	mg/kg	13	13
K	mg/kg	11000	9000	Ce	mg/kg	30	27
Ca	mg/kg	9600	11000	Sm	mg/kg	3.1	3.0
Ti	mg/kg	3800	4500	Eu	mg/kg	0.75	0.69
V	mg/kg	110	130	Gd	mg/kg	3.3	3.2
Cr	mg/kg	51	46	Hg	mg/kg	0.10	0.09
Mn	mg/kg	580	900	Pb	mg/kg	21	20
Fe	mg/kg	34000	44000	Th	mg/kg	5.0	4.7
Co	mg/kg	11	14	U	mg/kg	2.6	2.2
Ni	mg/kg	18	19				

表 2.3-3. 玄米, ジャガイモ及び葉菜類の元素濃度 (乾重ベース)

項目	単位	玄米	ジャガイモ	葉菜類
Li	mg/kg	0.0042	0.0046	0.080
Be	mg/kg	0.0006	0.0006	n.d.
C	mg/kg	420000	410000	410000
N	mg/kg	12000	13000	31000
Na	mg/kg	27	33	360
Mg	mg/kg	1300	1000	2400
Al	mg/kg	2.0	5.2	43
Si	mg/kg	180	9.5	40
P	mg/kg	3300	2500	4000
K	mg/kg	2600	20000	42000
Ca	mg/kg	89	210	7600
Ti	mg/kg	2.0	1.6	4.0
V	mg/kg	0.006	0.032	0.100
Cr	mg/kg	0.072	0.045	0.430
Mn	mg/kg	33	8	19
Fe	mg/kg	11	18	57
Co	mg/kg	0.011	0.050	0.180
Ni	mg/kg	0.15	0.13	0.32
Cu	mg/kg	2.7	4.2	3.4
Zn	mg/kg	24	14	35
As	mg/kg	0.071	0.0068	0.13
Se	mg/kg	0.023	0.0061	0.036
Rb	mg/kg	5.1	13	19
Sr	mg/kg	0.15	0.54	14
Y	mg/kg	0.0018	0.0050	0.0440
Zr	mg/kg	0.005	0.014	0.15
Nb	mg/kg	0.0037	0.0038	0.032
Mo	mg/kg	0.78	0.30	0.36
Cd	mg/kg	0.025	0.075	0.065
Sn	mg/kg	0.017	0.014	0.089
Sb	mg/kg	0.0015	0.0019	0.031
Cs	mg/kg	0.0056	0.015	0.068
Ba	mg/kg	0.42	0.83	4.8
La	mg/kg	0.00077	0.0038	0.077
Ce	mg/kg	0.0012	0.0053	0.053
Sm	mg/kg	0.0005	0.0013	0.023
Eu	mg/kg	0.0004	0.0004	0.031
Gd	mg/kg	0.0004	0.0011	0.029
Pb	mg/kg	0.008	0.013	0.12
Th	mg/kg	0.0006	0.0010	0.0003
U	mg/kg	0.0002	0.0005	0.0011

2.3.5. 玄米の移行係数

(1)式により TF を導出した結果から、30 試料の幾何平均値と範囲を表 2.3-4 に示す。個別データは別途報告している。IAEA(2010)の TRS-472 の温帯の TF と比較すると、本研究で得られた値は 1 桁程低い。最大値と最小値の比は Sb で高いものの、多くの元素で 2 桁以内であった。

表 2.3-4 玄米の移行係数 (30 試料)

Element	TRS-472*1	GM	GSD	min	max	max/min
Na	-	2.4E-3	3.0	3.4E-4	4.6E-2	140
Mg	-	2.3E-1	1.8	5.0E-2	7.4E-1	15
Al	-	3.1E-5	3.2	4.2E-6	1.9E-4	46
Si	-	6.9E-4	1.9	2.1E-4	3.5E-3	17
P	-	2.0E+0	2.0	1.7E-1	5.1E+0	30
K	-	2.5E-1	1.5	1.4E-1	6.9E-1	5
Ca	-	9.3E-3	2.4	2.9E-3	8.6E-2	30
Ti	-	5.3E-4	1.5	2.0E-4	1.1E-3	5
V	-	5.9E-5	2.2	1.3E-5	2.0E-4	16
Cr	-	1.4E-3	2.4	1.9E-4	1.0E-2	52
Mn	2.6E-1	5.6E-2	1.6	2.4E-2	2.9E-1	12
Fe	-	3.2E-4	1.8	1.2E-4	1.3E-3	11
Co	5.1E-3	9.5E-4	1.9	3.6E-4	3.7E-3	10
Ni	-	8.2E-3	2.7	7.9E-4	5.3E-2	68
Cu	-	1.0E-1	1.9	2.7E-2	2.7E-1	10
Zn	1.5E+0	2.5E-1	1.4	1.5E-1	5.6E-1	4
As	-	9.9E-3	2.1	9.0E-4	4.0E-2	44
Se	-	5.9E-2	1.8	2.0E-2	2.1E-1	10
Rb	-	1.2E-1	2.7	1.7E-2	1.2E+0	68
Sr	2.3E-2	1.6E-3	2.1	3.4E-4	1.0E-2	30
Zr	-	4.6E-5	3.0	5.6E-7	2.8E-4	490
Nb	-	4.5E-4	2.7	1.1E-4	4.5E-3	41
Mo	-	1.2E+0	2.6	2.2E-1	1.1E+1	50
Cd	-	8.9E-2	3.1	1.1E-2	7.9E-1	70
Sn	-	9.4E-3	2.4	5.5E-4	3.0E-2	54
Sb	-	2.3E-3	3.8	4.2E-5	6.7E-2	1600
Cs	8.3E-3	1.6E-3	2.7	2.7E-4	2.1E-2	80
Ba	-	1.5E-3	2.3	1.9E-4	6.8E-3	35
La	-	6.0E-5	2.4	1.7E-5	4.2E-4	25
Ce	-	4.1E-5	2.9	4.2E-6	3.6E-4	85
Sm	-	1.8E-4	2.2	5.1E-5	9.2E-4	18
Eu	-	5.1E-4	2.6	4.1E-5	3.0E-3	73
Gd	-	1.2E-4	3.1	4.4E-6	6.4E-4	140
Pb	8.4E-3	3.8E-4	3.5	1.6E-5	5.4E-3	340
Th	1.6E-4	1.3E-4	3.4	5.1E-6	2.1E-3	410
U	2.4E-4	7.5E-5	3.0	6.2E-6	4.4E-4	70

*1: データなし(-)は同資料 TABLE 22 に記載なし

2.3.6. ジャガイモの移行係数

(1)式により TF を導出した結果から、40 試料の幾何平均値と範囲を表 2.3-5 に示す。個別データは別途報告している。IAEA(2010)の TRS-472 の温帯の TF と比較すると、本研究で得られた値は同程度か1桁程低い。最大値と最小値の比は3桁以内であった。

表 2.3-5 ジャガイモの移行係数 (40 試料)

Element	TRS-472*1	GM	GSD	min	max	max/min
Na	3.0E-2	3.7E-3	2.8	8.4E-4	3.8E-2	45
Mg	-	1.8E-1	2.3	2.3E-2	2.2E+0	96
Al	-	8.5E-5	2.7	1.0E-5	8.4E-4	84
Si	-	4.0E-5	2.2	7.8E-6	3.2E-4	41
P	5.0E-1	1.1E+0	1.6	3.0E-1	3.8E+0	13
K	-	2.3E+0	1.7	9.1E-1	1.1E+1	12
Ca	-	2.2E-2	2.8	3.5E-3	5.2E-1	150
Ti	-	3.7E-4	1.7	9.7E-5	9.4E-4	10
V	-	2.8E-4	2.2	9.0E-5	1.5E-3	17
Cr	5.0E-4	9.3E-4	2.7	4.3E-5	7.8E-3	180
Mn	4.7E-2	8.7E-3	1.6	3.4E-3	5.3E-2	16
Fe	5.0E-4	4.2E-4	1.5	1.3E-4	8.4E-4	6
Co	5.4E-2	3.7E-3	2.0	6.3E-4	6.0E-2	96
Ni	-	7.0E-3	2.6	1.2E-3	4.5E-2	36
Cu	-	1.4E-1	1.7	3.2E-2	4.1E-1	13
Zn	1.8E+0	1.2E-1	1.4	3.4E-2	2.0E-1	6
As	-	7.2E-4	2.8	1.0E-4	1.1E-2	110
Se	-	1.2E-2	2.3	5.1E-4	5.4E-2	110
Rb	-	4.6E-1	3.8	2.3E-2	6.5E+0	290
Sr	1.6E-1	7.9E-3	3.7	7.0E-4	4.8E-1	690
Zr	2.0E-3	1.3E-4	2.3	1.8E-5	7.5E-4	42
Nb	4.0E-3	5.0E-4	3.3	8.6E-5	6.7E-3	78
Mo	-	2.8E-1	2.5	3.5E-2	2.3E+0	67
Cd	1.5E+0	2.9E-1	2.4	3.0E-2	1.5E+0	49
Sn	-	7.0E-3	3.9	3.9E-4	3.4E-2	85
Sb	2.0E-3	2.6E-3	3.0	5.4E-4	3.2E-2	58
Cs	5.6E-2	5.4E-3	3.8	7.8E-4	1.9E-1	240
Ba	5.0E-3	3.4E-3	2.5	6.5E-4	2.7E-2	41
La	3.9E-4	3.3E-4	3.2	6.9E-5	1.6E-2	230
Ce	4.0E-3	2.3E-4	2.8	5.0E-5	3.6E-3	73
Sm	-	4.9E-4	2.3	1.2E-4	6.7E-3	57
Eu	-	6.4E-4	3.5	3.8E-5	9.2E-3	240
Gd	-	3.9E-4	2.5	1.0E-4	8.8E-3	87
Pb	1.5E-3	6.4E-4	2.4	1.0E-4	2.3E-2	230
Th	2.0E-4	2.4E-4	3.0	2.9E-5	5.4E-3	180
U	5.0E-3	2.3E-4	2.5	2.5E-5	6.8E-3	270

*1: データなし(-)は同資料 TABLE 17 に記載なし

2.3.7. 葉菜類の移行係数

(1)式により TF を導出した結果から、20 試料の幾何平均値と範囲を表 2.3-6 に示す。個別データは別途報告している。本研究で得られた値は IAEA (2010) の TRS-472 の温帯の TF と比較すると、同程度か 1 桁程低い。作物の種類が多いが (表 2.3-1)、最大値と最小値の比は 3 桁以内であった。

表 2.3-6 葉菜類の移行係数 (20 試料)

Element	TRS-472*1	GM	GSD	min	max	max/min
Na	3.0E-2	3.3E-2	5.2	1.1E-3	7.1E-1	670
Mg	-	2.9E-1	2.5	5.1E-2	2.1E+0	41
Al	-	7.0E-4	4.2	8.1E-5	1.3E-2	160
Si	-	1.9E-4	7.4	1.3E-5	5.7E-3	430
P	1.0E+0	1.5E+0	2.2	4.6E-1	6.7E+0	14
K	1.3E+0	4.6E+0	1.9	2.0E+0	1.6E+1	8
Ca	-	5.0E-1	2.1	1.2E-1	2.3E+0	20
Ti	-	8.1E-4	2.4	2.3E-4	6.1E-3	26
V	-	7.6E-4	2.7	1.2E-4	6.1E-3	52
Cr	1.0E-3	1.0E-2	3.6	1.8E-3	4.6E-1	260
Mn	4.1E-1	2.2E-2	1.9	6.2E-3	7.8E-2	13
Fe	1.0E-3	1.3E-3	2.3	3.6E-4	8.1E-3	22
Co	1.7E-1	1.3E-2	3.9	1.7E-3	2.9E-1	170
Ni	-	1.7E-2	2.4	2.4E-3	6.8E-2	28
Cu	-	1.1E-1	2.1	2.8E-2	4.6E-1	17
Zn	2.4E+0	3.4E-1	1.6	1.4E-1	9.3E-1	6
As	-	1.6E-2	1.9	3.6E-3	4.6E-2	13
Se	-	7.6E-2	2.3	2.4E-2	5.2E-1	22
Rb	6.2E-1	9.7E-1	4.4	5.8E-2	1.1E+1	180
Sr	7.6E-1	1.9E-1	2.9	4.5E-2	3.0E+0	68
Zr	4.0E-3	1.1E-3	1.8	4.2E-4	5.4E-3	13
Nb	1.7E-2	3.3E-3	4.1	1.5E-4	1.5E-2	100
Mo	5.1E-1	4.5E-1	3.8	2.0E-2	4.7E+0	230
Cd	-	2.3E-1	3.8	3.4E-2	3.1E+0	91
Sn	-	3.5E-2	1.5	1.8E-2	6.5E-2	4
Sb	9.4E-5	5.9E-2	1.5	3.5E-2	1.4E-1	4
Cs	6.0E-2	1.9E-2	2.4	4.8E-3	1.5E-1	32
Ba	5.0E-3	2.6E-2	3.1	1.2E-3	1.3E-1	110
La	5.7E-3	4.5E-3	1.7	1.4E-3	1.6E-2	11
Ce	6.0E-3	1.6E-3	2.1	3.9E-4	7.5E-3	19
Sm	-	6.4E-3	2.2	1.5E-3	2.7E-2	18
Eu	-	3.6E-2	1.9	1.4E-2	1.8E-1	12
Gd	-	7.7E-3	1.9	2.9E-3	4.6E-2	16
Pb	8.0E-2	5.7E-3	2.4	5.4E-4	3.5E-2	64
Th	1.2E-3	4.4E-5	4.9	8.1E-7	4.1E-4	500
U	2.0E-2	4.8E-4	3.8	7.1E-5	8.2E-3	120

*1: データなし(-)は同資料 TABLE 17 に記載なし

2. 4. 土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査

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、ということである。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 and 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、固液比および供試土壌の採取と保存状況を指摘している。

一般に K_d は室温 20-25°C において RI トレーサー実験により得られているが、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。Yasuda (1996) は土壌 1 種類について 3-13-23°C において Sr と Cs の K_d を測定しており、低温において K_d が高いことを示しているが、土壌種による影響や、より高温として土壌微生物活性を高めた条件でのデータはない。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、温度の違いにより温度が高い場合には有機物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。

本実験では、過去に 23°C において K_d を求めた水田土壌 20 試料と畑土壌 20 試料について、23°C に比べて有機物含量に大きな変動を与えない低温条件 (10°C) と微生物活性を促すための高温条件 (30°C) において K_d を求め比較を行った。なお、23°C における結果は、平成 29 年度に再実験を行い、過去の値と多少の違いが見られたため、新しく採取しなおしたデータを使用して解析を行なった。

2.4.1. 試料および調査方法

2.4.1.1. 10°C における調査方法

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 (風乾, $\phi < 2$ mm)。これらの試料の物理化学的特性を表 2.4-1 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 μL) 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 $\phi = 0.45$ μm の PTFE フィルターに通し、得られた溶液を 3 mL 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：

$$K_d = \frac{(C_i - C_f)}{C_f} \cdot \frac{W_f}{W_s}$$

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。

表 2.4-1. K_d 実験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(H ₂ O)	Total C g/kg	Silt %	Clay %
EP-SD-35	高知	低地水田土	5.8	16.8	19	18
EP-SD-36	長崎	褐色低地土	5.3	23.2	35	44
EP-SD-37	宮崎	非アロフェン質黒ボク土	5.9	25.2	22	36
EP-SD-38	北海道	灰色低地土	5.5	18.9	14	14
EP-SD-39	宮城	灰色低地土	5.4	30.4	25	30
EP-SD-40	千葉	黒泥土	6.2	29.7	15	11
EP-SD-41	埼玉	グライ低地土	5.1	19.4	18	11
EP-SD-42	富山	グライ台地土	5.7	18.8	14	17
EP-SD-43	岐阜	黒ボク土	5.8	12.5	35	15
EP-SD-44	滋賀	灰色低地土	5.6	14.7	22	16
EP-SD-45	奈良	灰色低地土	6.2	18.9	14	14
EP-SD-46	岡山	グライ低地土	5.2	29.0	28	18
EP-SD-47	山口	グライ低地土	5.8	13.8	23	15
EP-SD-48	徳島	褐色低地土	5.9	19.0	17	14
EP-SD-49	大分	灰色低地土	5.2	22.6	18	14
EP-SD-50	鹿児島	低地水田土	6.1	28.4	25	14
EP-SD-51	北海道	灰色低地土	5.6	18.3	28	27
EP-SD-52	青森	グライ低地土	5.2	35.9	33	27
EP-SD-53	秋田	グライ低地土	4.8	34.2	26	28
EP-SD-54	福島	黄色土	5.6	24.2	20	30
EF-SD-44	長崎	黄色土	5.2	8.2	30	40
EF-SD-45	宮崎	非アロフェン質黒ボク土	5.7	75.5	17	18
EF-SD-46	岩手	非アロフェン質黒ボク土	6.0	28.1	7	10
EF-SD-47	岩手	褐色森林土	6.8	26.0	23	18
EF-SD-48	宮城	黒ボク土	7.4	31.1	7	9
EF-SD-49	埼玉	低地水田土	6.3	17.2	29	22
EF-SD-50	群馬	黒ボク土	6.4	12.8	19	15
EF-SD-51	富山	グライ台地土	6.1	26.7	19	20
EF-SD-52	山梨	黒ボク土	6.8	40.6	8	13
EF-SD-53	長野	黒ボク土	6.6	72.6	9	11
EF-SD-54	静岡	黒ボク土	6.2	25.1	8	12
EF-SD-55	滋賀	灰色低地土	6.7	14.8	14	12
EF-SD-56	奈良	褐色低地土	6.5	21.3	8	13
EF-SD-57	岡山	黄色土	6.2	31.4	13	12
EF-SD-58	山口	グライ低地土	6.5	22.6	13	13
EF-SD-59	徳島	褐色低地土	5.4	16.0	14	13
EF-SD-60	佐賀	グライ低地土	5.1	26.5	20	23
EF-SD-61	大分	黄色土	6.3	69.0	15	13
EF-SD-62	沖縄	灰色台地土	8.1	17.1	43	24
EF-SD-63	北海道	褐色森林土	4.6	31.3	26	22

2.4.1.2. 30°Cにおける調査方法

微生物活性の影響により、予備振とう期間や RI 添加後の期間の影響を受けて平衡に達するまでに 10°Cや 23°Cの場合と異なる可能性があるため、予備実験を行なったところ、他の温度での実験と同様の振とう条件で十分に平衡に達していることがわかった。この結果から、微生物による有機物分解の影響というよりも、土壌鉱物や有機物によるセシウムの吸着の温度依存性による影響が大きい可能性がある。

本研究調査では、30°Cにおける調査方法として、同じ土壌試料を用い、予備振とう開始時から 30°C に設定して実験を行ない、RI 添加においても保温をしながら作業を行った。

2.4.2. 10, 23, 30°Cにおける K_d -Cs の結果

全ての K_d データを表 2.4-2 に示す。データの分布は図 2.4-1 に示すように対数正規分布に近似できた。温度の異なる K_d 間の比較を行うために、土壌の利用区分毎に 23°C を X 軸に取り図 2.4-2 に示す。

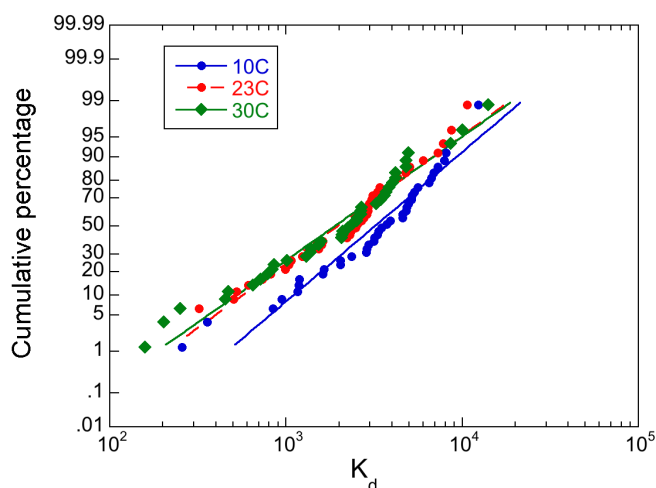


図 2.4-1. 10, 23, 30°Cにおける K_d -Cs の確率度数分布

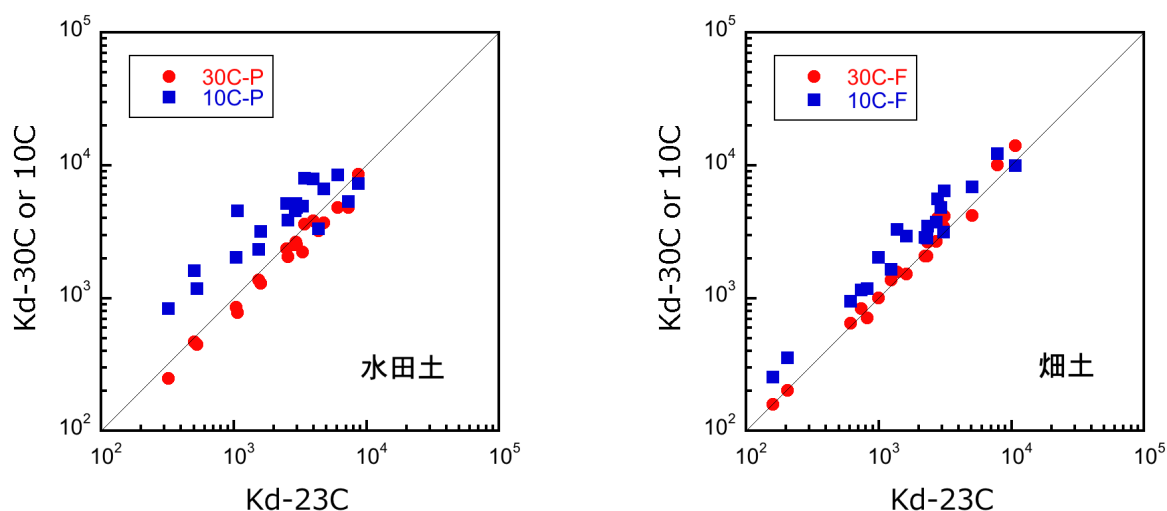


図 2.4-2. 23°Cで採取した K_d 値と 10°C, 30°Cにおける K_d 値の土地利用毎の比較
(左：水田土，右：畑土)

表 2.4-2 10, 23, 30℃における水田土及び畑土の K_d と土壤溶液の pH と EC

Sample code	10℃			23℃			30℃		
	K_d L/kg	pH	EC μ S/cm	K_d L/kg	pH	EC μ S/cm	K_d L/kg	pH	EC μ S/cm
EP-SD-35	4810	6.1	49	2960	6.3	57	2550	6.2	59
EP-SD-36	3180	5.8	60	1590	6.1	68	1310	6.0	63
EP-SD-37	1610	6.4	85	500	6.6	110	470	6.7	98
EP-SD-38	4580	5.9	53	2880	6.3	55	2530	5.9	50
EP-SD-39	7290	5.5	93	8700	6.2	75	8610	5.8	65
EP-SD-40	7920	6.6	61	3960	6.6	74	3850	6.6	74
EP-SD-41	8490	5.7	65	6030	6.0	68	4810	5.6	73
EP-SD-42	8090	6.2	47	3400	6.4	56	3610	6.2	52
EP-SD-43	840	6.1	130	320	6.2	170	250	6.5	200
EP-SD-44	5160	6.1	52	2930	6.3	53	2660	6.1	52
EP-SD-45	5200	6.7	81	2480	6.7	130	2370	6.9	130
EP-SD-46	4960	5.4	100	3290	6.0	100	2240	5.8	100
EP-SD-47	4580	6.4	67	1070	6.4	86	780	6.6	84
EP-SD-48	6690	6.3	47	4750	6.5	55	3710	6.3	55
EP-SD-49	2040	5.5	71	1030	6.1	75	850	6.0	70
EP-SD-50	1190	6.5	96	530	6.5	130	450	6.7	120
EP-SD-51	3900	6.0	74	2540	6.4	86	2070	6.3	86
EP-SD-52	3340	5.2	78	4340	5.8	76	3240	5.6	75
EP-SD-53	5370	5.1	77	7270	5.4	72	4810	5.0	76
EP-SD-54	2350	6.0	50	1530	6.2	57	1380	6.2	57
EF-SD-44	1180	5.9	180	820	6.1	210	720	5.6	180
EF-SD-45	260	6.2	640	160	6.2	670	160	6.1	610
EF-SD-46	2870	6.6	130	2210	6.5	140	2090	6.5	130
EF-SD-47	950	7.1	1600	610	6.7	1600	650	7.0	1500
EF-SD-48	360	7.5	150	200	7.3	200	200	7.5	170
EF-SD-49	6480	6.5	73	3100	7.0	130	4190	7.0	81
EF-SD-50	3150	7.0	170	3050	7.1	180	3470	7.1	160
EF-SD-51	12400	6.6	130	7780	6.6	150	10100	6.6	120
EF-SD-52	1160	7.0	110	730	6.9	140	840	7.2	120
EF-SD-53	1650	7.0	280	1240	6.9	330	1390	7.2	310
EF-SD-54	3490	6.7	140	2340	6.8	160	2670	6.4	160
EF-SD-55	3310	7.0	79	1370	6.9	110	1580	6.6	93
EF-SD-56	4820	7.1	170	2910	6.9	180	4940	6.5	180
EF-SD-57	2940	7.0	460	1610	6.8	490	1530	6.6	420
EF-SD-58	5620	6.8	80	2760	6.9	98	4040	6.4	87
EF-SD-59	3740	6.3	190	2690	6.5	190	2670	6.1	180
EF-SD-60	6920	5.7	74	5030	6.1	81	4200	5.4	77
EF-SD-61	2040	6.7	170	990	6.5	220	1010	6.4	210
EF-SD-62	10000	8.0	340	10700	7.6	410	14100	7.5	370
EF-SD-63	2850	4.9	130	2300	5.7	140	2090	6.2	130

2.4.3. 10, 23, 30°Cにおける K_d -Cs の考察

図 2.4-2 に示したように、水田土壌の K_d 値は、23°Cの結果と 30°Cの結果がほぼ一致したが、10°Cでは有意に K_d が高くなる結果が得られた（対数変換後の K_d 値について、異なった分散をもつ独立 2 群データとして解析した。t-検定：対 30°Cで $p=0.0075$ ，対 23°Cで $p=0.037$ ）。一方、畑土でも 23°Cにおける K_d 値は 30°Cの場合との相関が高く結果がほぼ一致した。10°Cと 23°Cではやや違いが見られたものの有意差はなかった（対数変換後の K_d 値について、異なった分散をもつ独立 2 群データとして解析）。水田土壌および畑土壌のそれぞれの温度における K_d 値の幾何平均値を以下に記す。

<水田土壌 K_d , L/kg> 10°C : 3890, 23°C : 2260, 30°C : 1910

<畑土壌 K_d , L/kg> 10°C : 2600, 23°C : 1680, 30°C : 1850

本調査により、土壌利用によって K_d - ^{137}Cs に異なる温度の影響があることが示されたが、全体としては気温が低い条件で K_d が高くなる傾向があることがわかった。10°C- K_d /23°C- K_d 比の幾何平均値は 1.6（範囲：0.7-4.3）また、10°C- K_d /30°C- K_d 比の幾何平均値は 1.7（範囲：0.7-5.9）であり、したがって、温度によって K_d - ^{137}Cs 値に 2 倍程度の変動があることがわかった。なお、土壌溶液の pH と EC はそれぞれの温度で有意差は見られず、pH や共存イオンの増減によって K_d が影響を受けた訳ではないことがわかった。

さらに土壌群毎の違いについても検討を試みた。FAO/UNESCO の区分により、Andosol (n=9) , Cambisol (n=10) , Fluvisol (n=18) に分類し、図 2.4-2 と同様に 23°Cの結果と比較した（図 2.4-3）。3 群の土壌とも K_d を対数変換した値は、23°Cと 30°Cの相関が高く（ $R>0.95$ ），かつ切片がゼロに近い傾き 1 の直線で近似できた。23°Cと 10°Cでは Andosol と Cambisol では相関が高いものの（ $R>0.95$ ），3 群の土壌とも傾き <1 となり、特に Fluvisol でその傾向が顕著であった。3 群の幾何平均値を下記に示す。10°Cと 23°Cでは Fluvisol は Andosol および Cambisol 対して有意に高く（ $p<0.05$ ），30°Cでは Fluvisol は Andosol に対し有意に高かった（ $p<0.05$ ）。

<Andosol K_d , L/kg> 10°C : 1250, 23°C : 750, 30°C : 760

<Cambisol K_d , L/kg> 10°C : 2630, 23°C : 1610, 30°C : 1590

<Fluvisol K_d , L/kg> 10°C : 4920, 23°C : 2830, 30°C : 2390

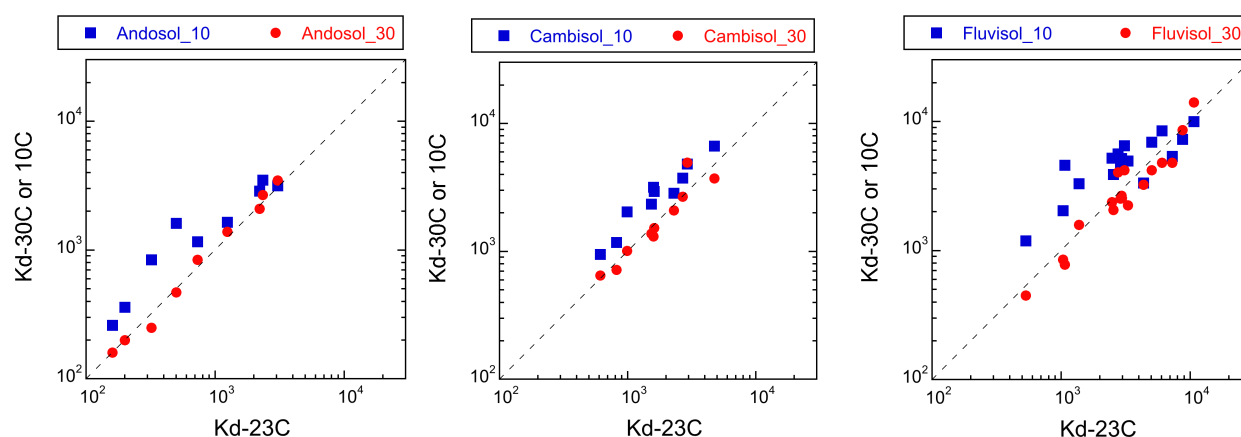


図 2.4-3. 23°Cで採取した K_d 値と 10°C, 30°Cにおける K_d 値の土壌群毎の比較

(左：Andosol, 中央：Cambisol, , 左：畑土)

2. 5. 変動要因の解析

安全評価モデルに用いられる環境移行パラメータには、長期的な気候変動において、地下水位や河川流量など、放射性核種が処分施設から地表に到達した後に物理的に影響を与えるパラメータと、土壌の反応性（例えば土壌—土壌溶液間分配係数、 K_d ）や農作物への移行係数（TF）等、生物学的・化学的な要素を含むパラメータが含まれている。ここでは、生物学的・化学的な環境移行パラメータの中で、温度変動により影響が報告されているものについて解析を行った。

2.5.1. ヨウ素の K_d

長半減期核種である放射性ヨウ素-129 (^{129}I , $T_{1/2}=1.57 \times 10^7$ y) は、熱中性子による ^{235}U や ^{239}Pu の核分裂収率がそれぞれ 0.543% および 1.37% であり、 ^{135}Cs (2.3×10^6 y) の 5.5-7% に比べて低いが、処分場を構成する人工バリア材や母岩への収着率が低いことから、放射性廃棄物の被ばく線量評価において線量支配核種とされている。放射性核種生物圏移行評価高度化調査（平成 19 年度から 24 年度）において、 ^{129}I の土壌収着能を測定するために、 ^{125}I ($T_{1/2}=59.4$ d) を用いて、農耕地土壌（水田土壌 63 試料、畑土壌 79 試料）に対し、固液比 1:10 で I^- または IO_3^- で添加して K_d を求めている。どちらの化学形でも、土壌溶液に添加し、 23°C において 7 日間培養する間に、添加したヨウ素の一部がガス化し、また、7 日間の培養では平衡に達しないという結果を得た。一方、温度のみを低くして (4°C) 同様の手法で K_d 値を求めた場合、7 日後で十分に平衡に達し、また、 K_d 値は 23°C に比べて低い結果が得られた。すなわち、温度により影響が出たことを示している（放射線医学総合研究所, 2013）。

ヨウ素の K_d 値について、用いた土壌を対象に測定した 77 項目、すなわち、Sand%, Silt%, Clay%, 含水率, 土壌溶液の電気伝導度 (EC), pH, 陽イオン交換容量 (CEC), 交換性 Ca (ex. Ca), 交換性 K (ex. K), 活性 Al (act. Al), 活性 Fe (act. Fe), 元素濃度 (C, N, Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, As, Se, Br, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Cd, Sn, Sb, I, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, W, Hg, Tl, Pb, Th, U) および土壌溶液中イオン濃度 (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{++} , Ca^{++} , F^- , Cl^- , NO_3^- , PO_4^- , SO_4^{--}) との相関係数を求めた。

解析にあたりヨウ素 K_d の正規性を確認したところ、全て対数正規分布で適合した (Shapiro-Wilk の W 検定)。また、上述した 77 項目については、平成 19 年度から平成 24 年度に行った環境移行パラメータ推定法の検討において、ほとんどは対数正規分布が適合する結果を得たことから、すでに対数表記になっている pH を除き、対数変換値を用いることとした。4 種類のヨウ素 K_d について、全土壌と各独立変数項目の単相関係数 (順位相関) と p 値を算出した結果、どの K_d 値とも相関が得られなかった項目を除き、相関が得られた項目については相関係数と p 値を表 2.5-1 に示す。 $K_d_{\text{IO}_3^-}$ 4°C と F^- ($R=0.635$) が最も高い値であり、化学形別では、 I^- よりも IO_3^- の方が独立変数の項目との相関が多く得られた。EC, ex. Ca, ex. K, Mn, I, W, K^+ , Mg^{++} で I^- の方が IO_3^- よりも高い傾向があったが、相関係数は高くはなかった。

K_d 値への温度の影響の有無については、明確な基準が示されているわけではないが、ここでは 4°C または 23°C が $p < 0.01$ かつ $R > 0.5$ であるが一方は有意差がない ($p > 0.01$) 項目、もしくは、 4°C および 23°C とも有意差がある ($p < 0.01$) 項目において相関係数に 0.2 以上の開きがある時に温度による影響があると判定することとした。その結果、Mo (IO_3^- に対して) では温度により違う相関が得られた。 $K_d_{\text{IO}_3^-}$ 4°C との相関が $K_d_{\text{IO}_3^-}$ 23°C よりも高かったことから、単に酸化還元のような化学反応が影響している可能性がある。

表 2.5-1. 全試料のヨウ素 K_d 値と項目との単相関 (pH 以外は対数変換, 順位相関)

全試料		I- 4C		I- 23C		IO ₃ - 4C		IO ₃ - 23C		各項目との相関,		
項目	数	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	相関係数	p 値	I-*	IO ₃ -*	温度差 [#]
含水率	142	-0.067	0.4280	-0.009	0.9111	0.519	0.0000	0.327	0.0001		○	
EC	142	-0.279	0.0008	-0.202	0.0159	-0.040	0.6403	-0.066	0.4387	○		
pH	142	-0.342	0.0000	-0.383	0.0000	-0.476	0.0000	-0.512	0.0000	○	○	
ex. Ca	142	-0.255	0.0022	-0.135	0.1099	-0.117	0.1653	-0.112	0.1846	○		
ex. K	142	-0.444	0.0000	-0.376	0.0000	0.072	0.3923	-0.129	0.1264	○		
act. Al	142	0.016	0.8520	-0.017	0.8370	0.532	0.0000	0.400	0.0000		○	
act. Fe	142	-0.089	0.2943	0.083	0.3283	0.492	0.0000	0.360	0.0000		○	
C	142	0.062	0.4609	0.087	0.3045	0.381	0.0000	0.335	0.0000		○	
N	142	0.085	0.3127	0.111	0.1893	0.349	0.0000	0.333	0.0001		○	
Na	142	0.099	0.2430	0.037	0.6630	-0.385	0.0000	-0.278	0.0008		○	
Al	142	0.115	0.1713	0.167	0.0471	0.255	0.0022	0.246	0.0031		○	
Si	142	0.040	0.6384	-0.020	0.8127	-0.502	0.0000	-0.392	0.0000		○	
K	142	0.039	0.6434	-0.085	0.3156	-0.424	0.0000	-0.381	0.0000		○	
Ti	142	-0.011	0.8926	0.081	0.3357	0.387	0.0000	0.275	0.0009		○	
V	142	-0.037	0.6635	0.045	0.5914	0.377	0.0000	0.304	0.0002		○	
Mn	142	-0.343	0.0000	-0.350	0.0000	0.025	0.7671	-0.132	0.1168	○		
Fe	142	-0.093	0.2691	-0.013	0.8766	0.363	0.0000	0.270	0.0012		○	
Co	142	-0.086	0.3065	-0.032	0.7053	0.250	0.0027	0.167	0.0468		○	
Ga	142	-0.021	0.8023	0.005	0.9496	0.271	0.0011	0.136	0.1071		○	
As	142	-0.180	0.0322	-0.087	0.3060	0.270	0.0012	0.124	0.1403		○	
Se	141	-0.051	0.5495	-0.015	0.8625	0.414	0.0000	0.266	0.0014		○	
Br	142	-0.249	0.0028	-0.250	0.0027	0.392	0.0000	0.147	0.0817	○	○	
Rb	142	-0.079	0.3516	-0.219	0.0089	-0.340	0.0000	-0.413	0.0000	○	○	
Sr	142	-0.082	0.3343	-0.132	0.1171	-0.361	0.0000	-0.352	0.0000		○	
Mo	142	-0.163	0.0522	-0.080	0.3413	0.512	0.0000	0.316	0.0001		○	○
I	142	-0.471	0.0000	-0.453	0.0000	0.413	0.0000	0.069	0.4154	○	○	
Ba	142	-0.171	0.0419	-0.261	0.0017	-0.363	0.0000	-0.440	0.0000	○	○	
La	142	-0.070	0.4082	-0.174	0.0382	-0.326	0.0001	-0.386	0.0000		○	
Ce	142	-0.064	0.4458	-0.167	0.0465	-0.371	0.0000	-0.409	0.0000		○	
Pr	142	-0.076	0.3714	-0.159	0.0589	-0.264	0.0015	-0.350	0.0000		○	
Nd	142	-0.086	0.3097	-0.158	0.0605	-0.223	0.0077	-0.331	0.0001		○	
Sm	142	-0.077	0.3641	-0.137	0.1037	-0.125	0.1391	-0.254	0.0023		○	
Hf	142	0.109	0.1967	0.196	0.0194	0.267	0.0013	0.259	0.0019		○	
W	142	0.363	0.0000	0.326	0.0001	0.011	0.9003	0.160	0.0567	○		
Hg	142	0.201	0.0163	0.221	0.0081	-0.159	0.0584	-0.044	0.6035	○		
Th	142	-0.122	0.1482	-0.235	0.0048	-0.236	0.0046	-0.373	0.0000	○	○	
Na+	142	0.123	0.1438	0.247	0.0030	-0.021	0.8073	0.053	0.5288	○		
K+	141	-0.405	0.0000	-0.406	0.0000	-0.040	0.6370	-0.211	0.0119	○		
Mg++	142	-0.270	0.0012	-0.215	0.0102	-0.120	0.1551	-0.136	0.1068	○		
F-	128	-0.095	0.2882	-0.121	0.1754	-0.635	0.0000	-0.461	0.0000		○	

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

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

次に温度毎にIとIO₃の K_d 値を比較したところ, 23°CではIとIO₃で良い相関が得られるが(R=0.649, p<0.001), 4°Cでは相関が低かった(R=0.169, p=0.045)。温度が高い実験条件下では, 時間とともにヨウ素の化学種の割合が似てくることが要因となっている可能性がある。Yuita (1992)は2種類の土壌について土壌溶液中のヨウ素の化学形分析を行い, 畑水分条件下においてIO₃が最も多く(83%と88%,

平均 86%)，一方，湛水条件下においては I が平均 87% (84%と 90%) を占めていることを示した。すなわち，I や IO₃ で添加されても，同じ土壌を同じ条件下に置くことで，最終的には同じような化学形の割合になることが示唆され，そうであれば，本研究の結果は説明できる。おそらくは生物学的な反応が加わることで，土壌溶液中の濃度や化学形に影響を与えているのであろう。温度 4°C では微生物活性が低く，ヨウ素の化学形が変化しにくいことが考えられ，その結果土壌に供給されたときの化学形を長く保ち続ける可能性がある。

土壌に添加された化学形の内，I が植物に吸収され易いことが知られており (内田，1989)，低温状態において I として土壌に添加された場合には，K_d が低く，可給態として長く存在することが影響して，移行係数も高くなると考えられる。

2.5.2. 炭素の K_d

土壌中での炭素-14 (¹⁴C) の K_d 値が土壌微生物活性の影響を受けやすいと考えられることから (例えば Hanson et al., 2000; Ishii et al., 2010)，統計的手法を用いて相関の高い物理化学項目を抽出し，項目毎に炭素との関係性について検討を行った。土壌微生物活性は温度，水分含量および活性維持に必要な栄養成分の量に影響を受けやすいことから，気候変動によって活性が変化すると考えられる。そこで本解析で抽出される項目が微生物活性に関連するものかどうか特に着目して解析を行った。炭素 K_d は Ishii ら (2014) の報告データから導出した。添加化学形は酢酸態である。

結果を表 2.5-2 に示す。全土壌試料を用いた場合，炭素 K_d との相関係数が 0.5 を超える独立変数は K_d_Ni, K_d_Sb, K_d_IO₃ (4°C, 23°C)，pH および水抽出された F と P の 7 項目であり，最も高い相関係数は 0.73 であった。水溶性 P は微生物活性に影響を及ぼす項目であるが，他の項目については微生物活性と直接的な関連が明確ではない。炭素 K_d と pH の相関が高いのは，土壌 pH によって ¹⁴C が炭酸としての溶解度が異なるためと考えられる。また，水田土と畑土に分けた解析も試みたところ，各利用条件の炭素 K_d との相関係数が異なる項目があり，土地利用が ¹⁴C の土壌中挙動に影響していると考えられる。

表 2.5-2. 全試料の炭素 K_d 値と項目との単相関 (pH 以外は対数変換)

独立変数	単位	p値	相関係数(R)	独立変数	単位	p値	相関係数(R)	独立変数	単位	p値	相関係数(R)
Mn-54	Kd (L/kg)	0.0001	-0.39	Li	mg/kg	0.0750	0.15	Cd	mg/kg	0.7198	0.03
Ni-63	Kd (L/kg)	0.0001	0.52	C	mg/kg	0.0014	0.27	Sn	mg/kg	0.0783	-0.15
Se-75	Kd (L/kg)	0.0001	0.47	N	mg/kg	0.0036	0.24	Sb	mg/kg	0.0365	0.18
Sr-85	Kd (L/kg)	0.0001	0.35	Na	mg/kg	0.0160	-0.20	Cs	mg/kg	0.4631	0.06
Sn-113	Kd (L/kg)	0.0079	0.30	Mg	mg/kg	0.6239	0.04	Ba	mg/kg	0.0001	-0.32
Sb-124	Kd (L/kg)	0.0001	0.73	Al	mg/kg	0.0021	0.26	La	mg/kg	0.0080	-0.22
I-125 (I-) 4°C	Kd (L/kg)	0.0002	0.31	Si	mg/kg	0.0002	-0.31	Ce	mg/kg	0.0308	-0.18
I-125 (I-) 23°C	Kd (L/kg)	0.0001	0.44	P	mg/kg	0.6604	-0.04	Sm	mg/kg	0.1109	-0.13
I-125 (IO3-) 4°C	Kd (L/kg)	0.0001	0.65	K	mg/kg	0.0004	-0.29	Eu	mg/kg	0.3332	-0.08
I-125 (IO3-) 23°C	Kd (L/kg)	0.0001	0.64	Ca	mg/kg	0.0029	-0.25	Gd	mg/kg	0.2289	-0.10
Cs-137	Kd (L/kg)	0.2163	-0.10	Ti	mg/kg	0.0001	0.40	Pb	mg/kg	0.9776	0.00
coarse sand	(%)	0.0250	-0.19	V	mg/kg	0.0001	0.32	Th	mg/kg	0.0194	-0.20
fine sand	(%)	0.2431	-0.10	Cr	mg/kg	0.7781	-0.02	U	mg/kg	0.0803	0.15
sand	(%)	0.0034	-0.24	Mn	mg/kg	0.7085	-0.03	Na	水抽出ug/g-soil	0.5836	0.05
silt	(%)	0.0002	0.31	Fe	mg/kg	0.0002	0.31	NH4	水抽出ug/g-soil	0.5479	0.05
clay	(%)	0.0032	0.25	Co	mg/kg	0.0118	0.21	K	水抽出ug/g-soil	0.0049	-0.24
仮比重		0.0003	-0.30	Ni	mg/kg	0.2415	0.10	Mg	水抽出ug/g-soil	0.0061	-0.23
土粒子密度		0.0071	-0.23	Cu	mg/kg	0.1656	0.12	Ca	水抽出ug/g-soil	0.0023	-0.26
含水率	(%)	0.0001	0.41	Zn	mg/kg	0.7869	-0.02	F	水抽出ug/g-soil	0.0001	-0.53
EC (1:5)	(μ S/cm)	0.0501	-0.16	As	mg/kg	0.0167	0.20	Cl	水抽出ug/g-soil	0.7643	0.03
pH	(H2O)	0.0001	-0.70	Se	mg/kg	0.0002	0.31	SO4	水抽出ug/g-soil	0.0133	0.21
CEC	(meq/100g)	0.4142	0.07	Rb	mg/kg	0.0216	-0.19	Ca	水抽出ug/g-soil	0.0013	-0.27
Exchangeable Ca	(mg/100g)	0.0166	-0.20	Sr	mg/kg	0.0005	-0.29	Na	水抽出ug/g-soil	0.5582	0.00
Exchangeable K	(mg/100g)	0.2106	-0.11	Zr	mg/kg	0.2557	0.10	K	水抽出ug/g-soil	0.0014	-0.27
Active Al	(g/kg)	0.0001	0.36	Nb	mg/kg	0.0272	0.19	Mg	水抽出ug/g-soil	0.0040	-0.24
Active Fe	(g/kg)	0.0001	0.43	Mo	mg/kg	0.0001	0.31	P	水抽出ug/g-soil	0.0001	-0.62

2.5.3. 炭素の TF

炭素の安定同位体は ^{14}C のアナログとして重要であるが、TF を求める際には、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 CO_2 であることから不適切である。そこで、炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$, ‰) に着目して TF を導出する方法を開発し報告した (田上ら, 2009)。土壌と白米, また葉菜類の $\delta^{13}\text{C}$ 間にはわずかに相関が見られたことから、土壌から大気に放出された CO_2 ガスが利用された可能性が示唆された。土壌と葉菜類の $\delta^{13}\text{C}$ 値の関係を図 2.5-1 に示す。一方、ジャガイモでは土壌の $\delta^{13}\text{C}$ 値と相関がみられず、したがって、土壌からの植物体への炭素の移行は限定的であると判定された。作物と土壌の炭素の安定同位体比 $\delta^{13}\text{C}$ 値に明確な相関がないということは、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。

葉菜類については低いながらも相関が見られたことから、米と同様の手法で TF を導出した。方法の詳細は田上らの論文 (2009) を参照されたい。

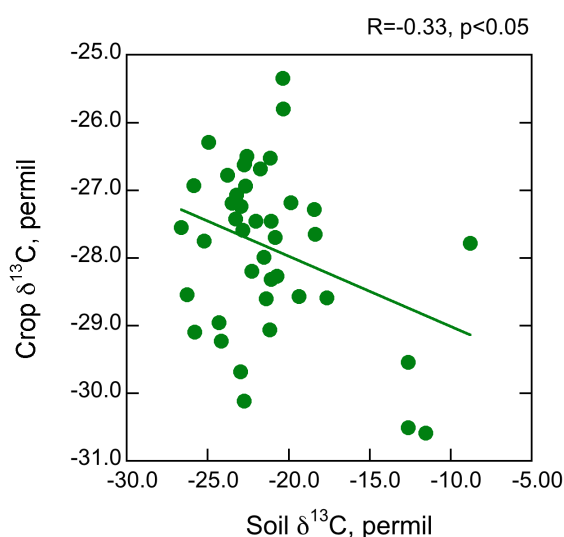


図 2.5-1 葉菜類と栽培土壌中の $\delta^{13}\text{C}$ 値の関係

TF を導出するための前提として、同位体分別の値を決める必要がある。一般に同位体分別は-20~-18‰であるので中央値の-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%) がもっともあてはまりが良い結果が得られた。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、TF を求めた、その結果、TF (幾何平均値) として 0.8 が得られた。この TF は、Sheppard ら (1991) がトレーサー実験により求めたダイコンへの TF (0.16-1.5) の範囲であった。放射線医学総合研究所 (2011) では室内トレーサー実験によりコマツナへの TF 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 TF 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 も同位体分別を起こすが、 ^{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 TF 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。なお、白米中の炭素濃度および $\delta^{13}\text{C}$ とともに比較的寒冷地と温暖地の間で有意差は無かったことから、土壌に依存せず、ほとんどが大気由来の炭素を利用していることが示唆された。

2.5.4. 玄米のTF

これまで収集したデータから、温暖地（沖縄、鹿児島、宮崎、熊本、高知、長崎と福岡）と寒冷地（北海道、青森、秋田、岩手）の分を抽出した。寒冷地および温暖地の条件はそれぞれの都道府県庁所在地において過去10年間の年間平均気温12℃以下または17℃以上である。比較するTFは寒冷地26試料、温暖地24試料となった。TFをとりまとめて表2.5-3に示す。

TF結果の箱ひげ図を図2.5-2の左側に示した。計36元素について比較的寒冷地と温暖地のTFがほぼ対数正規分布していることからTFの対数値に変換してt検定を行った。その結果、有意差が認められたのは、 $0.01 < p < 0.05$ はNa, Si, Co, As, Ba, $p < 0.01$ の項目はFe, Zn, Se, Moであった。P<0.01の項目は全て温暖地においてTFが高くなることを示し、Fe, Zn, Seで温暖地は寒冷地のTFの幾何平均値の1.5倍、Moでは2.3倍であった。

表 2.5-3. 比較的寒冷地と温暖地で採取した玄米のTF値の比較

	Cooler area					Warmer area				
	N	GM	GSD	min	max	N	GM	GSD	min	max
Na	26	1.3E-3	2.7	3.2E-4	9.4E-3	24	2.7E-3	2.5	7.4E-4	4.6E-2
Mg	26	2.0E-1	1.6	1.0E-1	6.0E-1	24	2.4E-1	2.1	5.0E-2	7.4E-1
Al	25	2.1E-5	2.5	4.8E-6	1.2E-4	23	3.0E-5	3.3	4.2E-6	1.9E-4
Si	25	4.7E-4	2.0	9.3E-5	1.3E-3	23	7.7E-4	2.1	2.1E-4	3.5E-3
P	25	2.0E+0	1.7	3.7E-1	3.4E+0	23	2.0E+0	2.1	1.7E-1	5.1E+0
K	26	2.9E-1	1.6	1.5E-1	9.4E-1	24	2.3E-1	1.4	1.4E-1	6.6E-1
Ca	26	7.0E-3	1.6	2.9E-3	1.9E-2	24	9.9E-3	2.9	1.4E-3	8.6E-2
Ti	26	3.7E-4	1.6	1.2E-4	9.3E-4	24	4.2E-4	1.9	9.2E-5	1.1E-3
V	24	4.4E-5	2.1	1.7E-5	4.7E-4	23	5.8E-5	2.3	1.3E-5	2.0E-4
Cr	26	1.7E-3	2.7	2.3E-4	1.4E-2	24	1.8E-3	3.0	1.9E-4	1.3E-2
Mn	26	5.0E-2	1.9	1.6E-2	3.6E-1	24	5.4E-2	1.9	1.9E-2	2.9E-1
Fe	26	2.4E-4	1.5	1.2E-4	6.8E-4	24	3.7E-4	1.7	1.4E-4	1.3E-3
Co	26	8.1E-4	1.7	3.3E-4	2.2E-3	24	1.2E-3	1.9	3.6E-4	3.7E-3
Ni	26	1.1E-2	2.7	7.9E-4	9.1E-2	24	9.3E-3	2.4	1.6E-3	5.3E-2
Cu	26	8.9E-2	1.6	3.9E-2	1.9E-1	24	1.1E-1	1.9	2.7E-2	2.7E-1
Zn	26	2.0E-1	1.2	1.3E-1	2.9E-1	24	3.0E-1	1.4	1.7E-1	5.6E-1
As	26	8.0E-3	1.6	3.2E-3	1.8E-2	24	1.2E-2	2.2	9.0E-4	4.0E-2
Se	26	4.8E-2	1.7	1.5E-2	1.5E-1	24	7.5E-2	1.6	2.5E-2	2.1E-1
Rb	26	1.7E-1	2.9	1.7E-2	1.2E+0	24	1.1E-1	2.2	3.4E-2	6.6E-1
Sr	26	1.8E-3	1.9	6.0E-4	8.7E-3	23	2.2E-3	2.2	3.4E-4	1.0E-2
Zr	26	4.3E-5	3.1	5.6E-7	2.2E-4	24	4.7E-5	2.5	6.9E-6	2.8E-4
Nb	26	3.0E-4	2.6	7.9E-5	2.6E-3	23	3.4E-4	3.0	5.1E-5	4.5E-3
Mo	26	6.5E-1	2.0	2.2E-1	4.3E+0	24	1.5E+0	2.2	4.1E-1	1.1E+1
Cd	26	8.3E-2	3.0	1.1E-2	7.6E-1	24	7.0E-2	2.8	1.3E-2	7.9E-1
Sn	24	7.2E-3	2.4	1.8E-3	2.9E-2	21	6.4E-3	2.9	5.5E-4	3.0E-2
Sb	25	1.8E-3	3.1	4.2E-5	1.9E-2	20	2.7E-3	3.0	6.3E-4	6.7E-2
Cs	26	1.6E-3	2.4	2.7E-4	1.3E-2	24	1.4E-3	2.9	3.5E-4	2.1E-2
Ba	26	1.1E-3	2.6	1.8E-4	6.8E-3	24	1.9E-3	1.9	2.5E-4	4.6E-3
La	26	5.5E-5	1.8	2.2E-5	2.1E-4	19	5.7E-5	2.9	7.4E-6	4.2E-4
Ce	24	3.9E-5	2.5	4.2E-6	2.3E-4	20	4.9E-5	2.9	8.4E-6	3.6E-4
Sm	23	1.4E-4	2.0	4.1E-5	5.1E-4	15	2.2E-4	2.3	5.1E-5	9.2E-4
Eu	21	3.3E-4	2.7	4.1E-5	1.5E-3	16	5.9E-4	2.5	1.2E-4	3.0E-3
Gd	24	1.0E-4	2.4	1.0E-5	4.7E-4	15	1.4E-4	3.8	4.4E-6	6.8E-4
Pb	26	3.0E-4	3.1	1.6E-5	1.8E-3	24	4.3E-4	2.5	1.1E-4	5.4E-3
Th	25	1.2E-4	2.3	2.1E-5	5.3E-4	20	1.2E-4	4.7	5.1E-6	2.1E-3
U	26	5.2E-5	2.3	1.3E-5	2.2E-4	24	5.9E-5	3.2	6.2E-6	4.4E-4

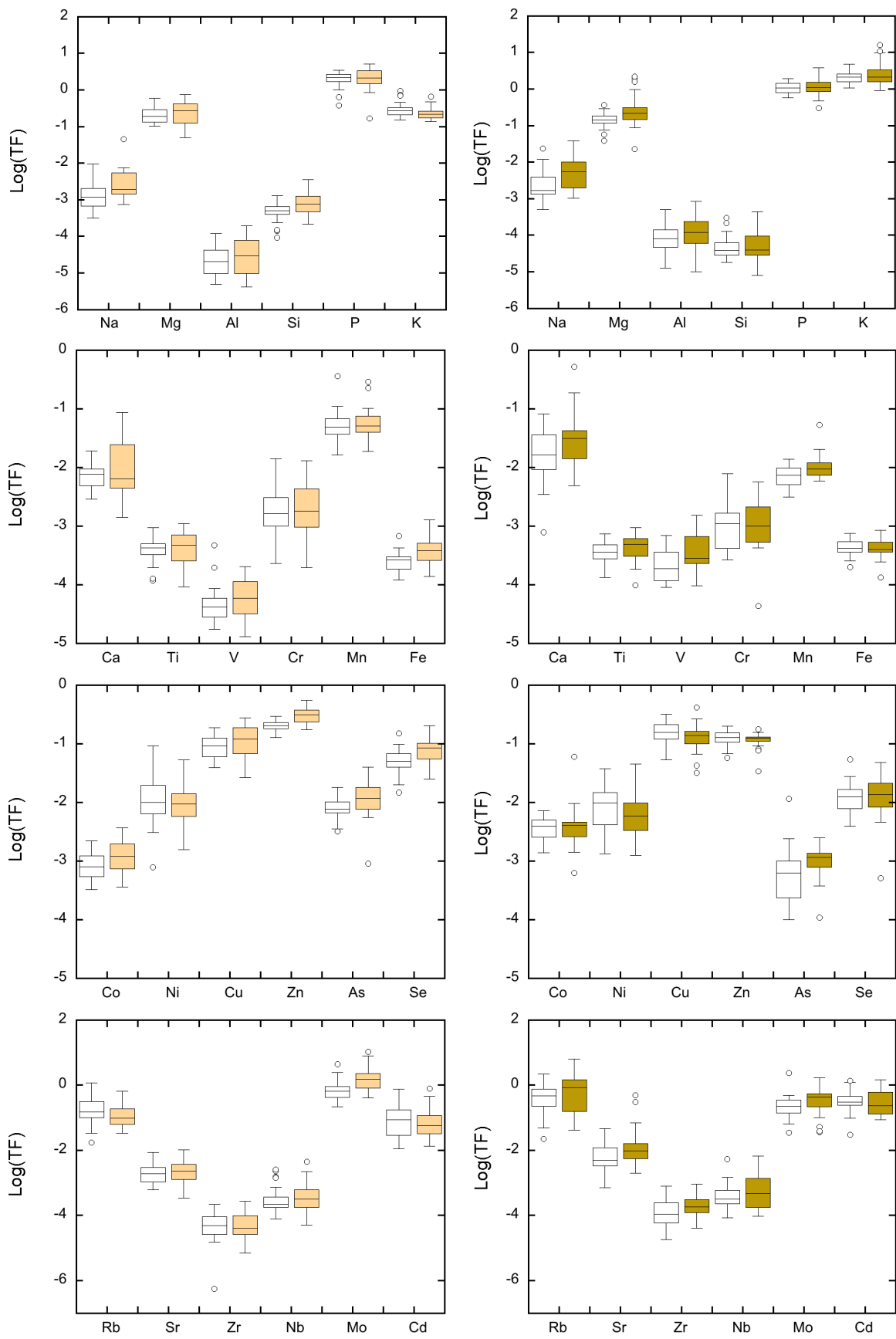


図 2.5-2 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の Log(TF)の比較。
 (左：玄米，右：ジャガイモ)

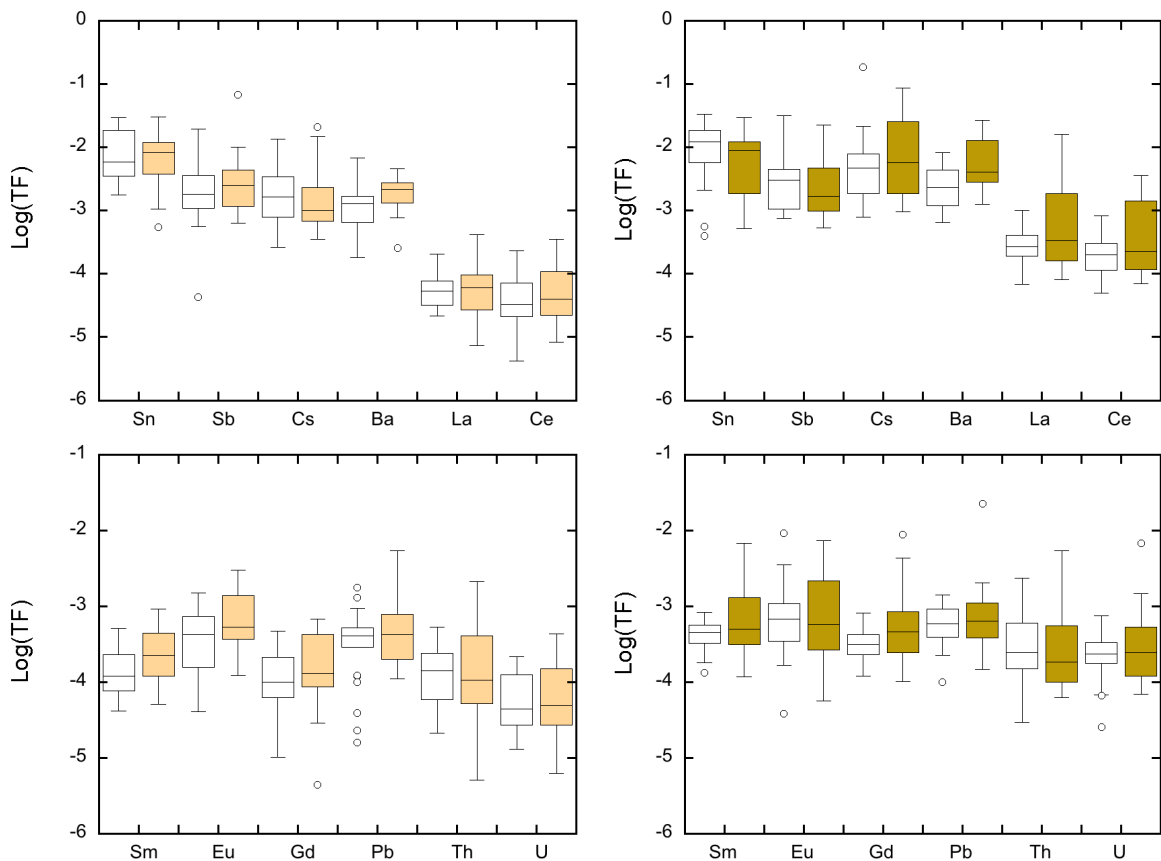


図 2.5-2 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の Log(TF)の比較（続き）。
（左：玄米，右：ジャガイモ）

2.5.5. ジャガイモの TF

分類の方法は玄米と同じである。得られた TF を玄米と比較するために、箱ひげ図を玄米と並べて図 2.5-2 の右側に示す。これにより、例えば最も上の図（Na, Mg, Al, Si, P, K の TF が記載されている）を比較すると、玄米では Si が高い一方で、ジャガイモでは K が高い等、作物種による違いが比較できるが、作物種間の違いについては検討課題ではないので解析対象外としている。なお、t-検定により解析する対数変換した TF は寒冷地 23 試料、温暖地 21 試料である。得られたデータを取りまとめたものは表 2.5-4 に示した。

解析の結果、ジャガイモでは $0.01 < p < 0.05$ は Na, Mg, Ca, V, Gd であり、Mn と Ba で $p < 0.01$ となった。Mn と Ba の幾何平均値を比較すると、どちらの元素も温暖地で TF が高く、それぞれ 1.5 倍、2.3 倍であった。Ba については玄米でも同様に温暖地で高くなる傾向が示されている ($p < 0.05$)。本調査で特に Ba に着目しているのは、安全評価上重要核種とされる Ra と挙動が類似しているためであり、以前の我々の研究結果からも、TF-Ra と TF-Ba の相関性が高いことが示されている (Uchida and Tagami, 2007)。すなわち、本研究の結果から、ジャガイモだけではなく玄米についても温暖地における TF-Ra が高くなることが推測された。しかし、その差は TF-Ba の結果から、2-3 倍程度と考えられる。

表 2.5-4. 比較的寒冷地と温暖地で採取したジャガイモの TF 値の比較

	Cooler area					Warmer area				
	N	GM	GSD	min	max	N	GM	GSD	min	max
Na	23	2.5E-3	2.6	5.0E-4	2.3E-2	21	5.1E-3	3.0	1.0E-3	3.8E-2
Mg	23	1.4E-1	1.7	3.8E-2	3.6E-1	21	2.5E-1	3.0	2.3E-2	2.2E+0
Al	23	8.3E-5	2.7	1.2E-5	5.0E-4	21	1.1E-4	3.2	1.0E-5	8.4E-4
Si	23	4.5E-5	2.2	1.8E-5	3.0E-4	21	4.9E-5	2.9	7.8E-6	4.4E-4
P	23	1.1E+0	1.4	5.7E-1	1.9E+0	21	1.1E+0	1.8	3.0E-1	3.8E+0
K	23	2.1E+0	1.5	1.1E+0	4.8E+0	21	2.6E+0	2.1	9.1E-1	1.6E+1
Ca	23	1.5E-2	2.9	7.8E-4	8.2E-2	21	3.1E-2	3.3	4.9E-3	5.2E-1
Ti	23	3.5E-4	1.6	1.3E-4	7.3E-4	21	4.1E-4	1.7	9.7E-5	9.4E-4
V	20	2.2E-4	1.9	9.0E-5	6.8E-4	19	3.6E-4	2.3	9.6E-5	1.5E-3
Cr	20	9.5E-4	2.4	2.7E-4	7.8E-3	20	9.8E-4	2.9	4.3E-5	5.6E-3
Mn	23	6.8E-3	1.6	3.1E-3	1.4E-2	21	1.0E-2	1.7	5.8E-3	5.3E-2
Fe	23	4.2E-4	1.4	2.0E-4	7.4E-4	21	4.3E-4	1.5	1.3E-4	8.4E-4
Co	23	3.6E-3	1.6	1.4E-3	7.2E-3	21	3.8E-3	2.4	6.3E-4	6.0E-2
Ni	23	7.8E-3	2.6	1.3E-3	3.7E-2	21	6.6E-3	2.7	1.2E-3	4.5E-2
Cu	23	1.5E-1	1.5	5.3E-2	3.2E-1	21	1.2E-1	1.8	3.2E-2	4.1E-1
Zn	23	1.2E-1	1.3	5.8E-2	2.0E-1	21	1.2E-1	1.4	3.4E-2	1.8E-1
As	21	5.6E-4	3.1	1.0E-4	1.1E-2	19	9.5E-4	2.1	1.1E-4	2.5E-3
Se	23	1.2E-2	1.8	3.9E-3	5.4E-2	21	1.3E-2	2.8	5.1E-4	4.8E-2
Rb	23	3.7E-1	3.2	2.3E-2	2.2E+0	21	5.7E-1	4.4	4.1E-2	6.5E+0
Sr	23	5.7E-3	2.5	7.0E-4	4.7E-2	21	1.2E-2	4.6	2.0E-3	4.8E-1
Zr	20	1.3E-4	2.6	1.8E-5	7.9E-4	19	1.8E-4	2.3	4.1E-5	9.3E-4
Nb	19	4.2E-4	2.5	8.6E-5	5.2E-3	20	5.7E-4	3.8	9.5E-5	6.7E-3
Mo	23	2.2E-1	2.3	3.5E-2	2.3E+0	21	3.1E-1	2.8	3.6E-2	1.7E+0
Cd	23	3.1E-1	2.2	3.0E-2	1.4E+0	21	2.8E-1	2.5	8.7E-2	1.5E+0
Sn	17	8.3E-3	3.7	3.9E-4	3.4E-2	17	6.1E-3	3.6	5.2E-4	2.9E-2
Sb	18	2.7E-3	2.8	7.5E-4	3.2E-2	18	2.4E-3	3.2	5.4E-4	2.3E-2
Cs	23	4.6E-3	3.4	7.8E-4	1.9E-1	21	6.9E-3	4.3	9.6E-4	8.7E-2
Ba	23	2.4E-3	2.2	6.5E-4	8.1E-3	21	5.4E-3	2.5	1.3E-3	2.7E-2
La	23	2.6E-4	1.9	6.9E-5	1.0E-3	21	4.9E-4	4.6	8.2E-5	1.6E-2
Ce	23	1.9E-4	2.0	5.0E-5	8.3E-4	21	3.3E-4	3.8	7.0E-5	3.6E-3
Sm	22	4.1E-4	1.6	1.3E-4	8.2E-4	21	6.5E-4	3.0	1.2E-4	6.7E-3
Eu	21	6.6E-4	3.1	3.8E-5	9.2E-3	20	6.9E-4	3.9	5.7E-5	7.4E-3
Gd	23	3.1E-4	1.7	1.2E-4	8.1E-4	21	5.7E-4	3.4	1.0E-4	8.8E-3
Pb	22	5.6E-4	1.9	1.0E-4	1.4E-3	21	7.5E-4	2.8	1.5E-4	2.3E-2
Th	23	2.6E-4	2.9	2.9E-5	2.3E-3	21	2.6E-4	3.3	6.3E-5	5.4E-3
U	23	2.1E-4	2.2	2.5E-5	7.6E-4	21	2.9E-4	2.9	7.0E-5	6.8E-3

2.5.6. 葉菜類の TF

全国データ（温暖地を除く）の葉菜類の TF 値を温暖地の TF 値と比較することで特徴を抽出した。結果を表 2.5-5 に示す。t-検定により $p < 0.01$ となり有意差があると認められたのは、Co, As, Se, Nb, Sb, Cs, Sm, Eu, Gd, Th であった。Th 以外は温暖地で TF が高くなり、幾何平均値の違いは最大 11 倍 (Eu) であった。ただし、この方法では収穫時期の影響が考慮されていない。そのため生育期の気温に着目し、生長が盛んに行われている収穫期 1 ヶ月前での月平均気温を指標として分類しなおした。本解析で使用しているデータの採取時期が 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、気温が 13°C 以下において栽培された試料と、 18°C 以上において栽培された試料を抽出し、データの比較を行った（分類は平成 27 年度報告書に記載）。それぞれ $n=16$ が抽出され、気温の平均は 11.3°C と 21.0°C となり、約 10°C の気温差がある条件で栽培された試料となる。それぞれの元素の TF データについて幾何平均値を導出し、同じ元素の TF (log 値) を図 2.5-3 に示したが、1:1 の線上に乗っていることからわかる通り、全ての元素で有意差が認められなかった。

葉菜類は種類が多様であるが、分類の方法として、葉の広がり方に着目した。すなわち、葉が一枚一枚重なり球を形成するタイプ (compact head, 結球性) と葉が色々な方向に展開するタイプ (loose leaf, 非結球性) に分類することができる。前者の例はキャベツ等であり後者の例はホウレンソウである。それぞれに分類した葉菜類 (ネギについては緑の部分を非結球性、白色部分を結球性と分類) の TF から幾何平均値を導出し、log 値をプロットしたところ (図 2.5-4)、TF の低い元素ほど非結球性の葉菜類への移行係数が結球性に比べて高くなることがわかった。すなわち、種類 (ここでは作物の形状) による違いの方が気温の違いよりも影響が大きいと言える。

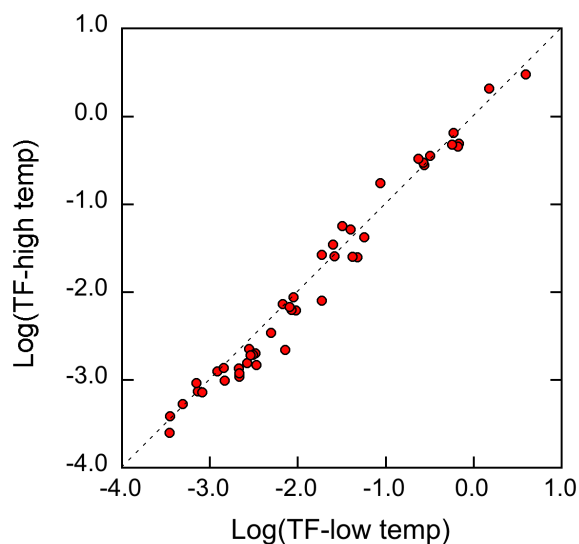


図 2.5-3. 採取 1 ヶ月前気温を指標とした葉菜類の TF

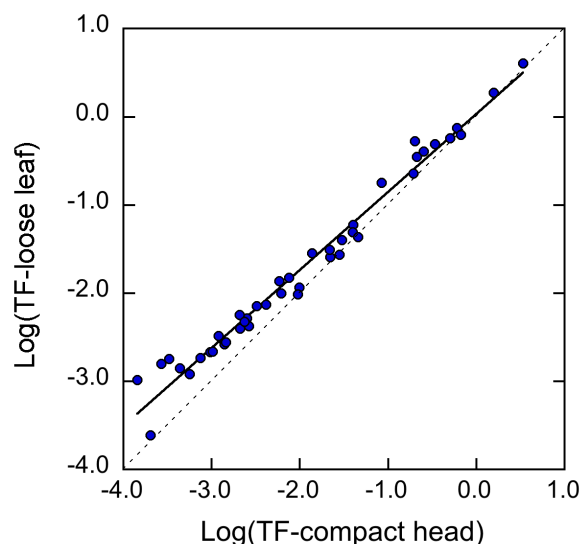


図 2.5-4. 結球性と非結球性の葉菜類の TF

表 2.5-5. 全国（温暖地を除く）と温暖地で採取した葉菜類の TF 値の比較

	Cooler area					Warmer area				
	N	GM	GSD	min	max	N	GM	GSD	min	max
Na	25	3.0E-2	4.9	2.8E-3	9.0E-1	23	3.7E-2	5.5	1.1E-3	7.1E-1
Mg	25	2.2E-1	1.9	4.2E-2	6.2E-1	23	3.1E-1	2.6	5.1E-2	2.1E+0
Al	25	4.0E-4	4.6	5.9E-5	1.6E-2	23	7.5E-4	4.2	8.1E-5	1.3E-2
Si	25	4.2E-4	4.5	3.2E-5	9.7E-3	21	2.2E-4	7.5	1.3E-5	5.7E-3
P	25	1.8E+0	1.9	7.2E-1	6.4E+0	22	1.6E+0	2.2	4.6E-1	6.7E+0
K	25	2.9E+0	2.2	7.4E-1	2.0E+1	23	4.6E+0	1.8	2.0E+0	1.6E+1
Ca	25	5.5E-1	2.7	8.2E-2	5.5E+0	23	5.1E-1	2.1	1.2E-1	2.3E+0
Ti	25	1.3E-3	2.7	2.1E-4	1.9E-2	23	8.8E-4	2.6	2.3E-4	6.8E-3
V	25	5.9E-4	4.2	3.1E-5	2.1E-2	23	8.2E-4	2.9	1.2E-4	6.1E-3
Cr	25	5.5E-3	3.5	5.9E-4	5.2E-2	23	1.0E-2	3.5	1.8E-3	4.6E-1
Mn	25	2.4E-2	2.7	5.2E-3	4.2E-1	23	2.3E-2	1.9	6.2E-3	7.8E-2
Fe	25	1.3E-3	2.5	3.0E-4	1.6E-2	23	1.4E-3	2.4	3.6E-4	8.1E-3
Co	25	5.2E-3	2.6	1.0E-3	3.9E-2	23	1.3E-2	3.8	1.7E-3	2.9E-1
Ni	25	3.3E-2	3.0	3.1E-3	1.6E-1	22	1.8E-2	2.5	2.4E-3	6.8E-2
Cu	25	1.0E-1	2.4	2.6E-2	3.9E-1	23	1.3E-1	2.8	2.8E-2	3.8E+0
Zn	25	2.6E-1	1.5	1.3E-1	6.2E-1	23	3.6E-1	1.7	1.4E-1	1.3E+0
As	25	1.9E-3	3.0	3.9E-4	2.5E-2	23	1.6E-2	1.9	3.6E-3	4.6E-2
Se	25	3.0E-2	2.6	8.0E-3	3.0E-1	23	7.5E-2	2.3	2.4E-2	5.2E-1
Rb	25	4.6E-1	3.5	6.2E-2	7.0E+0	23	9.5E-1	4.2	5.8E-2	1.1E+1
Sr	25	2.2E-1	2.5	5.0E-2	1.0E+0	23	1.9E-1	2.9	4.5E-2	3.0E+0
Zr	25	5.6E-4	3.2	9.7E-5	9.0E-3	23	1.1E-3	1.8	4.2E-4	5.4E-3
Nb	25	1.0E-3	3.5	1.4E-4	1.6E-2	23	3.3E-3	4.0	1.5E-4	1.5E-2
Mo	25	3.5E-1	4.2	3.6E-2	6.5E+0	22	4.5E-1	3.7	2.0E-2	4.7E+0
Cd	25	3.3E-1	2.6	4.0E-2	2.4E+0	23	2.6E-1	4.1	3.4E-2	3.1E+0
Sn	25	5.0E-2	3.8	2.6E-3	6.9E-1	23	3.9E-2	2.0	1.8E-2	5.7E-1
Sb	25	6.6E-3	3.9	9.5E-4	1.2E-1	23	5.6E-2	1.7	1.3E-2	1.4E-1
Cs	25	5.4E-3	3.7	3.3E-4	7.7E-2	23	1.8E-2	2.4	4.7E-3	1.5E-1
Ba	25	2.8E-2	2.9	1.6E-3	1.2E-1	23	2.7E-2	3.2	1.2E-3	1.3E-1
La	25	2.3E-3	4.2	1.1E-4	3.5E-2	23	4.5E-3	1.7	1.4E-3	1.6E-2
Ce	25	1.2E-3	4.1	9.1E-5	2.6E-2	23	1.6E-3	2.1	3.9E-4	7.5E-3
Sm	23	1.2E-3	4.6	6.0E-5	2.6E-2	23	6.2E-3	2.2	1.5E-3	2.7E-2
Eu	22	2.8E-3	3.2	2.8E-4	2.4E-2	23	3.3E-2	2.1	4.0E-3	1.8E-1
Gd	23	1.5E-3	3.9	8.7E-5	2.5E-2	23	7.5E-3	1.9	2.9E-3	4.6E-2
Pb	25	3.4E-3	3.6	3.0E-4	6.0E-2	23	5.8E-3	2.4	5.4E-4	3.5E-2
Th	22	9.4E-4	4.7	9.8E-5	2.7E-2	23	5.4E-5	6.2	8.1E-7	4.1E-3
U	20	8.7E-4	5.3	7.0E-5	2.8E-2	23	5.3E-4	4.0	7.1E-5	8.2E-3

2. 6. まとめ

平成 25 年度から 29 年度までの研究により、本章冒頭で挙げた課題を全て検討した。以下に各項目の結果について記す。

2.6.1. 気候変動と環境移行パラメータに関する文献調査

海外の安全評価のための環境移行パラメータ設定は、それぞれの国で国際的なデータや独自のデータを解析して行なっていたり、一部を IAEA の TRS-472 に依っている場合もある。しかし TRS-472 には TF に関しては温帯のデータ数に対してその他の気候帯の地域のデータ数が少ないことから、比較そのものが難しい状況である。K_d については気候帯毎のデータは報告されていない。文献によれば、土壌や植物の元素濃度データに気温が影響すると示唆する報告もあったが、それを明確に示すデータはなかった。TF に対する気候の影響を示そうとした場合、ある作物種内の個体間差や品種間差に加え、植物群による分類を行うと、作物間差も考慮に入れなければならないため、できるだけ作物種は揃えた方がよい。しかしながら、気候の違いによる影響に加えて異なる作物種、さらには品種や個体間差などの変動要因を考慮しても、TF の差は数倍程度と推定された。

国内の文献調査では、グローバル・フォールアウト ⁹⁰Sr や ¹³⁷Cs の土壌および農作物中濃度を利用して寒冷地域と温暖地域による違いの解析を行なった。玄米 TF は ¹³⁷Cs については寒冷地で高い一方、⁹⁰Sr は温暖地で高くなる結果が得られた。TRS-472 では穀類の TF データが Sr, Cs ともに温帯よりも熱帯で高くなっていたが熱帯のデータが少なく代表性に乏しい。また、他の野菜類についてもグローバル・フォールアウトデータを用いて検討したところ、TF は ¹³⁷Cs では気候条件に左右されないが、⁹⁰Sr は温暖な地域で高くなった。⁹⁰Sr の結果は玄米の結果と一致したが、TRS-472 に記載されている葉菜類のデータからは、Sr では差がなかった。傾向は一定しておらず、データの質が揃った条件で比較することが必要であることがわかった。

2.6.2. 土壌-植物間移行係数に対する気温の影響調査

文献調査ではデータの質の揃ったデータセットが不足しており、そのため影響調査が困難であったことから、5 年間にわたり国内の比較的寒冷地と温暖地においてフィールド調査を行った。収穫時の土壌と農作物（玄米、ジャガイモ、葉菜類）を採取して土壌および農作物試料中の希土類元素を含む 20 以上の安定元素について測定し、移行係数を得てデータベース化した。比較的寒冷地および温暖地の選択は年平均気温を指標とした。寒冷地域として、北海道、青森県、岩手県および秋田県を、温暖地域として、沖縄県、鹿児島県、宮崎県、熊本県、長崎県、福岡県、高知県を選択した。試料採取は、玄米については平成 26-28 年の 3 年間、ジャガイモについては平成 26~29 年度の 4 年間行い、玄米については、寒冷地および温暖地においてそれぞれ 15 試料、合計 30 試料、またジャガイモについては寒冷地および温暖地においてそれぞれ 20 試料、合計 40 試料を調査した。葉菜類は平成 25 年度に 20 試料の採取を行った。土壌特性、元素濃度（土壌および農作物）を測定し、TF とともにデータベース化することができた。データの解析は変動要因の解析（第 2.6.4 (d) 項）で報告している。

2.6.3. 土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査

K_d 実験は室温において行われるが、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 は土壌粒子に吸着されやすいが、有機質土壌の場合には K_d が低くなることが知られており、温度の違いにより有機質が消費されて減少すれば、間接的に K_d 値が変動を受ける可能性がある。本実験では、過去に 23℃において K_d を求めた水田土壌 20 試料と畑土壌 20 試料について、有機

物含量に大きな変動を与えない低温条件（10℃）と微生物活性を促すための高温条件（30℃）において K_d を求め比較を行った。その結果、土壌利用別（水田、畑）で解析すると、水田土では 10℃の K_d に対し 23℃と 30℃では有意に低く、畑土壌では 10-23-30℃では有意差は無かったが、10℃で高い傾向にあった。また土壌種別では、Fluvisol に属する土壌でより顕著に温度による影響を受けたことがわかった。10℃- K_d /23℃- K_d 比の幾何平均値は 1.6（範囲：0.7-4.3）また、10℃- K_d /30℃- K_d 比の幾何平均値は 1.7（範囲：0.7-5.9）であり、したがって、温度によって K_d - ^{137}Cs 値に平均として 2 倍程度の変動があることがわかった。なお土壌溶液の pH と EC はそれぞれの温度で有意差は見られず、pH や共存イオンの増減によって K_d が影響を受けた訳ではないことがわかった。

2.6.4. 温度に影響される可能性のある TF や K_d を用いた変動要因の解析

これまでに蓄積したデータをデータベース化し、ヨウ素 K_d 、炭素 K_d 、炭素 TF、多元素 TF（玄米、ジャガイモ、葉菜類）について、それぞれ変動要因解析を行った。

(a) ヨウ素 K_d では、4℃と 23℃で採取した K_d とデータベースに含まれる項目間の相関を付き合わせることで、温度の影響を間接的に調査した。その結果、Mo (IO_3^- に対して) で温度は 4℃と 23℃の K_d との相関性が異なっており、温度に対する影響があると考えられる項目として抽出されたが、その他の項目は抽出されなかった。なお温度毎に I と IO_3^- の K_d 値を比較すると、23℃では I と IO_3^- で良い相関が得られるが ($R=0.649, p<0.001$)、4℃では相関が低かった ($R=0.169, p=0.045$)。温度が高い実験条件下では、時間とともに化学形別割合が類似することが要因と考えられた。

(b) 炭素 K_d と相関係数が高かった項目は K_d_Ni , K_d_Sb , $K_d_IO_3$ (4℃, 23℃), pH および水抽出された F と P の 7 項目であった。水溶性 P は微生物活性に影響を及ぼす項目と考えられ、したがって温度との関係がある可能性もあるが、他の項目は温度による説明ができない。

(c) 炭素 TF については、統計的にデータを解析する手法であることから、気温の違い毎のデータを得ることはできなかった。米と葉菜類で比較したところ、米の TF が 0.17、葉菜類で 0.8 が得られ、作物種によって差があることがわかった。

(d) 多元素の TF は、平成 25 年度から平成 29 年度までに収集した農作物（玄米、ジャガイモ、葉菜類）について、すでに報告済みの全国データと合わせて比較的寒冷地および温暖地における TF に差があるか否かを t 検定により解析を行った。その結果、それぞれの作物について有意差が認められる元素があったが、その差は玄米・ジャガイモで 2-3 倍程度、葉菜類で最大 11 倍であった。多くの元素で気候の違いによる TF の差はほとんどないことがわかった。

本調査研究のきっかけとなった、

(1) 寒冷地における生育期間の延長による重要核種関連元素の TF 増加の可能性

(2) IAEA テクニカルレポートシリーズ No.472 に記載されている温帯と熱帯・亜熱帯データの違いについて、(1)では、ほとんどの農作物は自然の中で半人為的に生産される状況にあり、商業的に成り立つように寒冷地でも暖かい時期を選択したり、環境に適した品種育成するなどしてある程度の栽培期間幅以内において収穫されることが影響し、著しい TF 増加につながらないことがわかった。また、(2)では、分析結果についてデータの質が揃えられないことに加え、それぞれの地域で行われた実験条件や作物種の違い、さらにはデータ数自体に限りがあることが、データ比較の際に影響していたと考えられる。また、そのような状況から、それらのデータの代表性についても配慮が必要であろう。

国際的な IAEA データについては、数が充実することによって気候別のデータ比較が可能になると期待できるが、現状ではデータの代表性や、気候別のデータ解析が行える状況にないことも考えると、TRS-472 に報告されている気候別のデータセットが安全評価に用いるために必ずしも適しているとは

言えない可能性がある。本調査による TF データは少なくとも、比較的温暖な地域と寒冷な地域において、TF の差は生じないことから、温暖からやや寒冷な気候条件において、異なる TF を設定する必要はないといえる。

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.
- Box, E. O. (1996). Plant functional types and climate at the global scale. *J. Vegetation Sci.* 7, 309-320.
- FAO (2018). FAOSTAT Food Balance Sheet. <http://www.fao.org/faostat/en/#data/FBS> (2018.01.11 アクセス)
- Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH (2008). Impact of climate change on far-field and biosphere processes for a HLW-repository in rock salt. GRS-241.
- Han, W. X., Fang, J. Y., Reich, P. B., Ian Woodward, F. and Wang, Z. H. (2011). Biogeography and variability of eleven mineral elements in plant leaves across gradients of climate, soil and plant functional type in China. *Ecology Letters*, 14, 788-796.
- Hanson, P.J., Edwards, N.T., Garten, C.T., Andrews, J.A. (2000). Separating root and soil microbial contributions to soil respiration: A review of methods and observations. *Biogeochemistry* 48, 115-146.
- Hart, J., Meeussen, H. C. L., Rosca-Bocancea, E., & Sweeck, L. (2017). Report on migration and uptake of radionuclides in the biosphere. OPERA-PU-SCK631&NRG7232.
- 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.
- IAEA (2009). Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. IAEA-TECDOC-1616.
- IAEA (2010) Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series No.472 (IAEA-TRS-472).
- Ichikawa, R., Eto, M., Abe, M. (1962). Strontium-90 and Cesium-137 Absorbed by Rice Plants in Japan, 1960, *Science* 135, 1072.
- Ishii, N., Koiso, H., Takeda, H., Uchida, S. (2010) Partitioning of ^{14}C into solid, liquid and gas phases in various paddy soils in Japan. *J. Nuclear Science and Technology* 47, 238-243.
- Ishii, N., Tagami, K., Uchida, S. (2015). The ^{14}C partitioning of [1, 2- ^{14}C] sodium acetate in three phases (solid, liquid, and gas) in Japanese agricultural soils. *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry.* 303, 1389–1392.
- 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.
- Jarrell, W. M., Beverly, R. B. (1981). The dilution effect in plant nutrition studies. In *Advances in Agronomy* 34, 197- 224.
- Kabata-Pendias, A. and Mukherjee, A. B. (2007). Trace elements from soil to human. Springer Science & Business Media.
- Komamura, M., Tsumura, A., Yamaguchi, N., Kihou, N., Kodaira, K. (2005). Monitoring ^{90}Sr and ^{137}Cs in rice, wheat and soil in Japan from 1959 to 2000. Miscellaneous publication of National Institute for Agro-Environmental Sciences, No.28.
- 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.

- 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.
- Pröhl, G., Oyslaegers, G., Zeevaert, T., Kanyar, B., Pinedo, P., Simón, I., Bergström, U., Hallberg, B., Mobbs, S., Chen, Q., Kowe, R. (2004). Biosphere models for safety assessment of radioactive waste disposal. BIOMOSA Report. GSF-Bericht 06/04.
- 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.
- 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.
- SKB (2014). Safety analysis for SFR Long-term safety. Main report for the safety assessment SR-PSU. Technical Report TR-14-01.
- Staudt, C., Semiochkina, N., Kaiser, J.C., Pröhl, G. (2013). Modeling the impact of climate change in Germany with biosphere models for long-term safety assessment of nuclear waste repositories. *J. Environ. Radioactiv.* 115, 214-223.
- Tsukada, H., Nakamura, Y. (1998). Transfer factors of 31 elements in several agricultural plants collected from 150 farm fields in Aomori, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 236, 123-131.
- Uchida, S., Ohmomo, Y. (1999). Impact of radionuclides on soil, groundwater, and crops and radionuclide cleanup in Japan. 96-125. In *Soils and groundwater pollution and remediation: Asia, Africa, and Oceania* (eds. Huang, P.M., Iskandar, I.K.), CRC Press.
- Uchida, S., Tagami, K. (2007). Soil-to-crop transfer factors of radium in Japanese agricultural fields. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, 8, 137-142.
- Yasuda, H. (1996). Effectiveness of electric conductivity for estimating distribution coefficients of strontium and cesium. *Journal of nuclear science and technology*, 33, 166-170.
- Yuita, K. (1992). Dynamics of iodine, bromine, and chlorine in soil II. Chemical forms of iodine in soil solutions, *Soil Sci. Plant Nutr.* 38, 281-287.
- 内田滋夫 (1989). 放射性ヨウ素(^{129}I)の農作物への移行に関する研究 (博士論文), 京都大学, p.140.
- 気象庁ホームページ (2018). 過去のデータ検索 .
<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php?sess=6ef525a9cdef28cea634ce58ca736e68> (2018.1.11 アクセス)
- 原子力規制庁 (2018). 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> (2018.1.11 アクセス)
- 原子力安全委員会 (2010). 余裕深度処分の管理期間終了以後における安全評価に関する考え方. 22 安委第 24 号. http://www.rwmc.or.jp/law/file/shiryo_20.pdf
- 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 (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～24 年度) のまとめ詳細版 (内田滋夫 編集), p. 197.
- 田上, 石井, 内田 (2009). 炭素安定同位体自然存在比を用いた水稻による土壌起源炭素吸収および炭素移行係数の推定. *Radioisotopes* 58, 641-648.
- 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).

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 5730 年と長く、そして埋設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)。このように、 ^{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は重要である。

これまでに、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明らかにされてきた (Ishii et al., 2015)。そして、 ^{14}C のガス化は微生物が関与していることも分かってきた。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 (図 3.1-1)。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、ガス化の影響を考慮しておらず、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することは重要である。

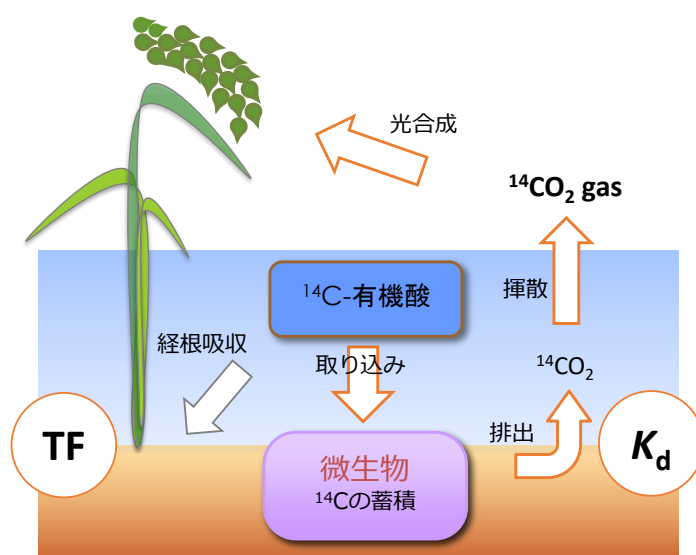


図 3.1-1 水田環境における ^{14}C 移行プロセス

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おり (Frölicher et al., 2014)、気候変動は長期にわたって安全性を確保する必要がある放射性廃棄物処分において考慮すべき項目である。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ので、 ^{14}C ガス化に寄与する微生物活動に関連した指標値が、ガス化を考慮した移行パラメータとなりうる可能性がある。

平成 25 年から 5 年間にわたる本調査では、土壌微生物活動が ^{14}C のガス化を考慮した移行パラメータとなりうるか検討した。更に、シミュレーションモデルを用いて水稻による ^{14}C の取り込みに対する重要因子の抽出を行った。

3. 2. 土壤微生物活性と放射性炭素のガス化との関係

3.2.1. 微生物活性調査の全体計画

本調査は、土壤微生物の活動を指標として ^{14}C ガス化を考慮したより妥当性の高いパラメータの導出を検討することを目的とした。 ^{14}C のガス化は主に微生物が担っているのだが、微生物の活動は様々な環境因子に影響される。そこで、微生物活動と ^{14}C ガス化の関係を明らかにすることで、微生物の活動が環境因子も含めた ^{14}C のガス化に対する統括的指標になるのではないかと考えた。

本調査の全体計画を表 3.2-1 に示す。本調査ではガス化した ^{14}C を定量することが重要となる。そこで平成 25 年度は、これまで間接的に評価していた ^{14}C ガス化を直接測定する方法について検討した。また、発生した ^{14}C ガスの化学形態についても調査した。平成 26 年は土壤微生物活動の指標として呼吸活性を選定し、多試料の呼吸活性を同時に測定する方法について開発した。また、土壤活性は微生物の生物量にも依存することから、アデノシン三リン酸 (ATP) を指標とする生物量測定法についても開発した。平成 27 年度には、これら開発した方法を用いて土壤微生物活性と放射性炭素のガス化との関係について調査し、平成 28 年度にはその関係の要因について検討した。平成 29 年度には、これまでに得られたデータおよび追加で取得した ^{14}C ガス化データを用いて、微生物の活動がガス化を考慮した移行パラメータとなり得る可能性があるか検討した。

表 3.2-1 調査の全体計画

年度	実施項目
25	^{14}C ガス直接測定方法の開発 ^{14}C ガスの化学形態調査
26	呼吸活性測定法の開発 生物量測定方法の開発
27	微生物活動と ^{14}C ガス化との関係調査 土壤微生物の炭素資化性調査 土壤微生物に対する酢酸の影響調査
28	酢酸の初期濃度効果 微生物群集構造に対する気温の効果
29	水稻玄米中の ^{14}C 濃度に対する気温の効果 ガス化を考慮したパラメータの可能性

3.2.2. 放射性炭素のガス化

過年度の本事業では、試料中の ^{14}C 初期添加量と培養後の固相および液相に残った ^{14}C 量の差として ^{14}C のガス化を評価してきた。しかしながら、水稻によるガス化した ^{14}C の取り込みは主要な ^{14}C の移行経路であるため、直接的に測定することが望まれる。また、間接法ではガス化した ^{14}C の化学形態等の情報が得られないが、直接法では炭酸ガスとそれ以外のガスに分別して測定することが可能である。炭酸ガスは光合成により農作物に取り込まれる可能性があるため、最も着目すべき化学形態である。以上の理由から、ガス化した ^{14}C を直接測定する方法について検討した。

3.2.2.1. ^{14}C ガスの回収と測定方法

^{14}C ガスを発生させるために湛水土壌試料を作成した。土壤試料作成にあたり、0.5 g の水田土壌試料と 5 mL の ^{14}C 標識酢酸溶液 (約 1.7 kBq mL⁻¹) を 50 mL 容の褐色ガラスバイアルで混合した。培養は 7 日間行い、この期間 25°C で 160 rpm の速度で振とうした。

発生した ^{14}C ガスを直接測定するために、4 つの装置を準備した (図 3.2-1)。いずれの装置も容器に蓄積した ^{14}C ガスを酸素ガスで追い出し、 CO_2 吸収剤 (16 mL) で $^{14}\text{CO}_2$ を回収した。酸素ガスは 10 mL min⁻¹ の流量で 30 分間通気した。装置 1 は、発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスのみを回収することを目的とした装置である。装置 2 から装置 4 までは、 $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスも回収することを目的に、途中、セラミック電気管状炉 (800°C 設定) を接続した。この燃焼処理により $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスも $^{14}\text{CO}_2$ ガスとして回収できることが期待された。燃焼を触媒するために管状炉に通す石英管には通気の上流側に酸化銅 (25 g) を下流側に Pt アルミナ触媒 (4 g) を封入した。装置 3 と装置 4 では、ガスを脱水するためにセラ

ミック電気管状炉の直前に 30 mL の濃硫酸を接続した。装置 4 では、脱水の前に NaOH 溶液で CO₂ を回収した。このガスを通した CO₂ 吸収剤を 4 mL から 6 mL 分取し、総体積が 18 mL となるよう液体シンチレーションカクテル (Hionic-Fluor, PerkinElmer Japan) を添加混合した。¹⁴C 放射能は液体シンチレーションカウンタで測定した。

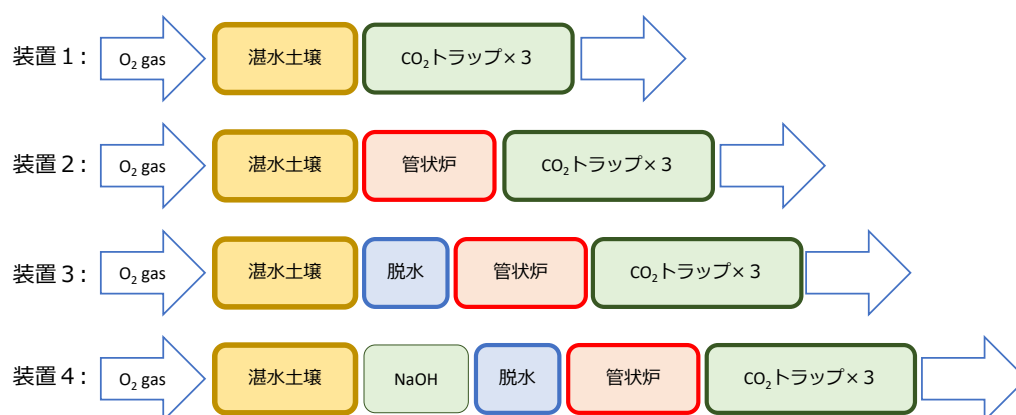


図 3.2-1 ¹⁴C 直接測定のための調査に使用した装置

3.2.2.2. キャリア溶液の効果

極微量のトレーサを添加する場合、化学分離や回収を容易にするためキャリアも添加することがある。そこで、装置 2 を用いてキャリア添加の効果について検討した。湿水土壤試料であるが、脱イオン水を 0.1 mM の酢酸ナトリウム溶液に置き換え ¹⁴C 標識酢酸溶液を作成し、これを水田土壌と混合し作成した。培養 7 日目まで発生した ¹⁴CO₂ ガスは試料当たり $4.0 \times 10^3 \pm 4.9 \times 10^1$ Bq であり、この値とキャリアを含まない場合に発生した ¹⁴CO₂ ガス濃度との間に差は認められなかったため、本実験条件ではキャリアを添加する必要は無いと判断した。

3.2.2.3. CO₂ 吸収剤の検討

NaOH 溶液は CO₂ 吸収剤としてよく利用されるが、液体シンチレーションカウンタによる ¹⁴C の検出感度が、同じく CO₂ 吸収剤である Carbo-Sorb E よりも低いとされている (原子力環境整備促進・資金管理センター 2011)。しかしながら Carbo-Sorb E は有機系 CO₂ 吸収剤であり、もし有機形態の ¹⁴C ガスが湿水土壤から発生した場合、それらも捕集してしまう可能性がある。また、高可燃性であり管状炉の直前で使用した場合、引火する可能性があり危険である。そこで、CO₂ 吸収剤として NaOH の効果を検討した。検討は装置 1 を用い、この装置の CO₂ 吸収剤として 1 M NaOH 溶液と Carbo-Sorb E をそれぞれ用いて結果を比較した。湿水土壤試料はキャリアを含まない試料を準備し、7 日間培養後、回収された ¹⁴C 放射能を液体シンチレーションカウンタで測定した。NaOH 溶液を用いた場合、¹⁴CO₂ ガスは試料当たり $3.9 \times 10^3 \pm 2.1 \times 10^2$ Bq であり、この値と Carbo-Sorb E で回収した ¹⁴CO₂ ガス濃度 ($4.1 \times 10^3 \pm 1.0 \times 10^2$ Bq/試料) との間に差は認められなかった。よって、取扱が容易な NaOH 溶液を ¹⁴CO₂ ガス回収に用いることとした。

3.2.2.4. ¹⁴C ガス直接測定法

キャリアの効果と CO₂ 吸収剤の検討の結果を踏まえ、構成した装置 1 から装置 4 を用いガス化した ¹⁴C の直接測定を検討した。その結果、いずれの装置においても回収された ¹⁴CO₂ 量に差は無かった。つまり、装置 2 から装置 4 に備え付けられた脱水や燃焼機能は ¹⁴C ガスの回収向上にほとんど効果を

発揮しないことが分かった。

装置 1 において、吸収剤に捕集された ^{14}C は、最上流（湛水土壌試料に最も近い位置）の吸収剤で最も多く $3.9 \times 10^3 \pm 1.7 \times 10^2 \text{ Bq}$ であった。次の吸収剤では $3.0 \times 10^1 \pm 3.0 \times 10^1 \text{ Bq}$ とわずかに ^{14}C が検出されたが、最後の吸収剤では $1.6 \times 10^0 \pm 7.5 \times 10^{-1} \text{ Bq}$ と無視できるレベルまで減少した。以上の結果から、1M NaOH を CO_2 吸収剤として用いる場合、少なくとも 2 連以上で CO_2 の吸収を行う必要があることが分かった。

装置 4 では湛水土壌試料の直後に設置した CO_2 吸収剤に発生したガスを通気し、 $^{14}\text{CO}_2$ とそれ以外のガスに分離した。最上流の吸収剤で捕集された $^{14}\text{CO}_2$ 量は試料当たり $3.5 \times 10^3 \pm 4.1 \times 10^2 \text{ Bq}$ であった。管状炉による処理以降に捕集された CO_2 ガスは、試料当たり $3.4 \times 10^1 \pm 1.5 \times 10^1 \text{ Bq}$ であった。この値は装置 1 における 2 本目の CO_2 吸収剤で捕集された $^{14}\text{CO}_2$ 量とほぼ同じであった。装置 1 の結果から明らかのように、湛水土壌から発生したガスは 1 本の CO_2 吸収剤では捕集しきれない。よって $^{14}\text{CO}_2$ ガスの一部が下流に流れ、管状炉以降に設置した CO_2 吸収剤に捕集されたと考えられる。

以上の結果から、湛水土壌から発生した ^{14}C ガスを $^{14}\text{CO}_2$ ガスと $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスに分別して測定するためには、まず $^{14}\text{CO}_2$ を NaOH で捕集し、 $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスは燃焼し $^{14}\text{CO}_2$ としたのち NaOH で捕集する方法が提案される。そこで装置 4 の濃硫酸を 2 連の 1M NaOH 溶液に置き換えた装置を作成し、 ^{14}C ガスの直接測定を試みた。つまり、管状炉の前後で CO_2 吸収剤である NaOH 溶液を三連ずつ、合計 6 本設置した。管状炉上流で捕集された $^{14}\text{CO}_2$ ガス量は 1 試料当たり $3.8 \times 10^3 \pm 2.0 \times 10^2 \text{ Bq}$ で、下流で捕集された $^{14}\text{CO}_2$ ガス量は $1.0 \times 10^1 \pm 9.6 \times 10^0 \text{ Bq}$ であった。管状炉下流で捕集された $^{14}\text{CO}_2$ ガスは、燃焼処理の結果 $^{14}\text{CO}_2$ ガスとなったと考えられることから、湛水土壌から発生した ^{14}C ガスの主成分は $^{14}\text{CO}_2$ であったと結論される。

水稻は主に光合成により ^{14}C を取り込む。従って、 ^{14}C のガス化において最も重要な化学形態は $^{14}\text{CO}_2$ ガスである。また、上述の一連の実験から湛水土壌から発生する ^{14}C ガスの主化学形態は $^{14}\text{CO}_2$ ガスであることも分かった。従って、 $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスを定量しなければならない試験を除けば、 ^{14}C ガスの直接測定法として最も簡便な装置 1 が推奨される。

3.2.2.5. 水田土壌の ^{14}C ガス化率

開発した $^{14}\text{CO}_2$ ガス直接測定法を利用し、全国各地で採取した水田土壌において[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを基質としたときの $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率を調査した。この試験では、平成 14 年度から平成 18 年度までに行われた「放射性核種生物圏移行パラメータ調査」において全国各地より採取された水田土壌（63 試料）を用いた。土壌試料の採取場所（都道府県）、FAO-UNESCO 分類名、日本の土壌分類、炭素量、窒素量、及び C/N 比については過去の報告書を参照されたい（放射線医学総合研究所, 2013）。

30 mL 容遮光性ガラスバイアルに準備した 0.5 g の風乾水田土壌を 0.5 mL の脱イオン水で湛水し、暗条件のもと、25°C で 7 日間培養した。125 μL の[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウム溶液を添加し、さらに 1 時間、25°C で培養した。 ^{14}C の初期添加放射能濃度は約 426 Bq/vial であった。今回の試験では、水稻に取り込まれる $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率を評価することであり、化学形態別に ^{14}C ガスの発生率を求めることではない。そこで、今回は $^{14}\text{CO}_2$ 以外のガスについては測定しなかった。湛水土壌から発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは 16 mL の 1M NaOH 溶液に 3 連で通気することで回収した。 $^{14}\text{CO}_2$ を捕集した NaOH と Hionic-Fluor を混合し、液体シンチレーションカウンタ（Tri-Carb 2100TR, PerkinElmer Japan Co., Ltd.）で ^{14}C の放射能を測定した。

培養 7 日目において、 ^{14}C 初期添加量に対する発生した $^{14}\text{CO}_2$ 量の割合（発生率, %）を図 3.2-2 に示す。 ^{14}C ガス化率の平均値と標準偏差から求めた変動係数は 16.2% であった。使用した水田土壌は全国各地で採取された土壌であり、土壌タイプを含めその物理化学的特性は様々であった（放射線医学

総合研究所, 2013)。湛水土壤試料がそれぞれ異なる水田土壤を用いたことを考慮すれば、この値は比較的小さいといえる。また、平均値と中央値間にほとんど差はみられず、最大値と最小値の差も2倍以下であった。この様に本調査で使用した全国各地の水田土壤において ^{14}C ガス化率の差は小さく、日本の水田土壤における ^{14}C ガス化率は大きく異なることを示唆している。

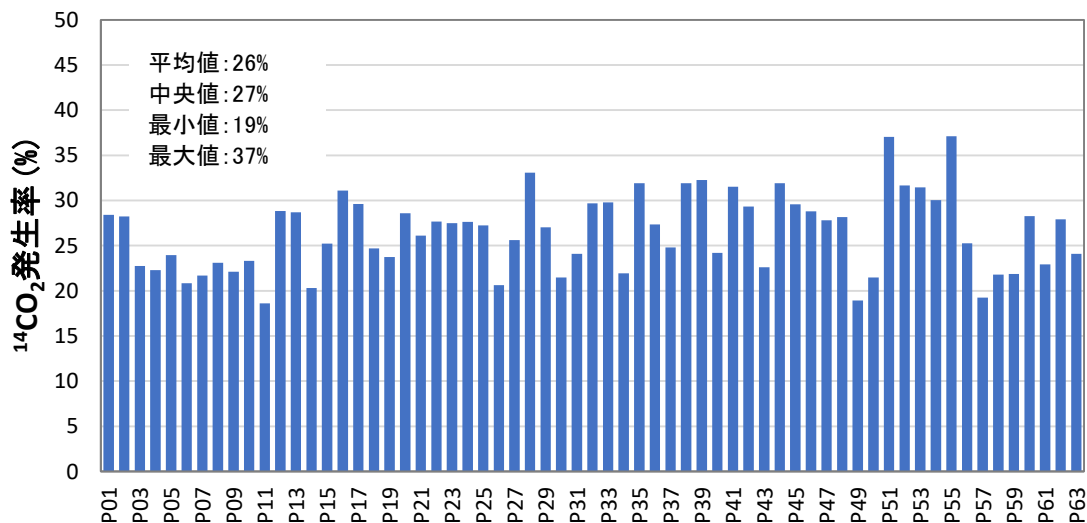


図 3.2-2 ^{14}C 標識酢酸を基質としたときの培養 7 日目における $^{14}\text{CO}_2$ の発生率

後述するが（第 3.3.2.項）酢酸は土壤微生物にとって必ずしも利用しやすい基質ではない（放射線医学総合研究所, 2016）。そこで、より利用しやすい麦芽糖を ^{14}C 源として供給したときの ^{14}C ガス化率についても調査した。この調査では前述の 63 水田土壤から 15 土壤を選択し、実験に供した（放射線医学総合研究所, 2018）。培養 7 日目に添加した ^{14}C 初期添加量に対する発生した $^{14}\text{CO}_2$ 量の割合（発生率, %）を図 3.2-3 に示す。 ^{14}C ガス化率の変動係数は 20.2%であり、全国 63 水田土壤よりも大きくなった。最大値と最小値の差は約 2 倍であった。[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを ^{14}C 源とした場合より高いガス化率を期待していたが、むしろ低い値となった。

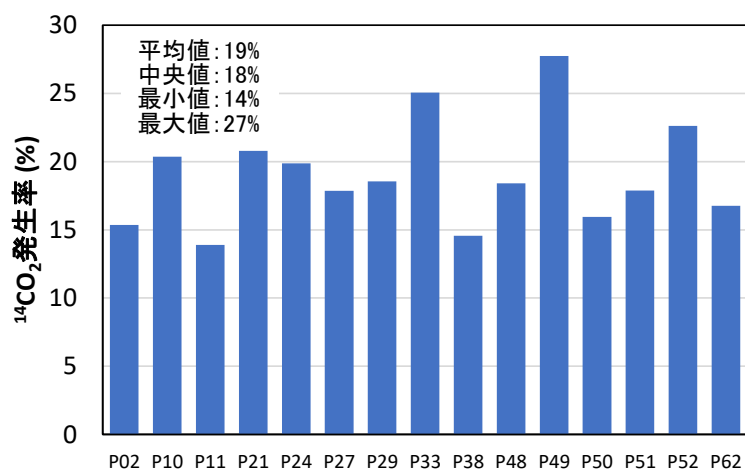


図 3.2-3 ^{14}C 標識麦芽等を基質としたときの培養 7 日目における $^{14}\text{CO}_2$ の発生率

3.2.3. 土壌微生物活性

土壌微生物は¹⁴Cのガス化に対して重要な役割を担っている (Ishii et al., 2015)。微生物活動は温度や栄養分など様々な環境要因に左右されるため、長期の安全評価を実施するには環境要因の影響を統括的に評価する事が必要である。土壌微生物活動と¹⁴Cガス化率の関係を示す事ができれば、土壌微生物活性が環境因子による影響も踏まえた¹⁴C移行パラメータの統括的指標となり得ることが期待される。そこで、土壌微生物酵素活性の測定法について検討した。

3.2.3.1. 微生物活性測定対象となる酵素

分解された有機物の最終形態の多くは二酸化炭素であることから、微生物の呼吸活性に着目した。Dehydrogenase (デヒドロゲナーゼ) は生体内で有機物質から水素を離脱させる反応 (脱水素反応) を触媒する酵素の総称である。この反応は土壌微生物の呼吸経路および電子伝達系に関わるものである。また、デヒドロゲナーゼは生体細胞外には蓄積されず細胞内にのみ存在することから (Shukla and Varma, 2011), 土壌微生物呼吸活性の測定対象として適当である。

デヒドロゲナーゼは土壌中の生物活性の指標として一般的に利用されており、その測定にはテトラゾリウム塩が用いられる。テトラゾリウム塩は電子受容体として働き、脱水素酵素などが存在すると有色のホルマザンに還元される (Rossel et al., 1996)。本調査ではテトラゾリウム塩として、ヨードテトラゾリウムクロライド: 2-(p-iodophenyl)-3(p-nitrophenyl)-5-phenyl tetrazolium chloride [INT]を選定した。INTは水およびアルコールに多少溶解し、酸化還元電位が低いいため容易に還元され不溶性の赤紫色ホルマザンとなる。このINT-formazan (INT-フォルマザン) は耐光性があり安定性のある化合物であるため、メタノールやエタノール、またはジメチルホルムアミドなどで容易に抽出し分光光度計で測定が可能である (Rossel et al., 1996; Welp, 1999; Mersi and Schinner, 1991)。また、毒性が低いことも、この試薬を利用する利点である (Mukhopadhyay et al., 2010)。

3.2.3.2. 土壌呼吸活性の多試料同時分析法の開発

平成25年度にINTを用いた土壌微生物の呼吸活性法を開発した。開発の過程において、INTを溶解する溶媒と最終濃度の検討、INT-フォルマザンが形成されるまでの時間、INT-フォルマザンの抽出液、抽出時間、抽出方法等を検討した。しかしながら、この手法は分析に時間を要し、劇物であるメタノールを多量に使用するなどの問題点があった。そこで、平成26年度は測定効率の改善、劇物使用量の減量、そして多試料同時分析を目標に、土壌呼吸活性多試料同時分析法の開発を行った。

多数の試料の吸光度を一度に測定する場合、96穴のマイクロプレートがよく利用される。そこで、土壌呼吸活性をマイクロプレートで測定する方法を検討した。この検討の過程で、INT-フォルマザンの抽出液としてN,N-ジメチルホルムアミド (DMF) が有効であることを明らかにした。また、100% DMFはマイクロプレートで良く使用される材質を溶解するが、エタノールで15%まで希釈した溶液 (15% DMF) は、INT-フォルマザンの抽出効率を下げず、かつマイクロプレートも溶解しないことを明らかにした。この様な試行錯誤の結果、土壌呼吸活性の多試料同時分析法を確立した。

3.2.3.3. 水田土壌の土壌呼吸活性

開発した多試料同時分析法を利用し、全国各地で採取した水田土壌の呼吸活性と[1,2-¹⁴C]酢酸ナトリウムを基質としたときに発生する¹⁴Cのガス化率との関係について調査した。土壌呼吸活性も¹⁴Cガス化率を測定した土壌について、開発した土壌呼吸活性多試料同時分析法により最終的に得られた試料の吸光度とオートクレイブ滅菌したコントロールの吸光度の差を、土壌呼吸活性により形成されたINT-フォルマザンの吸光度とした。INT-フォルマザンの定量は、市販のINT-フォルマザン (ICN-

Biomedicals Inc.) を用いて作成した検量線を用いて行った。

日本の各地より採取した水田土壌の培養 7 日目における土壌呼吸活性の結果を図 3.2-4 に示す。得られた土壌呼吸活性の範囲は検出下限値 (10 $\mu\text{g INT-フォルマザン/g-dry soil/h}$) から 1,443 $\mu\text{g/g-soil/h}$ で、平均値と中央値はそれぞれ 476 $\mu\text{g/g-soil/h}$ と 461 $\mu\text{g/g-soil/h}$ であった。土壌呼吸活性の平均値と標準偏差から求めた変動係数は 73.1% と大きく、日本の水田土壌における土壌呼吸活性は土壌間で大きく異なることが分かった。

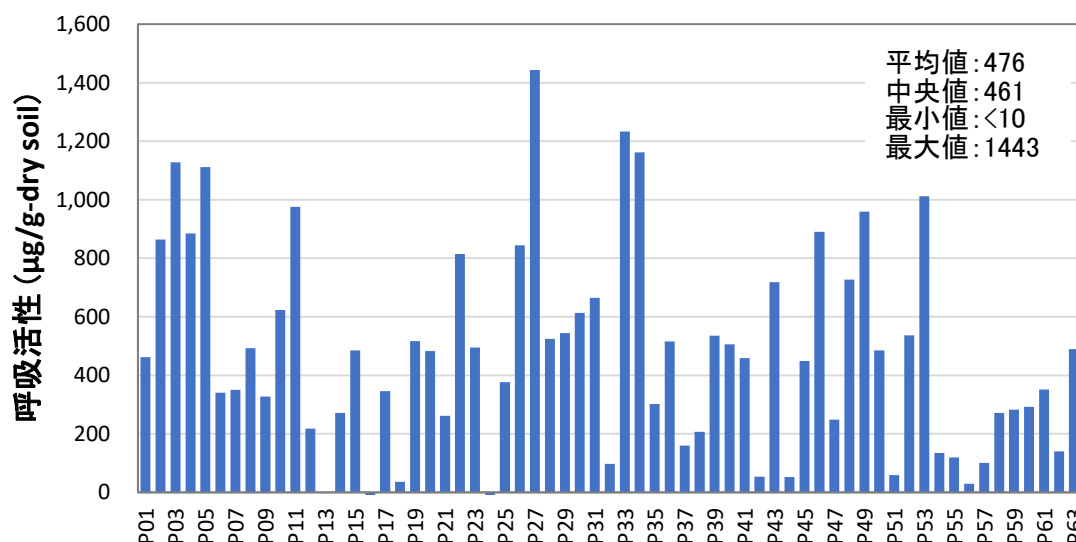


図 3.2-4 全国各地より採取した水田土壌の培養 7 日目における土壌呼吸活性

3.2.4. 土壌微生物量

微生物量の測定には、直接検鏡法、ATP 法、基質誘導法、クロロフォルム燻蒸培養法など様々な手法があるが (木村 1991)、本調査では ATP 法について検討した。ATP 法は微生物体内に存在する ATP 量から微生物量を求める方法であり、簡便に測定する方法が報告されている (青山 2011)。青山の方法を参考に、水田土壌試料中の ATP 測定に最適化した方法について検討した。

3.2.4.1. 微生物量の測定方法

土壌微生物から抽出した ATP がルシフェリン及びルシフェラーゼと反応した結果生じる発光の安定性について検討した。その結果、水田土壌試料から抽出した ATP の相対発光量は測定開始直後から下がり続けることが分かった。この結果から、相対発光量を感度良く測定するためには、ATP 抽出液と発光試薬を混合したのち速やかに測定することが重要であるが、途中の作業工程にかかる時間を考慮し、ATP 抽出試料と発光試薬の混合から 30 秒後に相対発光量を測定することとした。

ATP の抽出液であるが、INT-フォルマザンは DMF で効率よく抽出できたので、DMF による ATP の抽出効率についても検討したが、ATP の抽出には DMF より DMSO が適していることが分かった。

3.2.4.2. 水田土壌の微生物量

前節で検討した ATP 法を利用し、全国各地から採取した水田土壌の土壌微生物量を測定した。土壌微生物量も ^{14}C ガス化率と同じ土壌を使用し、土壌から抽出された ATP の分析を行った。本事業は ^{14}C ガス化率の統括的指標を探索することが目的である。一般的に微生物量は土壌の単位重量当たりの微生物の総炭素量として与えられるが (木村, 1991)、本試験では ATP 量を微生物量に換算すること

はず、ATP 由来の相対発光量を微生物量の相対量として与えた。

日本の各地より採取した水田土壌の培養 7 日目における ATP 量の結果を図 3.2-5 に示す。得られた微生物量の範囲は 202 Relative Light Unit (RLU) から 1,518 RLU と広く、平均値と中央値はそれぞれ 583 RLU と 488 RLU であった。微生物量の平均値と標準偏差から求めた変動係数は 47% と大きく、日本の水田土壌における微生物量は土壌呼吸活性 (図 3.2-4) と同じく土壌間で大きく異なることが分かった。

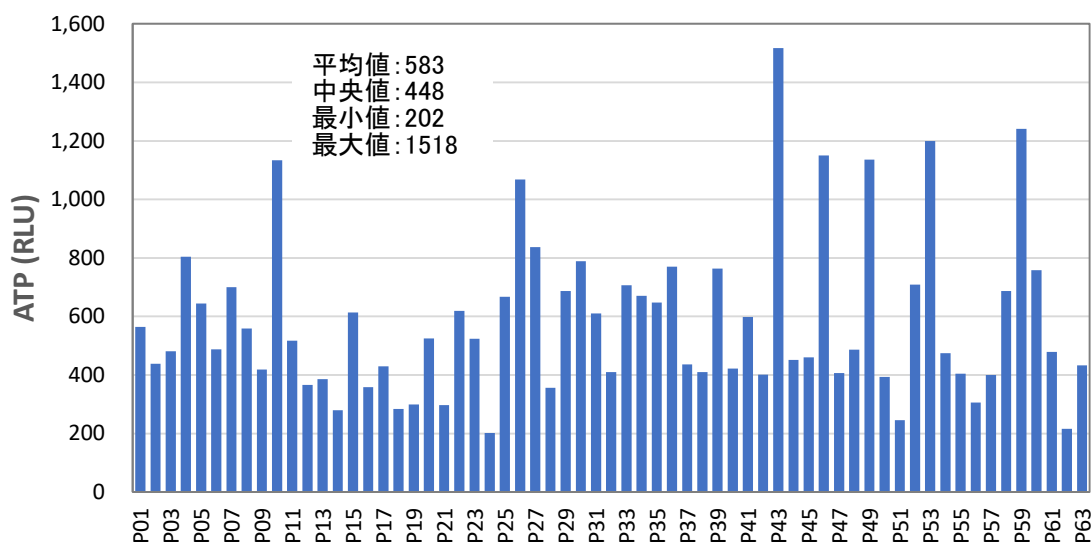


図 3.2-5 全国各地より採取した水田土壌の培養 7 日目における微生物量

3.2.5. 土壌微生物活動と放射性炭素のガス化との関係

有機物は呼吸代謝により最終的には水と二酸化炭素に分解される。この分解過程で働く脱水素酵素より、湛水土壌試料に添加された INT は還元され、INT-フォルマザンが形成される。INT-フォルマザンの形成は、つまり二酸化炭素の発生を意味する。したがって、土壌呼吸活性から ^{14}C ガス化率を見積ることが可能であり、統括的指標となり得ることが期待した。そこで $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムを ^{14}C

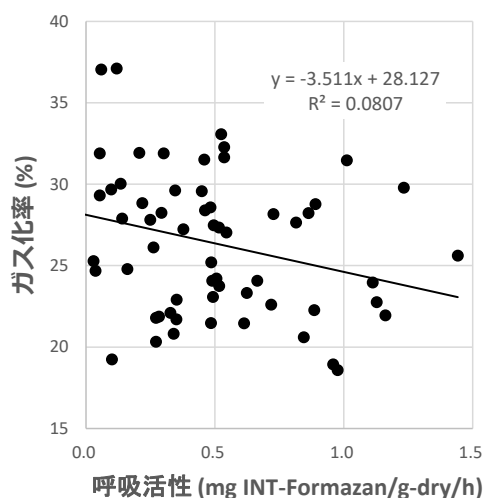


図 3.2-6 ^{14}C 標識酢酸ナトリウムを ^{14}C 源としたときの土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係

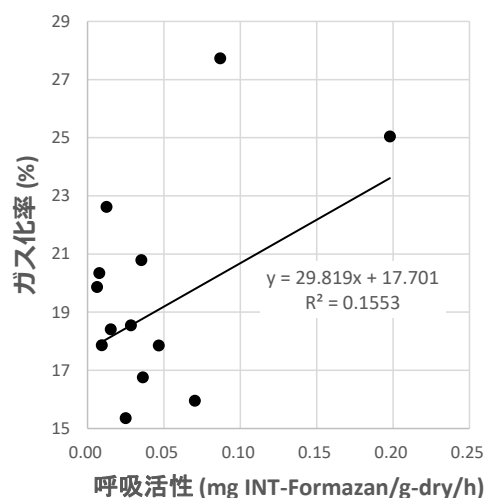


図 3.2-7 ^{14}C 標識麦芽糖を ^{14}C 源としたときの土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係

源としたときの土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の関係について調査したが (図 3.2-6), 明確な相関関係は見られず, 土壌呼吸活性の増加と共に ^{14}C ガス化率は減少する傾向が見られた。同様に, ^{14}C 源を [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムから麦芽糖に変更した場合も, 微生物の呼吸活性と ^{14}C のガス化との間に相関関係は認められなかった (図 3.2-7)。

これらの結果は培養 7 日目の結果であり, いわゆる微生物活動的には安定した定常状態における結果である。そこで P36 水田土壌を 10 日間連続で湛水培養し, 各日 1 時間当たりの土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率を求めた。結果を図 3.2-8 に示す。培養 2 日目以降 7 日目まで土壌呼吸活性は上昇し, その後 10 日目まで減少し続けた。一方, $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量は培養 1 日目に最も高く, その後低下し続けた。以上の結果から, 微生物の呼吸活性と ^{14}C のガス化は必ずしも一致するとは限らないことが分かった。

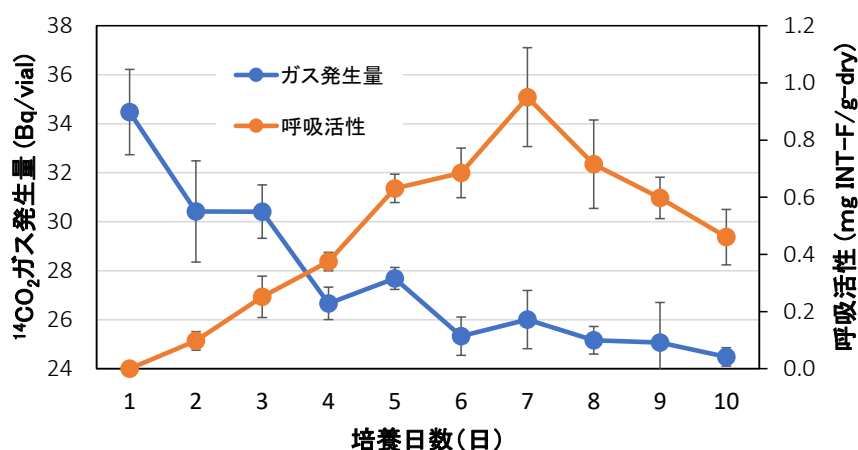


図 3.2-8 P36 水田土壌における 10 日間の土壌呼吸活性と ^{14}C ガス化率の変化
エラーバーは標準偏差 (n=3)

細胞当たりの呼吸量が同じであれば, 生物量の増加に伴い CO_2 の発生量も多くなる。そこで, 微生物量の増加に伴う ^{14}C ガス化率の増加が期待された。もし, この関係が成立つのであれば, 微生物量は ^{14}C ガス化の統括的指標と成り得る。そこで土壌微生物量と ^{14}C ガス化率の関係について調査したが, 期待に反し明確な相関は見られず, ^{14}C ガス化率は微生物量の増加に伴い減少した (放射線医学総合研究所, 2015)。同様の結果は麦芽糖を ^{14}C 源とした時の $^{14}\text{CO}_2$ 発生量と ATP 量の関係においても得られた。以上の結果から, 微生物量もこれだけでは ^{14}C ガス化の統括的指標として利用できないことが分かった。

3.2.6. ガス化の統括的指標

水稲による ^{14}C の取り込みにおいて, ガス状の ^{14}C は重要な役割を担っている。ところが, 環境移行パラメータとしてよく利用されている土壌-植物移行係数は, ガス状の放射性核種の移行を考慮していない。そのため, 従来の移行係数は ^{14}C の安全評価を行う上で最適な移行パラメータとは言い難い。ガス化を考慮したより妥当性の高いパラメータ値が設定できれば, より精度の高い安全評価が実施できる可能性が高まる。微生物活動を ^{14}C ガス発生量の指標として利用するためには, まず微生物活動と ^{14}C ガス発生との間に関係があることを明らかにすることが重要である。この様な考えの基, 本事業ではこれまでに微生物の呼吸活性 (土壌呼吸活性), および微生物量 (ATP 量) と ^{14}C ガス化率の関係について調査を行ってきた。しかしながら, いずれも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)。そこで, 土壌微生物群集の種構成や活性等に影響すると考えられる土壌特性も含

め、 ^{14}C のガス化を説明することができる指標について検討することとした。

水田の物理化学生物学的特徴が ^{14}C のガス化の指標として利用できるか検討するために、 ^{14}C ガス化率を目的変数、物理化学生物学的特徴を説明変数として単回帰および重回帰分析を行った。物理化学生物学的特徴として次の 17 項目を用いた：INT 還元速度（呼吸活性）、ATP 量（微生物量）、粗粒砂の割合、細粒砂の割合、シルトの割合、粘土の割合、仮比重、土粒子密度、含水率、電気伝導度、pH、交換性 Ca、交換性 K、活性 Al、活性 Fe、炭素含量、窒素含量。これらの項目は、それぞれ単位が異なるため、まずはこれらの値を標準化した。つまり、各値と各項目の平均値が 0、分散が 1 の標準正規分布となるように値を調整した。

始めに、 ^{14}C ガス化率と物理化学生物学的特徴データとの単回帰分析を行ったが、 ^{14}C ガス化率はいずれの物理化学生物学的特徴データとも有意な相関は認められなかった。

次に、説明変数である物理化学生物学的特徴データの中から重回帰分析に適切な変数を選定するために赤池情報量基準（AIC）を求め、選定された変数を用いて ^{14}C ガス化率の重回帰分析を行った。AIC の結果、ATP、粗粒砂の割合、細粒砂の割合、シルトの割合、pH、活性 Al、および活性 Fe を説明変数として用いることが適切であることを確認した。各説明変数の係数値、標準誤差、 t 値および p 値を表 3.2-2 に示す。この重回帰分析における決定係数は 0.2954 であり、 p 値は <0.0001 であった。つまり、この回帰式は有意ではあるが、 ^{14}C のガス化率はこれらの説明変数で約 30%程度しか説明できないことが分かった。この結果から、これら物理化学生物学的特徴は ^{14}C ガス化率の統括的指標として適さないと結論された。

表 3.2-2 重回帰分析における各説明変数の係数値、標準誤差、 t 値および p 値

説明変数	Estimate	Std. Error	t-value	p-value
ATP	-4.55E-01	1.25E-01	-3.637	0.0006
粗粒砂	4.29E-01	1.87E-01	2.288	0.0260
細粒砂	2.88E-01	1.51E-01	1.899	0.0628
シルト	3.80E-01	1.87E-01	2.035	0.0466
pH	-4.94E-01	1.33E-01	-3.714	0.0005
活性Al	-2.21E-01	1.34E-01	-1.652	0.1042
活性Fe	2.19E-01	1.35E-01	1.620	0.1109
切片	-3.98E-11	1.08E-01	0.000	1.0000

^{14}C のガス化に微生物が関与することは明らかである（Ishii et al., 2015）。これまでの試験はいずれも単一の ^{14}C 標識有機物を用いたガス化率の結果であるため、他の有機物を利用して呼吸活性が高まった場合、 ^{14}C ガス化率の上昇は見込めない。従って、 ^{14}C のガス化を考慮したパラメータを導出するための統括的指標を考える場合、様々な有機物が ^{14}C で標識された状況を考慮し検討する必要がある。実際、炭素は生物にとって必須元素であるため、体内に取り込まれ代謝され、そして様々な分子へと変換される。TRU 廃棄物処分場から例え単一の化学形態として生活圏に移行してきたとしても、時間と共に多様な化学形態に変化すると想定される。従って、TRU 廃棄物による安全評価ではありとあらゆる炭素が ^{14}C で標識され生態系を循環していることを考慮する必要がある。

3. 3. 土壌微生物活動に影響する要因

3.3.1. 影響要因調査の全体計画

^{14}C のガス化に微生物が関与しているにもかかわらず、平成 25 年から平成 27 年までの調査では ^{14}C のガス化との関係は見だせていない。そこで、平成 27 年度以降、その原因を探るための基礎情報を得ることを目的とした調査を行った（表 3.2-1）。

土壌微生物の呼吸活性や微生物量が ^{14}C のガス化の統括的指標となり得なかった要因として、水田土壌微生物群の酢酸に対する資化性の問題（微生物が酢酸を栄養源として利用できるかどうか）が考えられた。そこで、平成 27 年度における本事業において水田微生物の炭素資化性について調査した。また平成 27 年度と平成 28 年度において、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する酢酸濃度と気温の効果についても

検討した。土壌が異なれば ^{14}C ガス化率も異なるのだが、その原因として各土壌に生息する微生物種の違いが考えられる（放射線医学総合研究所，2016）。そこで，平成 28 年度にはガス発生率が異なる土壌の微生物群集構造を明らかにするとともに，微生物群集構造に対する気温の効果について調査した。

3.3.2. 水田土壌微生物群集による炭素資化

これまでの調査において，微生物活動と ^{14}C 標識酢酸を基質としたときに発生する $^{14}\text{CO}_2$ ガス化との間に明確な関係は見いだせていない。これは土壌微生物による酢酸の資化性が原因ではないかと考えた。土壌には様々な化学形態の炭素が存在するために，酢酸形態よりもより利用しやすい炭素を利用し活動している可能性がある。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。

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，GN2 MicroPlate (Biolog, Hayward CA)を用いて水田土壌微生物群集による炭素資化性データを収集した。得られた結果から，水田土壌微生物にとって利用しやすい炭素源上位 5 種，利用しにくい炭素源 5 種，および酢酸の利用しやすい順位を表 3.3-1 に示す。最も資化されやすい炭素源は，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，土壌中の ^{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）。糖を含む炭水化合物は光合成により合成されるため，水稻に取り込まれた ^{14}C の一部は ^{14}C を含む糖に変換されるであろう。もちろん，水稻収穫後の刈り株にも ^{14}C で標識された糖が残存すると考えられる。次期の耕作のためにすき込まれた刈り株は，土壌微生物により分解され，再び ^{14}C は $^{14}\text{CO}_2$ として大気中へと拡散する。このように， ^{14}C は収穫により系外に除かれないう限り，水田生態系の中で循環し続けるであろう。

表 3.3-1 水田土壌微生物が利用しやすい，利用しにくい有機炭素源

順位	有機炭素源	化学式	分類群
1	Maltose(麦芽糖)	C12H22O11	Carbohydrates
2	α -D-Glucose(ブドウ糖)	C6H12O6	Carbohydrates
3	D-Galactose	C6H12O6	Carbohydrates
4	Sucrose(ショ糖)	C12H22O11	Carbohydrates
5	Tween 80	C32H60O10	Polymers
85	Acetic Acid	C2H4O2	Carboxylic acids
91	D-Serine	C3H7NO3	Amino acids
92	Glucose-6- Phosphate	C6H13O9P	Miscellaneous
93	N-Acetyl-D- galactosamine	C8H15NO6	Carbohydrates
94	Thymidine	C10H14N2O5	Miscellaneous
95	Formic Acid	CH2O2	Carboxylic acids

一方，最も資化が難しい炭素は，Formic Acid（ギ酸）であった。ギ酸は，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）。酢酸の資化性は 95 種類の炭素のうち 81 番目であった。この結果から，水田土壌微生物によって酢酸は利用しやすい有機物でないことが分かった。

3.3.3. $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する酢酸濃度の効果

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、水田に存在する濃度の酢酸が $^{14}\text{CO}_2$ ガス化発生に影響するか実験で確認した。

水田において、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、その濃度はおよそ 10 mmol 程度である (犬伏, 1994)。そこで、10 mmol の酢酸ナトリウム溶液を用いて湛水土壌を作成した。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。これらの試料を 25°C で暗条件の下 7 日間静置培養し、培養期間中、毎日 INT-フォルマザンの形成を指標とした呼吸活性を測定した。

呼吸活性の結果を図 3.3-1 に示す。呼吸活性は、時間経過と共に増加した。この傾向は、どちらの溶液で湛水した場合にも観察された。酢酸溶液で湛水した場合、脱イオン水で湛水した場合よりも呼吸活性が低い傾向が観察され、有意な差は培養 5 日目と 7 日目で得られた。逆に脱イオン水で湛水したときに、呼吸活性の値が酢酸で湛水した試料よりも低くなることは無かった。この結果から、酢酸は水田土壌微生物によって利用しにくい有機物であるだけでなく、呼吸活性を抑制する可能性も示唆された。呼吸活性抑制作用であるが、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がある。そこで土壌の pH を測定したが、土の緩衝作用によりどちらの溶液で湛水した場合も同定程度の pH になることが確認された。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。

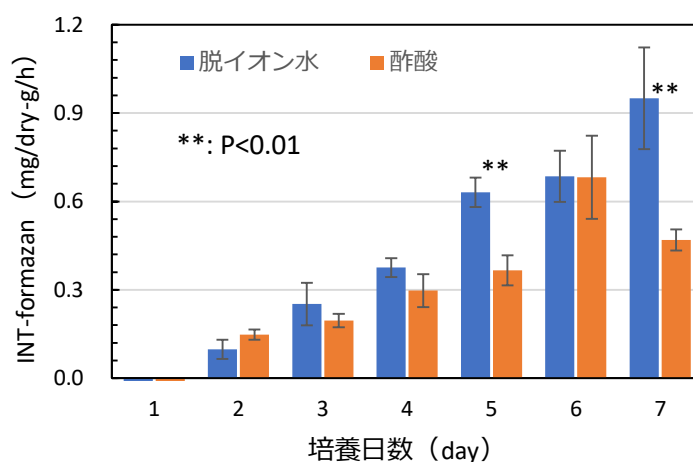


図 3.3-1 脱イオン水あるいは酢酸溶液で湛水した水田土壌における呼吸活性の変化

この様に、水田土壌微生物にとって 酢酸は利用しにくい有機物であり、多量の酢酸は土壌微生物活性を抑制する。このことは、水田が湛水されると一時的酢酸が蓄積されること、そして嫌氣的環境が発達した後はメタン生成菌や一部の硫酸還元菌しか酢酸を分解できないことから明らかである (堀ら, 1990)。そこで、 ^{14}C 源の初期濃度とガス発生量の関係について調査した。

図 3.3-2 に培養期間中に初期 ^{14}C 添加量に対する発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスの放出比を示す。いずれの試料においても、培養開始から 4 日間に $^{14}\text{CO}_2$ が発生し、その日以降も発生し続けるが、初期と比較すると発生量はわずかであった。この様に培養初期において $^{14}\text{CO}_2$ ガスが急速に発生するのは、これまでの試験結果と同様であった (Ishii et al., 2010)。4 日目以降に観察されたように、容器内の $^{14}\text{CO}_2$ ガス量が平衡に達した値が、各初期添加濃度に対する最大ガス発生量といえる。本試験で添加した ^{14}C の最

大濃度は 8.4×10^4 Bq/mL であり、使用した[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムの比放射能 (4.07×10^9 Bq/mmol) から Bq/mL をモル濃度 (mol/L) に換算すると $20.6 \mu\text{mol/L}$ となる。0.5 g の土壌に対しこの濃度の酢酸ナトリウムを 5 mL 添加したので、この土壌 1 kg 当たりの酢酸濃度は 2.06×10^{-2} cmol/kg と計算される。この酢酸濃度は水田に蓄積される酢酸濃度 (犬伏, 1994) と比較すると 50 倍程度低いと見積もられる。

$^{14}\text{CO}_2$ ガスの総発生量は、 ^{14}C 添加量に依存して多くなった。 8.4×10^4 Bq/mL の ^{14}C 濃度の[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを添加した試料では、培養 1 日目から 2 日目にかけて容器当たり 5.8×10^4 Bq の ^{14}C が $^{14}\text{CO}_2$ ガスとして発生した。一方、 8.6×10^3 Bq/mL の ^{14}C 濃度の[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを添加した試料の容器当たりの総 ^{14}C 量は 4.2×10^4 Bq であり、従ってこれと同量以上の $^{14}\text{CO}_2$ ガスが培養 1 日目から 2 日目にかけて発生したこととなる。つまり、本試験に用いた水田土壌の微生物は、少なくとも 8.6×10^3 Bq/mL の ^{14}C を添加した試料の[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを全て $^{14}\text{CO}_2$ に分解する能力を有していたと考えられる。この能力にも関わらず、何れの試料においても添加した[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムが完全に $^{14}\text{CO}_2$ に分解されなかったということは、培養期間中に分解を抑制する機序が働いたと考えられる。

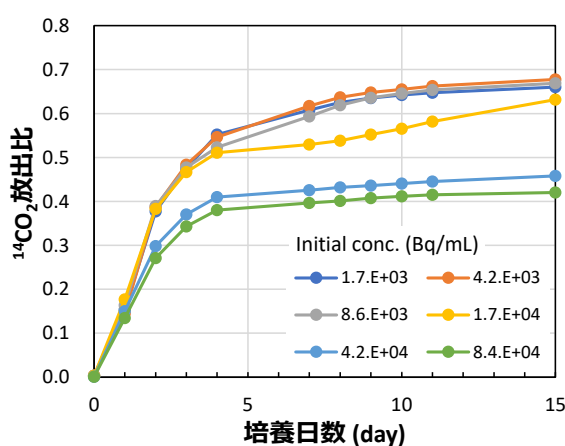


図 3.3-2 初期添加 ^{14}C 濃度と $^{14}\text{CO}_2$ 発生量の関係

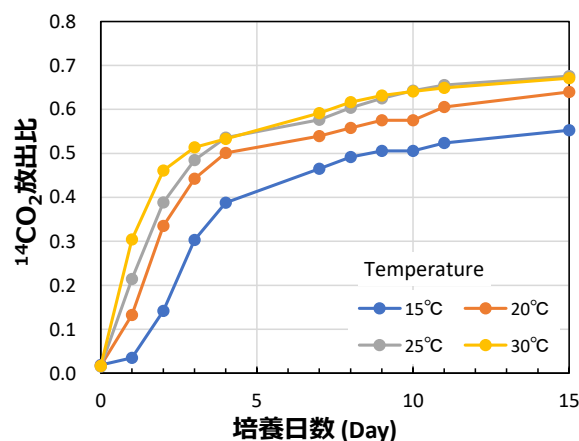


図 3.3-3 $^{14}\text{CO}_2$ 発生量に対する気温の効果

3.3.4. $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する気温の効果

$^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に対する気温の効果についても検討した。試料は、前節の酢酸の濃度効果と同じ土壌を用い、これを 8.6×10^3 Bq/mL の[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウム溶液で浸漬した。この試料を 15°C から 30°C まで 5°C 刻みの温度で培養した結果、培養開始から 4 日目までの期間、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度は温度上昇と共に速くなった (図 3.3-3)。いずれの温度で培養した試料においても、培養開始から 4 日間に多くの $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生し、各培養温度により発生量は異なるものの、同じようなガス発生曲線を描いた。また、 25°C と 30°C におけるガス発生曲線が実験期間中ほぼ一致したことより、この温度範囲ではガス発生量に対する温度の効果はなく、ガス発生量の増大効果は 25°C が最大と考えられる。以上の結果から、 25°C 以下の温度は $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量に影響するが、発生パターンには影響しないことが分かった。

3.3.5. 水田土壌微生物の群集構造と気温の効果

微生物はエネルギーを得るために有機物を分解し、その結果、水と二酸化炭素が生じる。それ故、有機物に含まれる ^{14}C のガス化において、微生物は重要な役割を担っている (Ishii et al., 2015)。微生物は種により利用できる炭素が異なるため、群集構造 (群集を構成している微生物の種組成と量) が

変化すれば炭素資化性のパターンも変わるはずである。そこで、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量が異なる土壌の微生物群集構造を調査し、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に関わる可能性がある微生物の帰属分類を推定すると共に、微生物群集構造に対する温度の効果を明らかにすることを目的に調査を行った。

$^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量が異なる土壌として福井県の水田から採取した土壌 (P21) と千葉県の水田から採取した土壌 (P33) を選定した。P21 土壌は、[1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを炭素源としたとき、培養 7 日目までに初期添加量の 75% がガスとして ^{14}C が放出された土壌であり、一方、P33 は 47% しか放出されなかった土壌である (放射線医学総合研究所, 2015)。7 日間培養した両湛水土壌から ISOIL for Beads Beating キットを用いて DNA を抽出し、細菌の 16S rRNA 遺伝子の一部を増幅した。増幅した DNA 断片を用いて変性剤濃度勾配ゲル電気泳動 (DGGE) 法により水田土壌の群集構造を解析した。

図 3.3-4 に電気泳動の結果を示す。P21 と P33 は明らかにバンドパターンが異なった。P21 土壌による ^{14}C のガス化は P33 土壌のそれと比較して顕著であるので (放射線医学総合研究所, 2015), P21 には存在し P33 には存在しない、あるいは存在しても相対量が少ないバンドが $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に関与している可能性がある。

$^{14}\text{CO}_2$ ガスの発生に寄与している可能性のある細菌の帰属分類を推定するために、DGGE ゲルから目的のバンドを切り出し、遺伝子配列を決定した。ゲルからの切り出しのために、図 3.3-4 において矢印で示した 5 つのバンドを選定した。CS08 を除き、これらは ^{14}C ガス発生率が高い土壌試料でより多く存在していると考えられる種であった。CS08 はどちらの土壌でも共通に検出できる種であった。それぞれの細菌は *Clostridium carboxidivorans*, *Massilia aerilata*, *Bacillus niacini*, *Tumebacillus ginsengisoli*, そして *Ramlibacter solisilvae* に近縁の種であった。*C. carboxidivorans* であるが酢酸を分解するのではなく合成する細菌であった (Liou et al. 2005)。そのほかの 4 種については、いずれも酢酸を利用することができる菌であった。*M. aerilata* はプロピオン酸や酢酸塩を同化するとの報告があり (Weon et al., 2008), *B. niacini* は酢酸塩利用することができ、酢酸塩を含む寒天培地上では芽包を形成する (Nagel and Andereesen, 1991)。*T. ginsengisoli* も同様に酢酸塩を利用することができる (Baek et al, 2011)。*R. solisilvae* については Biolog GN plate を用いて酢酸の利用を確認している (Heulin et al, 2003)。

群集構造に対する気温の効果については、寒冷地域である岩手県の水田から採取した土壌 (P2) と温暖地域である福岡県の水田から採取した土壌 (P11) を微生物群集構造の調査対象として選定した。両土壌試料を湛水し、15°C, 20°C, 25°C, および 30°C で 7 日間培養した。培養後の土壌細菌群集構造は、変性剤濃度勾配ゲル電気泳動 (DGGE) で解析した。

電気泳動の結果を図 3.3-5 に示す。P2 土壌では培養温度が異なるにも関わらず、類似した電気泳動パターンが得られた。この電気泳動画像におけるバンドは、それぞれが異なる細菌種を示しており、そしてバンド強度が細菌種の相対量を表している。つまり、バンドパターンが似ていることは群集構造が似ていることを意味するので、この電気泳動の結果は、細菌群集構造に対する温度の影響は小さいことを示している。但し、15°C で培養したときには確認できるが、それ以外の温度で培養したときには不明瞭なバンドがいくつか確認できた。P11 土壌においても P2 土壌と同様に、電気泳動のパターンは培養温度に関わらず類似であった。つまり、P11 土壌においても温度は土壌細菌群集構造を変化

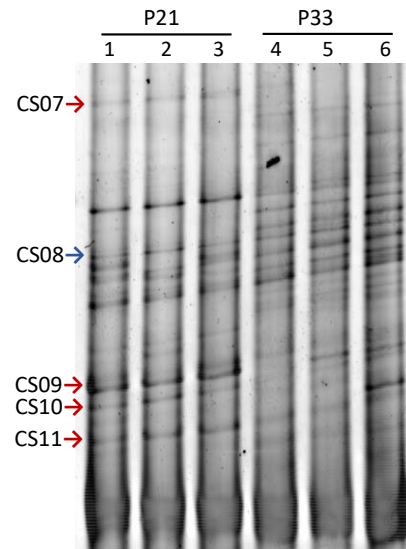


図 3.3-4 水田土壌微生物群集構造の比較

させるほどの影響がなかったことが分かった。

これまでの調査から、気温の上昇は $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度を速める効果はあるが、発生量にはそれほど強く影響しないことが分かってきた。気温により微生物群集構造が変化しなかったことは、つまり、その群集における炭素資化性が変化していないことを示唆しており、これまでに得られた結果を支持している。

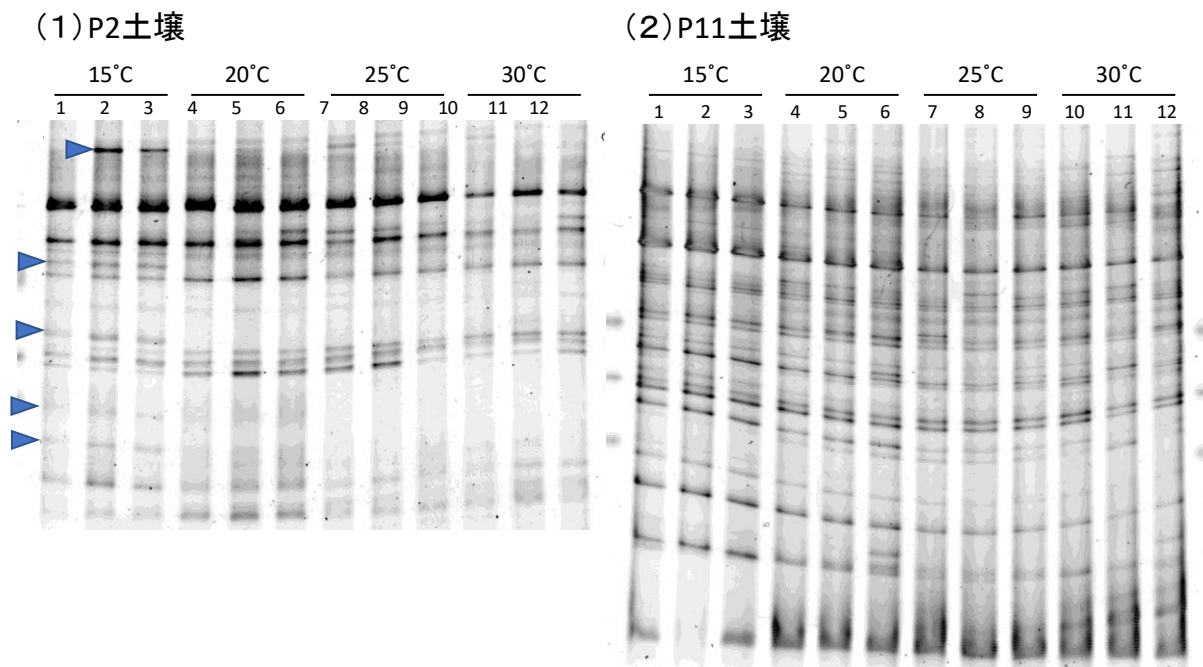


図 3.3-5 微生物群集構造に対する温度効果
矢印は 15°C においてのみ明確に確認できたバンド

3. 4. 水稲による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果

平成 25 年から平成 28 年にかけて、本事業では微生物活動と ^{14}C のガス化との関係に着目した調査が行われてきた。これは、水稲による ^{14}C の取り込みに対し微生物の活動が間接的に重要な役割を担っているからである。微生物の活動は気温等の環境因子にも影響されるので、これら環境因子を統括した指標として、微生物活動が水稲による ^{14}C の取り込みに対するパラメータになる可能性がある。この様な水稲による ^{14}C の取り込みに対する微視的な調査は平成 28 年度までに実施した。最終年度の平成 29 年度は、実際に気温等の環境因子が水稲による ^{14}C の取り込みに影響するのか、巨視的な観点から水稲による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果について調査した (表 3.2-1)

3.4.1. 水稲栽培

気温を制御するために水稲は気象器内で栽培した。栽培は 7 ポットずつ 2 つのグループに分け、それぞれのグループを高温条件および低温条件で栽培した。高温条件は千葉県、低温条件は北海道における水稲栽培期間の平均気温を参考に決定した。イネは短日植物であるため (Itoh et al., 2010)、開花を促すために高温条件では栽培開始 94 日目から 107 日目にかけて、低温条件では 101 日目から 114 日目にかけて、照明時間を 10 時間とした。光量であるが、どちらの気温条件においても約 $600 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$

とした。

水稻の収穫は、高温条件において栽培 180 日目、低温条件で栽培 201 日目に行った。収穫した水稻は、茎葉部と穂部に分別し、風乾後、重量を測定した。穂部に関しては ^{14}C 分析前に籾殻と玄米に分離した。茎葉部、籾殻、および玄米試料は ^{14}C 分析のために粉碎した。これら粉碎試料はサンプルオキシダイザーで燃焼処理し、その後液体シンチレーションカウンタ (Tri-Carb-25WTR Liquid Scintillation Analyzer) で ^{14}C の放射能を測定した。

3.4.2. 水稻による ^{14}C の取り込み

$^{14}\text{CO}_2$ の取り込みに対する気温の効果をあきらかにするために、栄養生長期および登熟期において、それぞれ 3 日間、気象器内で $^{14}\text{CO}_2$ ガスを曝露した。この期間、気象器の開閉は行わず、気象器外の空気の入出りを限りなく制限し、給水は行わなかった。

栄養生長期および登熟期、どちらの期間がより収穫時における穂部の ^{14}C 量に影響するか検討するために、同じ気象器内に上部を開放したビニール (W 450 mm × D 450 mm × H 650 mm) を準備し、その中心に $^{14}\text{CO}_2$ ガス源 (^{14}C 標識酢酸溶液を添加したホーネンス土壤) を、そしてその $^{14}\text{CO}_2$ ガス源の周りに水稻 3 ポットを設置した。つまり、ビニール内に置いた 3 ポットは、ビニール外にある 4 ポットより多くの ^{14}C ガスに暴露される状況を作った。また、ビニール内に置く 3 ポットは栄養生長期と登熟期でそれぞれ別のポットとし、栄養生長期および登熟期のいずれの時期においてもビニール内に設置しなかった 1 ポットを、コントロールとした。このコントロールポット的水稻は、ビニール上部から拡散した ^{14}C ガスで暴露される状況であった。

収穫した水稻の茎葉部、籾殻、玄米の ^{14}C 濃度を表 3.4-1 に示す。分析した全ての試料において ^{14}C が検出された。コントロールにおいても ^{14}C が検出された。コントロールは ^{14}C 源を囲うビニールの中で曝露を行っていない試料なので、ビニール囲い上部の開口部から拡散した $^{14}\text{CO}_2$ ガスを取り込んだと考えられる。

表 3.4-1 収穫した水稻各部位における ^{14}C 濃度

部位	Activity concentration of ^{14}C (Bq/g-dry)					
	高温			低温		
	栄養生長期	登熟期	コントロール	栄養生長期	登熟期	コントロール
茎葉部	71.7 ± 4.4	37.8 ± 7.5	49.0	145.5 ± 18.8	143.1 ± 18.9	162.5
籾殻	19.5 ± 0.8	18.7 ± 8.6	19.0	94.8 ± 11.2	139.4 ± 46.2	170.5
玄米	25.3 ± 4.5	24.3 ± 16.1	21.3	72.1 ± 37.8	118.3 ± 20.9	136.6

^{14}C の取り込みに対する曝露時期の効果は、高温条件で栽培した水稻の茎葉部においてのみ観察された (図 3.4-1)。水稻を家畜飼料として用いる場合、茎葉部と種子を丸ごと発酵し飼料とする。そのため、水稻を飼料としてした場合、栄養生長期に ^{14}C で曝露されると ^{14}C による汚染度が高くなる可能性がある。

^{14}C の取り込みに対する気温の効果は曝露時期の効果よりも明確であった。各部位の ^{14}C 濃度を気温で比較した結果を図 3.4-2 に示す。栄養生長期に曝露した玄米を除き、いずれも低温で栽培した水稻において ^{14}C 濃度が高くなった。将来、現在より低温で水稻栽培が行われることになれば、水稻への ^{14}C の移行量は現在の試算よりも多くなる可能性を、この結果は示唆している。

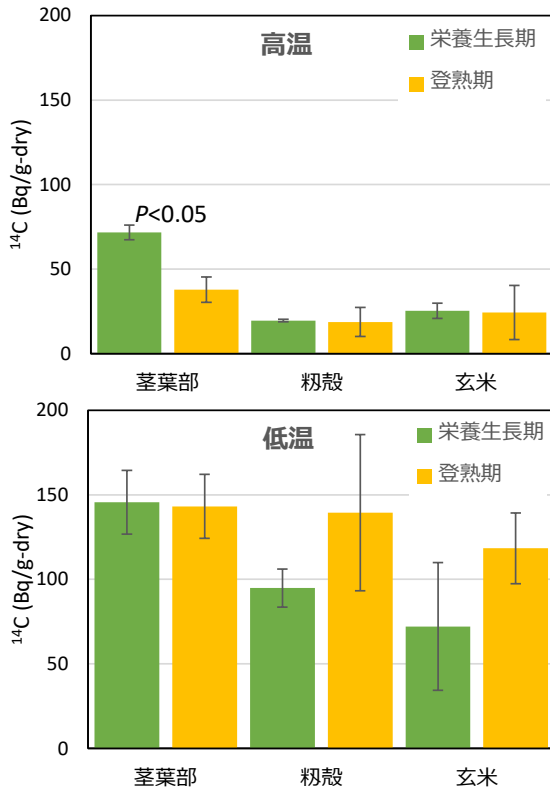


図 3.4-1 ^{14}C 取り込み濃度に対する曝露時期の効果

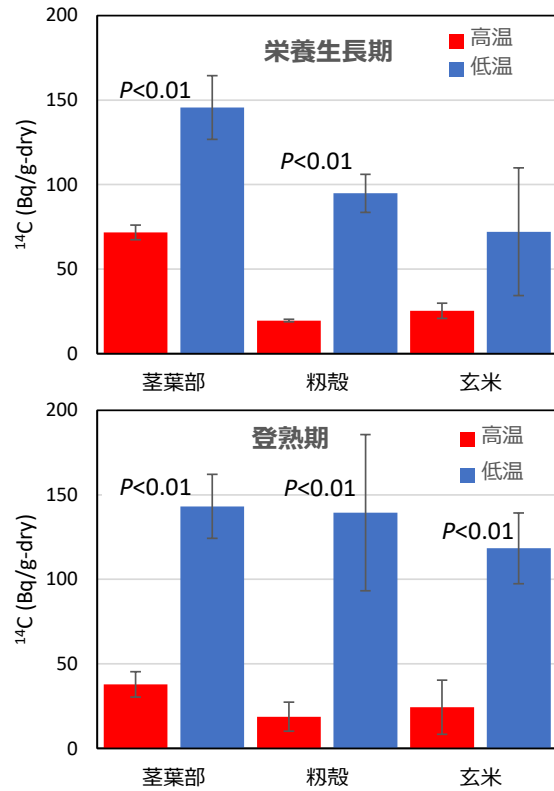


図 3.4-2 ^{14}C 取り込み濃度に対する気温の効果

微生物活動と水稻による $^{14}\text{CO}_2$ の取り込みに対する気温の効果を明らかにするために、水稻栽培期間中に同じ気象器内で微生物活性測定のためのデシケータ試験を行った。デシケータには $^{14}\text{CO}_2$ ガス源を入れて密封し、発生した CO_2 と $^{14}\text{CO}_2$ を測定した。実験期間中、デシケータ内の CO_2 濃度は上昇し続けたが、 $^{14}\text{CO}_2$ の発生は 24 時間以内に収束した。この結果は、微生物の活動は継続しているにもかかわらず ^{14}C 標識酢酸は 24 時間以内に活発に利用されなくなることを意味している。また、気温は $^{14}\text{CO}_2$ 発生速度に影響するが、 $^{14}\text{CO}_2$ 発生量には影響しないことがわかった。本試験では、高温、低温どちらの条件においても初期添加量の約 6% が $^{14}\text{CO}_2$ として大気中に放出された。

水稻の ^{14}C 曝露試験ではデシケータ試験と同じ手順で作成した ^{14}C 源を気象器内に設置した。従って、水稻の ^{14}C 曝露のために気象器内に設置した ^{14}C 源からは、デシケータ試験と同程度の $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生したと考えられる。気象器内に設置した ^{14}C 源 (2 MBq) の 6% が $^{14}\text{CO}_2$ ガスとして放出されたとすると、気象器内で 120 kBq の $^{14}\text{CO}_2$ ガスが放出されたと試算される。気象器の空間体積は約 5.3 m^3 なので、もし発生した $^{14}\text{CO}_2$ がこの気象器内に均一に分布したとすると、その濃度は 22.6 kBq/ m^3 となる。玄米中の ^{14}C 濃度は 24.3 Bq/g-dry から 136.6 Bq/g-dry なので (表 3.4-1)、立方メートル当たりの ^{14}C 濃度に対する玄米中の ^{14}C 濃度の割合は 1.0 $\text{m}^3/\text{kg-dry}$ から 6.0 $\text{m}^3/\text{kg-dry}$ と見積もられた。

最後に低温条件で栽培した水稻で ^{14}C 濃度が高くなる理由について、微生物の活動を踏まえて考察した (図 3.4-3)。これまでの調査結果から、気温は明らかに微生物活動に影響する。但し、その影響は $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度に対して顕著であり、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生総量に対しては影響が小さい。 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度が緩やかなために、低温では大気中での拡散速度も緩やかになる。土壌から発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスの一部は、まず水稻群落内における光合成により消費される。但し、栄養生長期や登熟期において、群落内に届く光量は茂った葉により制限されるので $^{14}\text{CO}_2$ はほとんど利用されず、多くは群落頂や、さらには群落外へと拡散するであろう。拡散も低温条件より高温条件で速くなるので、群落外へ

と移行した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは、高温条件において希釈されやすいと考えられる。光を多く得ることができる群落外では、群落内と比較して活発に光合成が行われる。従って、群落外で $^{14}\text{CO}_2$ ガス濃度が高くなる低温条件において、 $^{14}\text{CO}_2$ ガスがより多く取り込まれると考えられる。以上のような理由で、低温条件において玄米中の ^{14}C 濃度が高温条件のそれよりも高くなったと考えられる

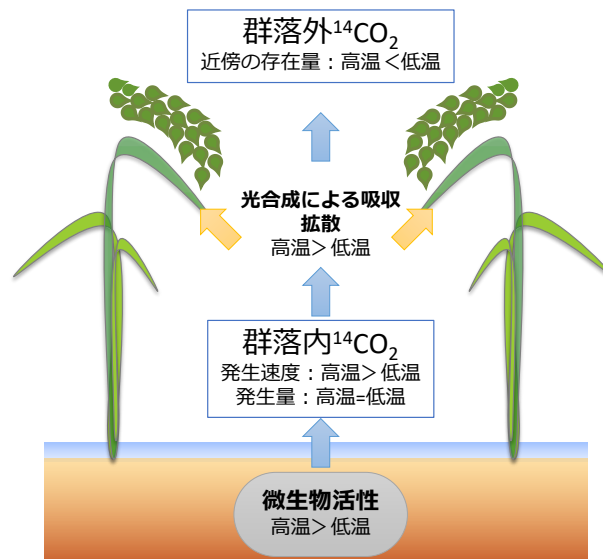


図 3.4-3 水稻による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果

3. 5. 放射性炭素の水稻移行モデルの構築

3.5.1. モデル構築の全体計画

TRU 廃棄物の地層処分に関わる安全評価において、生活圏における ^{14}C の移行プロセスと被ばく経路について適切にモデル化を行い、ヒトへの影響を評価することが重要である。水稻は我が国の主要作物であることから、将来にわたっても重要な農作物であると考えられる。そこで、本事業では水田における ^{14}C の移行プロセスに着目し、水稻への ^{14}C 取り込みに対する環境因子の影響について調査を行ってきた。この移行プロセスに影響する因子は気温、pH、酸化還元電位等様々であり、これら全てについて調査することは不可能である。また、それら全ての環境因子の影響を組み込んだモデルは複雑で現実的ではない。そこで、微生物活動がこれらの因子を統括する指標となりうる可能性について検討するため、実験的データを蓄積してきた。微生物活動を考慮したこれらの実験的データおよび文献から得られた情報を基に、 ^{14}C の水稻移行モデルを構築し、水稻による ^{14}C の取り込みに対する重要因子の抽出を行った。

平成 25 年度は水稻による ^{14}C の取り込みに対する環境因子の影響について文献調査を行った。平成 26 年度は水稻群落近傍大気と環境大気の移行半減期の知見の収集と、微生物による有機物分解速度と炭素移行の関係について解析を行い、得られた情報をモデルに反映した。平成 27 年度は本事業で得られた実験データを用いて、炭素の大気移行に対する気温の効果について検討し、得られた情報をモデルに反映した。平成 28 年度は炭素の大気拡散に影響すると考えられる風向風速について、実際の圃場でデータ収集を行い、得られた情報をモデルに反映した。さらに、これまでに構築したモデルの環境移行パラメータを対象に不確実さ伝播解析を行い、水稻による ^{14}C の取り込みに対する環境因子を確認した。平成 29 年度はこれまでに構築したモデルの水稻内部パラメータを対象に不確実さ伝播解析を行い、水稻による ^{14}C の取り込みに対する環境因子を確認した。そして、これまで得られた情報を基

に構築したモデルのモデルパラメータの重要度評価を行った。

3.5.2. 平成 25 年度作業

気温の上昇により微生物活動が活発となり、大気中 CO₂ 濃度が高くなる可能性がある。そこで、水稻の生長に対する気温および CO₂ 濃度の効果について、文献調査の結果を基に解析を行った。水稻は CO₂ を取り込むことにより生長するので、生長に対する効果は、CO₂ を取り込みに対する効果とも言える。

3.5.2.1. 水稻の生長に対する気温と CO₂ 濃度の効果

植物の生長に対する CO₂ 濃度および気温（または葉温）の影響に関する報告（Ishii et al., 1977, 北宅 2005）を基に解析を行うことで、これらの二つの環境因子が水稻の生長に与える影響は、式 3.5-1 の回帰式で表すことができた：

$$C_{adj} = (0.0147 \cdot \ln(T_{air}) - 0.0342) \times C_{CO_2} - 2.2127 \cdot \ln(T_{air}) + 6.7963 \quad \text{式 3.5-1}$$

ここで、

C_{adj} ; イネ重量に対する補正係数（-）

T_{air} ; イネ生育周辺の気温（近傍大気の気温、°C）

C_{CO_2} ; イネ生育周辺の CO₂ 濃度（近傍大気の CO₂ 濃度、ppm）

である。

現在、水稻全体モデルで採用している水稻生長モデルには、CO₂ 濃度や気温のパラメータは含まれていない。そのため、式 3.5-1 の回帰直線を直接水稻生長モデルに反映することはできない。そこで、式 3.5-1 の回帰直線から得られた補正係数を用いて、現在の水稻生長モデルで得られる値を補正した。補正係数であるが、CO₂ 濃度と気温の基準値をそれぞれ 370 ppm と 20°C とし、各 CO₂ 濃度と気温の補正係数を導き出した。一例として、基準値に対し CO₂ 濃度が 470 ppm に変化した場合と、気温が 25°C に変化した場合の効果について、茎葉部における生長曲線を補正した結果を図 3.5-1 に示す。100 ppm, あるいは 5°C の気温上昇が 20% 程度水稻の生長を促すことが確認できた。また、穂部についても同様の結果が得られた。

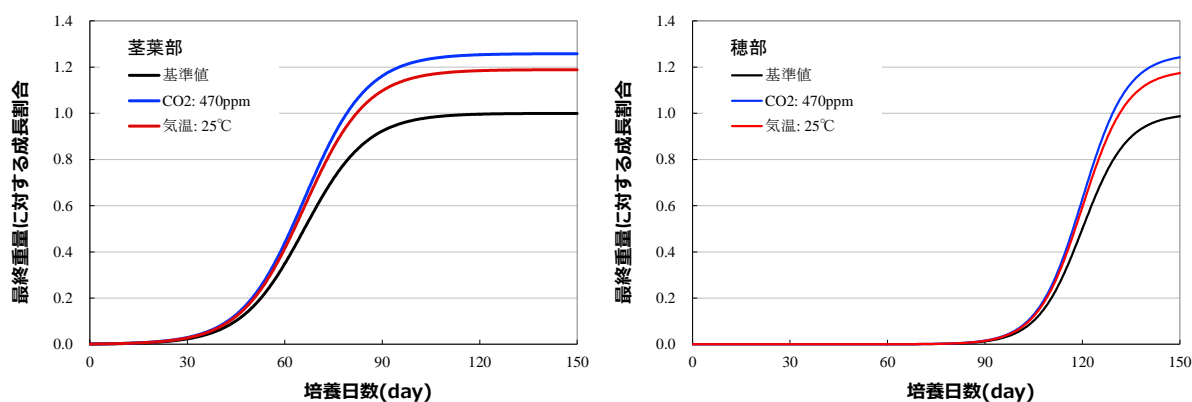


図 3.5-1 茎葉部の生長に対する CO₂ 濃度と気温の効果

3.5.2.2. モデルへの適用

篠崎 (2005) は、水稻の生長に伴い群落内と群落外における風速差が大きくなることを報告している。従って、水稻全体モデルにおいても、水稻の生長段階により近傍大気と環境大気との CO₂ 交換速度を変えることを検討した。つまり、近傍大気から環境大気への移行について、出穂前後で移行半減期を変更できるようにモデルを改良した。現在、近傍大気-環境大気の移行半減期は全期間を通じて 0.1 日に設定されているが、これを 10 日から 1000 日まで変化させたところ、穂部の ¹⁴C 濃度は急激に増加した。一方、出穂前における近傍大気-環境大気の移行半減期を 0.1 日に固定し、出穂後の移行半減期を 10 日から 1000 日まで変化させたところ、半減期を変更した出穂後に穂部の ¹⁴C 濃度は急激に増加した。これらの結果は全て、移行半減期が長くなることで穂部の ¹⁴C 濃度が上昇することを示している。CO₂ 濃度と気温についても感度解析を行ったが、近傍大気-環境大気の移行半減期の影響と比較すると、その効果は小さいことが分かった。以上の解析により、近傍大気-環境大気の移行半減期が水稻穂部における ¹⁴C 濃度に強く影響している可能性があることが分かった。

3.5.3. 平成 26 年度作業

近傍大気と環境大気の移行半減期は水田における水稻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平成 25 年度の調査で明らかになった。そこで平成 26 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稻全体モデルの精緻化を行った。また、土壌微生物の呼吸活性量から ¹⁴C のガス化が推定できるか検討するために、水田における ¹⁴C の挙動に係わる事象について文献調査を行い、水稻全体モデルの精緻化に利用した。

3.5.3.1. 近傍大気-環境大気移行半減期

Saito et al. (2005) は、稲の出穂直後において摩擦速度が大きい日中では群落内部の CO₂ 貯留量が増加しないことを示した。ただし、夜明け時点と日没直後で群落内の CO₂ 貯留量が減少しており、この時、群落内部と群落上部で CO₂ ガス交換が起こったと考えられている。CO₂ ガス交換量を日平均することで、これを移行半減期に代用できる可能性がある。そこで、群落内の CO₂ 貯留量の時間変化から ¹⁴C 移行半減期の推定を試みた。試算方法の詳細は過年度の報告書を参考にされたい (放射線医学総合研究所, 2015)。この推定では、水田 1 m² 当たり空気が通過できる空間が 2.0×10⁻³ m³, 3.9×10⁻⁴ m³, および 3.9×10⁻⁴ m³, 1 m³ 存在したと仮定し、1 m³ の空気が群落上部に移動するのに必要な時間を算出した。その結果、それぞれの仮定における移行半減期は 1.8 日, 8.9 日, および 17.7 日と試算された。群落上部と群落内部間で積極的なガス交換は行われていないので (矢吹, 1990; Sato et al., 2005), 本試算による移行半減期は現実的な値と思われる。少なくとも、修正前モデルにおいて移行半減期の最大値は 2 日と設定しているが、この半減期は速すぎであり、例えばガス交換され難いとしても 50 日を超えるような長い移行半減期は適当ではないと思われる。

以上の結果を基に、水稻の収穫までの期間を群落未発達期 (0-49 日目), 群落生長期 (50-58 日目), そして群落成熟期 (59-150 日目) に分類し、それぞれの期間における移行半減期を設定した。群落未発達期は草丈も小さいことから、近傍大気と環境大気の区別は難しいが、地表面に近いところでは風速が小さくなるので (矢吹, 1990), 近傍大気と環境大気間で均一に大気が混合されている状態ではない。そこで、群落未発達期の近傍大気-環境大気における移行半減期は、修正前モデルの下限值 (0.1 日) と上限値 (0.5 日) に設定した。群落生長期については群落自体ある程度形成されているが、水稻がまっすぐに伸びた状態であることから群落上部へのガス移行があると想定される。群落未発達期と群落成熟期の間となることから両期間の移行半減期の幾何平均として算出した。つまり、下限側は

0.5 日、上限側は 3 日とした。群落成熟期では群落内部から上部への移行は遅いと推定される。まだ今後の検討が必要であるが、前述の試算結果を参考に 3 日から 17 日の不確実さ幅を与え、基準値として中間値の 10 日を群落成熟期における近傍大気から環境大気への移行半減期とした。

3.5.3.2. 土壌微生物活性に関するモデルパラメータの設定

温度が 10°C 上昇したときの反応速度比は温度係数 (Q_{10}) と呼ばれる。Zhang et al. (2007) は、中国の水田において有機物分解速度の Q_{10} が 1.0 から 2.4 であることを報告している。Wagai et al. (2013) は Q_{10} の変動要因について有機物の構造に着目した研究を行い、分解されやすい炭素と分解されにくい炭素の比が Q_{10} と良く一致することを明らかにした。水稻全体モデルでは、有機物の分解しやすさ、しにくさの点について反映することが可能である。修正前のモデルでは土壌から近傍大気への移行半減期は、灌漑水が無い状態では 25 日と固定した値を設定している。そこで、 Q_{10} 値を用いて季節変動を考慮したモデルに改良することを検討した。つまり、水稻全体モデルにおける土壌 1 (易分解性土壌) コンパートメントから灌漑水および近傍大気への移行半減期に関して、土壌の微生物活性を考慮したパラメータになるように設定した。この設定において、1 年を水稻栽培期間 (5 月から 9 月) とそれ以外の期間 (10 月から 4 月まで) に分けて検討した。

水稻栽培期間は、有機物が分解され発生した ^{14}C ガスが、灌漑水の有無によって土壌 1 から灌漑水へ移行する場合と近傍大気へ移行する場合がある。さらに中干し及び収穫前落水時では、土壌内に蓄積された無機炭素が一気に大気に放出されるため、この時の移行半減期は分解半減期とは性質が異なる。これらを考慮して、以下の様に移行半減期を設定した。

- ・ 灌漑水がある場合 (土壌 1 から灌漑水への移行半減期)
基準値 : 6.1 日
不確実さ幅 : 1.9 日から 24 日 (対象期間の月別最大最小値)
- ・ 灌漑水がない場合 (土壌 1 から近傍大気への移行半減期)
基準値 : 2.5 日 (現在の設定値)
不確実さ幅 : 1.9 日から 24 日 (対象期間の月別最大最小値)

一方、水稻栽培期間外は灌漑水が無いため土壌 1 から近傍大気への移行半減期のみを考慮すればよい。そこで、1 月~4 月及び 10 月~12 月の平均の分解半減期を移行半減期とし、以下のように設定した。

- ・ 水稻生育期間外 (土壌 1 から近傍大気への移行半減期)
基準値 : 67 日
不確実さ幅 : 27 日から 114 日 (対象期間の月別最大最小値)

3.5.3.3. 水稻全体モデルによる試解析

平成 26 年度に変更したパラメータの基準値を水稻全体モデルに反映し、水田における ^{14}C の挙動解析を行った。モデルによる各コンパートメント内の ^{14}C 存在量を図 3.5-2 に示す。水稻が生長するにつれ近傍大気内 ^{14}C 量が増加し、中干し期にピークとなった。この値は平成 25 年度モデルに対して約 1.3 倍であった。

収穫時における穂部や茎葉部の¹⁴C存在量は、平成26年度の場合、平成25年度と比較して茎葉部で30%、穂部で15%多くなった。これは出穂期までの茎葉部の¹⁴C存在量が異なるためであり、茎葉部における¹⁴C量の増大は出穂までの近傍大気内の¹⁴C量の違いに起因している。また、基本解析結果から、出穂前の時点でも近傍大気の¹⁴C量が大きいと茎葉部の¹⁴C量が多くなり、結果的に穂部の¹⁴C量が増えることが確認できた。

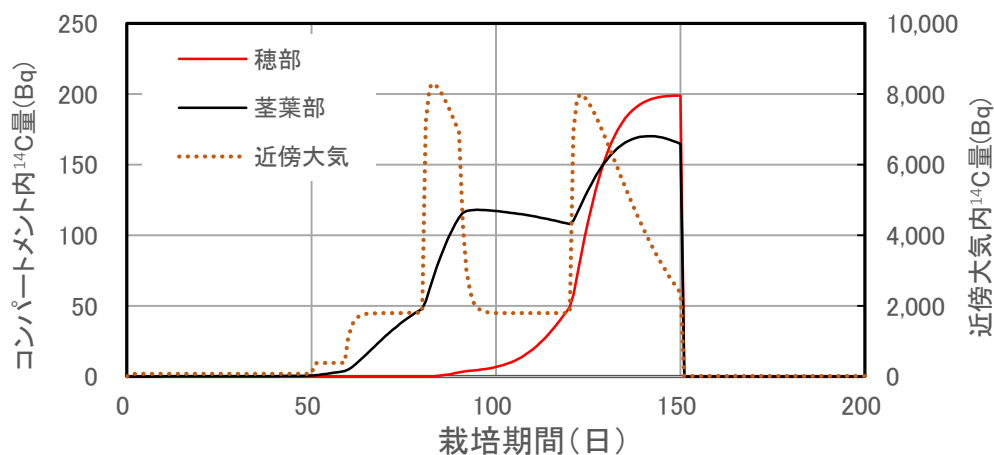


図 3.5-2 平成26年度作業におけるモデル解析結果

3.5.4. 平成27年度作業

平成27年度に実施したトレーサ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の精緻化を行った。

3.5.4.1. 微生物による炭素の取り込みおよび分解

水田における¹⁴Cガスの発生は主に微生物による有機物の分解に依存しており、その微生物の活動は周囲の温度に影響される。そこで、¹⁴C標識酢酸分解に伴う¹⁴CO₂ガス発生に対する温度効果についてトレーサ実験を行い、水稻全体モデルパラメータの精緻化に利用できるか検討した。

本トレーサ実験は、¹⁴C標識酢酸を添加した湛水水田土壌を10°Cから30°Cまで5°C刻みの気温で10日間連続培養し、各培養日毎に土壌を脱イオン水で洗浄し、その洗浄済み土壌を再度7日間培養するものであった。10日間連続培養においては、毎日、固相、液相、気相における¹⁴C分配比を求め、その後の7日間培養では7日目に固相、液相、気相における¹⁴C分配率を求めた。その結果、温度の効果は固相や気相への移行速度に対し影響はあるが、最終的な各相への分配比には影響しないことが分かった。但し、10°Cで培養した時のみ気相への分配比が減少し、固相及び液相への分配比が増加したが、通常、水稻は10°C以上の気温で栽培することから、今回の検討においてこの温度は考慮しなかった。また、微生物による¹⁴C標識酢酸の分解半減期も、培養温度による影響は小さいことが分かった。この分解半減期は、10°C~30°Cの培養温度の平均で約55日であることが分かった。この値は、平成26年度のモデルで設定している範囲内であり、改めて設定を変更する必要がないと判断した。つまり、現状のモデルパラメータの範囲は、微生物による有機物の分解と、菌分解に対する気温の効果が含まれていると結論できる。

3.5.4.2. 微気象パラメータ

水稻による ^{14}C の取り込みにおいて、近傍大気-環境大気間移行半減期は重要な移行パラメータの一つである。従って、水稻全体モデルの精緻化には、より現実的な近傍大気-環境大気間移行パラメータを得ることが重要である。そこで、模擬水田試験およびイネ科草本植物群落試験を行い、水稻全体モデルの精緻化に資するデータを取得した。模擬水田試験およびイネ科草本植物群落試験の詳細については過年度の報告書を参考にされたい（放射線医学総合研究所, 2016）。

模擬水田試験およびイネ科草本植物群落試験の結果、群落内の風速は、群落頂や群落頂の更に上部の群落外の風速とは独立していることが確認された。また、群落頂や群落外において水平方向の風速が小さい場合、群落内で上方向の風が発生し易いことも確認できた。群落頂で水平方向の風が吹いている場合、群落内部から群落外には風が抜けず、これは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た。また、群落内では下方向に吹く風の頻度が低いことも分かった。

以上の観察結果を水稻全体モデルに反映することを試みた。モデルに反映するに当たり、イネ科草本植物群落試験で得られたデータを利用した。この試験では、群落外において水平方向の風速が 2 m/s 以下の場合、群落内で鉛直上方向の風が発生することがあった。そこで、水平方向の風速が 2 m/s 以下の場合に、群落頂部で上向き風が発生する割合を算定し、次に、この条件の風速が年間で発生する割合を算出した。これらから、1 日当たり群落内部から外部へ空気が移行する割合を算出した。その結果、群落外で 2 m/s 以下の風速の発生頻度が 0.242、その際に群落内から群落外へ風が抜ける割合は 0.33 であった。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。これは、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。

次に、観測データから水稻全体モデルにおける近傍大気と環境大気の移行半減期の算出を試みた結果、初期 CO_2 濃度が半分となるまでの日数は約 43 日と計算された。平成 26 年度の作業において、水稻の収穫までの期間を群落未発達期（0-49 日目）、群落生長期（50-58 日目）、そして群落成熟期（59-150 日目）に分類したが、本調査で対象とした群落は LIA 値から判断して群落成熟期に分類される。そこで、群落成熟期における移行半減期の最大値を、先に述べた 43 日を丸めた値、40 日と設定した。また、最小値を最大値の 1/10 とし、4 日と設定した。基準値は最大値と最小値の間である 20 日とした。群落未発達期と群落生長期については観測データがないが、群落生長期については、群落成熟期の結果との関係を考慮して、上限値を群落成熟期の下限値に変更した。以上より、「近傍大気から環境大気の移行半減期」を以下のように見直した。

群落未発達期（0-49 日目）： 0.1～0.3～0.5 day（既存のまま）

群落生長期（50-58 日目）： 0.5～2～4 day（最大値を 3day から 4 day に変更）

群落成熟期（59-150 日目）： 4～20～40 day（全て変更）

3.5.4.3. 調査結果のモデルへの適用

平成 27 年度は調査で得られたデータを基に、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について検討したが、最終的には群落生長期と群落成熟期における近傍大気と環境大気の移行半減期のみモデルパラメータ値を変更した。変更したパラメータの基準値を水稻全体モデルに反映し、水田における ^{14}C の挙動解析を行った。モデルによる各コンパートメント内の ^{14}C 存在量を図 3.5-3 に示す。平成 26 年度モデルの結果（図 3.5-2）と比較して、近傍大

気から環境大気への移行半減期が大きくなった 59 day 以降で、近傍大気の ^{14}C 量は、中干し期において平成 26 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現れており、モデルが適切に機能していることを示している。また、平成 26 年度モデルの結果に対して、茎葉部の ^{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、平成 26 年度の約 200 Bq から平成 27 年度では約 350 Bq と 1.75 倍に顕著な増加を示した。平成 27 年度において変更したモデルパラメータは群落成熟期における近傍大気と環境大気の移行半減期を 10 日から 20 日に変更しただけである。従って、近傍大気と環境大気の移行半減期が長くなれば、穂部の ^{14}C 濃度が上がると言える。

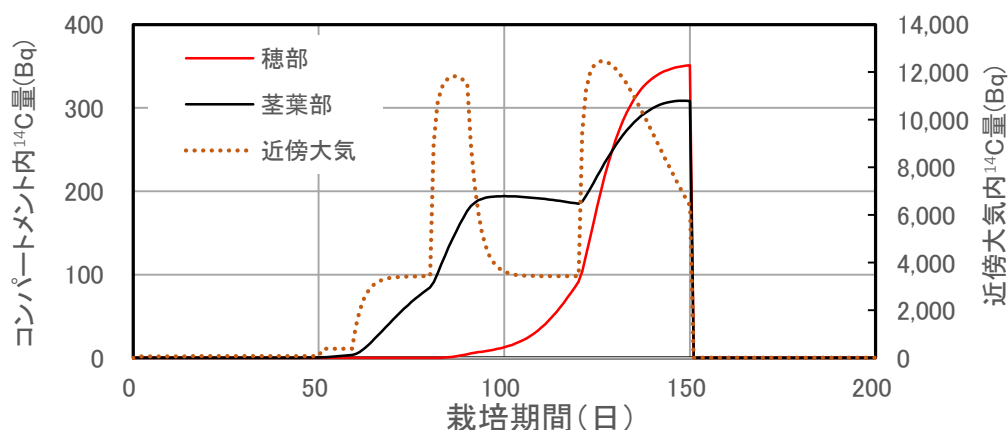


図 3.5-3 平成 27 年度作業におけるモデル解析結果

3.5.5. 平成 28 年度作業

水稻全体モデルのモデルパラメータの重要度を評価するために、不確実さ伝播解析を行った。また、近傍大気-環境大気間移行パラメータの精緻化を図るために、平成 27 年度に引き続き、実環境において微気象データを取得し、解析したデータをモデルパラメータに反映した。最後に、見直したモデルパラメータの影響度は水稻全体モデルを用いて評価した。

3.5.5.1. 環境コンパートメントの不確実さ伝播解析

水稻全体モデルは環境コンパートメントモデルと水稻内部コンパートメントモデルとから構成されている。平成 28 年度は、環境コンパートメントを対象として不確実さ伝播解析を行い、収穫期における水稻穂部の放射性炭素量に対する各モデルパラメータの影響度合いを評価した。

不確実さ伝播解析は以下の手順で行った：1) 入力データの抽出および入力データセットの準備、2) 水稻全体モデルによる解析、3) 収穫時の穂部における ^{14}C 量と各パラメータの相関関係の評価、4) 影響度が高いパラメータの抽出。この解析を行うに当たり、用いるデータは一様分布と仮定し、各パラメータのサンプリングは Statistical Pre Processor (PREP; Homma and Saltelli 1991) を用いてモンテカルロ法で行った。不確実さ伝播解析による各パラメータの影響は、SPOP コード (Saltelli and Homma, 1992) による相関分析で評価した。この評価では、偏相関係数 (PCC ; Partial Correlation Coefficient) 及び順位偏相関係数 (PRCC ; Partial Rank Correlation Coefficient) を指標とした。

相関分析の結果を表 3.5-1 に示す。PCC も PRCC もほぼ同じ結果が得られた。最も相関が高いのは、「近傍大気-環境大気(中干し後)」であった。つまり、水稻全体モデルの環境移行パラメータにおいて、収穫時における穂部の ^{14}C 含量に最も影響を与えるパラメータは、近傍大気-環境大気移行半減期であることが確認できた。

表 3.5-1 収穫時の穂部 ^{14}C 含量に対する環境移行パラメータの寄与

パラメータ	PCC* 相関係数	PRCC* 相関係数
近傍大気⇄環境大気(中干し前)	-0.06 (10)	0.04 (11)
近傍大気⇄環境大気(中干し期)	-0.2 (7)	-0.02 (12)
近傍大気⇄環境大気(中干し後)	0.87(1)	0.92 (1)
灌漑水→近傍大気	0.02 (12)	-0.05 (9)
近傍大気→灌漑水	0.21 (6)	0.22 (6)
土壌1→近傍大気(水稻生育期、灌漑水無し)	-0.75 (2)	-0.75 (2)
土壌1→近傍大気(水稻無し、灌漑水無し)	-0.12 (8)	-0.16 (7)
近傍大気→土壌1(灌漑水無し)	0.57 (4)	0.64 (4)
土壌1→灌漑水	0.27 (5)	0.28 (5)
灌漑水→土壌1	0.03 (11)	0.05 (10)
土壌2→土壌1	-0.62 (3)	-0.64 (3)
灌漑水→土壌2	-0.11 (8)	-0.08 (8)

* ()内は順位

3.5.5.2. 近傍大気 - 環境大気 of 放射性炭素移行半減期の精緻化

これまでの調査および試験結果から、より現実的な水稻全体モデルの構築において、近傍大気-環境大気間の移行半減期の精緻化は欠くことができないことが確認できた。そこで、平成 28 度は実際の水田環境で取得した微気象観測データを用いて、この移行半減期の精緻化を試みた。

水稻栽培圃場 (50 m×20 m) のほぼ中央地点において、水平および鉛直方向の風向風速データ、そして水稻群落内の CO_2 濃度データを取得した。観察は 6 月中旬から 9 月中旬にかけて合計 8 回行った。この観測の結果、以下が明らかとなった。

- ・近傍大気から環境大気への移行は、主に水平移動であった。
- ・群落内部から群落上部へのガス移行はほとんど起こらなかった。
- ・上の結果は、田植え直後を除き水稻の生長段階に因らなかった。
- ・群落内部のガスの水平移動速度は 0.08 m/s から 0.28 m/s であった。但し、群落内のガスは渦状態で水平方向移動している可能性があるため、ガスの塊の水平移動速度はさらに小さい可能性がある。

以上より、圃場の幅、長さ、群落内部のガス水平移動速度の変動幅を考慮した結果、近傍大気と環境大気 of 移行半減期は、基準値を 0.1 day とし、下限値と上限値をそれぞれ 0.01 day と 1 day に設定した。また、平成 27 年度では、群落未発達期、群落生長期、群落成熟期それぞれに移行半減期を設定したが、平成 28 年度は全ての期間、同一の移行半減期とした。見直しした基準値を用いて行った解析では、収穫時における水稻穂部の ^{14}C 含量は昨年度と比較して 1 桁減少した。これは近傍大気から環境大気への移行半減期が短くなったことで、近傍大気内の ^{14}C 量が少なくなり、それに伴いイネへの ^{14}C 取り込み量も少なくなったことが要因と考えられる。

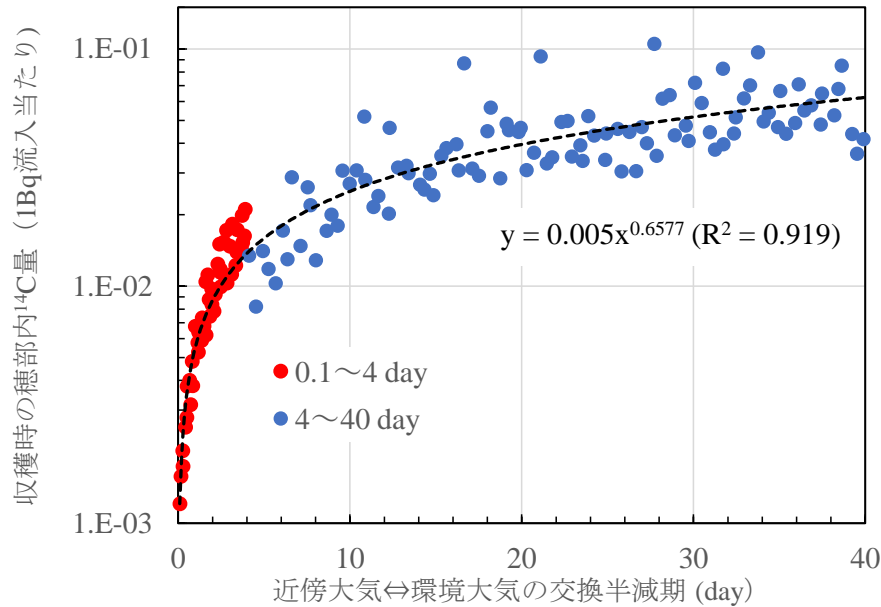


図 3.5-4 収穫時における穂部の ¹⁴C 含量と近傍大気と環境大気の移行半減期の関係

近傍大気と環境大気の移行半減期、灌漑水から近傍大気への移行半減期、および土壌 1 から近傍大気への移行半減期の各パラメータに関して、再度不確実さ伝播解析を行ったところ、収穫時における穂部の ¹⁴C 含量と近傍大気と環境大気の移行半減期間に有意な相関関係が認められた (図 3.5-4)。また、近傍大気と環境大気の移行半減期が短くなるにつれ、穂部の ¹⁴C 含量が極端に少なくなることが分かった。

3.5.6. 平成 29 年度作業

水稻全体モデルのモデルパラメータの重要度を評価するために、水稻内部モデルパラメータの重要度評価、および刈り株のすき込み等を考慮した多年解析を行った。最後に、これまでに得られた知見を総合し構築した水稻全体モデルに関してモデルパラメータの重要度評価を行い、水稻による ¹⁴C の取り込みに対する重要因子を抽出した。

3.5.6.1. 水稻内部コンパートメントの不確実さ伝播解析

水稻内部コンパートメントモデルは無機炭素部、茎葉部、および穂部の 3 つのコンパートメントから成る。平成 28 年度に実施した不確実さ伝播解析手法を用いて、水稻穂部における ¹⁴C 蓄積に対する水稻内部コンパートメントの合計 10 のモデルパラメータについて重要度評価を行った。

相関分析の結果を表 3.5-2 に示す。PCC も PRCC もほぼ同じ結果が得られた。最も相関が高いのは、「穂部への光合成産物の直接供給割合 (γ 係数) の構成式のパラメータ A」であり、次いで「 γ 係数の構成式のパラメータ B」であった。 γ 係数の詳細については過年度の報告書を参考にされたい (放射線医学総合研究所, 2010)。 γ 係数以外で収穫時の穂部 ¹⁴C 含量と相関が高かったのは、茎葉部と穂部における吸収した CO₂ の乳熟期以降の維持呼吸割合であった。これらのパラメータは収穫時の穂部 ¹⁴C 含量と相関が高いのだが、水稻全体モデルにおける不確実さ幅が小さく穂部の ¹⁴C 含量にほとんど影響しないことが分かった。

表 3.5-2 収穫時の穂部 ^{14}C 含量に対する水稻内パラメータの寄与

パラメータ	PCC* 相関係数	PRCC* 相関係数
CO_2 の近傍大気からの吸収割合	0.06 (8)	0.06 (9)
吸収した CO_2 に対する茎葉部の成長呼吸の割合	0.29 (7)	0.21 (7)
吸収した CO_2 に対する穂部の成長呼吸の割合	0.69 (5)	0.58 (5)
吸収した CO_2 に対する茎葉部の維持呼吸の割合	-0.06 (9)	0.02 (10)
同上	0.86 (3)	0.81 (3)
吸収した CO_2 に対する穂部の維持呼吸の割合	-0.02 (10)	-0.09 (8)
同上	-0.83 (4)	-0.74 (4)
γ ファクター*のパラメータ A	-0.94 (1)	-0.92 (1)
γ ファクター*のパラメータ B	-0.92 (2)	-0.9 (2)
γ ファクター*のパラメータ d	-0.33 (6)	-0.29 (6)
γ ファクター*のパラメータ C		

* ()内は順位

3.5.6.2. 多年解析における不確実さ伝播解析

水稻収穫後に残存する刈り株は炭素源として土壤中にすき込まれ、その結果、刈り株中の放射性炭素は翌年度の水稲に取り込まれることが多い。そこで、水稻全体モデルでは茎葉部の一部を刈り株として翌年度以降に持ち越す炭素源とし、更にこの刈り株を易分解性リターコンパートメント（リター1）と難分解性のリターコンパートメント（リター2）の2つのパラメータとしてモデル化している。多年解析では茎葉部から両リターコンパートメントへの ^{14}C 移行割合、およびリターコンパートメントから土壌への移行半減期による収穫時水稻穂部 ^{14}C 含量に対する影響を、不確実さ伝播解析により評価した。

PCC および PRCC を指標として収穫時における穂部の ^{14}C 含量に対する各パラメータの影響を調べた結果を表 3.5-3 に示す。PCC も PRCC も同じ結果が得られた。相関係数は最小でも 0.83 と高く、リターは穂部 ^{14}C 含量に対する影響度が高いことが分かった。しかしながら、不確実さ幅が最大で2倍程度であることから、水稻全体モデルの全パラメータの中では、これら3つのパラメータによる穂部の ^{14}C 含量に対する影響度は小さいと考えられた。

表 3.5-3 収穫時の穂部内 ^{14}C 存在量に対する多年解析に係わるパラメータの寄与

パラメータ	PCC* 相関係数	PRCC* 相関係数
茎葉部(刈り株)内の易分解成分比率	-0.94 (2)	-0.95 (2)
リター1から土壌1への移行半減期	0.83 (3)	0.90 (3)
リター2から土壌2への移行半減期	-0.99 (1)	-0.99 (1)

* ()内は順位

以上の結果を基に、連続曝露および単年曝露に対し、50年の長期的な多年解析を行った。始めに、連続曝露に対する多年解析を行ったところ、リター2のみ ^{14}C 含量が15年間連続で増加したのだが、穂部の ^{14}C 含量には変化が認められなかった。つまり、 ^{14}C の連続曝露において、穂部の ^{14}C 含量に対してリターの影響は小さいことが分かった。

次に、各コンパートメントの基準値に対し、1年目のみ水稻を ^{14}C で曝露し、その後50年間の多年解析を行った。この単年度曝露多年解析において、穂部内 ^{14}C 量は年ごとに急激に減少した。水稻全体モデルにおいて、 ^{14}C は主にリター1とリター2に蓄積されるので、2年目以降の穂部 ^{14}C 含量はリ

ター1とリター2に影響されることが分かった。2年目から5年目までリター1の¹⁴C含量は急速に減少するのだが、この減少に影響され穂部¹⁴C含量も急速に減少する。5年目以降、リター1から穂部へ供給される¹⁴C量がリター2から供給される量を下回る。そのため5年目以降の穂部¹⁴C含量はリター1よりもリター2の¹⁴C含量に影響され、結果的に穂部¹⁴C含量の減少は5年目以前より緩やかになったと考えられる。以上の結果から、単年曝露では、新たな¹⁴Cが流入してこないで曝露した年における穂部¹⁴C量に対して、2年目の穂部¹⁴C量は約2桁(1%未満)、3年目では約4桁(0.01%以下)、5年目では約6桁まで低下し、曝露した年に比べてほぼ無視できる量となると推測された。つまり、水稻全体モデルの環境移行パラメータにおいて、収穫時における穂部の¹⁴C含量に最も影響を与えるパラメータは、近傍大気-環境大気移行半減期であることが確認できた。

3.5.6.3. 水稻全体モデルにおけるモデルパラメータの重要度評価

これまで得られた情報及びデータを基に、水稻全体モデルのモデルパラメータの重要度評価を行った。評価対象として、これまでに実施してきた環境移行パラメータ、水稻内モデルパラメータ、多年解析モデルパラメータの不確かさ伝播解析において、収穫時における水稻穂部¹⁴C含量と相関が高かったパラメータを選定した。

- ・環境移行パラメータ
 - a) 近傍大気⇄環境大気の交換半減期
 - b) 土壌1→近傍大気の移行半減期(土壌内の微生物活性に相当)
- ・水稻内モデルパラメータ
 - c) 穂部への光合成産物の直接移行割合(γ係数)の構成パラメータA
 - d) 穂部への光合成産物の直接移行割合(γ係数)の構成パラメータB
 - e) 茎葉部の維持呼吸の割合-乳熟期後
 - f) 穂部の維持呼吸の割合-乳熟期後
- ・多年解析モデルパラメータ
 - g) リター2→土壌2への移行半減期

ここでの不確かさ伝播解析は多年解析用パラメータを含んでいるので、多年解析(4年)での単年曝露の解析とした。つまり、最初の1年目のみ灌漑水が曝露源となり、2年目以降の栽培時には、リター1とリター2に存在する¹⁴Cが曝露源となる。

穂部における¹⁴C含量の経時変化を図3.5-5に示す。1年目以降、系外から新たな¹⁴Cの供給がないために、穂部における¹⁴C含量は年々減少した。また、本年度検討した水稻内部コンパートメントや多年解析における重要コンパートメントとは異なり、大きな変動幅が得られた。また、その変動幅は年々広がることが分かった。

穂部の¹⁴C含量に対する各パラメータの影響度を評価するために、SPOPコードを用いてPCCおよびPRCC解析を行った。表3.5-4に収穫時の穂部内¹⁴C含量と重要パラメータの確実さ伝播解析結果に基づく相関分析結果を示す。解析を行ったパラメータの中では、環境移行パラメータがPCCおよびPRCC共に相関が高く、穂部の¹⁴C含量は近傍大気中の¹⁴C含量に対する影響度が高いことが確認できた。

2年目以降は刈り株に残存する¹⁴Cがリターコンパートメントを介し、土壌1から近傍大気へ、そして穂部へ移行する。そのため近傍大気の¹⁴C存在量は、土壌1からの移行量に依存するので「土壌1→近傍大気の移行半減期」の重要度が高くなる。このモデル内の「土壌1→近傍大気の移行半減期」

は、土壌内の「微生物活動」を模擬したものである。これまでの実験データより、微生物活動により土壌内にある低分子有機炭素がガス化し、近傍大気中の $^{14}\text{CO}_2$ になることを想定したモデルである。従って、微生物活性が高い（移行半減期が短い）場合、近傍大気中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度の増加し水稻に取り込まれる ^{14}C 量も多くなる。以上より、刈り株だけが曝露源となるような単年曝露の多年解析では、微生物活性の重要度が非常に高いことが分かった。

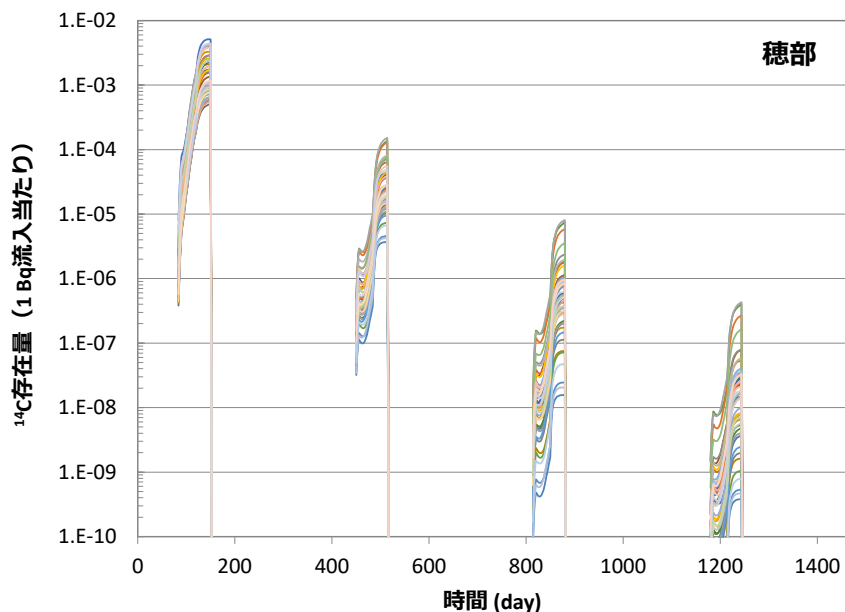


図 3.5-5 多年解析における収穫時穂部 ^{14}C 含量の経時変化

表 3.5-4 収穫時穂部 ^{14}C 存在量に対する多年解析に係わるパラメータの寄与

No.	パラメータ	PCC* 相関係数	PRCC* 相関係数
a	近傍大気⇄環境大気の交換半減期	0.80(1)	0.90(2)
b	土壌1→近傍大気の移行半減期(土壌内の微生物活性に相当)	0.65(2)	0.95(1)
c	穂部への光合成産物の直接移行割合(γ係数)の構成パラメータA	0.05(7)	-0.26(3)
d	穂部への光合成産物の直接移行割合(γ係数)の構成パラメータB	0.11(6)	-0.10(7)
e	茎葉部の維持呼吸の割合－乳熟期後	0.12(5)	0.11(6)
f	穂部の維持呼吸の割合－乳熟期後	0.21(3)	-0.12(5)
g	リター2→土壌2への移行半減期	0.19(4)	-0.22(4)

* ()内は順位

3. 6. まとめ

3.6.1. 水稲による放射性炭素取り込みに対する環境要因の影響

光合成による $^{14}\text{CO}_2$ ガスの取り込みは、水稲への ^{14}C 移行の主要な経路である。しかしながら、生活圏における放射性炭素の移行には、様々な環境要因が影響するため、これらの影響を統括的に評価する事が重要である。土壌微生物は ^{14}C のガス化を担っており、また環境要因にも反応することから、統括的指標となり得ることが期待された。そこで、土壌微生物の呼吸活性および微生物量と ^{14}C のガス化との関係について検討した。

始めにガス化した ^{14}C を測定する方法を開発した。この方法の開発過程で、 ^{14}C 標識酢酸を ^{14}C 源とした場合、発生するガスの主要成分が $^{14}\text{CO}_2$ であることを明らかにした。土壌微生物の呼吸量、および生物量を測定する方法を開発し、これら開発した測定法を用いて $^{14}\text{CO}_2$ 発生との関係を調査した。しかしながら、土壌微生物の呼吸量および微生物量と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量との間に関係性は認められず、本調査の条件では呼吸量や生物量を統括的指標として利用できないことが分かった。土壌特性と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量との関係についても解析したが、関係性は認められなかった。

関係性が見いだせなかった原因を究明するために、水田土壌微生物による炭素資化性について調査した。調査した 95 種類の有機炭素のうち酢酸の資化性は 81 番目であり、水田土壌微生物によって酢酸は利用し難い有機物であることが分かった。さらに、水田土壌に酢酸を添加することにより、微生物の呼吸活性も低下する傾向が確認された。また、トレーサ実験において ^{14}C 源として添加された ^{14}C 標識酢酸は、土壌に添加された直後は利用されるが、時間経過と共に利用されなくなることが分かった。利用されなくなった原因は土壌微生物の活性が抑制されたからでは無いことも確認できた。酢酸は利用しにくい有機物であるため、時間の経過と共に土壌に存在する“より利用しやすい有機物”を利用するようになったことが原因と考えられる。酢酸の利用に対する気温の効果であるが、気温の上昇は初期の $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度を速めるが、最終的な発生量にはほとんど影響しないことが分かった。また、 ^{14}C 標識酢酸を利用し、より多くの $^{14}\text{CO}_2$ ガスを発生させる土壌には、酢酸を利用できる細菌が群集の構成種として存在していることも確認できた。以上の結果より、土壌微生物の呼吸量や生物量と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量との間に関係性が見いだせなかった原因として、酢酸が比較的利用しにくい有機物であること、そして土壌には様々な有機物が存在するために、微生物はそれぞれ利用しやすい有機物を利用して呼吸することが原因として考えられた。

炭素はあらゆる生物の必須元素であることから、TRU廃棄物処分場から生活圏へ移行した ^{14}C も時間と共に様々な化学形態へと変化することが考えられる。移行パラメータは平衡状態での値であることを考えると、自然環境の各コンパートメントにおける放射性炭素同位体比が環境移行パラメータになり得ると考えられる。

水稲による放射性炭素取り込みに対する気温の効果については、異なる気温環境で栽培した水稲を $^{14}\text{CO}_2$ ガスに曝露することで求めた。 $^{14}\text{CO}_2$ ガスによる曝露は、栄養生長期と登熟期に行ったが、これらの曝露期間の違いによる ^{14}C 取り込みにほとんど差は無かった。一方、気温は明らかに水稲による ^{14}C 取り込みに影響した。

3.6.2. 水稲全体モデル

微生物活動を考慮したこれらの実験的データおよび文献から得られた情報を基に、 ^{14}C の水稲移行モデルを構築し、水稲による ^{14}C の取り込みに対する重要因子の抽出を行った。より現実的な移行モデルを構築するために、文献調査、室内実験、および野外における現場調査を行いモデルパラメータの精緻化に資するデータを収集した。最終的に構築した水稲全体モデルに対し不確実さ伝播解析を行い、水稲による ^{14}C の取り込みに対する環境因子を確認した。その結果、土壌 1 から近傍大気への移

行半減期が、収穫時における穂部の ^{14}C 含量に最も影響するパラメータであることが分かった。このパラメータは土壌微生物の活動を反映しているため、微生物活動が穂部の ^{14}C 含量に影響すると言い換えることができる。一方、連続曝露における多年解析では、環境大気と近傍大気の移行半減期が、穂部の ^{14}C 含量に影響する重要パラメータであることが分かった。単年曝露と連続曝露の多年解析の結果から、近傍大気中の ^{14}C 含量に影響するパラメータが穂部の ^{14}C 含量を決定する要因であることが分かった。従って、TRU 廃棄物に関する ^{14}C の安全評価では、近傍大気中の ^{14}C 量に影響する要因を重点的に調査する必要がある。

引用文献

- Baek, S.H., Cui, Y., Kim, S.C., Cui, C.H., Yin, C., Lee, S.T., Im, W.T., 2011. *Tumebacillus ginsengisoli* sp. nov., isolated from soil of a ginseng field. *International journal of systematic and evolutionary microbiology* 61, 1715-1719.
- Castro, H.F., Classen, A.T., Austin, E.E., Norby, R.J., Schadt, C.W., 2010. Soil microbial community responses to multiple experimental climate change drivers. *Applied and environmental microbiology* 76, 999-1007.
- Chen, X., Zhang, L.-M., Shen, J.-P., Xu, Z., He, J.-Z., 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.
- Frölicher, T.L., Winton, M., Sarmiento, J.L., 2014. Continued global warming after CO₂ emissions stoppage. *Nature Climate Change* 4, 40-44.
- Heulin, T., Barakat, M., Christen, R., Lesourd, M., Sutra, L., De Luca, G., Achouak, W., 2003. *Ramlibacter tataouinensis* gen. nov., sp. nov., and *Ramlibacter henchirensis* sp. nov., cyst-producing bacteria isolated from subdesert soil in Tunisia. *International journal of systematic and evolutionary microbiology* 53, 589-594.
- Homma, T., Saltelli, A., 1991. LISA Package User Guide, Part I : PREP (Statistical PREProcessor) Preparation of Input Sample for Monte Carlo Simulations Program Description and User Guide, EUR-13922.
- Ishii, N., Koiso, H., Takeda, H., Uchida, S., 2010. Partitioning of ^{14}C into solid, liquid, and gas phases in various paddy soils in Japan. *Journal of Nuclear Science and Technology* 47, 238-243.
- Ishii, N., Ogiyama, S., Sakurai, S., Tagami, K., Uchida, S., 2015. Environmental transfer of carbon-14 in Japanese paddy fields, in: Nakajima, K. (Ed.), *Nuclear Back-end and transmutation technology for waste disposal*. Springer, Tokyo, pp. 303-309.
- Ishii, R., Ohsugi, R., Murata, Y., 1977. The Effect of Temperature on the Rates of Photosynthesis, Respiration and the Activity of RuDP Carboxylase in Barley, Rice and Maize Leaves. *Japanese journal of crop science* 46, 516-523.
- Itoh, H., Nonoue, Y., Yano, M., Izawa, T., 2010. A pair of floral regulators sets critical day length for Hd3a florigen expression in rice. *Nat Genet* 42, 635-638.
- Japan Atomic Energy Agency, J., The Federation of Electric Power Companies of Japan, F., 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. p. 33.
- Liou, J.S., Balkwill, D.L., Drake, G.R., Tanner, R.S., 2005. *Clostridium carboxidivorans* sp. nov., a solvent-producing clostridium isolated from an agricultural settling lagoon, and reclassification of the acetogen *Clostridium scatologenes* strain SL1 as *Clostridium drakei* sp. nov. *International journal of systematic and evolutionary microbiology* 55, 2085-2091.

- Mersi, W., Schinner, F., 1991. An improved and accurate method for determining the dehydrogenase activity of soils with iodinitrotetrazolium chloride. *Biol Fertil Soils* 11, 216-220.
- Mukhopadhyay, S., Maiti, S.K., 2010. Dehydrogenase activity in natural and mine soil- a review. *Indian J. Environmental Protection* 30, 921-933.
- Nagel, M., Andreesen, J.R., 1991. *Bacillus niacini* sp. nov. a Nicotinate-Metabolizing Mesophile Isolated from Soil. *International journal of systematic and evolutionary microbiology* 41, 134-139.
- Pohland, B., Owen, B., 2009. BIOLOG EcoPlate standard methods, Biolog, Inc., Hayward, CA, USA.
- Rossel, D., Tarradellas, J., Bitton, G., Morel, J.-L., 1996. Use of enzymes in soil ecotoxicology: a case for dehydrogenase and hydrolytic, in: Tarradellas, j., Bitton, G., Rossel, D. (Eds.), *Soil Ecotoxicology*. CRC press, Boca Raton, pp. 179-206.
- Saito, M., Miyata, A., Nagai, H., Yamada, T., 2005. Seasonal variation of carbon dioxide exchange in rice paddy field in Japan. *Agricultural and Forest Meteorology* 135, 93-109.
- Saltelli, A., Homma, T., 1992. LISA Package Use Guide, Part III: SPOP (Statistical POst Processor) Uncertainty and Sensitivity Analysis for Model Output Program Description and User Guide, EUR-13924.
- 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 biology & biochemistry* 43, 1417-1425.
- Shukla, G., Varma, A., 2011. *Soil Enzymology*. Springer, New York.
- Six, J., Frey, S.D., Thiet, R.K., Batten, K.M., 2006. Bacterial and Fungal Contributions to Carbon Sequestration in Agroecosystems. *Soil Science Society of America Journal* 70, 555.
- Wagai, R., Kishimoto-Mo, A.W., Yonemura, S., Shirato, Y., Hiradate, S., Yagasaki, Y., 2013. Linking temperature sensitivity of soil organic matter decomposition to its molecular structure, accessibility, and microbial physiology. *Global change biology* 19, 1114-1125.
- Welp, G., 1999. Inhibitory effects of the total and water-soluble concentrations of nine different metals on the dehydrogenase activity of a loess soil. *Biol Fertil Soils* 30, 132-139.
- Weon, H.Y., Kim, B.Y., Son, J.A., Jang, H.B., Hong, S.K., Go, S.J., Kwon, S.W., 2008. *Massilia aerilata* sp. nov., isolated from an air sample. *International journal of systematic and evolutionary microbiology* 58, 1422-1425.
- Zhang, X.-H., Li, L.-Q., Pan, G.-X., 2007. Top soil organic carbon mineralization and CO₂ evolution of three paddy soils from South China and the temperature dependence. *Journal of Environmental Sciences* 19, 319-326.
- 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—
- 犬伏和之, 1994. 水田の物質循環と微生物の働き, in: 日本微生物生態学会 (Ed.), *微生物の生態* 19 物質循環における微生物の役割. 学会出版センター, 東京, pp. 91-118.
- 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2011. 平成 22 年度 地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術 ヨウ素・炭素処理・処分技術高度化開発 報告書 (第 3 分冊) —放射化金属廃棄物中の C-14 の放出挙動評価—.
- 篠崎直樹, 2005. 水稲・小麦の二毛作畑における熱収支・CO₂濃度の季節変化. *地球環境研究* 7, 31-43.
- 青山正和, 2011. 一体型 ATP 測定試薬キットと小型ルミノメーターを用いた農耕地土壌の微生物バイオマスの推定. *日本土壌肥料学会誌* 82, 305-308.
- 放射線医学総合研究所, 2011. 平成 22 年放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査.

- 放射線医学総合研究所, 2013. 放射性廃棄物共通技術調査等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化調査 6年間(平成19年度~平成24年度)のまとめ[詳細版].
- 放射線医学総合研究所, 2015. 平成26年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性核種生物圏移行評価高度化開発.
- 放射線医学総合研究所, 2016. 平成27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.
- 放射線医学総合研究所, 2018. 平成29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.
- 北宅善昭, 2005. 光合成と環境, in: 長野敏英, 大政謙次 (Eds.), 新農業気象・環境学. 朝倉書店, 東京, pp. 101-108.
- 堀謙三, 犬伏和之, 松本聡, 和田秀徳, 1990. 水田土壌におけるメタン生成と硫酸還元の前酸をめぐる競合. 日本土壌肥料学会誌 61, 572-578.
- 木村真人, 1991. 土壌中の微生物とその働き(その5)ー微生物バイオマスー. 農業土木学会誌 59, 944-948.
- 矢吹満壽, 1990. 風と光合成ー葉面境界層と植物の環境対応. 農山漁村文化協会, 東京.

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

これまでに、種々の元素について生物圏における土壌-植物移行係数 (TF) や土壌-土壌溶液分配係数 (K_d) の環境移行パラメータの導出並びにデータベース構築が行われている。しかし Pu, Am, Th 及び塩素 (Cl) については、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りながら、データが少なかった。これらの測定には極めて高度の分析技術が要求されることが主な要因である。そこで本課題では、これらの元素 (Pu, Am, Th および Cl) について、超高精度分析を開発し、実際の環境試料を分析して、TF を求めることを目的とした。

その結果、土壌中 Pu, Am と Th の超高精度分析法の開発研究については、土壌の前処理法、同位体分析の化学分離法の調査・研究を実施し、実用的な超高精度質量分析法を確立し、我が国の水田土壌および畑土壌中の Pu, Am と Th 濃度データを収集した。米試料中の Pu と Th の同位体超高精度分析法の開発研究については、高分解能 ICP-MS を用いて、玄米と白米中の超微量 Pu と Th 分析法を確立した。開発した分析法を用いて Pu と Th 濃度データを収集し、実環境における土壌-米間 TF データを得た。Cl については、ICP-QQQ を用いた土壌試料および植物試料中の塩素の分析法を開発し、それを用いて塩素の定量分析を行い、土壌-作物間 TF データの収集を行った。さらに、Pu, Am, Th および Cl の TF について、2008 年から 2018 年までに報告されている国内外の最新文献の調査を行ない、TF データベースに追加した。本課題を通して得られた分析法や測定データは、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。なお Pu と Am については、東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種であるが、放出量と環境分布が十分に解明されていない。したがって、今回開発した分析法はこれら核種の環境中の分布や移行に関するデータ収集に役立つものである。

以下に、本課題における 5 年間の調査結果をまとめて報告する。

4. 2. 重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の超高精度分析法開発

4.2.1. 土壌試料中 Pu 高精度同位体分析法開発

土壌中の Pu 濃度の精度良い測定は、Pu の土壌-植物移行の研究において必須条件である。我が国の土壌中 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が $0.07 - 4.3 \text{ mBq g}^{-1}$ の範囲であり (Yamamoto et al., 1983; Otsuka et al., 2004; Momoshima et al., 1997; Muramatsu et al., 2003; Yang et al., 2015), 非常に低いということを見ると、高感度分析技術が必要とされる。今までは、主に放射能分析 (^{238}Pu と $^{239,240}\text{Pu}$ については α 線測定, ^{241}Pu については液体シンチレーション計測法) が一般的に用いられてきた。しかし、これらの分析法を用いた場合、複雑かつ時間のかかる前処理と長時間の計測が必要となる。さらに、 α 線測定では、Pu 同位体 (^{239}Pu と ^{240}Pu) が区別できないという欠点がある。Pu 源の分別は Pu 同位体比を用いて行われている。一般にグローバルフォールアウトと局所フォールアウトでは地表に降下してきた物理化学的形態が異なると考えられるため、由来を特定することは、TF を考える上で重要である。例えば、チェルノブイリ事故においては、原子炉燃料に由来する不溶性のホットパーティクルが近傍に沈着しているが、このような形態で環境中に存在する場合には、グローバルフォールアウトとは TF が異なることが考えられる。

土壌中の微量 Pu 同位体分析については、硝酸抽出法が最初の操作に用いられている (Muramatsu et al., 1999; Hrnccek et al., 2008; McAninch et al., 2000)。これは、土壌中の Pu の起源がほとんどグローバルフォールアウトであることから、土壌鉱物と強く結合しておらず、土壌粒子表面にあると考えられることから簡易的に用いられている方法である。硝酸抽出法では、まずは高温で土壌を灰化して有機物を分解した後、濃硝酸 (または、 8 M HNO_3) を用いて加熱抽出を行い、その後化学分離と Pu 測定を行なう。しかし、最初の灰化操作においては、様々な灰化温度 ($400-900^\circ\text{C}$) が使用されている (Hrnccek et al., 2008; Child et al., 2008; Qiao et al., 2011)。

低温では有機物を十分分解できず、一方高温では、熔融-結晶化することによる溶解しにくい粒子を生成する可能性があることから、灰化温度が異なると Pu 分析結果が異なる可能性がある。粒子に取り込まれた Pu は単に硝酸だけでは溶出できないものになることがある。したがって、硝酸抽出法の信頼性と確度を高めるためには、適切な灰化温度に統一すべきである。

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

本研究においては、以下の 3 つの研究調査

- (1) 前処理の見直し、
- (2) 化学分離法の最適化、
- (3) 試料導入装置による高感度化、

を行い、環境試料中のアトグラム (ag) の Pu 測定ができるように、土壤中 Pu 同位体高精度質量分析法を開発した。

4.2.1.1. 前処理の見直し: 土壤灰化温度と Pu 同位体測定関連調査

土壤や植物試料などの Pu の化学分離では、有機物が回収率低下の原因となるため、灰化処理を行うのが一般的である。その後、硝酸抽出法で Pu を灰化試料から抽出し、化学分離操作で Pu を単離し、ICP-MS で定量するが、最初の段階である灰化温度の定量結果への影響は十分に検討されていない。本研究は、土壤標準試料 (IAEA-soil-6) を用いて、375-600°C で灰化処理した後、同じ分析方法で Pu を定量した (Wang et al., 2015)。その結果 (図 4.2-1), 灰化温度が 450°C を超えない場合、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は常に報告値の範囲と一致したが、それ以上では温度の上昇と共に $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が減少し、600°C では約 40% の Pu が硝酸抽出出来なかった。この結果は、高温ではケイ酸塩由来の物質等が Pu を取り込んだ形で生成してしまい、硝酸では十分 Pu を溶出できなくなったことが原因ではないかと推測された。

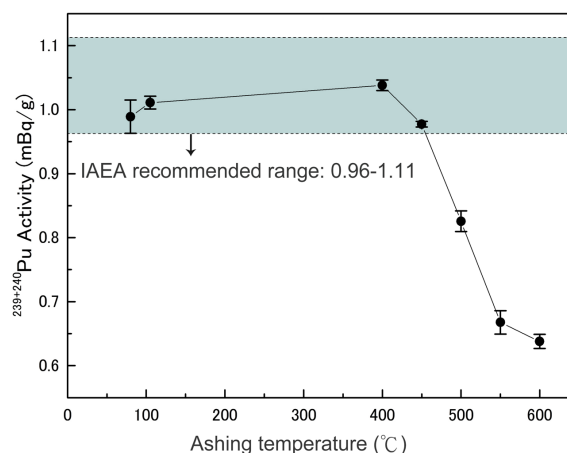


図 4.2-1 灰化温度を変化させたときの硝酸抽出法による IAEA-Soil-6 中の Pu 定量結果

これを証明するために、400℃と600℃で灰化した土壤試料および灰化しない試料についてX線回折測定を行なった。灰化していない試料と400℃で灰化した土壤試料から得られたスペクトルはほとんど同じスペクトル・パターンを示したことから、400℃加熱後も土壤中の化学構成物は変化がないことを示している。しかし、600℃で灰化した土壤試料のスペクトルでは、他の2つにはない新たなピークが25°と30°の間に3つ観察された。これらのピークに対応する新しい化学物質は600℃での灰化過程において生じたものである。

これら新しく生じた物質がどのようなものであるのかを明らかにするために、今回得られたX線回折スペクトルとMukaiら(2014)が求めた土壤のスペクトルの比較を行なった。その結果を図4.2-2に示す。今回観察した試料の25°から30°の間の2つの大きなピークの間には、同様のピークがMukaiらのスペクトルに現れていることがわかる。3本のうちの中央のピークは向井らによって斜長石と確認されていることから、600℃に加熱することで斜長石のスペクトルに類似する物質が形成されたと考えられる。

斜長石は一般的に地殻に含まれているもので、ケイ酸塩の鉱物である。ケイ酸塩の鉱物は、硝酸による分解において難溶解性であることが知られている。したがって、600℃で灰化した場合、硝酸抽出法において見られたPuの減少は、恐らくこれらの新しい難溶解性のフラクションが形成される際に、Puの一部が取り込まれたことに依るのではないかと考えられる。実際、高温処理後の試料をフッ酸によりケイ酸塩を溶かすと、Puの定量結果は既存の報告値の範囲内になった。つまり、土壤中のPuを正確に測定するためには灰化温度に注意し、灰化後の処理が硝酸抽出だけの場合には450℃以下で灰化しなければならないことが明らかとなった。

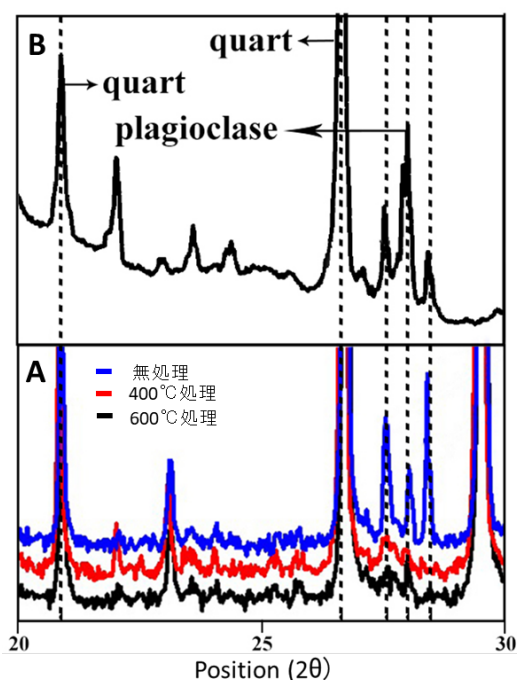


図 4.2-2 IAEA-Soil-6 を無処理，400℃処理，600℃処理したときの X 線回折スペクトル (A) と Mukai ら(2014) 土壤試料 X 線回折スペクトル (B) の比較

4.2.1.2. 化学分離法の最適化: 抽出樹脂によるマトリクスと干渉元素の迅速分離の検討

土壤試料について、抽出樹脂を用いてマトリクスと干渉元素の迅速分離法を開発した(図4.2-3)(Wang et al., 2017)。まず、土壤試料 1-2.5 g を秤量 (但し、土壤標準物質試料では 0.2 g) し、0.57 pg の ^{242}Pu を回収率モニターとして各試料に添加した。次に、その後の化学分離において

妨害となる有機物を分解するため、磁性るつぼに移しマッフル炉で 450°C で 5 時間灰化した。灰化試料の硝酸抽出では、一般に用いられるガラスビーカーと時計皿で加熱すると酸が損失して抽出効果が低くなる。そこで、密閉できる 120 mL のテフロン容器 (Savillex) を使用した。このテフロン容器に試料を移して 10 mL の濃硝酸を加え、ホットプレート上において 160°C で少なくとも 4 時間以上加熱した。冷却後、上澄み液をフィルターで濾過して遠沈管 (ポリプロピレン製, 50 mL) に移した。Milli-Q 水を添加して、試料容量を 35 mL (約 3.8 M HNO₃) に調整後、Ca および La を各 100 mg 添加し、続いて 2 mL の 20% TiCl₃ を添加し、Pu (IV) を Pu (III) に還元した。46% HF 7 mL を添加した後、溶液を完全に混合し、15-20 分間静置した。3000rpm で 15 分間遠心分離した後、上澄み液を捨て、H₃BO₃ 0.5g を添加して生成した沈殿物を 3M HNO₃ 20mL で溶解し、抽出クロマトグラフィー分離に供した。

得られた溶液中の Pu の原子価を、0.3g の NaNO₂ を添加することによって最初に Pu (IV) に調整した後、湯浴 (40°C) で 0.5 時間加熱した。次いで、10mL の 3M HNO₃ で前処理した TEVA 樹脂にサンプルを通水した (流量調整用に真空ボックス使用)。その後、10 mL の 3M HNO₃ により樹脂に収着している Ca, Fe および希土類元素 (REEs) を除去し、続いて 40 mL の 1M HNO₃ を用いて U, Pb, Tl および Pt を除去し、さらに、10 mL の 9M HCl により Th, Bi, Hf を除去した。TEVA 樹脂に収着している Pu を溶出する前に、3M HNO₃ 10 mL で前処理した UTEVA 樹脂および DGA 樹脂を TEVA 樹脂の下に接続した。次いで、Pu(IV)を Pu(III)に還元し、TEVA 樹脂から Pu(III)を溶出させるために、3M HNO₃ - 0.1M アスコルビン酸-0.02M Fe²⁺ (25% 鉄スルファミン酸塩から調製) を 20 mL 使用した。溶出された Pu(III)画分は、UTEVA 樹脂を通過し、DGA 樹脂上に保持される。溶出後、TEVA および UTEVA 樹脂を廃棄し、DGA 樹脂上の U, Tl, Pb, Pt, Hf および Fe を除去するために DGA 樹脂を 30 mL の 0.1M HNO₃ を通水した。最後に、DGA 樹脂上の Pu を 20 mL の 0.5M HCl-0.1M NH₂OH · HCl で溶出した。溶出した試料溶液をさらに蒸発乾固し、4 mL の王水で溶解した。溶解した溶液を 200°C で加熱して乾固させた後、1 mL の濃 HNO₃ を加え、これを加熱してほぼ乾固させた。最後に、試料を 4% HNO₃ 0.7 mL に溶解し、SF-ICP-MS 測定の試料溶液とした。

前述したように、ICP-MS による Pu の測定で特に問題になるのは U の水素化物である。例えば、²³⁹Pu⁺ に対し ²³⁸U¹H⁺ が、²⁴⁰Pu⁺ に対し ²³⁸U¹H₂⁺ が妨害になり、目的とする同位体と妨害イオンの質量数が極めて近いこと、SF-ICP-MS の分解能を上げてもこれらを分離することができない。また、測定対象としている試料中の Pu の濃度が極めて低いことから、できるだけ感度の良い低分解能モードでの測定を選択する必要がある。その場合、上述の妨害イオンに加え ²³⁸U のピークのテーリングが ²³⁹Pu のカウント数に影響する。固形の環境試料 (土壌、堆積物など) 中の U 濃度は、Pu よりも 10⁶~10⁹ と桁違いに高く、また海水では、U/Pu 濃度比は 10¹⁰ に達する。

このような環境試料中の超微量 Pu 同位体を正確に測定するためには、ウランを十分に除去する必要がある。既存の陰イオン交換樹脂や抽出クロマトグラフィー樹脂によるカラム分離法では、1.8×10³ - 2×10⁵ の U 除去係数が得られているが、U 除去係数が 10⁵ より低いと、土壌や堆積物中の Pu を正確に測定できない (Nygren et al., 2003)。本研究において開発した抽出クロマトグラフィー分離法を用いて U の除去を検討したところ、非常に高い U 除去係数 1.6×10⁷ を得ることができた。本法を用いた土壌試料の分析では、測定試料中の ²³⁹Pu 自身のネットカウント 100~数千に対し、妨害イオンである ²³⁸UH⁺ は約 1-2 cps (Pu に影響を与える絶対濃度 0.02 fg/g) しかなく、妨害を抑えることが可能である。

土壌中 Pu 測定の品質管理として、海底土標準試料 IAEA-385 と NIST-4357 を用いて、同様の方法によって測定した。検出された ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子数比はそれぞれ 0.173 ± 0.020 と 0.233 ± 0.017 である。この値は文献値 (IAEA-385, 0.174 - 0.193; NIST-4357, 0.233-0.244) (Lindahl et al., 2010; Cizdziel et al., 2008; Pham et al., 2008; Bu et al., 2013) とよく一致した。また、検出された ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 放射能濃度はそれぞれ 2.43 ± 0.43 Bq kg⁻¹ と 9.74 ± 1.00 Bq kg⁻¹ である。この

値も文献値 (IAEA-385, 2.89-3.00; NIST-4357, 9.3-13.2) (Pham et al., 20058; NIST, 1997) とよく一致しており, 本分析法が土壌中の Pu 分析に十分な精度があることが分かる。

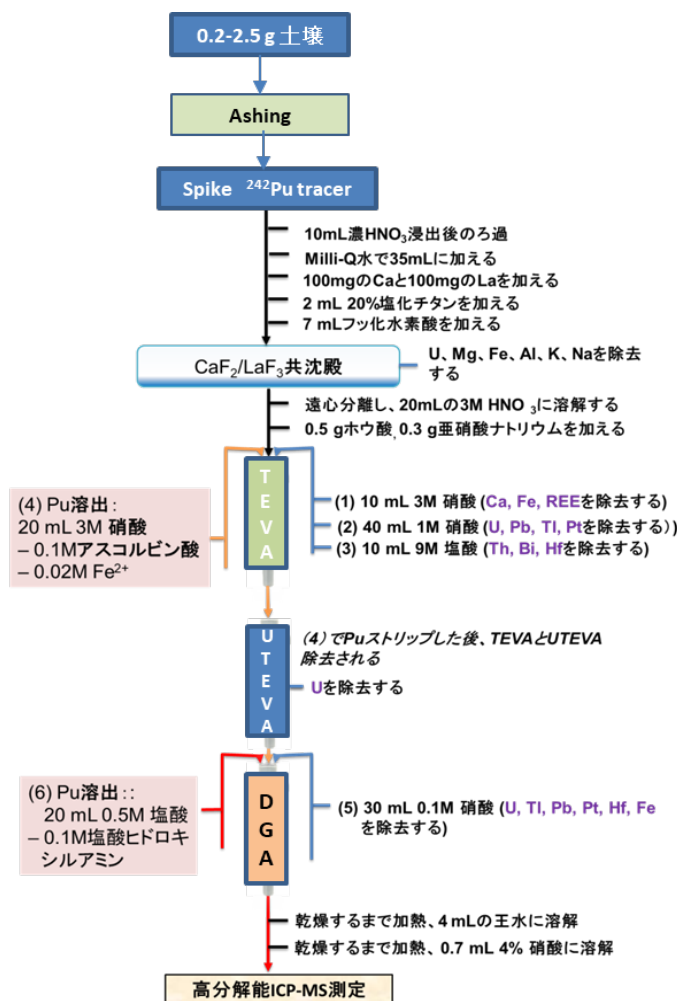


図 4.2-3 土壌試料中 Pu の定量のための HNO_3 抽出-抽出樹脂化学分離法

4.2.1.3. 試料導入装置による高感度化: アトグラム (ag) の Pu 測定

土壌中の微量 Pu を測定するため, 高分解能 ICP-MS (SF-ICP-MS) (Element XR, Thermo Fisher, Germany)を用いた。SF-ICP-MS は一般には検出器が 1 つなので, 複数の同位体を同時計測することはできない。高精度な同位体比計測には, 装置が高速スキャンできることに加え, 均質な試料を安定して装置に導入する必要がある。そのためには化学分離後の試料形態としては液体が適切であるが, 一方で溶媒に起因する妨害イオンを減らし, できるだけ多くの溶質をイオン化することが課題となる。そこで, 高効率導入装置 2 機種 (Aridus II と APEX) を SF-ICP-MS に連結し (図 4.2-4), ウラン水素化物 ($^{238}\text{UH}^+$) の発生低減, 感度の増加等について調査した (Zheng, 2015)。

前述したように, Pu の正確な測定をするためには, ウランが妨害になる。特に, ウラン水素化物 ($^{238}\text{UH}^+$) が形成されると ^{239}Pu と同じ質量のため妨害になる。さらに, $^{238}\text{U}^+$ の量が多く, カウントが高すぎると, 質量数 238 だけではなく, その周辺質量域にまでカウントが影響し (テーリング効果), これも ^{239}Pu 分析の妨害となる。試料導入装置は, プラズマ内におけるウラン水素化物の形成に大きな影響を与えるものと考えられる。そこで, 1 ng mL^{-1} のウラン標準溶液

を用いて、APEX-Q ACM メンブラン溶脱モジュールと Aridus II メンブラン溶脱モジュールを用いた SF-ICP-MS システムにおけるウラン水素化物の生成率を比較した。その結果、どちらの機種も $^{238}\text{UH}^+$ の生成率 ($^{238}\text{UH}^+ / ^{238}\text{U}^+$) は 2.2×10^{-5} 以下を達成することが分かった。さらに、Aridus II では SF-ICP-MS を通常の導入方法で測定したときに比べて約 30 倍の感度が得られる (表 4.2-1)。これは AMS と匹敵する測定能力であり、極めて高感度な分析方法と言える。このときの検出下限値は 43 ag mL^{-1} 、また Pu 分析に必要な試料溶液量は 0.125 mL であるので、実質の検出感度は 1 回の測定において 5 ag/sample を達成した。

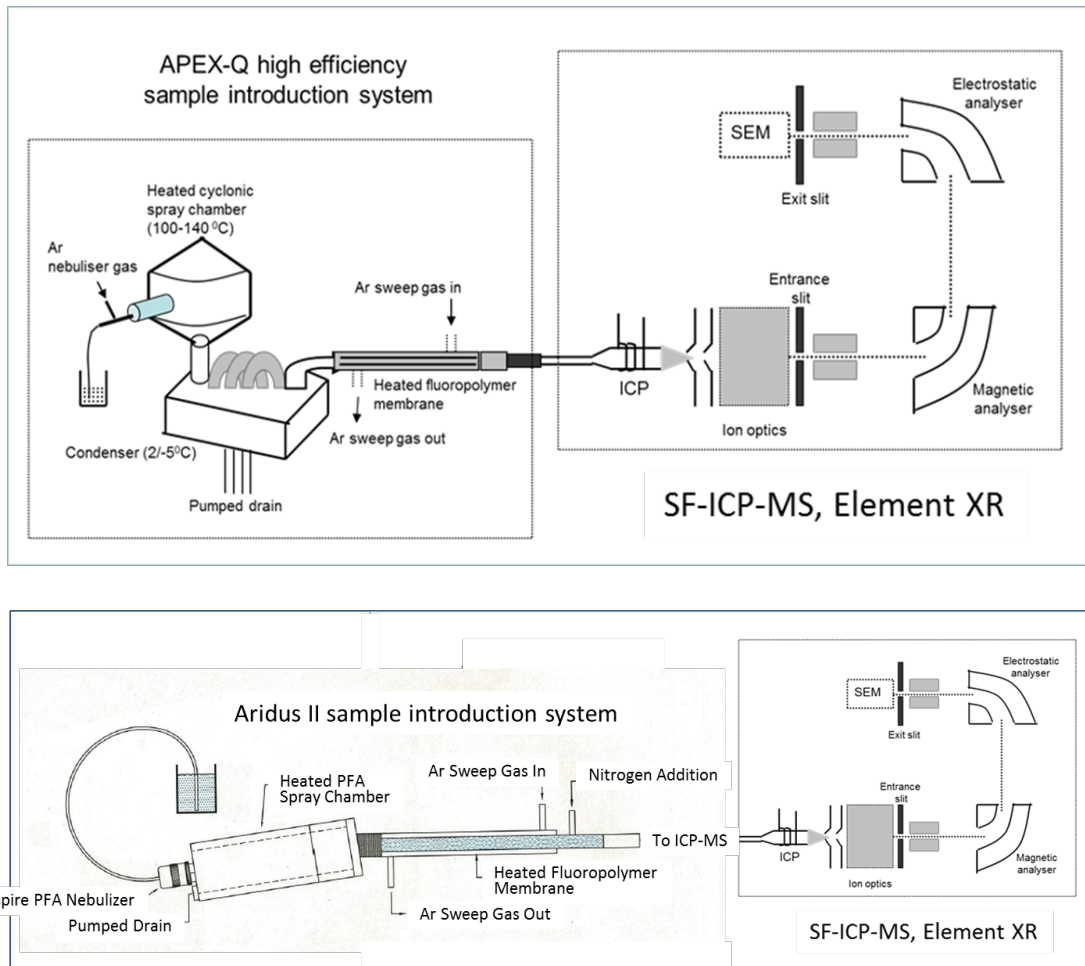


図 4.2-4. 高導入効率システム(APEX-Q と Aridus II)を用いた SF-ICP-MS (Element XR) の概略図

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

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

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

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

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

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

4.2.2. 土壌試料中 Am 高精度分析法開発

^{241}Am は α 線および γ 線を放出する長半減期核種 ($T_{1/2}=432.2$ y) であり、環境中に放出されれば長期間環境中に存在することになる。したがって、環境中の ^{241}Am の濃度および土壌-農作物間の移行を調査・研究することは重要である。

土壌の ^{241}Am 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 (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 ($0.1 - 1 \text{ Bq kg}^{-1}$ 以上の濃度) の測定にのみ用いられる。 α 線スペクトロメトリは、安価で高感度、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., 2013)。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。さらに、 α 線スペクトロメトリは同じようなエネルギーを有する α 線放出核種 (例えば、 ^{238}Pu , ^{210}Po , ^{228}Th および ^{232}U) を分離しなければならず、そのために複雑な化学分離が必要である (Vajda and Kim, 2010)。原子数をカウントする質量分析の場合、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 ^{241}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 の検出限界が α 線スペクトロメトリと同等か、それよりも低いと報告されている (Zheng and Yamada, 2008)。さらに、ICP-MS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、 α 線放出核種を分離する必要はない点では、化学分離が α 線スペクトロメトリよりも容易である。また、測定は数分で済むため、非常に短時間で測定を行うことができる。

ICP-MS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 分析における試料マトリクス効果の影響や同重体や多原子分子による妨害があるため完全ではない。マトリクス効果の影響は調整された試料の過剰塩濃度により生じるものであり、 ^{241}Am 測定を妨害する。また、土壌中の ^{241}Am 濃度 (Yamamoto et al., 1983b) は、 $0.032\text{-}0.263 \text{ mBq g}^{-1}$ という低レベルであることを考慮した場合、分析機器の感度にもよるが、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。数十グラム単位の土壌は多くのマトリクス元素や妨害元素を含んでおり、特別な化学分離が必要である。

そこで本研究では、最初に、Am分離に用いられるDGA-N樹脂による溶出実験を行い、Am分析の妨害元素の抽出挙動を調査し、またAmと妨害元素の分離手順を検討した。3種類の共沈法によるマトリクス除去効率および共沈法後のAm分離法を比較した結果、 CaC_2O_4 共沈法とDGA-N樹脂抽出クロマトグラフィーAm分離を結合する方法が最適であることが分かった。Amと希土類元素の化学性質が非常に類似しているため、いままで報告された分離法ではAmと希土類元素の分離が十分に行われず、Am分析用のサンプル中に希土類元素が高い濃度で存在していた。SF-ICP-MSを用いてAm測定する際、希土類元素によりマトリクス効果が生じるため感度が低下する。この問題点を改善するために、本研究では、さらにTEVA樹脂を用いて、Am分析用サンプルから希土類元素を除去する方法を検討し、土壌中Am高精度質量分析法を確立した (Wang et al., 2016)。開発した本方法の妥当性を、保証値がある標準物質 (土壌や底質標準物質) で確認した。詳細な分析法を以下に記す。

4.2.2.1. 土壌中 Am 高精度分析法の確立: 実験手順

土壌からの Am の抽出、分離、精製の手順を図 4.2-5 に示す。土壌試料は最初に 105°C で 24 時間乾燥した後、80 メッシュの篩にかけて礫などを取り除き粉砕した。粉砕土壌試料 2-20 g を秤量し、約 0.5 pg (既知量) の ^{243}Am 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、磁性のるつぽに移しマッフル炉で 450°C の温度で 5 時間灰化した。抽出は Pu と同じ 120 mL のテフロン容器 (Saville) を使用した。このテフロン容器に移した試料に 20-40 mL の濃硝酸を加え、ホットプレート上で 160°C

で4時間以上加熱した。冷却後、上澄み液をフィルター（Advantec）で濾過して100 mLのガラスビーカーに移した。この抽出液を加熱して乾燥させた後、40 mLの1 M HNO₃に再溶解させた。続いてマグネチックスターラーで攪拌しながらCa 100 mg およびシュウ酸 2.5 g を添加した。溶液のpHをNH₄OHにより2.0~2.5に調整し、30分間攪拌した後、試料を遠心分離（3000 rpm, 20分間）し、沈殿物を5 mLの1%シュウ酸溶液で洗浄した。次いで、沈殿物を15 mLの濃HNO₃に溶解した。さらに蒸発乾固してシュウ酸イオンを分解した。最後に、試料を8 M HNO₃ 20 mLに溶解した。この時PuはUTEVA樹脂によって容易に吸着されるPu(IV)に調整するために、0.2 g量のNaNO₂を添加した。

次に、UTEVA+DGA-NによるAmおよびPuから妨害元素の分離を行った。まず5 mLの8 M HNO₃で予め調整したUTEVA + DGA-N樹脂カートリッジ（直列に接続）に試料溶液を通水させ、その後、UTEVA樹脂カートリッジを取り外し、Amが吸着しているDGA-N樹脂カートリッジを残し、以下の手順でDGA-N樹脂カートリッジから妨害元素を分離した。(1)15 mLの8 M HNO₃を用いてPb, Hg およびPtを除去;(2)15 mLの0.5 M HNO₃を用いてTlを除去;(3)15 mLの0.1 M HNO₃を用いてU, Pt およびHfを除去;(4)10 mL 0.05 M HNO₃を用いてLa, Ceを除去;(5)10 mLの濃HClを用いて, Bi, Tl およびPbを除去;(6)最後に、Am分画を10 mLの0.5 M HClで溶出した。溶出液は蒸発乾固し、乾固物を10 mLの2 M NH₄SCN-0.1 M HCOOHで再溶解させた。続いて、TEVA樹脂カートリッジによりAmとREEsの分離を行った。5 mLの2 M NH₄SCN-0.1 M HCOOHで予め調整を行ったTEVA樹脂カートリッジに上述のAm分画試料を通水し、次に10 mLの1 M NH₄SCN-0.1 M HCOOHによりTEVA樹脂からREEsを除去し、最後にAmを10 mLの4 M HClで溶出した。DGA-NおよびTEVA樹脂からのAm溶出液量は、図4.2-6に示すAm溶出曲線に基づいて決定した。最後にTEVA樹脂からAmと共に溶出された残留NH₄SCNは、8 mLの王水を用いて加熱乾固して分解した。最後に、1 mLの4% HNO₃に溶解してSF-ICP-MS測定のための試料とした。

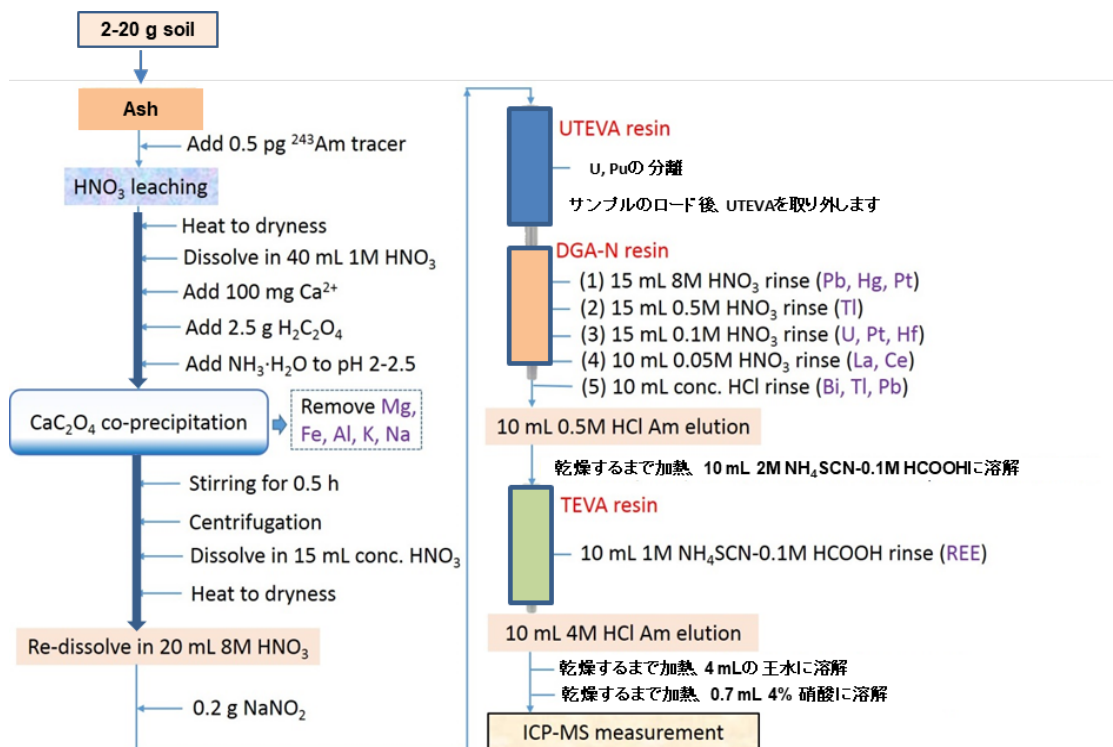


図 4.2-5 SF-ICP-MS による土壌試料の Am 測定の実験手順

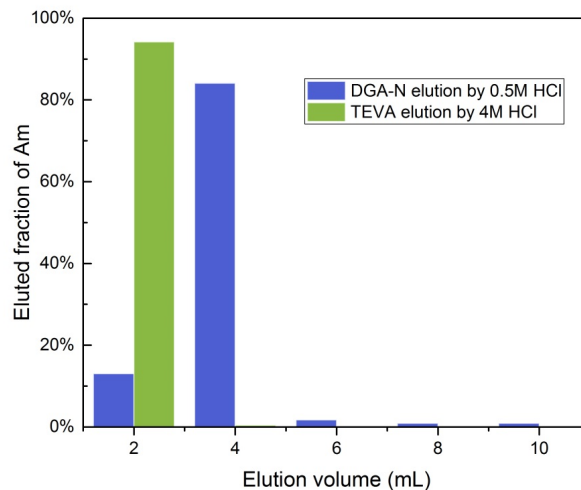


図 4.2-6 DGA-N 樹脂-0.5M HCl および TEVA 樹脂-4M HCl による Am の溶出曲線

4.2.2.2. 土壌中 Am 高精度分析法の確立: 妨害元素の除去係数, Am の回収率, および Am の検出下限値測定

土壌標準物質 (IAEA-soil-6) を用いて, 本方法の妨害元素の除去係数 (DF) を求めた。DF は初期土壌試料と処理後試料の元素濃度の比とし, Bi, Tl, Hg, Pb, U, Pu の DF はそれぞれ 3.5×10^4 , 2.4×10^4 , 1.5×10^4 , 1.2×10^5 , 3.6×10^6 , 7×10^5 であった。

本研究において開発した分析法における Am の回収率は, 安定した回収が得られている: IAEA-384 (78±3%), IAEA-385 (77±1%), IAEA-375 (82±1%), IAEA-土壌-6 (76±5%), NIST-4354 (79±6%), NIST-4357 (79±7%), 土壌 (80±3%) であった。また, 本分析法の検出下限値 (LOD) は, 「操作ブランクの標準偏差の 3 倍」という定義に基づいて計算したところ, 1 g の土壌サンプルに対して 0.097 fg g^{-1} (0.012 mBq g^{-1}) である。この LOD は, Pimpl and Higgy (2001) (0.03 mBq g^{-1}) によって報告された α 線スペクトロメトリ法よりも低かった。本分析法は, 低 LOD, 安定した高回収率, 高い妨害元素の DF およびマトリクス除去が適切に行えており, 土壌中の超微量レベル ^{241}Am の分析に適用可能である。

4.2.2.3. 土壌中 Am 高精度分析法の確立: 分析法の妥当性

Am の測定を SF-ICP-MS で行うために開発した本分析法の妥当性を, 保証値がある土壌標準物質 (IAEA-soil-6 and IAEA-375), 海底堆積物の標準物質 (NIST-4357, IAEA-385 and IAEA-384) と湖堆積物標準物質 (NIST-4354) で確認した。前述したように ^{241}Am の量は ^{241}Pu が崩壊することにより増加することから, その変化を加味して補正した曲線上にあることを示す必要がある。結果を図 4.2-7 に示したが, 保証値と十分に一致しており, 本分析法により土壌試料中の微量な ^{241}Am 測定が可能であることを示している。

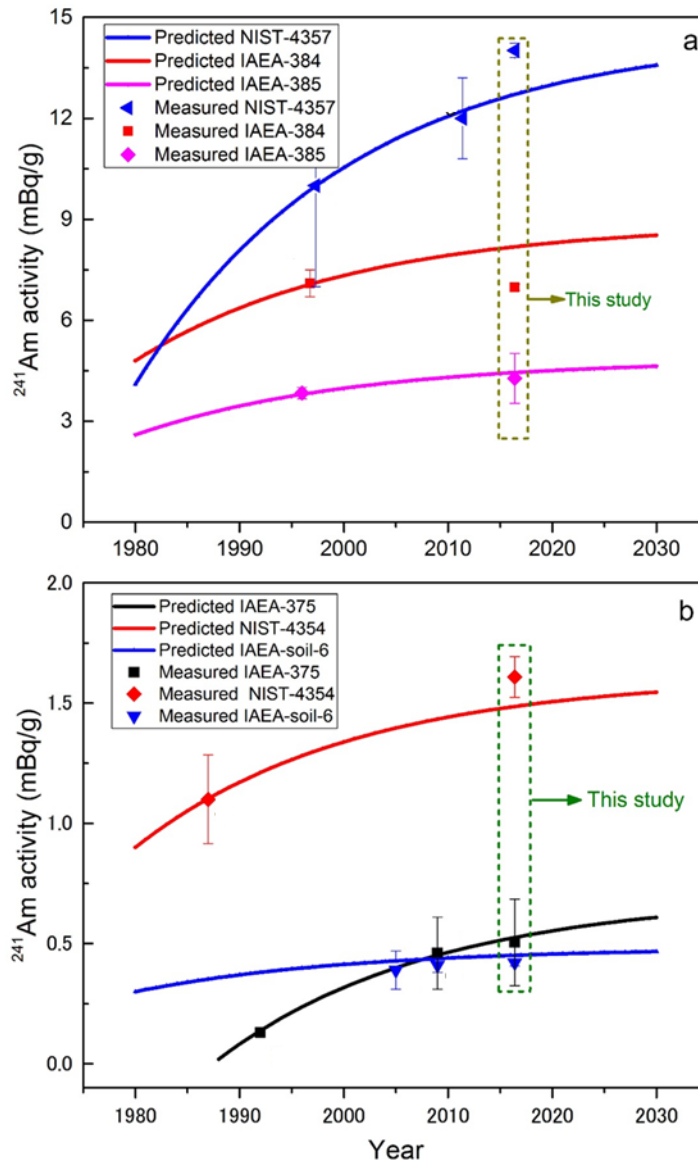


図 4.2-7 土壌標準物質 (IAEA-soil-6, -375), 海底堆積物の標準物質 (NIST-4357, IAEA-385, -384) と湖堆積物標準物質(NIST-4354)中の ^{241}Am 濃度の本分析による定量結果と文献値の比較

4.2.3. 玄米試料中 Pu 高精度同位体分析法の開発

IAEA TRS-472 には穀類類 (米を除く) の Pu の TF データが報告されているが、土壌-米間 TF データはない。フランスのデータ (Duffa et al., 2002) は、ワイルドタイプの米であり、そのため一般的な米への適用は困難であるが、 $^{239+240}\text{Pu}$ の TF 値の最大値として 2×10^{-3} が報告されている。この TF 値が日本におけるグローバルフォールアウト Pu の米の TF に適用できると仮定すれば、土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度範囲 ($0.07\text{-}4.31 \text{ mBq g}^{-1}$) (Muramatsu et al., 2003) を用いると、我が国の米中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度は、 $(0.15\text{-}8.6) \times 10^{-3} \text{ mBq g}^{-1}$ の範囲であると考えられる (最大 TF を仮定)。Pu 同位体の主な発生源はグローバルフォールアウトであり、その $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比が 0.18 であるため、米の ^{239}Pu および ^{240}Pu 濃度は、それぞれ、 $0.04\text{-}1.9 \text{ fg g}^{-1}$ および $0.01\text{-}0.5 \text{ fg g}^{-1}$ に相当すると計算できる。本研究で用いた、Aridus II/SF-ICP-MS における Pu 分析の機器検出限界は 0.04 fg g^{-1} であり、米中の Pu 同位体濃度と同程度である。米中の Pu 濃度を精度良く測定するためには検出限界を下げる必要があり、濃縮分析法の更なる改良が求められる。そこで灰化後の試料中超微量 Pu 分析するために、試料の前処理濃縮と化学分離法に重点を絞り、分

析法を開発した。最初の濃縮ステップである米試料の灰化処理により、玄米 1 kg から約 15 g の灰試料が得られた。

4.2.3.1. 玄米試料中 Pu 高精度同位体分析法の開発: 実験手順

分析法の操作実験手順を図 4.2-8 に示す。まず、玄米の灰化試料 15 g を 5 等分して 3 g ずつ分取し、120 mL のテフロン容器 (Savillex) に移した。各分割試料に 1 mL (0.2 pg mL^{-1}) の既知量の ^{242}Pu 回収率トレーサーを添加し、実際には 1 試料 15 g に対して、合計 1 pg の ^{242}Pu を加えたことになる。各テフロン容器に、20 mL の濃硝酸と 10 mL の H_2O_2 を加え、ホットプレート上で 140°C で約 30 分加熱して、揮発成分を除去した。その後、テフロン容器を密閉し、少なくとも 4 時間以上加熱した。一旦冷却の後、テフロン容器の蓋を外し、分解溶液が透明になるまで H_2O_2 を加え、再度加熱した。冷却後、上澄み液をフィルターで濾過してテフロンビーカー (100 mL) に移した。分解用のテフロン容器とフィルターは 10-20 mL の濃硝酸で洗浄し、その洗浄液もビーカーに併せた。得られた濾液を蒸発乾固し、残渣を 15 mL の濃硝酸 (68%) に溶解して、超純水を加えて硝酸濃度を 8 M に調整した。溶液量はこのときおよそ 30 mL である。Pu の化学形を 4 価に調整するために 1 g の NaNO_2 (5 mL の 20% NaNO_2) を添加して、 80°C で 30 分間加熱した。

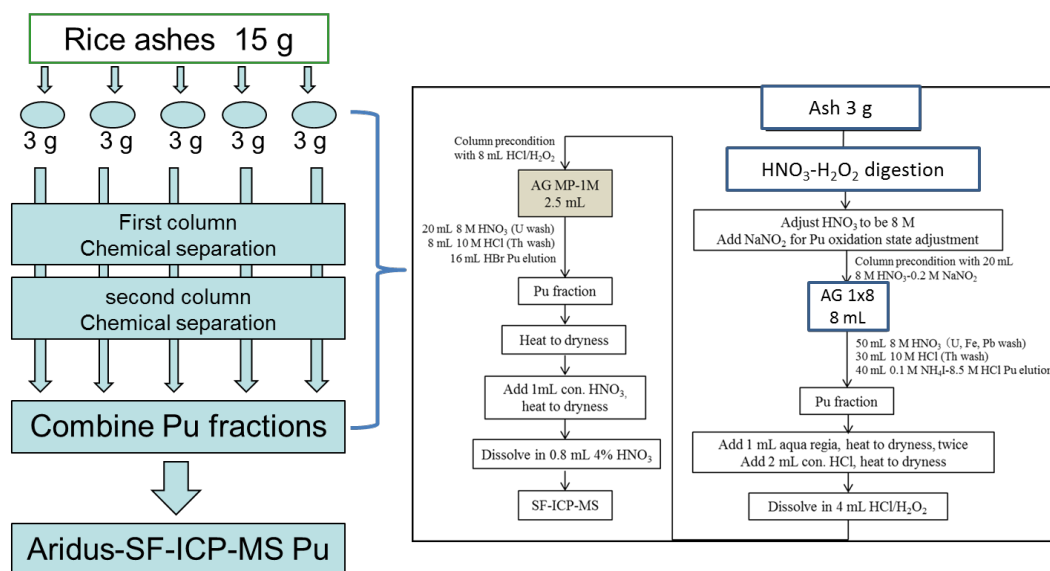


図 4.2-8 灰化米試料中 Pu 定量分析のための化学分析法開発

AG 1X8 樹脂カラムは使用前に 30 mL の 8 M HNO_3 -0.2 M NaNO_2 溶液でコンディショニングを行った。試料溶液を導入後、50 mL の 8 M HNO_3 溶液で U, Pb および Fe をカラムから洗い流した。その後、30 mL の 10 M HCl 溶液で Th を洗い出し、樹脂のイオン交換化学形を Cl^- に変えた。最後に Pu を 50 mL の 0.1 M NH_4I -8.5 M HCl 溶液で溶離させた。溶離液は 100 mL のテフロンビーカーに採取し、ほぼ乾固するまで蒸発を行った。乾固物に 1 mL の王水を添加し、再びホットプレート上で蒸発乾固を行った。この操作を 2 回繰り返す。残存する有機物を分解し、かつ残っているヨウ素を除去した。次に 2 mL の濃塩酸を添加し、その溶液を蒸発乾固させた。約 4 mL の HCl - H_2O_2 溶液 (混合比: 10 mL conc. HCl + 0.01 mL 30% H_2O_2) を添加し、 40°C で約 30 分加熱した。

AG MP-1M 樹脂カラムは試料溶液を導入する前に 8 mL の HCl - H_2O_2 溶液で前処理を行った。前処理済みの樹脂に試料溶液を導入した後、20 mL の HNO_3 で、最初に U を洗い出した。その後、カラムに残っている HNO_3 を純水で洗い出し、さらに Th の除去のために 8 mL の 10 M HCl

溶液を流入した。その後、樹脂に収着している Pu を 16 mL の HBr 溶液により溶離させて 30 mL のテフロンビーカーに採取した。ほぼ乾固状態となるまで加熱した後、HBr をすべて除去するために 1 mL の濃硝酸を添加し、さらに加熱した。再度乾固状態にして乾固物を 0.8 mL の 4% HNO₃ 溶液で溶解し、SF-ICP-MS 測定用の試料とした。Pu 分析における、Aridus II/SF-ICP-MS システムで最適化した分析条件は土壌試料と同じである。この分析法により、比較的高い化学収率（40-50%）が得られた。

4.2.4. 土壌および米試料中 Th 高精度分析法の確立

4.2.4.1. 土壌試料中 Th 高精度質量分析法の確立

我が国の土壌中 Th 濃度は <1 - 100 mg kg⁻¹ の範囲である (Yamasaki et al., 2001; Yoshida et al., 1998)。また、農耕地土壌に着目すると内田らの報告では、水田および畑土壌の Th 濃度は、それぞれ 5.4 mg kg⁻¹ (2.3-11 mg kg⁻¹) および 5.0 mg kg⁻¹ (1.2-12 mg kg⁻¹) である (Uchida et al. 2007a; Uchida et al. 2007b)。土壌試料の場合、HNO₃-HF-HClO₄ 混合酸を加えて全分解し溶液化した後、Th は分離・濃縮を行なわなくても、希釈するだけで直接 ICP-MS で測定できる。天然の Th は存在比 99.98% が質量数 232 であり、この質量数には ICP-MS における測定妨害となる元素は存在しない (Ostapczuk et al., 2010; Sahoo et al., 2011)。そこで本研究では、土壌試料中のケイ酸塩に結合している Th を完全に溶解するために、HNO₃-HF 溶液マイクロウェーブ分解法を開発した。土壌試料中の Th 高精度質量分析法を以下に示す。

ボールミルで粉砕した試料を、酸分解開始前に乾燥機で 80℃において 3 時間加熱し乾燥させた。乾燥試料をテフロン容器に 0.1g 分取し、硝酸 7ml・フッ酸 4ml を添加した後、マイクロウェーブにて分解を行った。条件は最大出力：1200W(1600W の 75%に設定)、昇圧時間を 30 分、最大温度を 210℃、コントロール圧力を 300psi、保持時間を 15 分にそれぞれ設定した。

分解後、過塩素酸 1 mL を添加し 130℃にて約 10-12 時間蒸発乾固を行う。蒸発乾固後、硝酸 1 mL・過酸化水素 0.5 mL を添加し再度蒸発乾固を行う。最終的に 40%硝酸 2.5mL でテフロン容器内の乾固物を溶かし、Milli-Q にて 50mL に定容した。酸分解を終えた試料は、その時点で希釈倍率がおおよそ 500 倍となっているので、ICP-MS 測定用に Milli-Q でさらに 10 倍希釈を行い、希釈倍率が 5000 倍となるようにした。

Th の測定は、四重極型 ICP-MS (Agilent 7500c)を用いた。四重極型 ICP-MS 装置の測定条件を以下に示す：

<四重極型 ICP-MS: Agilent, 7500c>

RF Power: 1.4 kW

プラズマガス: 15 L min⁻¹

キャリアーガス: 1.2 L min⁻¹

補助ガス: 0.9 L min⁻¹

ネブライザー: バビントンネブライザー

繰り返し測定回数: 5 回

内標準元素: Bi-209

測定元素: Th-232, Bi-209

本分析法の妥当性を、保証値がある土壌標準物質(JB-3 と NIST-1646A)で確認した。検出された Th 濃度はそれぞれ 1.35 ± 0.01 mg kg⁻¹ と 5.51 ± 0.05 mg kg⁻¹ である。この値は、保証値 (JB-3, 1.3 ± 0.1 ppm; NIST-1646A, 5.8ppm) (Imai, 1990; NIST, 2004) と十分に一致していたことから、本法により土壌試料中の微量 Th を適切に分析できたことがわかった。

4.2.4.2. 米試料中 Th 高精度分析法の確立

米中の Th 濃度は土壌中の濃度と比較すると数オーダー低く、 ng g^{-1} レベル未満となることもある (Uchida et al. 2007b) ため、米試料中の Th 濃度測定は高精度の分析が要求される。Th 濃度が低いことに加え、米中でケイ酸塩と結合していると考えられるため、米試料中の Th 濃度を精度良く測定することは困難である。一般に、植物試料の分解には、硝酸のみ、硝酸-過酸化水素の混合酸または王水を使った方法が使われている。しかしながらこれらの分解法では、ケイ酸塩に結合している Th を溶解できないため Th の回収率が低くなることがある (Feng et al., 1999)。そこで、本調査事業において、米試料中のケイ酸塩に結合している Th を完全に溶解するために、硝酸-フッ化水素溶液マイクロウェーブ分解法を開発した。高分解能 ICP-MS を用いて、米中の微量 Th の質量分析法を確立した。米試料中 Th 測定実験手順は以下に示す。

乾燥した粉碎済み玄米試料約 500mg を秤量しテフロン製分解容器に入れて、硝酸を 10 mL、フッ酸を 4 mL 加えた。80°Cにおいて 10 時間加熱して有機物を分解後、過酸化水素を 1 mL 添加する。分解容器をマイクロウェーブにセットし、約 10 分加熱した。放冷後装置から取り出した試料はそのままホットプレート上で 130°Cにて蒸発乾固を行った。試料に硝酸 1 mL と過酸化水素 0.5mL を添加して残渣を溶かした後、再度乾固し、最終的に 40%硝酸を 1 mL 加え 20mL ポリエチレン製容器に移し、超純水を添加して全量 20mL とした。この試料母液の硝酸濃度は 2%、元素濃度は、元の米試料の 40 倍希釈相当である。また、標準試料として用いた灌木試料 (GBW) 及びトマトの葉試料 (1573a) も同様の処理を行った。

ICP-MS の測定試料の調整: ICP-MS の測定において、2%硝酸を用いて、白米と玄米試料母液を 500 倍で希釈した。Th の定量は外部検量線法によって行った。検量線作成のため、Th 濃度 0, 0.01, 0.1 および 0.2 ng mL^{-1} の標準溶液を用いた。測定装置は高分解能 ICP-MS (SF-ICP-MS) を用いた。以下に装置設定条件を示す。

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

RF Power: 1.3 kW
プラズマガス: 16 L min^{-1}
キャリアーガス: 1.0 L min^{-1}
補助ガス: 0.85 L min^{-1}
ネブライザー: Conical concentric ネブライザー
低分解能モード: $m/\Delta m = 300$
繰り返し測定回数: Run x pass 15x5 回
内標準元素: ^{209}Bi (0.1 ng mL^{-1})
測定元素: ^{232}Th , ^{209}Bi

分析法の妥当性: 本研究で用いた Th の分析法の妥当性を、保証値がある標準物質 (灌木試料 GBW 及びトマトの葉試料 NIST-1573a) で確認した。その結果を表 4.2-3 に示す。灌木試料 GBW ($n = 2$) とトマトの葉試料 NIST-1573a ($n = 3$) の Th 濃度範囲は、それぞれ 0.075-0.079 と 0.099-0.136 mg kg^{-1} であり、灌木試料 GBW の保証値 (0.070 mg kg^{-1}) やトマトの葉試料 NIST-1573a の information value (0.12 mg kg^{-1}) と十分に一致していた。この結果は、米試料における Th 濃度測定のために用いた本分析法が適応可能であることを示している。

表 4.2-3 標準試料の Th 濃度測定結果

		Th (mg/kg)	std
SRMs	GBW-1	0.075	0.002
	GBW-2	0.079	0.001
	<i>certified value</i>	0.070	0.008
	NIST-1573a-1	0.120	0.001
	NIST-1573a-2	0.136	0.002
	NIST-1573a-3	0.099	0.001
	<i>information value</i>	0.12	

4.2.5. 土壌および農作物試料中 Cl 高精度分析法の確立

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。水中においては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。その土壌-農作物間移行係数 (TF) を求めるにあたり、安定元素をアナログとできることから (放射線医学総合研究所, 2014), 本研究では塩素の分析を行うこととしている。一般に塩素は中性子放射化法 (NAA) により測定できるが、この分析法は原子炉が必要である。より多くのデータを得るためには、一般実験室でも行える分析法によりデータを蓄積できる方が望ましい。そこで本研究では、トリプル四重極 ICP-MS (ICP-QQQ, Agilent 8800) を用いて土壌-農作物試料中塩素測定の適用と、測定のための試料溶液化について検討を行った。さらに、開発した分析法を用いて、土壌と作物試料中の塩素濃度を分析して TF を求めた。本研究では塩素を対象としつつも、同時にヨウ素に加え、これらの同族元素であり化学アナログとして使用が可能かもしれない臭素についても TF データを蓄積することを念頭に、分析方法を検討していた。そのため、ハロゲン元素を揮散させないために、無機酸を用いた分解法ではなく、水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) を用いて水溶性～有機物までを溶解する方法を採用した。植物試料のような有機物試料は溶解が塩素、臭素およびヨウ素とも分析が可能である

4.2.5.1. 土壌および農作物試料中 Cl 高精度分析法の確立: 実験手順

分析操作手順 (図 4.2-9) は以下の通りである: 土壌試料 (粉末, 乾燥) を 200 mg, 農作物試料 (粉末, 乾燥) は 100 mg 分取し、密閉型テフロン容器 (Savillex, 6 mL) 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 80°C の電気乾燥機を用いて 16 時間加熱した。室温まで冷却後、Milli-Q 水を用いて 50 mL まで希釈した。有機物を分解するため、 H_2O_2 (0.1 mL/1 mL 試料溶液) を添加し、100°C のホットプレートを用いて 2 時間加熱した。その後、全量を 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 μm の PTFE フィルター (Millipore, マイレクス) を用いてろ過した。ろ過した試料溶液中塩素の測定は、ICP-QQQ を用いた。

ICP-QQQ による塩素測定の最適条件を検討するために、表 4.2-4 の組み合わせで測定を行った。各条件において Cl を測定し、0-10 mg L⁻¹ の標準溶液 (0, 0.08, 0.4, 10 ppm) 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、DL が低かった MS/MS + He (35 → 35) モードを用いることとした。このモードは He により透過率を下げた上で、さらに MS/MS モードにより 2 回質量数 35 を選択するのでバックグラウンドが低い。さらに、この条件では Br や I も同時に計測できる。本法の検出限界は土壌、農作物それぞれ 7.4 と 14.7 ppm であった。

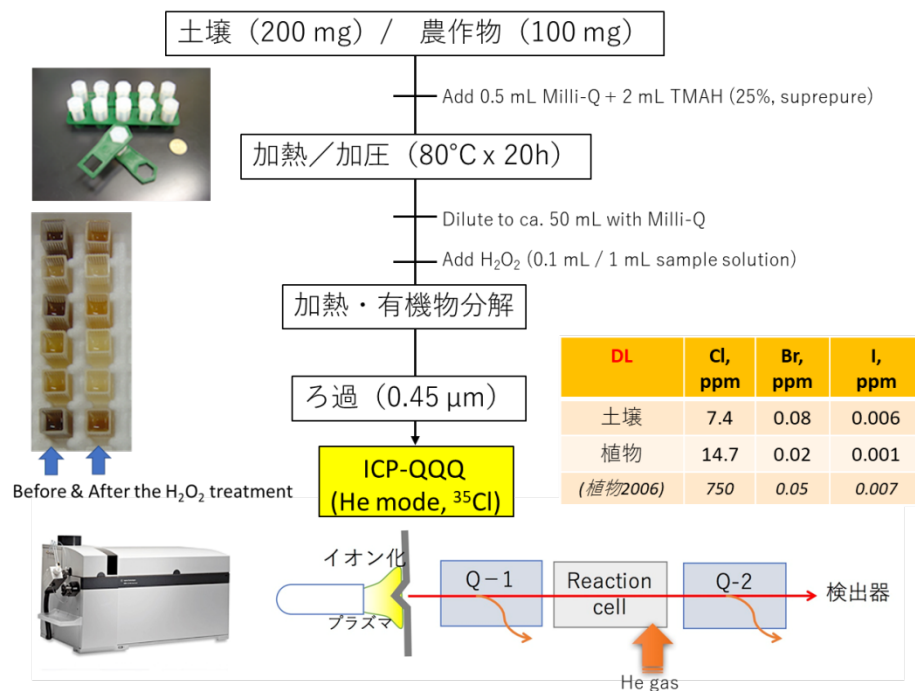


図 4.2-9 塩素の超高精度分析法

表 4.2-4 トリプル ICP-MS 塩素測定 の最適条件を検討

Reaction cell gas	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)

4.2.5.2. 土壌および農作物試料中 Cl 高精度分析法の確立: 土壌試料からの TMAH による塩素抽出率

土壌の溶液化について、平成 26 年度に TMAH を用いて岩石試料の分析を検討した結果（放射線医学総合研究所，2015），ほとんどの Cl が溶出できず定量性が低かったことが明らかとなった。そのため平成 27 年度は加熱気化法と硝酸抽出法についても検討を行ったが，両分析法とも岩石試料の定量性が一定ではなかった。したがって，全量分析を行うためには，これまで使われているアルカリ溶融や NAA で行う必要があるが，実環境中では，土壌鉱物中の構造物として容易に植物等に使われない Cl は，地下水シナリオで地下水とともに地表に移動してくる塩素とは挙動が異なると考えられる。すなわち，易動性が低い化学形の Cl を含む全塩素を測定対象とは考えず，易動性がある Cl のみを測定対象にすることも有効であろう。しかしながら，どの程度溶出できるのかについて検討しておく必要がある。

平成 28 年度は NAA で Cl 濃度を定量した土壌試料 26 検体を用いて検討を行った。その土壌試料中の Cl 濃度を本調査により開発した分析法により定量を試みるとともに，NAA による分析値との比較を行った。INAA により全量分析した結果と，TMAH 抽出による結果を比較して図 4.2-10 に示す。得られた値は NAA より低いものであった。TMAH による Cl 抽出率を臭素お

よびヨウ素も比較した (Br 及び I の結果は加熱気化-ICP-MS 法による)。Cl の抽出率は平均で $35\% \pm 15\%$, Br は $97\% \pm 13\%$, I は $83\% \pm 9\%$ であった。これらの結果から、土壌中の Cl は 3 分の 1 程度しか TMAH で抽出できないことがわかった。したがって、TMAH 法で求めた土壌中の Cl 濃度は NAA 法よりも低いため、移行係数が高くなることが示唆されたが、実際には TMAH 法で抽出された部分が Cl の移行に効いてくると考えられる。少なくとも、Cl の TF は高くなっても、報告値の 1 オーダー以内となる。

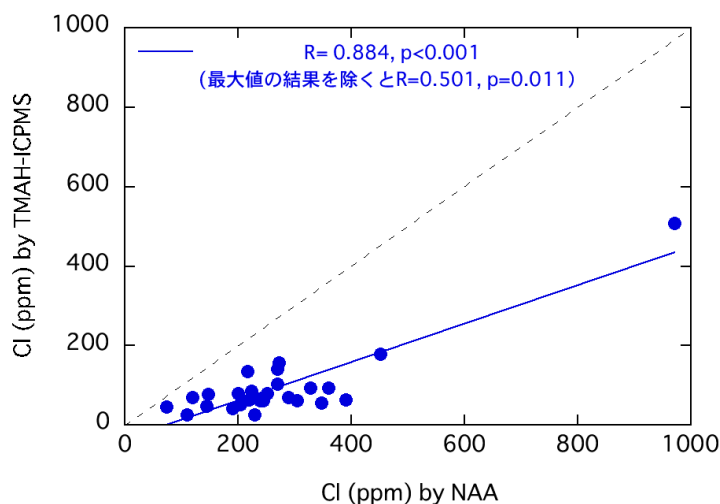


図 4.2-10 中性子放射化法 (NAA) と TMAH 抽出-ICP-MS による土壌試料中の塩素定量結果の比較

4.2.5.3. 土壌-農作物試料中 Cl 高精度分析法の確立: 土壌と植物試料の高精度 Cl 測定

開発した塩素分析法を用いて、土壌及び農作物試料中 Cl 測定の精度がどの程度得られたのかを図 4.2-11 に示す。農作物試料では、以前よりも検出下限値 (表中 D.L. と表示) が下がった。例えば、数百 ppm の試料でも RSD 20%程度で測定可能である。Cl 濃度の高い葉菜類では、さらに良い精度の測定ができる。土壌試料については Cl 濃度が低いこともあり、平成 28 年度までは定量結果が大きくばらついた (平均約 80% の RSD) が、本分析法の使用に加え、測定の繰り返しを増やすことで、これまで測定が不能であった低濃度域においても、ある程度の精度 ($100\mu\text{g kg}^{-1}$ で 10%程度) が確保できるようになった。

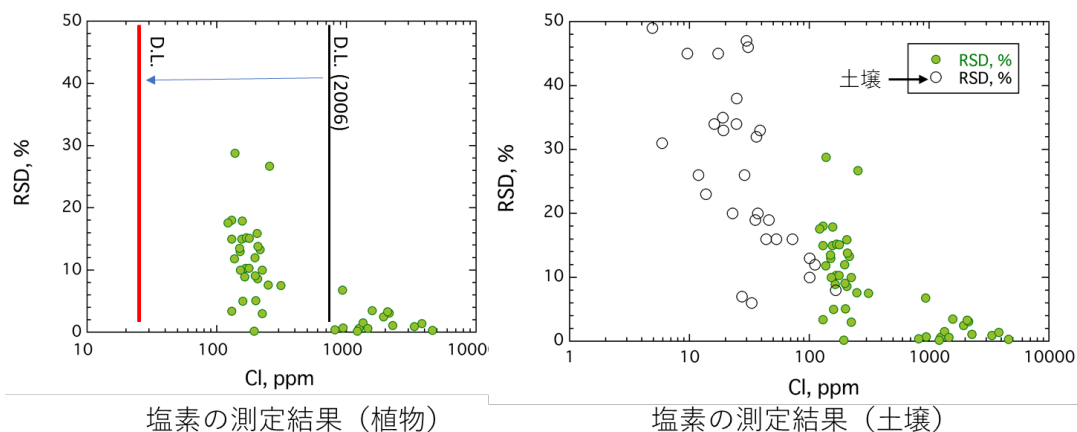


図 4.2.-11 土壌-農作物試料中塩素高精度測定

4.2.6. まとめ

4.2.6.1. 土壤中 Pu の高精度同位体分析法のまとめ

土壤中における Pu 同位体測定のために、本研究において、3つの研究調査(1)前処理の見直し、(2)化学分離法の最適化、(3)試料導入装置による高感度化を行い、環境試料中の極低レベルの Pu 測定をできる高精度質量分析法を開発した。正確な定量を行うためには灰化温度に注意が必要であり、硝酸のみを用いた抽出の場合には 450℃以下で灰化しなければならない。また、土壤試料については、抽出樹脂を用いてマトリクスと干渉元素の迅速分離法を開発した。なお、超微量 Pu 同位体を正確に測定するためには、ウランをほぼ完全に除去する必要がある。本研究開発した抽出クロマトグラフィー分離法により非常に高い U 除去係数 (1.6×10^7) を得ることができた。さらに、SF-ICP-MS に試料導入装置 Aridus II を接続した場合、通常の導入方法に比べて約 30 倍の感度が得られた。これは AMS と匹敵する極めて高感度な分析方法と言える。本法を用いて Pu を分析を進め、データを得ている。なお、我が国の土壤のグローバルフォールアウト ^{239}Pu と ^{240}Pu 濃度濃度のバックグラウンドデータとして 1970 年代に放射線医学総合研究所が採取した土壤を測定する際に、開発した分析法を適用した。

4.2.6.2. 土壤中 Am の高精度分析法のまとめ

本研究では、DGA-N 樹脂への干渉元素の抽出挙動を系統的に調べ、TEVA 樹脂の Am / REEs 分離効率を評価し、3 種類の共沈法のマトリクス除去能力を比較検討した。その結果に基づいて、SF-ICP-MS による大量土壤試料 (2~20g) における ^{241}Am 測定の分析法を提案した。分析操作において、まずは土壤試料から Am を HNO_3 で抽出し、次に CaC_2O_4 共沈殿を用いて、Am 分画からマトリクス元素 (Na, K, Mg, Al, Fe) を除去し、次いで UTEVA+DGA-N 樹脂上の Am 干渉元素を分離する。TEVA 樹脂上の REEs をさらに除去した後、Aridus (II)-SF-ICP-MS 分析システムを用いて ^{241}Am を測定した。この方法では、妨害元素をほぼ除去することができ、特に Pu の $\text{DF}=7 \times 10^5$ は ^{241}Am 分析でこれまで報告された中で最高値が得られた。この方法は土壤サンプル中の東電福島第一原発事故起源の ^{241}Am を分析することができる。本測定法の LOD は 0.012 mBq g^{-1} で非常に低い。さらに、本測定法は、大量土壤サンプルの ICP-MS による ^{241}Am 測定におけるマトリクス効果による干渉を排除している。開発した本分析法の妥当性を、保証値がある土壤標準物質 (IAEA-soil-6 and IAEA-375)、海底堆積物の標準物質 (NIST-4357, IAEA-385 and IAEA-384) と湖堆積物標準物質 (NIST-4354) で確認した。Am の化学的回収率は、土壤試料に対して 76-82% の範囲で非常に安定している。

4.2.6.3. 玄米試料中 Pu の高精度同位体分析法のまとめ

米試料の Pu 定量の分析上の課題は、米試料に多く含まれる有機物である。米を 1 kg 灰化処理すると、15 g の灰を得ることができたが、重量が減少した部分はほとんど有機物に由来する。このように多量の有機物を灰化する場合、完全に灰化しきれずに黒色炭化物として灰試料に残ってしまい、硝酸で抽出を行っても酸化しきれず、回収率の低下に繋がっていた。そこで、硝酸抽出後、 H_2O_2 を添加し、有機物分解する操作を 3 回繰り返したところ、黒色が消えて十分湿性灰化することができた。なお、灰試料、1, 3, 5 g を使って検討したところ、5 g を使用する場合は回収率が減少したが、3 g では約 50% の回収率を得ることができた。定量分析には灰試料 15 g が必要なため、1 試料を 5 分割して分析を行うこととした。その結果、玄米中の Pu の定量が得られ、また同時に採取した土壤試料も分析して、玄米への Pu の TF を得ることができた。

4.2.6.4. 土壤および米中 Th の高精度分析法のまとめ

本研究では、土壤試料中ケイ酸塩に結合している Th を完全に溶解するために、硝酸-フッ化

水素を添加してマイクロウェーブ分解法により溶液化する方法を開発した。四重極 ICP-MS (Agilent 7500c) を用いて、5000 倍希釈するだけで、土壌試料中 Th を高精度で定量分析する方法を確立した。本分析法の妥当性を、保証値がある土壌標準物質(JB-3 と NIST-1646A)で確認したところ、保証値と十分に一致しており、十分測定に適用可能であることがわかった。

米試料中についてはケイ酸塩が多いため、ケイ酸塩に結合している Th を完全に溶解するために、土壌と同様に硝酸-フッ化水素を用いたマイクロウェーブ分解法を開発した。さらに、SF-ICP-MS を用いて、500 倍希釈倍率で、米中の微量 Th を測定した。本研究で用いた Th の分析法の妥当性を保証値がある標準物質 (灌木試料 GBW 及びトマトの葉試料 NIST-1573a) で確認を行った。この結果は、本分析法が 10 分な精度を持っており、米試料における Th 濃度測定法として適用可能であることを示している。

4.2.6.5. 塩素の高精度分析法のまとめ

TMAH を用いた土壌及び農作物中の Cl 分析法を開発した。本法による土壌中 Cl 抽出については全土壌中濃度に対し、平均で 35% の抽出率であったが、土壌中の利用可能な Cl を抽出するという観点からは適切な分析法である。さらに、これまで検討してきた TMAH 法について、試料溶液を H₂O₂ 処理により有機物を分解してから ICP-QQQ を用いて MS/MS 分析を行うことで、装置のドリフトが減り、繰り返し測定を長時間行えるようになった。これにより精度の高い分析が可能となった。

本分析法で得られる Cl の TF は土壌中 Cl が全量分析できていないことから、やや高めであることが考えられるが、これまで国内で測定された値の範囲内であった。これまでのデータとの整合性という観点からは、土壌中 Cl 全量の定量が望ましい。しかし、安定元素を放射性核種のアナログとして利用する際、可給態以外のフラクションの取扱をどうするのかについては十分な検討がされていないのが実状である。実験条件を明記した形でデータを提供することにより、本分析法でも目的に十分適合した値を報告できるものと考えられる。

4. 3. 環境移行パラメータデータ

4.3.1. 重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の移行係数の文献調査

4.3.1.1. はじめに

IAEA は Technical Reports Series No. 472 「Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments」 (IAEA, 2010) を出版し、自然放射性核種および人工放射性核種の土壌-植物間移行係数 (TF) を提供した。TRS-472 の TF データは様々な文献から引用されており、最も信頼できる文献値としては査読付き学術誌の論文、次に、科学誌を専門に扱う出版社から出版されている本、さらには学会プロシーディングスや研究所レポートであり、データの重複を避けるために Review paper は含まずにデータ蓄積を行ったものである。データは専門家によって厳密に選択されていることから、TRS-472 は、将来に渡って多くのモデルによる放射線影響評価で使用される重要なデータ集であると言える。

ただし、TECDOC-1616 中で TRS-472 をとりまとめた研究者らが指摘しているように、TF データ登録数は Cs や Sr といった元素については多くの報告値があるが、Th, Pu や Cl については、データ登録数は統計処理できるほどの数がない (IAEA, 2009)。本調査研究の目的の一つは、放射性廃棄物処分の生物圏安全評価において重要な放射性核種の環境移行パラメータを求めることであるが、特に国際的にも、国内的にもデータ数が少ないものについてはデータを蓄積して、将来、このような国際データベースに登録できるように準備しておく必要がある。また、実測データだけではなく、文献調査によって現在報告されているデータを逐次蓄積し、データ解析を行うことも重要である。

国際的なデータ集である TRS-472 に登録されたデータ取扱最終年である 2007 年以降も、TF に関する研究が行われ、新しいデータが報告されている。そこで本調査では、さらに最新の文献や中国の文献から Pu, Cl, Am および Th について TF を収集し、データ解析を行った。

4.3.1.2. データ収集および統計解析

文献調査の結果、ジャーナル、会議の Proceedings, 研究機関の報告書、中国のデータベースから合計で 13 文献を収集した。得られたデータを Wang らが作成したデータベースに加え、Wang ら (2015) に記載されているのと同じ方法で解析した。各作物群は IAEA の分類に準拠したが、収集した文献には、可食部や飼料作物として用いられない非可食部、また食料供給に関連のない植物についても、比較のために収集している。例えば、牧草、米および果菜類を含む葉菜類以外の野菜に加え、果物、米、葉菜類以外の野菜およびイモ類について、非可食部を加えた。Th, Am, Pu および Cl の統計結果を、それぞれ表 4.3-1~4.3-3 に示す。幾何平均 (GM), 算術平均 (AM), 幾何標準偏差 (GSD), 標準偏差 (SD), 最小値と最大値の範囲、データ数 (N), さらに IAEA TRS-472 の推奨値も示した。また、各植物カテゴリーの GM 値 (すべての土壤タイプ) を以前に発表されたデータと比較した。

4.3.1.3. IAEA TRS 472 との比較

表 4.3-1 に 2008-2017 に発表された Th の TF を示した。草類、葉菜類、穀類、塊茎および水稲の植物群に新たなデータが追加されている。多くのデータがある草類については、Nie et al. (2010) が、U 鉱山の鉱さい処分場で集めた草や土壤サンプルの Th および U 同位体を分析して報告している。ICP-MS によって測定された Th の TFs は $2.0 \times 10^{-3} \sim 4.2 \times 10^{-1}$ (n: 36) の範囲であり、平均値は 3.6×10^{-2} であった。Yan (2016) も、同様に U 鉱山の鉱さい処分場から集めた草類および土壤サンプル (N=12) の ^{232}Th 濃度を分析し、Th の TF を算出している。TF-Th の範囲は $1 \times 10^{-2} \sim 3.1 \times 10^{-1}$ であり、GM が 1.1×10^{-1} であった。

Tuovinen et al. (2016) は、U の含量が高い場所から 0.5m^3 の土壤を採取し、温室内でライシメーターによる栽培実験を行い、TF を報告している。Th の測定は ICP-MS で行っており、測定結果から求めた TF は 1.0×10^{-2} から 5.8×10^{-1} の範囲であり、前述のフィールドデータと比較すると栽培実験の方がわずかに高かった。Matveyeva et al. (2015) は、 α 線スペクトロメトリを用いて、U 鉱山地区で収集された土壤および草類試料中の ^{232}Th , ^{228}Th および ^{230}Th の濃度を調べた。 ^{232}Th の測定データから算出した TF は、 $2.0 \times 10^{-3} \sim 1.9 \times 10^{-1}$ の範囲であり、Nie ら (2010) によって報告されたものに近い値であった。 ^{230}Th で測定された TF は、 ^{232}Th の場合とほぼ同じであったが、 ^{228}Th の測定結果から求めた TF は、同じサンプルでほぼ一桁高くなっていた。この理由は論文中では議論されていない。

以下、ガンマ線スペクトロメトリの結果をいくつか示す。Th の米への TF について、Alsaffar et al. (2015) は、 $4.0 \times 10^{-3} \sim 1.4 \times 10^{-2}$ を報告しており、Th の大部分が根に集積していることを示した。Alsaffar et al. (2016) は、Th の土壤-米間の TF に及ぼす肥料の効果をポット実験によって調べた。土壤は天然のものであるがやや Th レベルが高いものであった。その結果、米による Th の吸収に対する肥料の影響は無視できることを示し、対照および実験群の TF 値は 1.1×10^{-2} に近かった。Asaduzzaman et al. (2015) は、マレーシア半島の北西部の米への TF として 0.18~0.48 を、Hossen と Ferdous (2015) らはアマランスへの TF として 0.14 - 0.5 を報告しているが、いずれも IAEA の推奨値 (表 4.3-1) より 2-3 桁高い。

IAEA の推奨値よりも高い TF 値が得られている理由は、測定手法の違いによるものと思われる。 γ 線スペクトロメトリ法は、 ^{232}Th の子孫核種 (例えば、 ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl) を測定し、放射平衡を仮定して ^{232}Th 濃度を求めるものである。この仮定は土壤サンプルの ^{232}Th 測定では成立するが、植物試料においては問題がある。 ^{228}Ra および ^{224}Ra の TF は通常 Th よりも高いた

め、植物中では ^{228}Ac , ^{212}Pb および ^{208}Tl の濃度から計算される Th 濃度は実際の Th 濃度よりも高くなる。その結果、植物サンプル中の ^{232}Th 濃度が過大評価され、TF も高くなると考えられる (Wang et al, 2015)。

Skoko et al. (2017)は、天然の放射性核種の含有量が高いことが知られている石炭灰およびスラグ処分場で栽培されている植物の ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb および ^{40}K の吸収量を調査した。サンプリングされた植物種は地中海の植物に共通しており、草やハーブ、低木や樹木などである。計算された ^{238}U , ^{235}U , ^{226}Ra および ^{210}Pb の植物吸収量は、対照地域(普通土壌)での摂取量と比較して有意に少ないが、 ^{40}K ではその逆である。処分場と対照拠点の ^{232}Th の植物摂取量との間に有意差は観察されなかった。草やハーブ、低木および樹木について、Th-TF の幾何平均値はそれぞれ 0.004 (0.018), 0.005 (0.006), および 0.006 (0.005)である (括弧内値は対照地域のデータ)。これらの TF は一般に、IAEA の推奨値 (4.2×10^{-2}) と比較して、約 1 桁低い。

表 4.3-2 に、Am の TF データを示す。比較するために、Li ら (1994) の Am-TF データも示した。Li ら (1994) は、3 つの研究炉に隣接する畑土壌および野菜のサンプルを採取し、 α 線スペクトロメトリ法を用いて ^{241}Am 濃度を測定した。調査された作物にはニンジン、ナタネ、コショウ、ナス、豆、キュウリ、トマトが含まれており、TF の範囲は 6.2×10^{-4} から 5.1×10^{-4} である。Todorov と Djingova (2015) は、ライシメーター実験において、5 種類の土壌について、Am の土壌-草類間 TF を報告した。調査された土壌は、草類の栽培前に ^{241}Am (2000-2500 Bq / kg) をスパイクし、6 ヶ月間栽培を続けた後、採取された草は γ 線スペクトロメトリ法による ^{241}Am 測定が行われた。彼らは、Am の土壌から草へ移行は土壌中のフルボ酸およびフミン酸の濃度に依存して異なることを、また TF の範囲として 9.0×10^{-5} - 9.3×10^{-3} を報告している。Guillen ら (2016) は、硝酸塩形態の ^{241}Am を添加したポット実験によって土壌-小麦 (非可食部) の TF を調査した。得られた Am-TF 値は根部で 4.8, 芽で 0.2 であり、IAEA 報告の 3.0×10^{-7} ~ 5.8×10^{-2} の範囲より有意に高かった。著者らは、スパイクされた ^{241}Am の可給態が多いために、グローバルフォールアウト起源 ^{241}Am (推定可給態は全体の 1-4%) に比べて高い TF が得られたと考えている。全体として、本調査において収集した Am-TF データの大部分は、汚染された場所の現場調査またはスパイクされた実験から得られたものである。

表 4.3-3 に Pu の調査結果を示す。Guillen ら (2016) はスパイク (^{239}Pu) 実験により得られた小麦の Pu-TF データを 2 つ報告している (根は 1.5, 苗は 0.046 である)。これらのデータは、IAEA 報告の範囲 (4.4×10^{-7} から 9.0×10^{-4}) よりも有意に高かった。さらに、Froehlich ら (2016) によって、土壌-草類間 TF データ (1.5×10^{-3} , 4.7×10^{-3}) が報告されている。これらのデータは、森林環境において土壌から草への移行を示した TRS-472 の推奨値よりも 1 桁大きい値であった。

Cl の TF については新しい文献は見つからなかったが、既存の分析値から新たに TF を導出している (後述)。Cl は植物の必須元素であり植物中においては陽イオンのカウンターとしての役割があることから、ほとんどが陰イオンで存在する。そのため陰イオンで吸収される方が植物としては効率が良い。しかし環境中における Cl のサイクル自体があまり明確になっていない。Montelius ら (2015) は森林を対象に測定を行ったところ、落葉樹よりも針葉樹の方が多く塩素を Cl イオンとして保持していることを報告している。すなわち、植物の種類によって濃度が異なっており、例えば少ない樹種 (European beech) と多い樹種 (Norway spruce) では葉に保持する量は 30 倍ほど差があった。植物種の差は Cl の TF に影響することから、多くの種類の植物について濃度調査が必要であることが示唆された。

表 4.3-1 2008-2017 に発表された文献による Th の土壌-植物間移行係数

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS 472 GM	Ref. No.	Remark
Grass	183	1.3×10 ⁻¹	1.4×10 ⁻¹	6.0×10 ⁻²	4.4	2.0×10 ⁻³	9.0×10 ⁻¹	4.2×10 ⁻²	^a Ref (Grass)	Natural field TFs ^a U mine tailing TFs ^c 2016 data entries: 12
Grassherbs	4	6×10 ⁻³ (2.8×10 ⁻²)	4×10 ⁻³ (1.9×10 ⁻²)	4×10 ⁻³ (1.8×10 ⁻²)	2.5 (3.1)	N/A	N/A	4.2×10 ⁻²	^k Ref (Grassherbs)	Coal ashslag site TF (control soil site TF) 2017 data entries: 4
Leafy Vegetable	25	1.1×10 ⁻¹	1.5×10 ⁻¹	1.5×10 ⁻²	22	5.8×10 ⁻⁴	3.4×10 ⁻¹	1.2×10 ⁻³	Hossen, 2015 Planinsek, 2016	Natural field TFs ^a Uranium mine TFs ^b 2016 data entries: 15
Fruit	27	1.9×10 ⁻¹	2.8×10 ⁻¹	7.7×10 ⁻²	2.7	2.5×10 ⁻⁴	1.3		^f Ref (Fruit), ^l Ref (palm pits)	Natural field TFs ^a
inedible part	7	1.2×10 ⁻¹	7.7×10 ⁻²	9.2×10 ⁻²	6.3	1.0×10 ⁻³	0.7			Natural field TFs ^a 2017 data entries: 9
Non-leafy Vegetable	43	2.3×10 ⁻¹	3.7×10 ⁻¹	2.6×10 ⁻²	13	1.9×10 ⁻⁴	1.7	7.8×10 ⁻⁴	^g Ref (Non-Leafy Vegetable)	Natural field TFs ^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		Natural field TFs ^a
Cereal	38	5.5×10 ⁻¹	3.3×10 ⁻¹	3.5×10 ⁻¹	12	3.6×10 ⁻⁴	1.0×10 ⁰	2.1×10 ⁻³	^j Ref (Cereal)	Natural field TFs ^a Uranium mine TFs ^b 2016 data entries: 30
(except rice)	44	5.1×10 ⁻²	1.0×10 ⁻¹	1.5×10 ⁻²	7.7	3.1×10 ⁻⁵	4.8×10 ⁻¹	1.6×10 ⁻⁴	^h Ref (Rice)	Natural field TFs ^a
Rice	3	3.0×10 ⁻³	2.0×10 ⁻³	2.5×10 ⁻³	2.0	1.0×10 ⁻³	5.0×10 ⁻³			Pot experiment TFs ⁱ 2016 data entries: 4
inedible part	22	7.7×10 ⁻¹	1.2	8.2×10 ⁻²	1.2	1.4×10 ⁻³	4.8	2.0×10 ⁻⁴	Asaduzzaman, 2014, Khan 2010;	Natural field TFs ^a
Tuber	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	Chauhan, 2015; Planinsek, 2016; Amakom et al., 2017	Natural field TFs ^a Uranium mine TFs ^b 2017 data entries: 8
edible part	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	Asaduzzaman, 2014 Shanthi, 2012	Natural field TFs ^a
inedible part	17	1.5×10 ⁻²	2.5×10 ⁻²	2.8×10 ⁻³	12	4.6×10 ⁻⁵	1.0×10 ⁻¹		Rodriguez, 2010; Popic, 2011; Zhang, 1989	Natural field TFs ^a Uranium mine TFs ^b Contaminated area
Tree	4	7×10 ⁻³	5×10 ⁻³	6×10 ⁻³	1.8	N/A	N/A		Skoko et al., 2017	TFs ^d
Shrubs	5	9×10 ⁻³ (1.5×10 ⁻²)	1.1×10 ⁻² (0.2×10 ⁻²)	5×10 ⁻³ (6×10 ⁻³)	2.7 (4.0)	N/A	N/A			Coal ashslag site TF (control soil site TF)

a. Under natural field conditions, TFs were obtained by examining ²³²Th 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.
- e. Ref (Grass): Nie, et al., 2010; Tuovinen, et al., 2016; Matveyeva, et al., 2015; ICRP, 2009; Alharbi and El-Taher., 2013; Kristisanuwat et al., 2014; Cerne et al., 2010; Dragovic et al., 2010; Khan et al., 2011; Oufni et al., 2011; Pallavicini, 2011; Smodis et al., 2012; Chakraborty et al., 2013; Strok and Smodis 2013. Yan, 2016.
- f. Ref (Fruit): Alharbi and El-Taher, 2013; Kristisanuwat et al., 2014; Kumar et al., 2008; Shanthi et al., 2012
- g. Ref (Non-Leafy vegetable): Kristisanuwat et al., 2014; Zhang et al., 2011; Shanthi et al., 2012; Aswood et al., 2013; Mheemeeed et al., 2014.
- h. Ref (Rice): Asadzaman, et al., 2015; Alsaffar, et al., 2015; Kristisanuwat et al., 2014; Shanthi et al., 2012; Saeed et al., 2012. Alsaffar, et al., 2016.
- i. In a pot experiment using natural soil, TFs were obtained by examining ^{232}Th concentrations in grain and soil samples.
- j. Ref (Cereal): Khan 2010; Mihaylova, et al., 2013; Alharbi, et al., 2013; Mostafa, et a., 2016.
- k. Ref (Grassherbs): Skoko et al., 2017.
- l. Ref (palm pits): Shayeb et al., 2017

表 4.3-2 2008-2017 に発表された文献による Am の土壌-植物間移行係数

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS	472	Ref. No.	Remark
Grass	28	0.24	0.57	2.6×10^{-3}	103	9.0×10^{-5}	1.4	3.3×10^{-2}		ICRP,2009	Contaminated area TFs ^a
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}		Todorov, 2015 Gomez, 2013, Li, 1994	²⁴¹ Am spiked study TFs ^b ²⁴¹ Am spiked study TFs ^b Natural field TFs ^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}		Lehto, 2013, Li, 1994	Natural field TFs ^c Natural field TFs ^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}			Gomez, 2013, Gomez, 2013, Li, 1994	²⁴¹ Am spiked study TFs ^b ²⁴¹ Am spiked study TFs ^b Natural field TFs ^d
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}			
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}			
Cereal											
inedible part	2	2.5×10^0	3.3×10^0			2.0×10^{-1}	4.8×10^0	7.9×10^{-5}		Guillen,2016	²⁴¹ Am spiked study TFs ^b 2016 data entries: 2

a: In a dune adjacent to Sellafield and a low level waste disposal site, TFs for ²⁴¹Am were determined.

b: In lysimeters spiked with ²⁴¹Am, TFs for Am were obtained by examining the ²⁴¹Am concentration in plant and soil samples.

c: In natural conditions, aggregated TFs were obtained by examining ²⁴¹Am concentrations in the plant and corresponding soil samples.

d: In natural conditions, TFs were obtained by examining ²⁴¹Am concentrations in the plant and corresponding soil samples.

表 4.3-3 2008-2017 に発表された文献による Pu の土壌-植物間移行係数

Plant Group	N	AM	SD	GM	GSD	Min.	Max.	TRS	472	Ref. No.	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}		ICRP,2009 Xu, 2009, Li, 2011	Contaminated area TFs ^a Contaminated area TFs ^b
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}		Froehlich, 2015 Gomezze, 2013,	Natural field TFs ^c Lysimeter study TFs ^d
Non-leafy											
Vegetable											
edible part	1	3.0×10^{-5}								Lehto, 2013	Natural field TFs ^e
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}			Lehto, 2013	Natural field TFs ^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}		Gomezze, 2013,	Lysimeter study TFs ^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}		Gomezze, 2013,	Lysimeter study TFs ^d
Cereal											
inedible part	2	7.7×10^{-1}	1.0×10^0			4.6×10^{-2}	1.5×10^0	4.4×10^{-5}		Guillen,2016	Lysimeter study TFs ^f 2016 data entries: 2

a: In a dune adjacent to Sellafield and a low level waste disposal site, TFs was determined by examining the ^{239,240}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 ²³⁹Pu concentrations in the plant and corresponding soil samples

d: In lysimeters contaminated with ^{239,240}Pu, TFs for Pu were obtained by examining the ^{239,240}Pu concentration in plant and soil samples.

e: In natural conditions, aggregated TFs were obtained by examining ^{239,240}Pu concentrations in the plant and corresponding soil samples.

f: In lysimeters contaminated with ²³⁹Pu, TFs for Pu were obtained by examining the ²³⁹Pu concentration in plant and soil samples.

4.3.2. Puの土壤-玄米の移行係数データ

IAEA は多くの TF のデータを追加した技術報告書 (TRS-472) を発表した (IAEA, 2010)。しかしながら, TRS-472 では, Pu に関しては非常に限定された TF データしか報告されておらず, 例えば, 米や果実のような幾つかの植物種についてはその TF は掲載されていない。

本調査研究で開発した高精度質量分析法により土壤-玄米の TF データを得た。結果を表 4.3-4 に示す。前述したように, Pu の土壤-玄米間の TF のデータは, ほとんど報告されていない。本研究では, 水田に採取された米試料およびそれらに対応する土壤試料の ^{239}Pu 濃度を分析することにより, 新たなグローバルフォールアウト起源の Pu-TF データを取得した (n=16)。表 4.3-4 に示すように, Pu の土壤-玄米の TF は 4.5×10^{-6} から 1.2×10^{-4} の範囲であり, その幾何平均値と算数平均値は, それぞれ 3.3×10^{-5} および 4.6×10^{-5} であった。

表 4.3-4 水田土と玄米中 ^{239}Pu 測定結果および Pu の土壤-米間移行係数

Sample ID	Sampling location	^{239}Pu in rice (mBq/g)	std	^{239}Pu in soil (mBq/g)	std	TF
7 (EP-SD-40)	Chiba	5.3E-06	1.5E-06	2.3E-01	1.1E-02	2.3E-05
8 (EP-SD-42)	Toyama	4.9E-06	1.7E-06	2.4E-01	8.4E-03	2.0E-05
9 (EP-SD-43)	Gifu	2.5E-06	8.9E-07	5.5E-01	3.3E-02	4.5E-06
10 (EP-SD-45)	Nara	1.3E-05	1.1E-06	1.2E-01	2.9E-03	1.0E-04
1 (EP-SD-64)	Akita	1.9E-05	1.7E-05	5.6E-01	1.5E-02	3.5E-05
2 (EP-SD-65)	Niigata	8.0E-06	2.9E-06	2.8E-01	9.0E-03	2.9E-05
3 (EP-SD-66)	Toyama	4.5E-06	1.7E-06	2.2E-01	9.0E-03	2.0E-05
4 (EP-SD-67)	Gifu	9.0E-06	2.2E-06	3.6E-01	1.5E-02	2.5E-05
5 (EP-SD-68)	Nagasaki	1.2E-05	6.5E-06	1.5E-01	6.0E-03	8.2E-05
6 (OK-K2)	Fukushima	6.6E-06	2.5E-06	2.4E-01	1.2E-02	2.8E-05
11 (EP II-SD-3)	Kochi	2.5E-05	2.9E-06	2.8E-01	1.4E-02	8.8E-05
12 (EP II-SD-1)	Kagoshima	5.5E-06	3.6E-06	4.6E-02	4.8E-03	1.2E-04
13 (EP II-SD-2)	Kagoshima	5.5E-06	2.4E-06	1.4E-01	1.0E-02	3.9E-05
14 (EP-SD-47)	Yamaguchi	9.0E-07	6.5E-07	1.3E-01	1.1E-02	6.9E-06
15 (EP II-SD-12)	Miyazaki	8.1E-06	2.1E-06	9.9E-02	9.0E-03	8.2E-05
16 (EP II-SD-13)	Kochi	2.9E-06	9.3E-07	9.8E-02	7.0E-03	3.0E-05
Remarks						
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio of EP-SD-45 and EP II-SD-3 were 0.195 ± 0.049 , and 0.181 ± 0.020 , indicating global fallout source						
Range of TF of Pu for rice						4.5E-06 - 1.2E-04
Minimum		9.0E-07				4.5E-06
Maximum		2.5E-05				1.2E-04
Max./Min.		27.8				27.0
Median		6.0E-06				2.9E-05
Arithmetic mean (AM) of TF		8.3E-06				4.6E-05
Geometric mean (GM) of TF		6.3E-06				3.3E-05

4.3.3. 塩素の土壤-農作物の移行移行データ

平成 26-28 年度に採取した 30 セットの水田土壤および玄米試料中の Cl, Br および I 濃度の測定結果を表 4.3-5 (土壤) および表 4.3-6 (玄米) に示す。

畑土壤および水田土壤中のこれら 3 元素の濃度範囲を以下に示す。

<水田土> Cl: 4.9 - 53 mg/kg, Br: 1.4 - 63 mg/kg, I: 0.4 - 22 mg/kg

<畑土> Cl: 35 - 220 mg/kg, Br: 7.3 - 160 mg/kg, I: 1.6 - 32 mg/kg

この結果から, 水田土よりも畑土の方がこれらのハロゲン元素の濃度が高いことがわかった。結田ら (1984) は水田土とその周辺の森林土 (水田土と母材が同じ) の Cl, Br および I 濃度を

比較し、Cl濃度に差は見られないが、Br,Iについては水田で著しく低くなっていたことを報告しているが、その理由として両元素が土壌から溶出したことを挙げている。本調査の結果も同じ理由によると推察された。

また、葉菜類と玄米の値と比較して以下に示す。

<玄米> Cl: 120 - 310 mg/kg, Br: 0.37 - 3.3 mg/kg, I: 0.006 - 0.051 mg/kg

<葉菜類> Cl: 1090 - 11600 mg/kg, Br: 8.6 - 110 mg/kg, I: 0.026 - 0.35 mg/kg

この結果から、葉菜類は玄米に比べて1桁程度ハロゲン元素濃度が高いことがわかった。

前述したように得られた結果を基にTFを導出した(表4.3-7)。得られたTFは図4.3-1に示すように対数正規分布に近いことがわかった。そこで幾何平均値を求めたところ、Cl, BrおよびIのTFはそれぞれ9.0(範囲:3.7-40), 1.5×10^{-1} (範囲: 3.8×10^{-2} - 4.4×10^{-1})および 1.5×10^{-2} (範囲: 1.5×10^{-3} - 5.6×10^{-2})であった。野生植物葉に対し同様の結果を結田ら(1984)も報告している。なお、IAEA(2010)には穀類へのClのTFとして36(範囲:20-86, N=7), IのTFとして 6.3×10^{-4} (範囲: 1.0×10^{-4} - 1.1×10^{-2} , N=13)を、また玄米へのIのTFとして、 3.8×10^{-3} (範囲: 1.1×10^{-3} - 7.6×10^{-3} , N=7)が報告されており、それぞれ本調査で報告した値の範囲内であった。

低レベル放射性廃棄物の線量評価では、Clの農作物への移行係数の設定について、参考文献にClの値がないことから、他の核種の設定値のうち最大値を適用することとし(日本原燃2011)、米に対してはTcの値から5(kg-fresh/kg-dry)(IAEA,1982)としている。米の水分含量は15%なので、dry weight basisのTFは6となる。本研究の結果は、最大7倍程度の移行係数の差を生じること、また既存の報告値に比べても設定値が低い可能性が示唆された。

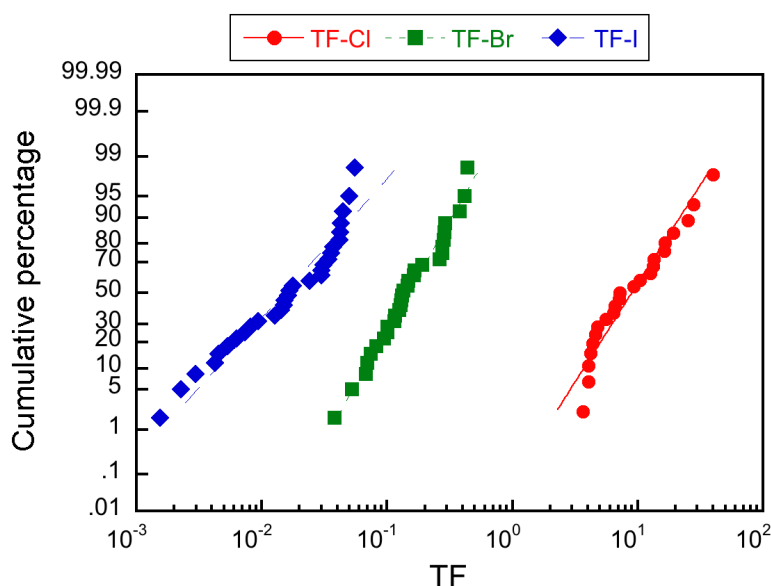


図 4.3-1 玄米の塩素、臭素及びヨウ素 TF の確率度数分布

表 4.3-5 水田土壌中の TMAH 抽出による塩素、臭素およびヨウ素濃度

Sample code	Cl, mg/kg	±STD	Br, mg/kg	±STD	I, mg/kg	±STD
EPII-SD-1	3.6E+1	7.0E+0	4.4E+0	2.0E-1	1.1E+0	1.0E-2
EPII-SD-2	1.9E+1	7.0E+0	4.3E+0	2.0E-1	7.3E-1	1.0E-2
EPII-SD-3	n.d.		5.3E+0	2.0E-1	1.1E+0	1.0E-2
EPII-SD-4	3.3E+1	2.0E+0	3.9E+0	3.0E-1	8.9E-1	1.0E-2
EPII-SD-5	6.0E+0	2.0E+0	3.9E+0	2.0E-1	1.1E+0	1.0E-2
EPII-SD-6	n.d.		4.2E+0	1.0E-1	1.2E+0	2.0E-2
EPII-SD-7	n.d.		2.4E+0	0.0E+0	9.6E-1	3.0E-2
EPII-SD-8	n.d.		1.0E+1	6.0E-1	2.5E+0	9.0E-2
EPII-SD-9	n.d.		3.1E+0	2.0E-1	7.3E-1	1.0E-2
EPII-SD-10	3.9E+1	1.3E+1	7.0E+0	4.0E-1	2.1E+0	5.0E-2
EPII-SD-11	3.0E+1	1.4E+1	2.6E+0	2.0E-1	1.3E+0	6.0E-2
EPII-SD-12	n.d.		2.2E+0	1.0E-1	5.7E-1	3.0E-2
EPII-SD-13	n.d.		2.5E+0	1.0E-1	1.3E+0	5.0E-2
EPII-SD-14	n.d.		4.8E+0	4.0E-1	6.2E-1	2.0E-2
EPII-SD-15	3.1E+1	1.4E+1	5.4E+0	2.0E-1	1.7E+0	5.0E-2
EPII-SD-16	3.6E+1	1.1E+1	1.1E+1	5.0E-1	3.4E+0	1.0E-1
EPII-SD-17	4.6E+1	9.0E+0	7.4E+0	2.0E-1	1.9E+0	5.0E-2
EPII-SD-18	5.3E+1	8.0E+0	6.3E+1	3.3E+0	2.2E+1	5.0E-1
EPII-SD-19	4.4E+1	7.0E+0	8.8E+0	4.0E-1	2.0E+0	5.0E-2
EPII-SD-20	n.d.		2.5E+0	2.0E-1	8.1E-1	3.0E-2
EPII-SD-21	2.9E+1	7.0E+0	4.0E+0	2.0E-1	8.0E-1	0.0E+0
EPII-SD-22	5.0E+0	2.0E+0	3.0E+0	1.0E-1	9.4E-1	2.0E-2
EPII-SD-23	1.4E+1	3.0E+0	1.4E+0	0.0E+0	4.0E-1	1.0E-2
EPII-SD-24	2.8E+1	2.0E+0	4.3E+0	2.0E-1	3.4E+0	6.0E-2
EPII-SD-25	1.0E+1	4.0E+0	3.3E+0	1.0E-1	1.6E+0	3.0E-2
EPII-SD-26	2.3E+1	5.0E+0	4.4E+0	3.0E-1	7.6E-1	1.0E-2
EPII-SD-27	1.2E+1	3.0E+0	8.0E+0	5.0E-1	1.9E+0	1.0E-2
EPII-SD-28	n.d.		3.0E+0	3.0E-1	1.2E+0	2.0E-2
EPII-SD-29	1.6E+1	5.0E+0	5.7E+0	4.0E-1	2.1E+0	3.0E-2
EPII-SD-30	2.5E+1	8.0E+0	9.6E+0	7.0E-1	2.9E+0	8.0E-2
幾何平均値 () 内は範圍	2.2E+1 (4.9E+0 - 5.3E+1)		4.7E+0 (1.4E+0 - 6.3E+1)		1.4E+0 (4.0E-1 - 2.2E+1)	

表 4.3-6 凍結乾燥玄米試料中の塩素, 臭素およびヨウ素濃度

Sample code	Cl, mg/kg	±STD	Br, mg/kg	±STD	I, mg/kg	±STD
EPII-CF-1	1.3E+2	4.3E+0	4.5E-1	4.4E-3	4.2E-2	3.9E-3
EPII-CF-2	2.6E+2	6.8E+1	7.1E-1	7.0E-2	4.0E-2	1.3E-4
EPII-CF-3	1.4E+2	4.0E+1	6.9E-1	5.5E-2	4.0E-2	2.3E-3
EPII-CF-4	1.6E+2	7.9E+0	4.6E-1	8.2E-3	3.8E-2	4.2E-3
EPII-CF-5	1.6E+2	1.5E+1	5.1E-1	3.7E-2	5.1E-2	1.3E-3
EPII-CF-6	1.3E+2	2.3E+1	4.8E-1	3.9E-2	3.7E-2	2.1E-3
EPII-CF-7	2.1E+2	1.8E+1	9.1E-1	2.3E-2	4.1E-2	8.3E-5
EPII-CF-8	1.6E+2	2.3E+1	8.4E-1	2.2E-2	4.4E-2	4.9E-3
EPII-CF-9	2.2E+2	2.9E+1	1.3E+0	5.9E-2	2.5E-2	1.6E-3
EPII-CF-10	1.6E+2	2.8E+1	7.0E-1	6.4E-2	3.5E-2	1.1E-2
EPII-CF-11	3.1E+2	2.3E+1	7.0E-1	4.4E-2	3.9E-2	4.4E-3
EPII-CF-12	1.7E+2	2.6E+1	6.3E-1	4.2E-2	2.9E-2	3.3E-3
EPII-CF-13	2.1E+2	3.3E+1	6.9E-1	6.0E-2	3.0E-2	9.9E-3
EPII-CF-14	2.5E+2	1.9E+1	1.3E+0	4.0E-2	2.6E-2	4.5E-3
EPII-CF-15	2.0E+2	1.8E+1	9.1E-1	5.8E-2	2.4E-2	2.5E-3
EPII-CF-16	1.7E+2	1.7E+1	4.2E-1	4.5E-2	2.8E-2	3.4E-3
EPII-CF-17	2.0E+2	1.0E+1	5.0E-1	2.2E-2	2.5E-2	5.2E-4
EPII-CF-18	2.2E+2	2.2E+1	3.3E+0	1.1E-1	3.4E-2	3.2E-3
EPII-CF-19	1.8E+2	1.8E+1	6.5E-1	5.2E-2	1.3E-2	2.1E-3
EPII-CF-20	1.8E+2	2.7E+1	3.7E-1	5.6E-2	1.2E-2	3.9E-3
EPII-CF-21	2.1E+2	2.9E+1	7.6E-1	5.3E-2	1.2E-2	2.9E-3
EPII-CF-22	1.9E+2	3.4E-1	8.9E-1	3.0E-2	1.5E-2	2.0E-3
EPII-CF-23	2.2E+2	6.7E+0	6.1E-1	3.2E-2	1.2E-2	3.7E-3
EPII-CF-24	2.0E+2	2.4E+1	6.2E-1	6.2E-2	1.8E-2	3.4E-3
EPII-CF-25	1.3E+2	1.9E+1	4.4E-1	4.8E-2	7.1E-3	5.5E-3
EPII-CF-26	1.5E+2	1.5E+1	4.2E-1	3.4E-2	7.1E-3	2.2E-3
EPII-CF-27	1.5E+2	2.0E+1	5.6E-1	5.6E-2	8.1E-3	3.2E-3
EPII-CF-28	1.2E+2	2.1E+1	7.9E-1	4.3E-2	9.1E-3	2.6E-3
EPII-CF-29	1.5E+2	2.0E+1	7.4E-1	4.7E-2	6.2E-3	4.1E-3
EPII-CF-30	1.4E+2	1.6E+1	1.2E+0	3.0E-2	6.5E-3	3.0E-3
幾何平均値 () 内は範囲	1.8E+2 (1.2E+2 - 3.1E+2)		7.0E-1 (3.7E-1 -3.3E+0)		2.1E-2 (6.2E-3 - 5.1E-2)	

表 4.3-7 玄米の塩素，臭素およびヨウ素の移行係数 (dry weight basis)

Sample code	Cl	Br	I
EPII-CF-1	3.7E+0	1.0E-1	3.7E-2
EPII-CF-2	1.3E+1	1.6E-1	5.6E-2
EPII-CF-3		1.3E-1	3.6E-2
EPII-CF-4	4.8E+0	1.2E-1	4.3E-2
EPII-CF-5	2.8E+1	1.3E-1	4.5E-2
EPII-CF-6		1.2E-1	3.0E-2
EPII-CF-7		3.8E-1	4.2E-2
EPII-CF-8		8.2E-2	1.8E-2
EPII-CF-9		4.2E-1	3.4E-2
EPII-CF-10	4.1E+0	1.0E-1	1.7E-2
EPII-CF-11	1.0E+1	2.8E-1	3.0E-2
EPII-CF-12		2.9E-1	5.0E-2
EPII-CF-13		2.8E-1	2.4E-2
EPII-CF-14		2.8E-1	4.2E-2
EPII-CF-15	6.4E+0	1.7E-1	1.4E-2
EPII-CF-16	4.6E+0	3.8E-2	8.2E-3
EPII-CF-17	4.4E+0	6.8E-2	1.3E-2
EPII-CF-18	4.2E+0	5.3E-2	1.5E-3
EPII-CF-19	4.1E+0	7.4E-2	6.3E-3
EPII-CF-20		1.5E-1	1.5E-2
EPII-CF-21	7.2E+0	1.9E-1	1.5E-2
EPII-CF-22	4.0E+1	2.9E-1	1.6E-2
EPII-CF-23	1.6E+1	4.4E-1	3.1E-2
EPII-CF-24	7.1E+0	1.5E-1	5.3E-3
EPII-CF-25	1.4E+1	1.4E-1	4.5E-3
EPII-CF-26	6.6E+0	9.5E-2	9.4E-3
EPII-CF-27	1.3E+1	7.0E-2	4.3E-3
EPII-CF-28		2.6E-1	7.3E-3
EPII-CF-29	9.3E+0	1.3E-1	3.0E-3
EPII-CF-30	5.6E+0	1.2E-1	2.3E-3
幾何平均値 () 内は範囲	9.0E+0 (3.7E+0 - 4.0E+1)	1.5E-1 (3.8E-2 - 4.4E-1)	1.5E-2 (1.5E-3 - 5.6E-2)

4.3.4. Thの土壌-米の移行係数データ

本調査研究で得られた Th 濃度結果および TF を表 4.3-8 に示す。土壌試料 20 点の Th 濃度範囲は 2.3-10 mg/kg であり、幾何平均値は、4.4 mg/kg であった。玄米試料 20 点の Th 濃度範囲は 4.1×10^{-5} - 6.1×10^{-4} mg/kg、幾何平均値は 1.3×10^{-4} mg/kg であった。白米試料 10 点の Th 濃度範囲は 2.2×10^{-5} - 1.4×10^{-4} mg/kg であり、幾何平均値は、 4.6×10^{-5} mg/kg であった。

玄米の Th 濃度は白米の Th 濃度より高く、白米 Th 濃度と玄米 Th 濃度の比は 0.23-0.73 であった。

Th の土壌-米間の TF について、本研究で取得した土壌-玄米間の TF (n=20) は 7.6×10^{-6} から 1.4×10^{-4} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 3.0×10^{-5} と 4.2×10^{-5} であった。土壌-白米間の TF (n=9) は 5.1×10^{-6} から 3.5×10^{-5} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 1.3×10^{-5} と 1.6×10^{-5} であった。

表 4.3-8 水田土と米中 Th 測定結果および Th の土壌-米間移行パラメータ

Soil	Soil Th (mg/kg)	Brown Rice	Brown Rice Th (mg/kg)	TF (Brown rice)	White rice Th (mg/kg)	TF (White rice)
EPII-SD-11	6.1E+0	EP II-CF-11	2.9E-04	4.8E-05		
EPII-SD-12	5.7E+0	EP II-CF-12	2.5E-04	4.4E-05		
EPII-SD-13	3.8E+0	EP II-CF-13	4.7E-04	1.2E-04		
EPII-SD-14	1.0E+1	EP II-CF-14	1.4E-04	1.4E-05		
EPII-SD-15	3.2E+0	EP II-CF-15	2.0E-04	6.3E-05		
EPII-SD-16	5.0E+0	EP II-CF-16	7.9E-05	1.6E-05		
EPII-SD-17	3.5E+0	EP II-CF-17	1.7E-04	4.9E-05		
EPII-SD-18	7.1E+0	EP II-CF-18	7.7E-05	1.1E-05		
EPII-SD-19	5.4E+0	EP II-CF-19	2.3E-04	4.3E-05		
EPII-SD-20	6.8E+0	EP II-CF-20	1.5E-04	2.2E-05		
EPII-SD-21	3.5E+0	EP II-CF-21	3.7E-04	1.1E-04	1.2E-04	3.5E-05
EPII-SD-22	3.2E+0	EP II-CF-22	5.8E-05	1.8E-05	3.4E-05	1.0E-05
EPII-SD-23	3.5E+0	EP II-CF-23	5.2E-05	1.5E-05	3.7E-05	1.1E-05
EPII-SD-24	4.4E+0	EP II-CF-24	6.1E-04	1.4E-04	1.4E-04	3.2E-05
EPII-SD-25	3.7E+0	EP II-CF-25	4.1E-05	1.1E-05	3.0E-05	8.2E-06
EPII-SD-26	2.5E+0	EP II-CF-26	7.7E-05	3.0E-05	4.4E-05	1.7E-05
EPII-SD-27	4.3E+0	EP II-CF-27	7.0E-05	1.6E-05	2.2E-05	5.1E-06
EPII-SD-28	6.3E+0	EP II-CF-28	4.8E-05	7.6E-06	ND	ND
EPII-SD-29	4.1E+0	EP II-CF-29	1.7E-04	4.1E-05	5.5E-05	1.3E-05
EPII-SD-30	2.3E+0	EP II-CF-30	6.0E-05	2.7E-05	2.6E-05	1.2E-05
Remarks	n = 20		n = 20	n = 20	n = 9	n = 9
Range	2.3E+00 to 1.0E+01		4.1E-05 to 6.1E-04	7.6E-6 to 1.4E-04	2.2E-05 to 1.4E-04	5.1E-06 to 3.5E-05
Minimum	2.3E+00		4.1E-05	7.6E-06	2.2E-05	5.1E-06
Maximum	1.0E+01		6.1E-04	1.4E-04	1.4E-04	3.5E-05
Max./Min.	4.5E+00		1.5E+01	1.8E+01	6.4E+00	6.7E+00
Median	4.2E+00		1.5E-04	2.9E-05	3.7E-05	1.2E-05
Arithmetic mean (AM)	4.7E+00		1.8E-04	4.2E-05	5.6E-05	1.6E-05
Geometric mean (GM)	4.4E+00		1.3E-04	3.0E-05	4.6E-05	1.3E-05

4.3.5. 土壌中 Am の濃度とその分布

現在、我が国土壌については、グローバルフォールアウト起源の Pu の分布状況と環境移行についてのデータ幾つか報告されているが、Am に関してはデータがほとんどない。したがって、Am の環境挙動について、さらなる研究が必要とされている。

本調査では、日本全域から採取した 44 件の畑土試料を用いて、²⁴¹Am 濃度、²³⁹⁺²⁴⁰Pu 濃度と

$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の分析を行った。試料採取場所と ^{241}Am 分析結果を表 4.3-9 に示す。畑土中の ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度より低く、 $0.022\text{-}0.255\text{ mBq g}^{-1}$ の範囲であり、 ^{241}Am 濃度平均値は $0.099 \pm 0.052\text{ mBq g}^{-1}$ であった。環境試料中の ^{241}Am 分析は、濃度が極低レベルであるために一般に困難であり、土壌中の ^{241}Am 濃度に関する情報は非常に限られている。Yamamoto ら (1983) は、主に 1963 年と 1976 年に日本国内 15 地点で採取された水田の表層土壌 30 サンプル、およびこの 15 地点の中から 2 地点を選択し、1957 年から 1980 年にかけて定期的に採取した土壌試料 15 点についての ^{241}Am 濃度を測定した。その結果、 ^{241}Am 濃度は $0.030\text{-}0.337\text{ mBq g}^{-1}$ であったと報告されている。1963 年に採取した水田の表層土壌 30 試料中の ^{241}Am 濃度平均値は $0.163 \pm 0.085\text{ mBq g}^{-1}$ であり、1976 年は $0.118 \pm 0.078\text{ mBq g}^{-1}$ であった。本調査で得られた結果と比較すると、水田土より、畑土中 ^{241}Am 濃度平均値はやや低い。しかし、畑土と水田土の ^{241}Am 濃度はいずれも森林土壌 ($0.407\sim 2.701\text{ mBq g}^{-1}$) よりもはるかに低かった (Yamamoto et al., 1980)。

$^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比および $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio の測定結果を表 4.3-10 に示す。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.152 から 0.193 の範囲であり、平均値は 0.175 ± 0.009 であった。この $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、平成 25 年度に調査した 1970 年代福島県と関東地域表層土と一致する (放射線医学総合研究所, 2014; Yang et al., 2015)。この結果は、我が国の土壌試料中の Pu の主な放出源はグローバルフォールアウトであることを示唆している。

畑土試料中の有機物含有量 (450 °C 灰化後のサンプルの減少割合) の範囲は 3.6-30.62% であった (表 4.3-9)。Pu と ^{241}Am は土壌有機物に強く吸着するという報告があるが (Ovsiannikova et al., 2010), 図 4.3-2A に示すように、 ^{241}Am 濃度と有機物含有量には相関が認められなかった。

図 4.3-2B, C に ^{241}Am 濃度と $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ^{137}Cs 濃度の相関を示す。図から分かるように、 ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ^{137}Cs 濃度と非常に高い相関がある。これは、畑土中の ^{241}Am と ^{137}Cs , Pu 同位体は、環境動態が似ていることを示唆している。 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比は 0.34-0.52 と狭い範囲であった (表 4.3-10)。これらの結果は、畑土中 ^{241}Am と Pu 同位体の起源はグローバルフォールアウトであることを示唆している。

$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比と ^{241}Am 濃度の相関について、本調査結果と文献値による水田土のデータ結果を図 4.3-3 に示す。一点を除いて、 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比は 0.418 ± 0.066 であった (図 4.3-3A)。図 4.3-3B は、Yamamoto ら (1983) が調査した秋田と上越の水田の表層土壌中における $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比の時系列変化 (1955-1980) である。1957 年と 1958 年の土壌試料の $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比 (平均 0.44) は、1961 年以降の土壌試料 (平均 0.30) より有意に高い。環境試料中に検出可能な Am は、核爆発から直接生成されたものだけではない。核爆発時に他の Pu と同時に生成された ^{241}Pu の崩壊によって生成された ^{241}Am も存在する。大気圏内核実験が多く行われた 2 つの期間があり、最初のもは 1952-1958 年、もう一つは 1961-1962 年である。Hisamatsu et al., 1978 や Koide et al., 1981 らは、第 1 期の核実験によるフォールアウトの $^{241}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比は第 2 期の値よりも有意に高いことを報告している。すなわち、1981-1982 年の測定時期に図 4.3-3B の 1957 年および 1958 年に採取した土壌サンプルに見られる高い $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$ 比は、最初の期間の原爆試験に由来する。また、1960 年から 1980 年までは $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$ 比が土壌サンプリングの日付にかかわらず一定値 (平均 0.30) であるのは、これらの試料の測定がすべて 1981-1982 年に実施されたためである。すなわち、環境中に放出された ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14.4$ 年) は β 崩壊により ^{241}Am ($T_{1/2} = 433$ 年) となるため、試料中の ^{241}Am 測定においては、いつ頃測定されたかが重要となる。

表 4.3-9 畑土試料採取場所および²⁴¹Am と有機物含有量測定結果

Sample code		FAO-UNESCO	Prefecture	Organic matter (%)	²⁴¹ Am activity (mBq/g)	std
EF-SD-01	黒ボク土	Andosol	北海道	17.9%	0.067	0.017
EF-SD-06	グライ低地土	Fluvisol	新潟	8.5%	0.154	0.011
EF-SD-07	多湿黒ボク土	Andosol	富山	8.4%	0.084	0.012
EF-SD-08	褐色低地土	Cambisol	京都	3.6%	0.036	0.011
EF-SD-09	褐色低地土	Cambisol	三重	5.4%	0.089	0.014
EF-SD-10	黒ボク土	Andosol	山口	17.0%	0.122	0.015
EF-SD-11	灰色低地土	Fluvisol	福岡	7.0%	0.060	0.010
EF-SD-13	グライ低地土	Fluvisol	北海道	7.1%	0.110	0.014
EF-SD-17	グライ低地土	Fluvisol	千葉	20.0%	0.058	0.015
EF-SD-18	黒ボク土	Andosol	千葉	14.2%	0.113	0.013
EF-SD-21	灰色低地土	Fluvisol	福井	6.5%	0.104	0.015
EF-SD-22	褐色低地土	Cambisol	岐阜	6.9%	0.064	0.012
EF-SD-23	黄色土	Cambisol	愛知	6.6%	0.037	0.010
EF-SD-24	灰色低地土	Fluvisol	兵庫	6.3%	0.058	0.011
EF-SD-25	灰色低地土	Fluvisol	鳥取	8.1%	0.099	0.010
EF-SD-29	褐色森林土	Cambisol	北海道	10.8%	0.085	0.014
EF-SD-30	多湿黒ボク土	Andosol	青森	20.2%	0.219	0.027
EF-SD-35	未熟低地土	Fluvisol	神奈川	10.2%	0.118	0.013
EF-SD-36	多湿黒ボク土	Andosol	新潟	12.4%	0.179	0.019
EF-SD-37	灰色低地土	Fluvisol	石川	6.8%	0.139	0.009
EF-SD-40	グライ低地土	Fluvisol	広島	7.8%	0.073	0.007
EF-SD-41	グライ低地土	Fluvisol	島根	6.2%	0.099	0.016
EF-SD-45	非アロフェン質黒ボク土	Andosol	宮崎	21.0%	0.047	0.010
EF-SD-51	グライ台地土	Gleysol	富山	9.4%	0.255	0.015
EF-SD-55	灰色低地土	Fluvisol	滋賀	4.3%	0.093	0.010
EF-SD-56	褐色低地土	Cambisol	奈良	4.7%	0.060	0.006
EF-SD-57	黄色土	Cambisol	岡山	7.6%	0.066	0.008
EF-SD-58	グライ低地土	Fluvisol	山口	4.7%	0.127	0.019
EF-SD-59	褐色低地土	Cambisol	徳島	5.4%	0.132	0.016
EF-SD-60	グライ低地土	Fluvisol	佐賀	10.4%	0.160	0.010
EF-SD-61	黄色土	Cambisol	大分	17.7%	0.040	0.008
EF-SD-64	グライ低地土	Fluvisol	山形	9.5%	0.210	0.021
EF-SD-66	多湿黒ボク土	Andosol	栃木	15.8%	0.111	0.011
EF-SD-67	黒ボク土	Andosol	群馬	8.0%	0.047	0.010
EF-SD-68	黒ボク土	Andosol	神奈川	22.5%	0.070	0.009
EF-SD-69	灰色低地土	Fluvisol	山梨	3.8%	0.022	0.005
EF-SD-70	グライ低地土	Fluvisol	愛知	6.9%	0.069	0.015
EF-SD-71	黒ボク土	Andosol	三重	15.5%	0.150	0.020
EF-SD-72	灰色低地土	Fluvisol	滋賀	7.1%	0.056	0.007
EF-SD-73	多湿黒ボク土	Andosol	兵庫	25.4%	0.151	0.026
EF-SD-74	黄色土	Cambisol	和歌山	4.5%	0.068	0.010
EF-SD-76	灰色低地土	Fluvisol	高知	13.6%	0.124	0.017
EF-SD-77	黒ボク土	Andosol	熊本	30.6%	0.074	0.014
EF-SD-79	黒ボク土	Andosol	鹿児島	15.4%	0.068	0.011
min				3.6%	0.022	
max				30.6%	0.255	
median				8.3%	0.087	
arithmetic mean (AM)				10.9%	0.099	
Geometric mean (GM)				9.4%	0.087	

表 4.3-10 畑土中 Pu 同位体および $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比測定結果

Sample code		FAO-UNESCO	Prefecture	$^{239+240}\text{Pu}$ activity (mBq/g)	std	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	std	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	std
EF-SD-01	黒ボク土	Andosol	北海道	0.182	0.001	0.182	0.015	0.370	0.094
EF-SD-06	グライ低地土	Fluvisol	新潟	0.384	0.007	0.166	0.016	0.402	0.030
EF-SD-07	多湿黒ボク土	Andosol	富山	0.207	0.002	0.169	0.014	0.405	0.060
EF-SD-08	褐色低地土	Cambisol	京都	0.105	0.001	0.173	0.018	0.338	0.101
EF-SD-09	褐色低地土	Cambisol	三重	0.227	0.002	0.182	0.015	0.392	0.061
EF-SD-10	黒ボク土	Andosol	山口	0.339	0.005	0.172	0.017	0.359	0.043
EF-SD-11	灰色低地土	Fluvisol	福岡	0.161	0.001	0.175	0.012	0.373	0.061
EF-SD-13	グライ低地土	Fluvisol	北海道	0.256	0.003	0.172	0.016	0.429	0.053
EF-SD-17	グライ低地土	Fluvisol	千葉	0.159	0.001	0.183	0.019	0.366	0.096
EF-SD-18	黒ボク土	Andosol	千葉	0.290	0.003	0.182	0.013	0.389	0.044
EF-SD-21	灰色低地土	Fluvisol	福井	0.283	0.002	0.170	0.008	0.367	0.052
EF-SD-22	褐色低地土	Cambisol	岐阜	0.169	0.001	0.179	0.013	0.378	0.071
EF-SD-23	黄色土	Cambisol	愛知	0.100	0.000	0.180	0.012	0.372	0.096
EF-SD-24	灰色低地土	Fluvisol	兵庫	0.145	0.001	0.183	0.014	0.398	0.077
EF-SD-25	灰色低地土	Fluvisol	鳥取	0.254	0.001	0.174	0.008	0.389	0.039
EF-SD-29	褐色森林土	Cambisol	北海道	0.218	0.001	0.180	0.008	0.392	0.064
EF-SD-30	多湿黒ボク土	Andosol	青森	0.595	0.016	0.178	0.018	0.367	0.047
EF-SD-35	未熟低地土	Fluvisol	神奈川	0.171	0.001	0.177	0.012	0.689	0.076
EF-SD-36	多湿黒ボク土	Andosol	新潟	0.434	0.008	0.166	0.015	0.412	0.044
EF-SD-37	灰色低地土	Fluvisol	石川	0.325	0.007	0.171	0.022	0.428	0.029
EF-SD-40	グライ低地土	Fluvisol	広島	0.146	0.001	0.179	0.022	0.500	0.048
EF-SD-41	グライ低地土	Fluvisol	島根	0.239	0.002	0.174	0.014	0.413	0.065
EF-SD-45	非アロフェン質黒ボク土	Andosol	宮崎	0.099	0.000	0.182	0.014	0.480	0.106
EF-SD-51	グライ台地土	Gleysol	富山	0.678	0.018	0.168	0.015	0.376	0.025
EF-SD-55	灰色低地土	Fluvisol	滋賀	0.187	0.002	0.176	0.016	0.499	0.052
EF-SD-56	褐色低地土	Cambisol	奈良	0.116	0.001	0.176	0.015	0.517	0.050
EF-SD-57	黄色土	Cambisol	岡山	0.130	0.001	0.182	0.017	0.505	0.065
EF-SD-58	グライ低地土	Fluvisol	山口	0.306	0.004	0.176	0.014	0.416	0.063
EF-SD-59	褐色低地土	Cambisol	徳島	0.281	0.004	0.168	0.019	0.469	0.059
EF-SD-60	グライ低地土	Fluvisol	佐賀	0.358	0.006	0.175	0.017	0.447	0.029
EF-SD-61	黄色土	Cambisol	大分	0.084	0.001	0.171	0.029	0.479	0.092
EF-SD-64	グライ低地土	Fluvisol	山形	0.541	0.015	0.166	0.020	0.387	0.041
EF-SD-66	多湿黒ボク土	Andosol	栃木	0.233	0.002	0.179	0.014	0.475	0.047
EF-SD-67	黒ボク土	Andosol	群馬	0.099	0.001	0.193	0.031	0.473	0.100
EF-SD-68	黒ボク土	Andosol	神奈川	0.188	0.002	0.155	0.014	0.373	0.049
EF-SD-69	灰色低地土	Fluvisol	山梨	0.053	0.006	0.193	0.024	0.415	0.111
EF-SD-70	グライ低地土	Fluvisol	愛知	0.172	0.007	0.189	0.008	0.402	0.088
EF-SD-71	黒ボク土	Andosol	三重	0.432	0.018	0.184	0.082	0.347	0.048
EF-SD-72	灰色低地土	Fluvisol	滋賀	0.122	0.007	0.177	0.009	0.458	0.066
EF-SD-73	多湿黒ボク土	Andosol	兵庫	0.439	0.024	0.166	0.009	0.344	0.063
EF-SD-74	黄色土	Cambisol	和歌山	0.184	0.016	0.152	0.001	0.368	0.062
EF-SD-76	灰色低地土	Fluvisol	高知	0.352	0.019	0.174	0.010	0.353	0.052
EF-SD-77	黒ボク土	Andosol	熊本	0.143	0.022	0.173	0.002	0.515	0.129
EF-SD-79	黒ボク土	Andosol	鹿児島	0.178	0.014	0.159	0.001	0.384	0.067
min				0.053		0.152		0.338	
max				0.678		0.193		0.689	
median				0.198		0.175		0.400	
arithmetic mean (AM)				0.245		0.175		0.418	
Geometric mean (GM)				0.211		0.175		0.414	

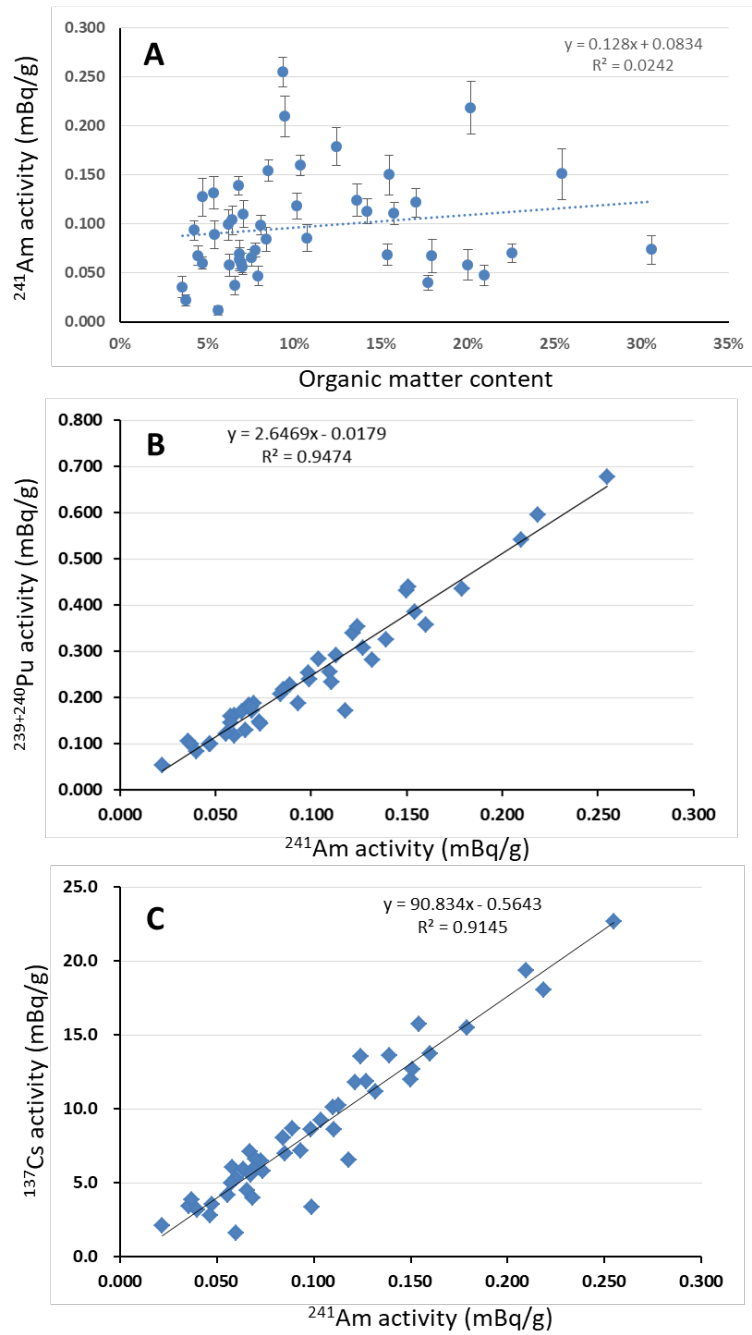


図 4.3-2 畑土中 ^{241}Am 濃度と有機物含有量, $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ^{137}Cs 濃度の相関

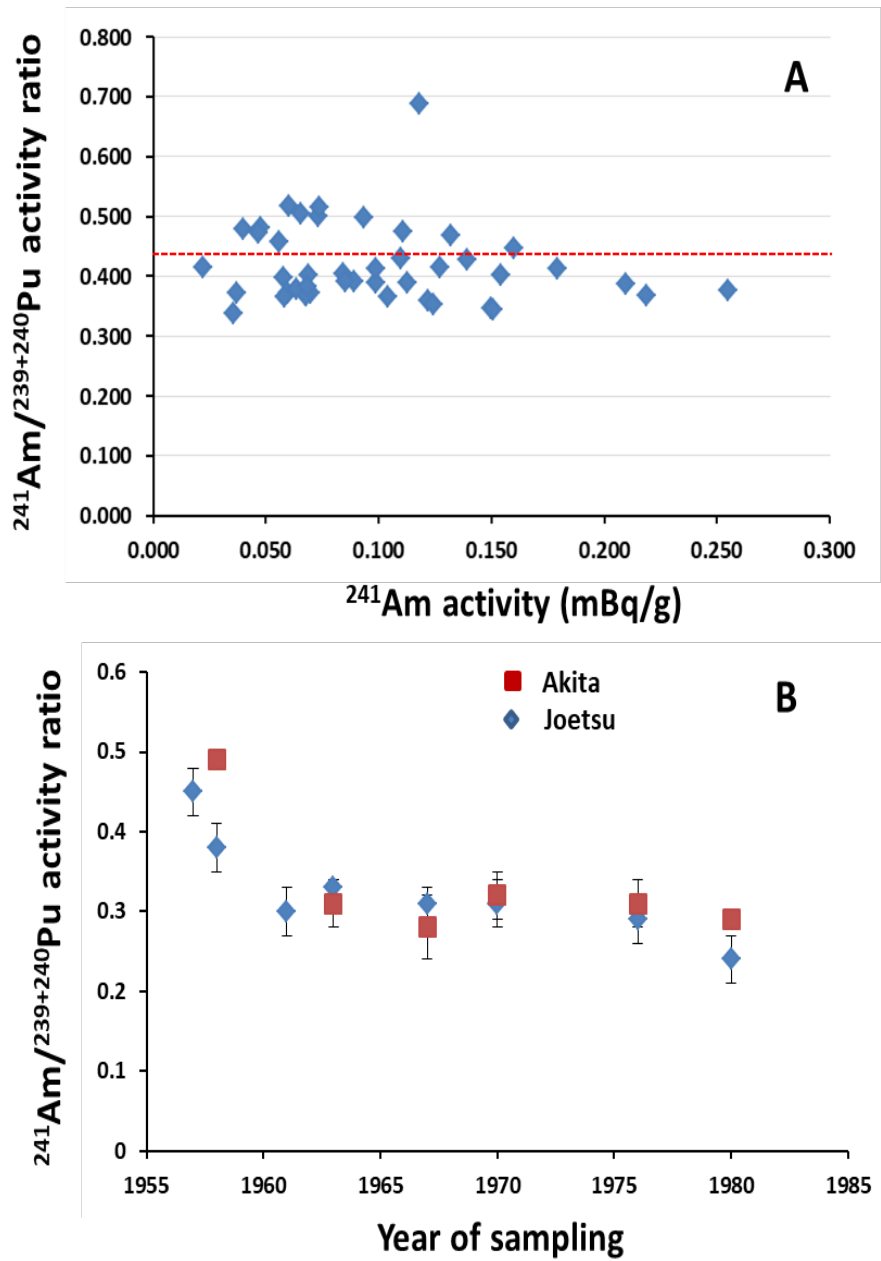


図 4.3-3 畑土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比と ^{241}Am 濃度の相関と水田土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比文献値の比較

4.3.6. 重要核種 (Pu, Th および Cl) の移行係数と文献値の比較

4.3.6.1. 土壌-玄米間 Pu の移行係数と文献値の比較

以前に公表されたデータと、本研究で得られた値を比較すると、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 のソース及びサンプリング環境の違いによるものと思われる。表 4.3-11 に示すように、以前報告されたデータは、^{239,240}Pu 汚染サイト (Duffa ら, 2002), 核実験サイト (Zhang ら, 1989) または ²³⁸Pu スパイク実験より (Adriano et al., 1981) のいずれかから取得された試料である。また、報告されたデータについては、対象が玄米なのか白米なのかも明記されていない。汚染地域から試料から求められた TF には、根からの吸収、すなわち、土壌-米間の移行以外のプロセス、例えば、re-suspension や表面汚染などにより、米試料中の Pu 濃度が上昇する可能性があり (Wang et al., 2015a), その場合、TF が過大評価されることになる。一方、re-suspension や表面汚染以外にも、TF に影響を及ぼす因子として、エイジング効果が考えられる。すなわち、グローバルフォールアウト起源の Pu では、土壌に添加されてから数十年以上が経過しており、植物が吸収できるフラクションに存在する Pu (可給態 Pu) 量が次第に少なくなっているものと思われる。可給態 Pu は時間とともに減少すると考えられている。グローバルフォールアウト起源の Pu の場合、総存在量の 1~4% のみが植物が根から吸収可能であると報告されている (Baeza et al., 2006)。一方、高いバイオアベイラビリティを有する可溶性形態 (例えば (Guillen et al., 2016) により硝酸塩形態) で添加されたポット実験から得られた TF データは 1~2 桁程度過大評価される可能性がある。放射性廃棄物の地層処分に係わる長期間の安全評価においては、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と添加されたポット実験から得られた TF 値よりも長期間の安全評価においてより現実的であると考えられる。

IAEA TRS-472 では、Pu の土壌-農作物間 TF データを取りまとめているが、前述したように土壌-米間 TF データは示されていない (図 4.3-4)。図 4.3-4 には比較のため、TRS-472 の葉菜類 Pu-TF の範囲と本調査により得られた我が国の葉菜類 Pu-TF 算術平均値も示した。土壌-穀物 (穀物, 食用部分) 間 TF データの幾何平均値は 9.5×10^{-6} ($n=105$) であると報告されている (IAEA TRS-472)。本研究で得られた土壌-玄米間 TF データの幾何平均値 (3.1×10^{-5}) ($n = 14$) は信頼性があり、Pu の土壌-玄米間 TF データベースへの補完することができる。

表 4.3-11 Pu の土壌-米間移行係数の比較

Country	Pu source and sampling environment	TF of Pu	Reference
France	^{239,240} Pu contaminated area	1.4×10^{-3}	Duffa et al., 2003
China	Chinese nuclear test site and controlled area	2.0×10^{-3}	Zhang et al., 1989
America	²³⁸ Pu contaminated soil in pot experiment	1.7×10^{-4}	Ariano et al., 1981
Japan	Global fallout ^{239,240} Pu in paddy field	$4.5 \times 10^{-6} - 1.2 \times 10^{-4}$	This study

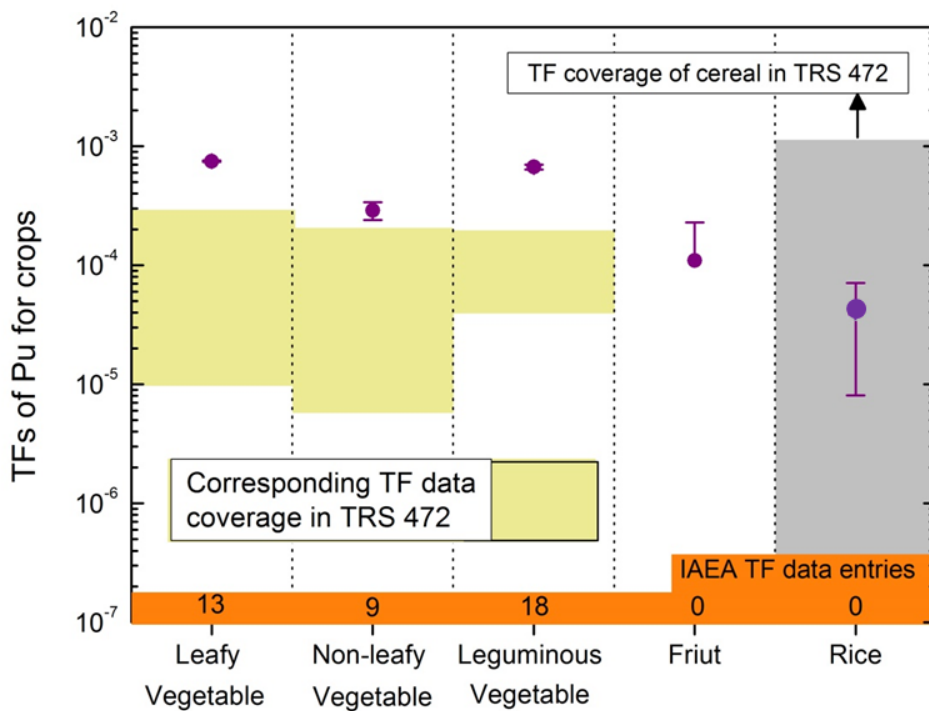


図 4.3-4 Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較（紫色ドットは本調査測定結果平均値）

4.3.6.2. 塩素の土壌-農作物間の移行係数と文献値の比較

本研究で得られた玄米、ジャガイモおよび葉菜類の Cl の移行係数について、文献値と比較を行った。表 4.3-12 にこれまでの調査結果を示す。IAEA (2010) には穀類への Cl の TF として 36 (範囲: 20-86, N=7) が報告されており、本調査で報告した値の範囲内であったが穀類の海外データは高めの傾向であった。葉菜類については本研究では GM=39 であった。放射化分析法で測定している Tsukada and Nakamura (1998) や Yuita (1983) と今回得られた値は同程度であっ

たといえる。イモ類についての幾何平均値は本調査と海外データは同程度であった。

表 4.3-12 にまとめたデータで、安定元素と Cl-36 を用いて行ったトレーサー実験の TF の比較もできる。GM 値や範囲は、安定元素で得られた TF と Cl-36 の差はほとんど見られず、従って、安定元素で得られた TF は Cl-36 の TF として十分活用可能であることを示している。

表 4.3-12 本報告の塩素 TF と文献値との比較

Isotope	Group	n	GM	min	max	Ref
Cl	Brown rice	47	6.7	2.0	40	This study
Cl-36	Cereals, grain	7	36	20	86	IAEA Tecdoc 1616, 2009
Cl-36	Cereals, grain	8	36	21	75	Kashparov, 2005, 2007a
Cl	Cereals, grain	14	17	4.3	66	Sheppard et al., 1993, 1999; Kashparov 2007b
Cl	Polished rice	2	0.5	0.4	0.6	Tsukada et al., 2007 Tsukada and Takeda, 2008
Cl	Leafy vegetables, leaves	10	39	11	141	This study
Cl-36	Leafy vegetables, leaves	6	26	14	48	IAEA Tecdoc 1616, 2009
Cl-36	Leafy vegetables, leaves	10	19	6	60	Kashparov, 2005, 2007a
Cl	Leafy vegetables, leaves	15	20	7.4	71	Sheppard et al., 1993, 1999; Kashparov 2007b
Cl	Leafy vegetables, leaves	2	30	15	44	Tsukada and Nakamura, 1998
Cl	Leafy vegetables, leaves	5	76	10	265	Yuita, 1983
Cl	Tubers, tuber	8	37	19	270	This study
Cl-36	Tubers, tuber	4	33	28	36	Kashparov, 2005, 2007a
Cl	Tubers, tuber	5	42	10	95	Sheppard et al., 1993, 1999; Kashparov 2007b

4.3.6.3. Th の土壌-米間の移行係数と文献値の比較

国際的なデータ集である TRS-472 に登録されたデータ取扱最終年である 2007 年以降も、Th の土壌-農作物間の移行係数 TF に関する多くの研究が行われ、新しいデータが報告されている(第 4.3.1 項参照)。しかし、Th の土壌-米間の移行係数に関する研究は、IAEA TRS-472 報告後には、ほとんど行われていない。本研究で取得した Th の土壌-米間の移行係数と IAEA TRS-472 報告及び Uchida ら(2007b)の文献値を表 4.3-13 に示す。

表 4.3-13 に示したように、IAEA-TRS-472 報告書は、玄米、白米を区別せず、米試料として、57 点の TF データがまとめている。Uchida (2007b)らも本研究同様に、玄米、白米それぞれの TF データを示している。本研究で取得した土壌-玄米間の TF (n=20) は 7.6×10^{-6} から 1.4×10^{-4} の範囲であり、その幾何平均値は、 3.0×10^{-5} であった。土壌-白米間の TF (n=9)は 5.1×10^{-6} から

表 4.3-13 Th の土壤-米間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較

	IAEA-TRS-472	Uchida et al. 2007		This study	
	Rice	Brown rice	White rice	Brown rice	White rice
Number of samples	57	40	37	20	9
Geomean	1.6×10^{-4}	1.0×10^{-4}	1.3×10^{-4}	3.0×10^{-5}	1.3×10^{-5}
Min.	2.2×10^{-5}	2.2×10^{-5}	2.0×10^{-5}	7.6×10^{-6}	5.1×10^{-6}
Max	4.0×10^{-2}	8.3×10^{-4}	2.2×10^{-3}	1.4×10^{-4}	3.5×10^{-5}

3.5×10^{-5} の範囲であり、その幾何平均値は、 1.3×10^{-5} であった。土壤-白米間の TF の幾何平均値は IAEA-TRS-472 報告書および Uchida らの文献値より一桁低いことがわかった。土壤-玄米間の TF の幾何平均値は IAEA-TRS-472 報告書および Uchida らの文献値より 5.3 倍と 3.3 倍低かった。Uchida らは四重極の ICP-MS を用いて米試料中の Th を測定しているため、本調査で開発した高精度分析法- SF-ICP-MS 測定法と比較すると検出限界が高く、検出限界以下のデータが含まれていない。すなわち、測定が可能であった試料だけの平均値であるために高かくなつた可能性がある。

4.3.7. まとめ

4.3.7.1. Pu の土壤-玄米間移行係数データの収集

本研究では、土壤と米試料を Pu 分析し、Pu の土壤-玄米間 TF データを収集した。土壤試料中の Pu 同位体比 ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比) は、これらの土壤中の 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 TF を求め ($n=16$)、 4.5×10^{-6} から 1.2×10^{-4} であった。幾何平均値は 3.3×10^{-5} であった。一般に、Pu の TF データ数は少ないため、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となることが期待される。

4.3.7.2. 土壤および玄米中の塩素定量と移行係数の導出のまとめ

土壤および植物試料中の Cl 定量のための超高精度分析法を開発した。得られた分析法により土壤および玄米中の Cl 濃度を定量し、TF を導出することができた。その結果、土壤試料の Cl 濃度は 4.9 から 53 mg/kg であった。玄米試料の Cl 濃度は 120 から 310 mg/kg であった。土壤-玄米間の TF は 3.7 から 40 の範囲であり、Cl の玄米 TF の幾何平均値として 9.0 (N=20) を得ることができた。この値は IAEA (2010) に報告されている穀類データ (米を除く。N=7) よりも低い、国際的なデータベースよりも多くのデータを得ることができたことから、データの信頼性を高めることができたといえる。また同時に I の TF も測定できる方法であることから、本手法を用いることでより多くのデータが得られることが期待できる。

4.3.7.3. Th の土壤-米間移行係数データの収集

玄米試料 20 点と白米試料 10 点を用いて、Th 濃度測定を行った。玄米試料 20 点の Th 濃度範囲は 4.1×10^{-5} から 6.1×10^{-4} mg/kg であった。最大/最小濃度比は 15 であった。算術平均値お

よび幾何平均値は、それぞれ 1.8×10^{-4} と 1.3×10^{-4} mg/kg であった。白米試料 10 点の Th 濃度範囲は 2.2×10^{-5} から 1.4×10^{-4} mg/kg であった。最大/最小濃度比は 6.4 であった。算術平均値および幾何平均値は、それぞれ 5.6×10^{-5} と 4.6×10^{-5} mg/kg であった。玄米の Th 濃度は白米の Th 濃度より高かった。白米 Th 濃度と玄米 Th 濃度比は 0.23-0.73 であった。

Th の土壌-米間の TF について、本研究で取得した土壌-玄米間の TF (n=20) は 7.6×10^{-6} から 1.4×10^{-4} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 3.0×10^{-5} と 4.2×10^{-5} であった。土壌-白米間の TF (n=9) は 5.1×10^{-6} から 3.5×10^{-5} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 1.3×10^{-5} と 1.6×10^{-5} であった。

4.3.7.4. 土壌中 ^{241}Am の濃度とその分布

平成 28 年度に確立された超高精度分析法を用いて、日本全国から採取した 44 地点の畑土試料中の ^{241}Am 濃度測定を行った。畑土中の ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度より低く、0.022-0.255 mBq g⁻¹ の範囲であった。日本海側でやや高い傾向があったが、これはグローバルフォールアウト ^{137}Cs や ^{90}Sr の分布理由と同じで、冬季の降雪が影響しているものと考えられた。

畑土試料の ^{241}Am 濃度平均値は 0.099 ± 0.052 mBq g⁻¹ であり、 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比は 0.418 ± 0.066 であった。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.152 から 0.193 の範囲であり、平均値は 0.175 ± 0.009 であった。この $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の範囲は、平成 25 年度に調査した 1970 年代福島県と関東地域表層土と一致した。すなわち、これら土壌試料中の Pu と ^{241}Am の主なソースはグローバルフォールアウトであることを示唆している。これらのデータは事故による、東電福島第一原発周辺土壌の Pu と ^{241}Am 影響評価の基礎情報としての利用が期待できる。

引用文献

- 結田康一, 信沢由美子, 赤部誠一, 渋谷政夫, 麻生末雄. (1984). 三面川 (新潟県) および長良川流域の土壌および植物中ヨウ素, 臭素および塩素含量: わが国の土壌および植物中ヨウ素, 臭素および塩素含量 (第 1 報). 日本土壌肥料学雑誌, 55, 62-70.
- 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
- 放射線医学総合研究所 (2017).放射線核種生物圏移行評価高度開発 (平成28年度報告書)
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2016/28fy_kyoutuu_seibutuken.pdf
- 日本原燃株式会社 (2011). プレスリリース: 低レベル放射性廃棄物埋設センターに埋設している放射性廃棄物の線量評価について. 別紙: 日本原燃 (株) 六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターにおける低レベル放射性廃棄物の線量評価と今後の対応について. <http://www.jnfl.co.jp/press/pressj2011/110831besshi.pdf>
- 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, 83-88.

- Alharbi, A., El-Taher, A. (2013). A study on transfer factors of radionuclides from soil to plant. *Life Sci. J.*, 10, 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. *J. Radiat. Res. Appl. Sci.* 8, 300-310.
- Alsaffar, M. S., Suhaimi Jaafar, M., Ahmad Kabir, N., and Nisar, A (2016). Impact of fertilizers on the uptake of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K by potgrown rice plants. *Pollution*, 2, 1-10.
- Amakom, C. M., Orji, C. E., Eke, B. C., Okoli, U. A., Ndudi, C. S. (2017). The influence of selected soil physicochemical properties on radionuclide transfer in Cassava crops. *Int. J. Plant Soil Sci.*, 14, 1-7.
- 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. *Appl. Phys. Res.*, 5, 85-92
- Baeza A, Guillen J, Mietelski JW, Gaca P. (2006). Soil to fungi transfer of ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am . *Radiochim. Acta.*, 94, 75-80.
- Bu, W. T., Zheng, J, Guo, Q. J., Aono, T., Tazoe, H., Tagami, K., Uchida, S., Yamada, M. Bu, W., Zheng, J., Guo, Q., Aono, T., Tazoe, H., Tagami, K., ... & Yamada, M. (2013). A method of measurement of ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu in high U content marine sediments by sector field ICP-MS and its application to Fukushima sediment samples. *Environ. Sci. Technol.* 48, 534-541.
- Černe, M., Smodiš, B., Štrok, M., Jaćimović, R. (2010). Accumulation of ^{226}Ra , ^{238}U and ^{230}Th by wetland plants in a vicinity of U-mill tailings at Žirovski vrh (Slovenia). *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 286, 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. *J. Phys. Sci.*, 24, 95-113.
- Chauhan, R. P., Kumar, A. (2015). Soil to plant transfer of alpha activity in potato plants: impact of phosphate fertilizers. *J. Environ. Health Sci. Eng.*, 13, 1-9.
- Child, D. P., Hotchkis, M. A. C., Williams, M. L. (2008). High sensitivity analysis of plutonium isotopes in environmental samples using accelerator mass spectrometry (AMS). *J. Anal. At. Spectrom.*, 23, 765-768.
- Cizdziel, J. V., Ketterer, M. E., Farmer, D., Faller, S. H., Hodge, V. F. (2008). $^{239,240,241}\text{Pu}$ fingerprinting of plutonium in western US soils using ICPMS: solution and laser ablation measurements. *Anal. Bioanal. Chem.* 2008. 390, 521-530.
- 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. *J. Environ, Radioactiv.*, 101, 159-164.
- 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, 247-248.
- Feng, X., Wu, S., Wharmby, A., Wittmeier, A. (1999). Microwave digestion of plant and grain standard

- reference materials in nitric and hydrofluoric acids for multi-elemental determination by inductively coupled plasma mass spectrometry. *J. Anal. At. Spectrom.*, 14, 939-946.
- 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. *J. Environ. Radioactiv.*, 151, 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.
- Guillen J, Munoz G, Baeza A, Salas A, Mocanu N. (2016). Attempt to reduce ^{239}Pu and ^{241}Am uptake by wheat plantlets by application of inorganic fertilizers. *J Radioanal Nucl Chem.*, 311, 991-997.
- 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. *J. Anal. Atom. Spectrom.*, 19, 966-972.
- Hisamatsu, S., Sakanoue, M. (1978). Determination of transuranium elements in a so-called "Bikini Ash" sample and in marine sediment samples collected near Bikini Atoll. *Health Phys.*, 35, 301-307.
- 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. *J. Phys. Sci.*, 26, 83-98.
- Hrnecek, E., Jakopič, R., Wallner, A., Steier, P. (2008). A combined method for the determination of the isotopic vector of plutonium isotopes in environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 276, 789-793.
- IAEA (1982). Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases. Safety Series No.57, IAEA, Vienna.
- IAEA (2009) Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA TECDOC-1616, IAEA, Vienna
- IAEA (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. IAEA Technical Report Series No. 472, IAEA Vienna, 2010.
- ICRP, (2009). Environmental Protection: Transfer Parameters for Reference Animals and Plants. ICRP Publication 114, Ann. ICRP 39(6).
- Imai, N. (1990): Multielement analysis of rocks with the use of geological certified reference material by inductively coupled plasma mass spectrometry. *Anal. Sci.* 6, 389-395.
- Kashparov, V., Colle, C., Zvarich S., Yoschenko, V., Levchuk S., Lundin, S. (2005). Soil-to-plant halogens transfer studies 2. Root uptake of radiochlorine by plants. *J. Environ. Radioactiv.* 79, 233-253.
- Kashparov, V., Colle, C., Levchuk S., Yoschenko, V., Zvarich S. (2007a). Radiochlorine concentration ratios for agricultural plants in various soil conditions. *J. Environ, Radioactiv.* 95, 10-22.
- Kashparov, V., Colle, C., Levchuk, S., Yoschenko, V., Svydynuk, N. (2007b). Transfer of chlorine from the environment to agricultural foodstuffs. *J. Environ, Radioactiv.* 94, 1-15.
- 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. *J. Anal. Atom. Spectrom.*, 30, 2235-2240.
- Kelley, J. M., Bond, L. A., and Beasley, T. M. (1999). Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np , *Sci. Total Environ.*, 237/238, 483-500.

- 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 Poll*, 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 Poll*, 219, 129-142.
- Kim, C. S., Kim, C. K., Martin, P., Sansone, U. (2007). Determination of Pu isotope concentrations and isotope ratio by inductively coupled plasma mass spectrometry: A review of analytical methodology. *J. Anal. At. Spectrom.*, 22, 827-841.
- Koide, M., Goldberg, E. D. (1981). $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ratios in polar glaciers. *Earth Planet. Sci. Lett.* 54, 239-247.
- Kritsanuwat, 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. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 303, 2571-2577.
- Kumar, A., Singhal, R. K., Preetha, J., Rupali, K., Narayanan, U., Suresh, S., Ranade, A. K. (2008). Impact of tropical ecosystem on the migrational behavior of K-40, Cs-137, Th-232 and U-238 in perennial plants. *Water, Air, Soil Poll.*, 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. *J. Environ, Radioactiv.*, 116, 124-132.
- Li, Y. (1994). Investigation of ^{241}Am in environmental soil and some biological specimens around China Institute of Atomic Energy. *J. Isotopes*, 7, 86-91. (in Chinese)
- Li, C., Sadi, B., Benkhedda, K., St-Amant, N., Moodie, G., Ko, R. Kramer, G. (2010). Method comparison for ^{241}Am emergency urine bioassay. *Radiat. Prot. Dosim.*, 141, 228-232.
- Lindahl, P., Keith-Roach, M., Worsfold, P., Choi, M. S., Shin, H. S., Lee, S. H. (2010). Ultra-trace determination of plutonium in marine samples using multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry. *Anal. Chim. Acta*, 671, 61-69.
- Maxwell III, S. L., Faison, D. M. (2008). Rapid column extraction method for actinides and strontium in fish and other animal tissue samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 275, 605-612.
- 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). *Radiochim. Acta.* 104, 51-57.
- McAninch, J. E., Hamilton, T. F., Brown, T. A., Jokela, T. A., Knezovich, J. P., Ognibene, T. J., Vogel, J. S. (2000). Plutonium measurements by accelerator mass spectrometry at LLNL. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 172, 711-716.
- Mheemeed, A. K., Najam, L. A., Hussein, A. K. (2014). Transfer factors of ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th from soil to different types of local vegetables, radiation hazard indices and their annual doses. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 302, 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, 513-518.

- Mostafa, A. M. A. (2016). Transfer factors of radionuclides from soil to wheat grains. *Int. J. Sci. Engineer. Res.*, 7, 642-644.
- Momoshima, N., Kakiuchi, H., Maeda, Y., Hirai, E., and Ono, T. (1997): Identification of the contamination source of plutonium in environmental samples with isotopic ratios determined by inductive coupled plasma mass spectrometry and alpha-spectrometry. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 221, 213-217.
- Mukai, H., Hatta, T., Kitazawa, H., Yamada, H., Yaita, T., Kogure, T. (2014). Speciation of radioactive soil particles in the Fukushima contaminated area by IP autoradiography and microanalyses. *Environ. Sci. Technol.*, 48, 13053-13059.
- Muramatsu, Y., Uchida, S., Tagami, K., Yoshida, S., and Fujikawa, T. (1999). Determination of plutonium concentration and its isotopic ratio in environmental materials by ICP-MS after separation using ion-exchange and extraction chromatography. *J. Anal. At. Spectrom.* 14, 859-865.
- Muramatsu, Y., Yoshida, S., and Tanaka, A. (2003). Determination of Pu concentration and its isotope ratio in Japanese soils by HR-ICP-MS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 255, 477-480.
- 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, 719-725. (In Chinese)
- NIST (1997). National Institute of Standards and Technology certificate: Standard Reference Material 4357, Ocean sediment environmental radioactivity standard. Gaithersburg, MD.
- NIST (2004). Certificate of analysis of reference material 1646a estuarine sediment. <https://nemo.nist.gov/m-srmors/certificates/1646A.pdf>. Gaithersburg, MD.
- Nygren, U., Rodushkin, I., Nilsson, C., Baxter, D. C. (2003). Separation of plutonium from soil and sediment prior to determination by inductively coupled plasma mass spectrometry *J. Anal. At. Spectrom.* 18, 1426.
- Ohtsuka, Y., Iyogi, T., Kakiuchi, H., Takaku, Y., Hisamatsu, S., Inaba, J. (2004). Evaluation of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and natural ^{210}Pb fallout in agricultural upland fields in Rokkasho, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261, 625-630.
- Ostapczuk, Z. P., Dederichs, H., Hobig, J., Lennartz, R., Zoriy, M. (2010). Biomonitoring of environmental pollution by thorium and uranium in selected regions of the Republic of Kazakhstan. *J. Environ. Radioact.*, 101, 414-420.
- Oufni, L., Taj, S., Manaut, B., Eddouks, M. (2011). Transfer of uranium and thorium from soil to different parts of medicinal plants using SSNTD. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 287, 403-410.
- Ovsiannikova, S., Papienia, M., Voinikova, K., Brown, J., Skipperud, L., Sokolik, G., Svirschevsky, S. (2010). Migration ability of plutonium and americium in the soils of Polessie State Radiation-Ecological Reserve. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 286, 409-415.
- 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.
- Pham, M. K.; Sanchez-Cabeza, J. A.; Povinec, P. P. Report on the Worldwide Intercomparison Exercise IAEA-385: Radionuclides in Irish Sea Sediment. IAEA, Monaco, 2005.
- Pham, M. K.; Sanchez-Cabeza, J. A.; Povinec, P. P. et al. (2008). A new Certified Reference Material for

- radionuclides in Irish sea sediment (IAEA-385). *Appl. Radiat. Isot.*, 66, 1711-1717.
- Pimpl, M., Higgy, R. (2001). Improvement of Am and Cm determination in soil samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248, 537-541.
- Planinšek, P., Smodiš, B., Benedik, L. (2016). Simultaneous determination and uptake assessment of selected radionuclides in plants grown in substrate contaminated with U-mill tailings. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 309, 351-365.
- Popic, J. M., Salbu, B., Strand, T., Skipperud, L. (2011). Assessment of radionuclide and metal contamination in a thorium rich area in Norway. *J. Environ. Monit.*, 13, 1730-1738.
- Qiao, J., Hou, X., Roos, P., Miró, M. (2011). Rapid isolation of plutonium in environmental solid samples using sequential injection anion exchange chromatography followed by detection with inductively coupled plasma mass spectrometry. *Anal. Chim. Acta*, 685, 111-119.
- 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. *Appl. Radiat. Isot.*, 68, 1154-1159.
- Sahoo, S., Hosoda, M., Kamagata, S., Sorimachi, A., Ishikawa, T., Tokonami, S., Uchida, S. (2011). Thorium, uranium and rare earth elements concentration in weathered Japanese soil samples. *Progress Nucl. Sci. Technol.*, 1, 416-419.
- 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 J. Phys.*, 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, 1331-1335.
- Shayeb, M. A., Alharbi, T., Baloch, M. A., Alsamhan, O. A. R. (2017). Transfer factors for natural radioactivity into date palm pits. *L. Environ. Radioact.* 167, 75-79.
- Sheppard, S.C., Evenden, W.G., Amiro, B.D. (1993). Investigation of the soil-to-plant pathway for I, Br, Cl and F. *J. Environ. Radioactiv.* 21, 9-32.
- Sheppard, S.C., Evenden, W.G., Macdonald, C.R. (1999). Variation among chlorine concentration ratios for native and agronomic plants. *J. Environ. Radioactiv.* 43, 65-76.
- Skoko, B., Marovic, G., Babic, D., Sostaric, M., Jukic, M. (2017). Plant uptake of ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{40}K from a cal ash and slag disposal site and control soil under field conditions: A preliminary study. *J. Environ. Radioact.*, 172, 113-121.
- Smodiš, B., Štrok, 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.
- Štrok, M., Smodiš, B. (2013). Soil-to-plant transfer factors for natural radionuclides in grass in the vicinity of a former uranium mine. *Nucl. Engineer. Design*, 261, 279-284.
- Todorov, B., Djingova, R. (2015). Fractionation and soil-plant transfer of ^{241}Am in different soil types. *Pedosphere*, 25, 212-219.
- 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. *Anal. Chim. Acta*, 433, 245-253.
- Tsukada, H., Nakamura, Y. (1998). Transfer factors of 31 elements in several agricultural plants collected from 150 farm fields in Aomori, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 236, 123-131.

- Tsukada, H., Hasegawa, H., Takeda, A., Hisamatsu, S. (2007). Concentrations of major and trace elements in polished rice and paddy soils collected in Aomori, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 273, 199-203.
- Tsukada, H., Takeda, A. (2008). Concentration of chlorine in rice plant components. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 278, 387-390.
- 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. *Sci. Total Environ.*, 539, 252-261.
- 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.
- Vajda, N., Kim, C. K. (2010). Determination of ^{241}Am isotope: a review of analytical methodology. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 284, 341-366.
- Wang, Z. T., Yang, G. S., Zheng, J., Cao, L. G., Yu, H. J., Zhu, Y. B., Tagami, K., Uchida, S. (2015). Effect of ashing temperature on accurate determination of plutonium in soil samples. *Anal. Chem.*, 87, 5511-5515.
- 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, 11-20.
- Wang, Z. T., Zheng, J., Cao, L. G., Tagami, K., Uchida, S. (2016): Method for ultratrace level ^{241}Am determination in large soil samples by sector field-inductively coupled plasma mass spectrometry: with emphasis on the removal of spectral interferences and matrix effect. *Anal. Chem.* 88, 7387-7394.
- Wang, Z. T., Zheng, J., Ni, Y., Men, W., Tagami, K., Uchida, S. (2017): High performance method for determination of Pu isotopes in soil and sediment samples by sector field inductively coupled plasma mass spectrometry. *Anal. Chem.* 89, 2221-2226.
- Yamamoto, M., Yamamori, S., Komura, K., Sakanoue, M. (1980). Behavior of plutonium and americium in soils. *J. Radiat. Res.*, 21, 204-212.
- Yamamoto, M., Komura, K., Sakanoue, M. (1983). ^{241}Am and plutonium in Japanese rice-field surface soils. *J. Radiat. Res.*, 24, 237-249.
- Yamasaki, S., Takeda, A., Nanzyo, M., Taniyama, I., Nakai, M. (2001). Background levels of trace and ultra-trace elements in soils of Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 2001, 47, 755-765.
- Yang, G. S., Zheng, J., Tagami, K., Uchida, S. (2015). Plutonium concentration and isotopic ratio in soil samples from central-eastern Japan collected around the 1970s. *Sci. Rep.* 5, 9636. Doi:10.1038/srep09636.
- Yan, X. (2016). Uptake of radionuclide thorium by twelve native plants grown in uranium mill tailings soils from south part of China. *Nuclear Engineering Design*, 304, 80-83.
- Yoshida, S., Muramatsu, Y., Tagami, K., Uchida, S. (1998). Concentrations of lanthanide elements, Th and U in 77 Japanese surface soils. *Environ. Int.*, 24, 275-286.
- Yuita, K., Nobusawa, Y., Shibuya, M., Aso, S. (1982a). Iodine, bromine and chlorine contents in soils

- and plants of Japan. I. Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of the basin of the Miomote River. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 28, 315-336.
- Yuita, K., Akabe, S., Shibuya, M., Aso, S. (1982b). Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. II. Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of the basin of the Nagara River. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 28, 499-515.
- Yuita, K. (1983). Iodine, bromine and chlorine contents in soils and plants of Japan. III. Iodine, bromine and chlorine contents in the Andosols and in plants of Central Honshu. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 29, 403-428.
- 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, 1159-1163 (in Chinese).
- Zheng, J., Tagami, K., Homma-Takeda, S., Bu, W. (2013). The key role of atomic spectrometry in radiation protection. *J. Anal. At. Spectrom.*, 28, 1676-1699.
- 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, 7-13.
- 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. *J. Oceanography*, 64, 541-550.

第5章 東電福島第一原発事故後の環境測定データによって導出した 移行パラメータ

5. 1. はじめに

長半減期核種である ^{135}Cs (2.3×10^6 y) は放射性廃棄物処分後長期の環境影響評価において重要核種であることから、実環境試料中の安定元素やグローバル・フォールアウト ^{137}Cs 分析並びに ^{137}Cs や ^{134}Cs を用いた RI 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きた。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、本調査研究（平成 25-平成 29）では、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 の定量測定を行い、それらのデータを用いて環境移行パラメータを導出してきた。また、これまでに一般に公表されているデータを用いても同様に環境移行パラメータを導出してきた。

本調査研究で対象としている ^{135}Cs は長半減期であることから、環境中において平衡状態になったときの移行パラメータ値を取得することが目的である。そのため、本調査研究期間の平成 25-29 年度において進めてきた土壌、植物、野生動物に関する放射性 Cs の調査研究では、「見かけの環境移行パラメータ値に変動が起こらなくなるまでの期間をモニタリングする」部分も含まれている。見かけの環境移行パラメータ値とは、環境媒体中の濃度が時間とともに変動していることが明確な場合、通常環境移行パラメータ導出の際に用いる式により導出することができるものの、平衡時の値としては用いることができないパラメータ値である。例えば、TF は、ある時間における植物中濃度を土壌中濃度で除して得られるが、実際には植物中濃度も土壌中濃度も時間の経過とともに変動している場合、得られた TF は、ある時間における「見かけの TF 値」となる。

放射性 Cs の場合、環境中に放出されてからの見かけの環境移行パラメータの変動は、通常減少傾向を示し、その減少割合は指数関数フィッティングが適合され、実効半減期 (T_{eff}) とも呼ばれる。減少する理由は、各環境媒体中の濃度が経時的に変化するからであるが、陸上の場合、地上の植物体からの脱離、植物体の枯死等により地表に付加された放射性 Cs が土壌に固定する現象や、農耕地においては耕起で土壌がよく攪拌され Cs が土壌に収着するのを促進させる現象により、徐々に放射性 Cs の環境中での易動性が低下して農作物に移行しにくくなること、湖沼や海洋では流水や堆積物の移動等の移流・拡散作用と、そのような環境で生活する生物から Cs が徐々に排出される機構等が挙げられる。各環境媒体間での放射性 Cs の移動は、それぞれ固有の早さがあり、最終的に各環境媒体間での移動が平衡に達して環境媒体中濃度が一定となり、「見かけの」環境移行パラメータから平衡時における環境移行パラメータとなるまでには、様々な時間を要することをこれまで報告してきた。

本まとめでは、東電福島第一原発事故後の放射性 Cs に関する放医研の観測データや一般に入手可能な公開データを用いて見かけのパラメータを導出し、長期的に利用可能な環境移行パラメータと、まだ平衡に達していないため長期的な安全評価には利用できないパラメータ、それぞれについて検討結果を報告する。

5. 2. 土壌

放射性核種が大気経由で短期間に降下してくる際、植物や建造物等の被覆により一部保持され

るものの、ほとんどは土壌表面（地面）に到達する。放射性 Cs は土壌粒子に吸着しやすいため、土壌表層に長期間保持されて土壌鉛直方向への移動が遅いことから、土壌中において表層で濃度が高く下層ほど濃度が低くなる不均一分布を示す。一方、放射性廃棄物処分においては、地下水経由で放射性核種が地表に運ばれ、かんがい水等で利用されることにより土壌に付加される経路が主となる。連続して長期間付加が続くこと、また農地では攪拌されるため、鉛直方向の濃度分布差は見られなくなると考えられる。したがって、東電福島第一原発事故後では放射性廃棄物の処理処分で考えられる農耕地の状況とは違いが生じる。

注意しなければならない点は、我が国の農耕地 K_d 値 (Ishikawa et al., 2008) が国際的なデータ (IAEA, 2010) よりも高いとはいえ、農耕地土壌に付加された放射性 Cs 全てが保持され続ける訳ではなく、農耕地土壌からより深い層への溶脱や放射性 Cs が吸着している土壌粒子そのものの移動等により、放射性 Cs は農耕地土壌から移動していくことである。我々は過去の我が国のグローバル・フォールアウト ^{137}Cs の観測結果を用いて解析し、全国的には数十年程度の環境半減期となることを報告している (放射線医学総合研究所, 2015; 2016)。

本章では土壌から植物や動物への放射性 Cs の移行パラメータを得ることが目的であり、そのため土壌中濃度変動に関する情報が重要である。ここでは福島県内の土壌に着目し、放射性 Cs 濃度がこれまでの知見と同程度に経時的に変動するのかについて検討を行った。データソースは文部科学省の報告による放射線量等分布マップ (2018) である。データは 2011 年 6 月 14 日から 2015 年 10 月 1 日までに 9 回同じ場所で測定された 151 地点から抽出した ^{137}Cs 濃度である。各サンプルリング時点における濃度データ分布形を確認したところ、対数正規分布と判定されたため、幾何平均値 (GM) と、データの 95%信頼区間を導出して図 5.2-1 にプロットするとともに、GM 値の指数関数フィッティングも示した。なお図中の赤線は ^{137}Cs の物理学的半減期で得られる減衰曲線であり、初回の測定時の GM 値からの ^{137}Cs の物理学的な減衰を示している。この線よりもフィッティング結果が下回っていることから、物理学的半減期よりも早い減少をしていることが示された。これらのデータからは、環境半減期が 6.0 年と算出されたが、除染作業により減衰している地点もあると考えられるため、除染が行われない環境下よりも環境半減期が短くなっている可能性がある。

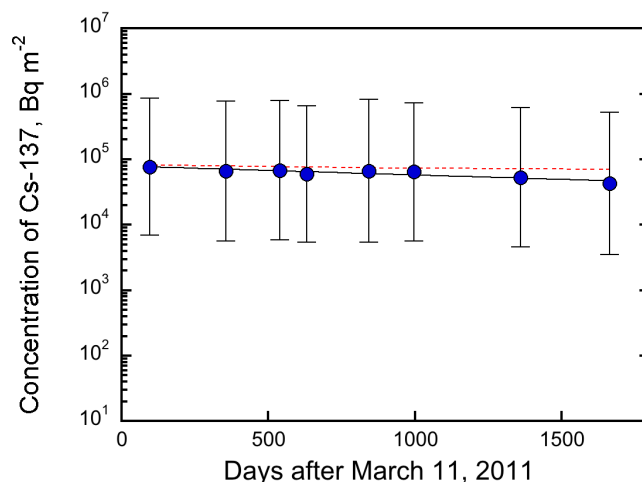


図 5.2-1 土壌モニタリング結果 (文科省, 2018) から抜粋した福島県内 151 地点における土壌中 ^{137}Cs 濃度の経時変化。(青丸は幾何平均値。エラーバーは 95%信頼区間を示す。)

以上の東電福島第一原発事故由来の土壤中 ^{137}Cs 情報に加え、グローバル・フォールアウト ^{137}Cs の結果を合わせると、放射性 Cs は環境条件下において土壤中に長期間保持されると考えられる。このように減少する速度が遅いため、本報告では数年以内に観測された土壤中濃度は、しばらくは変動しないとの仮定の下、環境移行パラメータを導出した。

5. 3. 植物

5.3.1. 草本植物

これまで本調査で行ってきた放医研敷地内での草本植物の測定の結果、草本植物中の ^{137}Cs 濃度はほぼ平衡に達したと考えられる（放射線医学総合研究所, 2017; Uchida and Tagami, 2017）。そこで、フキやイタドリ等の植物地上部の放医研データ、また、2016年の食品モニタリングデータ（厚労省, 2018）から食用野生草本植物データを抽出し、次式により面積あたりの移行係数 ($T_{\text{ag}}, \text{m}^2/\text{kg-dry}$) を求め、その結果を表 5.3-1 に示す。

$$T_{\text{ag}} = \text{採取時の植物中放射性 Cs 濃度 (Bq/kg-dry)} / \text{面積あたりの土壤中放射性 Cs 濃度 (Bq/m}^2\text{)}$$

表 5.3-1 土壤から草本植物への面積あたりの移行係数

採取場所	植物種	$T_{\text{ag}}, \text{m}^2/\text{kg-dry}$
放医研	フキ (全地上部)	1.6E-4
放医研	イタドリ (全地上部)	5.3E-5
放医研	ヨモギ (新芽)	9.2E-5
相馬市	フキ, ワラビ等	3.5E-4
南相馬市	ゼンマイ, フキ	1.4E-4
広野町	ゼンマイ, コゴミ等	7.0E-4
川内村	ゼンマイ, フキ等	3.0E-4
放医研	イネ科雑草	3.6E-4
放医研	マメ科雑草	(0.95-1.1)E-3
オーストリア・ドイツ*	牧草	8.0E-3

*IAEA (2009)

欧米では山菜を利用せず、これまで森林から採取された試料の報告は専らキノコやベリー類のデータだけであったことから (IAEA, 2010)、比較できるデータはない。高原地域の牧草地における T_{ag} は報告されており、 8.0×10^{-3} であった (IAEA, 2009)。牧草は多年生ではあるが草本植物であり、1年に数回刈り取られて常に更新されていることから、山菜の新芽と比較するのに、他の試料よりも適している。この値と比較すると、今回我が国で得られた T_{ag} は、ヨーロッパにおける値よりも低い可能性が示唆された。

農作物への移行係数 (TF, 単位なし) については、我が国では実環境中の試料を用いた TF に関する情報はこれまでに少なく、東電福島第一原発事故により農耕地土壤が汚染した直後は色々

な種類の農作物に対する見かけの TF の報告が多く行われたが、その後報告数は徐々に減少し、経時的に調査を続けた報告は少ない。ただし、食品モニタリングデータ（厚労省、2017）から、2011～2012 年度にはやや高い値で推移し、その後は事故以前の値と同程度になったと推定される。

草本植物は毎年地上部が枯死することから、地上部中の ^{137}Cs は土壌から経根吸収した量といえる（Tagami and Uchida, 2017）。すなわち、土壌中の可給態 ^{137}Cs の変動を示している。草本植物中濃度が平衡に達したということは、すなわち、土壌中における ^{137}Cs の物理化学的形態・量も経時的変化をしなくなったと推定できる。したがって、表 5.3-1 に示した値は長期的に使用できる T_{ag} として利用できる可能性を示している。

放射性 Cs 以外にも Pu を重視して移行係数を求めたが、事故以前と土壌中濃度がほとんど変わらなかったことからグローバル・フォールアウトの TF と同様であったという結果を得ている（Wang et al., 2016）。

5.3.2. 木本植物

木本植物は、直接地上部が汚染したため、その影響が今でも残っている。直接汚染の場合、植物の生育時期によって吸収量が異なると考えられる（Tagami et al., 2012）。汚染直後は木の樹皮や葉の放射性物質濃度が高い。果実がある時期に汚染すれば果実の表面が高濃度に汚染するが、それ以外の時期では、木が吸収した放射性 Cs の転流により果実に放射性 Cs が移行する。カキの例では、木の葉よりも果実中濃度は低くなる（Tagami and Uchida, 2015a）。

木からの除去は、樹皮や葉の脱落によるが、葉が落葉する直前に木に放射性 Cs を転流させるメカニズムもある（Tagami and Uchida, 2015b）。近年では徐々に放射性 Cs 濃度の変化が少なくなりつつあるものの、見かけの T_{ag} は木の直接汚染の程度にも影響されるため、導出することが困難である。

5.3.3. キノコ

野生食用キノコは放射性 Cs を濃縮する食品として良く知られており、国際的にもデータが収集されている（IAEA 2010）。村松と吉田(1997)が報告しているようにキノコを作る菌の菌糸が環境媒体のどこに分布するのかわかることによって、キノコの濃度が異なることが知られており、したがって、同じ地域に生えるキノコでも種類によって濃度が著しく異なることがある。どの種類のキノコで濃度レベルが高くなるのかを示すことが必要であるが、媒体の汚染のレベルによってキノコの濃度が異なることから、福島第一原発事故後のキノコの濃度データを並べただけでは判定できない（田上、内田、2017a）。一緒に培地中の濃度を採取する必要があるが、キノコによって培地が異なる（例えば、倒木、落ち葉、土壌等）ため単純ではない。

そこで面積あたりの移行係数 (T_{ag}) で表現する方法を用いた（IAEA, 2010）。なお、倒木や落葉層中濃度は未だ変動しているため、現在のデータを収集するのではなく、グローバル・フォールアウト ^{137}Cs を利用することとした。グローバル・フォールアウト ^{137}Cs の量は東電福島第一原発事故に由来する $^{134}\text{Cs}:$ $^{137}\text{Cs}=1:1$ （2011 年 3 月 11 日時点）を用い、 ^{134}Cs 濃度から事故由来の ^{137}Cs 濃度を推定し、総量から差し引くことで求めることができる。面積あたりの土壌中 ^{137}Cs 濃度は各都道府県でモニタリングされた降下総量から導出した。その結果、チチアワタケで幾何平均値 8.9×10^{-2} （範囲： $(0.8-28) \times 10^{-2}$ ）を得た（田上、内田、2017b）。Duff and Ramsey(2008)はキノコの移行係数をまとめており、チチアワタケと同種のキノコについて同程度の値 $(5-53) \times 10^{-2}$ を報告し

ている。

なお、栽培キノコについては培地の放射性物質濃度管理がなされているため、近年は室外室内栽培ともに基準値を超えることはないことが報告されている (Tagami et al., 2017)。

5. 4. 野生動物

5.4.1. イノシシ

イノシシ (*Sus scrofa*) は草食性の強い雑食性の食性を持つ。ヨーロッパではキノコを食べることで秋に濃度が高くなることが報告されているが、2015年までの我が国の測定結果からは、そのような季節変化は顕著ではなかった (Tagami et al., 2016a)。イノシシは冬場に食料が少なくなるとミミズなどを、春先にはタケノコを好んで食べる。その効果として、冬から春先に濃度が高くなる場合も見られている。2014-2016年の面積あたりの移行係数 (T_{ag}) (ただし肉中濃度は生表記) は、幾何平均値として $2.64 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg-fresh}$ であった (表 5.4-1)。

5.4.2. ニホンジカ

ニホンジカ (*Cervus nippon*) は草食動物である。イノシシと同様にヨーロッパでは季節変化が報告されているが、我が国の場合は年間を通して変動が少ない (放射線医学総合研究所, 2017)。2014-2016年には T_{ag} の幾何平均値は $3.14 \times 10^{-3} \text{ m}^2/\text{kg-fresh}$ であった (表 5.4-1)。本調査研究における H28 の解析では、イノシシやツキノワグマよりも有意に高いことが示されたが、2014-2016のデータでは有意ではなかった。Red deer や Roe deer は $(1-5) \times 10^{-2} \text{ m}^2/\text{kg}$ と $(0.5-5) \times 10^{-2} \text{ m}^2/\text{kg}$ が報告されていることから (IAEA, 2010)、ニホンジカの T_{ag} は Red deer よりも低く、Roe deer と同程度であったと言える。

5.4.3. ツキノワグマ

ツキノワグマ (*Ursus thibetanus*) は草食性の強い雑食性の食性を持つ。欧米では食用対象となっていないのでほとんどデータがない。冬眠するため狩猟時期が限られているが、顕著な季節変動は見られない。 T_{ag} は ($\text{m}^2/\text{kg-fresh}$) は、幾何平均値として 3.16×10^{-3} であった (表 5.4-1)

表 5.4-1. 2014-2016 年の陸上野生狩猟動物の肉中放射性 Cs の面積あたりの移行係数

種類	T_{ag} , $\text{m}^2/\text{kg-fresh}$	
	N	幾何平均値 (範囲*)
イノシシ (<i>Sus scrofa</i>)	1819	2.32E-3 ((0.001-29.0)E-2)
ニホンジカ (<i>Cervus nippon</i>)	351	3.13E-3 ((0.001-11.6)E-2)
ツキノワグマ (<i>Ursus thibetanus</i>)	377	3.16E-3 ((0.001-11.1)E-2)

*肉中濃度が DL の場合は、 $T_{ag}=1.0\text{E-}5$ を使用

5.4.4. 淡水魚

食品モニタリングデータ（厚労省）や環境モニタリングデータ（環境省）を用いて、濃度比（CR, L/kg-fresh）=肉中濃度（Bq/kg-fresh）／水中濃度（Bq/L）を導出し、環境移行パラメータとして利用できるかどうかを検討した。2011年に比べて濃度が減少傾向にあるが、ほぼ一定値に到達しつつあることを報告した（放射線医学総合研究所, 2015）。そこで2016年度の環境省データを用い、魚8種類について見かけのCRを導出した結果を表5.4-2に示す。可食部だけではなく全魚体の結果である。

表 5.4-2. 2014-2016 年の淡水魚中放射性 Cs の河川また湖沼水との濃度比
(CR, L/kg-fresh)

種類	N	幾何平均値 (範囲)
イワナ	9	3570 (1940-6540)
オイカワ	17	930 (97-3020)
ギンブナ	18	1470 (130-3720)
コイ	8	960 (370-2910)
ドジョウ	14	400 (83-3930)
ナマズ	7	2840 (350-10200)
ヤマメ	16	470 (59-3820)
ワカサギ	5	860 (530-1270)

上記の結果から、イワナとナマズのCRが高いが、どちらも食物連鎖上位の肉食性魚種である。淡水魚へのCRは可食部について2500 L/kg-freshが示されている（IAEA, 2010）が、魚種による違いも考慮する必要があることを本結果は示している。

以前、グローバル・フォールアウト¹³⁷Csデータを用いて淡水魚（筋肉部）へのCRを求めたところ、幾何平均値はフナで207 L/kg-fresh、コイで241 L/kg-freshであり、今回得られた値よりもやや小さかった。東電福島第一原発事故後は餌生物中の放射性Cs濃度がまだ高い値で推移している可能性があり、長期的なCRを得るためには、あと数年程度待つ必要があることが示唆された。

本研究では独自に印旛沼で採取されたフナ（魚全体）の見かけのCRについて、2015年11月8日から2017年8月19日の期間でも求めた（N=132）。その結果、CRの範囲は56から1084 L/kg-freshで、幾何平均値は409 L/kg-freshであり、以前我々が調べた値と近い。 $\delta^{15}\text{N}$ とCRとの相関が高いことから、同種であっても餌料の違いが見かけのCR値に影響すると考えられた。さらに魚の耳石を測定して年齢を特定し、魚種別の放射性Cs濃度の年齢依存性について明らかにしてきた（Ishii et al., 2016）。生長の過程で餌が変化することもCR変化の要因と考えられた。

5.4.5. 海水魚

上述したように食物連鎖上位の魚ほど濃度が高い傾向になるのは海水魚も一緒であるが、淡水魚の場合は体内から塩類が排出されないようにするメカニズムのため、放射性 Cs も排出されにくい一方、海水魚の場合は積極的に塩類を排出するため、Cs の減少速度が速いと考えられている。東電による海域モニタリング（2018）では、海水とともに海産生物も採取されており、それらを使って見かけの CR を導出することができる。ただし、減少速度が小さくなってきたものの海水中濃度が未だに徐々に下がっている状況である。また、以前に浮魚と底魚に分類してグローバル・フォールアウト ^{137}Cs の筋肉部への CR データが報告されていることから (Tagami and Uchida, 2011), それらのデータについても東電による 2016 年の報告データと比較して表 5.4-3 に示す。

表 5.4-3. 2016 年の海水魚中放射性 Cs の海水との濃度比 (CR, L/kg-fresh)

種類	N ^{*1}	幾何平均値 (範囲)	Ref.
アイナメ	16	680 (280-3430)	本報告
同上	6	59 (30-96)	Tagami and Uchida, 2011
クロソイ	10	850 (300-3730)	本報告
同上	4	38 (34-44)	Tagami and Uchida, 2011
スズキ	4	1000 (400-2080)	本報告
同上	28	69 (18-480)	Tagami and Uchida, 2011
マダイ	3	840 (650-1280)	本報告
同上	5	44 (26-59)	Tagami and Uchida, 2011
ヒラメ	34	620 (130-1800)	本報告
同上	18	44 (19-96)	Tagami and Uchida, 2011

*1 検出された試料数を表示。アイナメ (37 試料中 16 試料), クロソイ (18 試料中 10 試料), スズキ (23 試料中 4 試料), マダイ (20 試料中 3 試料), ヒラメ (124 試料中 34 試料)。

通常、魚の ^{137}Cs 濃度の検出下限値は 3-4 Bq/kg-fresh であるが、2016 年は多くの試料で不検出となっている。しかし表 5.4-3 中の魚のデータは濃度が検出されたものを使用しており、したがって CR は過大評価になっていることに注意が必要であるが、得られた CR は事故以前に比べて 10 倍程度高いことがわかる。体内に残る Cs の一部の生物学的半減期が長いことも影響している可能性がある (Tagami and Uchida, 2016b) ことから、海水魚の CR を得るためには、事故後 5 年を経過しても時期尚早であるといえる。

5. 5. 調理加工

調理加工により放射性 Cs 量を減少させることができる。例えば玄米では糠の部分の濃度が高くなることから、白米に精米することで玄米の 4 割程度の濃度にする事ができる (田上, 内田, 2016)。また、我々は調理加工のプロセスでは、Cs を測らなくても K で代替できることも報告し

た (Tagami and Uchida, 2013)。

長期的には表面付着よりも経根吸収による内部の汚染が主たる汚染経路となると考えられる。そのため単に表面部分を剥ぐ加工では濃度が減りにくい。食品を切って茹でたり、塩漬けにすると放射性 Cs を除去しやすい (IAEA, 2010)。

5. 6. おわりに

放射性 Cs の移行パラメータについて、福島第一原発事故以降のデータを中心にとりまとめた。草本植物や森林域に生息する狩猟動物についてはほぼ平衡に達しており、現在得られる値は将来的にも利用可能であると言える。一方、樹木については直接沈着の影響が見られること、また魚については福島県内の淡水魚、海水魚とも事故以前と比較すると CR が高いことから、まだ過渡的状况にあり、長期的な安全評価のためには利用できないことがわかった。

引用文献

- Duff, M. C. and Ramsey, M. L. (2008). Accumulation of radiocesium by mushrooms in the environment: a literature review. *Journal of environmental radioactivity*, 99, 912-932.
- IAEA (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Report Series No. 472. IAEA, Vienna.
- IAEA (2009). Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments. Technical Document series 1616 (IAEA-TECDOC-1616), IAEA, Vienna.
- Ishii N., Tagami, K., Kagami, M., Furota, T., Uchida, S. (2016). Correlations between age and Cs-137 concentrations in fish. MODARIA II 2nd Technical Meeting, 2 Nov. 2016.
- Ishikawa, N. K., Uchida, S. and Tagami, K. (2008). Soil-soil solution distribution coefficients for Se, Sr, Sn, Sb, and Cs in Japanese agricultural soils. *Proceedings of Waste Management, WM2008, #8093*.
- Tagami, K., and Uchida, S. (2011). Some considerations on water-to-fish transfer data collected in Japan for radionuclides and stable elements-11252. In *WM2011 Conference, 27 Feb -3 March, 2011*.
- Tagami, K., Uchida, S., Ishii, N. and Kagiya, S. (2012). Translocation of radiocesium from stems and leaves of plants and the effect on radiocesium concentrations in newly emerged plant tissues. *Journal of environmental radioactivity*, 111, 65-69.
- Tagami, K. and Uchida, S. (2013). Comparison of food processing retention factors of ^{137}Cs and ^{40}K in vegetables. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 295, 1627-1634.
- Tagami, K. and Uchida, S. (2015a). Effective half-lives of ^{137}Cs from persimmon tree tissue parts in Japan after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of environmental radioactivity*, 141, 8-13.
- Tagami, K. and Uchida, S. (2015b). Seasonal change of radiocesium and potassium concentrations in Someiyoshino cherry and Japanese chestnut trees observed after Fukushima nuclear accident. *PACHIFICHEM 2015, 15-20 Dec. 2015, Honolulu*.
- Tagami, K., Howard, B. J. and Uchida, S. (2016a). The time-dependent transfer factor of radiocesium from soil to game animals in Japan after the Fukushima Dai-ichi nuclear accident. *Environmental science & technology*, 50, 9424-9431.

- Tagami, K., & Uchida, S. (2016b). Consideration on the long ecological half-life component of ^{137}Cs in demersal fish based on field observation results obtained after the Fukushima accident. *Environmental science & technology*, 50, 1804-1811.
- Tagami, K and Uchida, S. (2017). Changes of effective half-lives of ^{137}Cs in three herbaceous plants and bioavailable ^{137}Cs fraction in soil after the Fukushima nuclear accident. *Applied Geochemistry*.
- Tagami, K., Uchida, S. and Ishii, N. (2017). Effects of indoor and outdoor cultivation conditions on ^{137}Cs concentrations in cultivated mushrooms produced after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 97, 600-605.
- Uchida, S. and Tagami, K. (2017). Comparison of radiocesium concentration changes in leguminous and non-leguminous herbaceous plants observed after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of environmental radioactivity*. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.08.016>
- Wang, Z., Zheng, J., Cao, L., Tagami, K. and Uchida, S. (2016). Study on soil to crop transfer factor of Plutonium by literature review and field investigation. *Goldschmidt2016*, 26 June - 1 July, 2016. Yokoyama.
- 厚生労働省 (2018) 食品中の放射性物質の検査. 全国の過去の検査結果 (月別) . <http://www.mhlw.go.jp/stf/kinkyu/0000045250.html>
- 田上恵子, 内田滋夫 (2016). ICP-OES と ICP-MS を用いた玄米中の無機元素分布と洗米による濃度変化の解析. *分析化学* 65, 511-517.
- 田上恵子, 内田滋夫 (2017a). 自然環境下において放射性セシウム濃度が低いキノコの種類の推定. *Radioisotopes* 66, 277-287.
- 田上恵子, 内田滋夫 (2017b). 野生キノコ中のグローバルフォールアウト ^{137}Cs による放射性 Cs 濃縮能の分類. 2017 日本放射化学会年会. 6-8 September 2017, つくば.
- 東京電力ホールディングス (2018). 福島第一原子力発電所周辺の放射性物質の分析結果. <http://www.tepcoco.jp/decommission/planaction/monitoring/index-j.html>
- 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等委託事業 放射性核種生物圏移行評価高度化開発, 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.
- 放射線医学総合研究所 (2016). 平成 27 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.
- 放射線医学総合研究所 (2017). 平成 28 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.
- 村松康行, 吉田聡 (1997). キノコと放射性セシウム. *Radioisotopes* 46, 450-463.
- 文部科学省 (2018). 放射線量等分布マップ. <http://ramap.jmc.or.jp/map/>

第6章 おわりに

本調査は、平成25年度から平成29年度までの5年間に、

- (1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および K_d) 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目指してきた。さらに、本調査では、東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種の移行メカニズムや除染に関するデータを収集し、解析も試みた。これらのデータは、東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種の挙動予測や除染に役立つだけでなく、他の原子力発電所や廃棄物処分の安全評価の高度化に資するものである。

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

・気候変動と環境移行パラメータに関する文献調査

国内の文献調査では、グローバル・フォールアウト ^{90}Sr や ^{137}Cs の土壌および農作物中濃度を利用して寒冷地域と温暖地域による違いの解析を行なった。玄米 TF は ^{137}Cs は寒冷地で高い一方、 ^{90}Sr は温暖地で高い結果が得られた。他の野菜類についても検討したところ、TF は ^{137}Cs では気候条件に左右されないが、 ^{90}Sr は温暖な地域で高くなっており、これは玄米と一致した。したがって、 ^{137}Cs の TF については温度の影響は明確にはならなかったが、 ^{90}Sr の TF は温暖地域ほど高い結果を得た。

・土壌-植物間移行係数に対する気温の影響調査

文献調査ではクオリティの揃ったデータセットが不足しており、そのため影響調査が困難であったことから、5年間にわたり国内の比較的寒冷地と温暖地においてフィールド調査を行った。収穫時の土壌と農作物（玄米、ジャガイモ、葉菜類）を採取して土壌および農作物試料中の希土類元素を含む20以上の安定元素について測定し、移行係数を得てデータベース化した。寒冷地域として、北海道、青森県、岩手県および秋田県を、温暖地域として、沖縄県、鹿児島県、宮崎県、熊本県、長崎県、福岡県、高知県を選択した。試料採取は、玄米については平成26-28年の3年間、ジャガイモについては平成26~29年度の4年間行い、葉菜類は平成25年度に20試料の採取を行った。土壌特性、元素濃度（土壌および農作物）を測定し、移行係数とともにデータベース化することができた。

・土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査

K_d 取得実験は通常室温において行われるが、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 が低くなることが知られており、温度の違いにより有機質が消費されて減少すれば、間接的に K_d 値が変動を受ける可能性がある。本実験では、過去に23°Cにおいて K_d を求めた水田土壌20試料と畑土壌20試料について、有機物含量に大きな変動を与えない低温条件（10°C）と微生物活性を促すための高温条件（30°C）において K_d を求め比較を行った。その結果、土壌利用別（水田、畑）で解析すると、水田土では10°C

に対し 23°C と 30°C では有意差に低く、畑土壌では 10-23-30°C では有意差は無かったが、10°C で高い傾向にあった。また土壌種別では、Fluvisol に属する土壌でより顕著に温度による影響を受けたことがわかった。10°C- K_d /23°C- K_d の幾何平均値は 1.6 (範囲 : 0.7-4.3) また、10°C- K_d /30°C- K_d の幾何平均値は 1.7 (範囲 : 0.7-5.9) であり、したがって、温度によって K_d - ^{137}Cs 値に平均として 2 倍程度の変動があることがわかった。なお土壌溶液の pH と EC はそれぞれの温度で有意差は見られず、pH や共存イオンの増減によって K_d が影響を受けた訳ではない。

・ 温度に影響される可能性のある TF や K_d を用いた変動要因の解析

これまでに蓄積したデータをデータベース化し、ヨウ素 K_d 、炭素 K_d 、炭素 TF、多元素 TF (玄米、ジャガイモ、葉菜類) について、それぞれ変動要因解析を行った。

(a) ヨウ素 K_d

4°C と 23°C で採取した K_d とデータベースに含まれる項目間の相関を付き合わせることで、温度の影響を間接的に調査した。その結果、Mo (IO_3^- に対して) で温度は 4°C と 23°C の K_d との相関性が異なっており、温度に対する影響があると考えられる項目として抽出されたが、その他の項目は抽出されなかった。なお温度毎に I と IO_3^- の K_d 値を比較すると、23°C では I と IO_3^- で良い相関が得られるが ($R=0.649, p<0.001$)、4°C では相関が低かった ($R=0.169, p=0.045$)。温度が高い実験条件下では、時間とともに化学形別割合が類似することが要因と考えられた。

(b) 炭素 K_d

炭素 K_d と相関係数が高かった項目は $K_d_Ni, K_d_Sb, K_d_IO_3^-$ (4°C, 23°C), pH および水抽出された F と P の 7 項目であり、水溶性 P は微生物活性に影響を及ぼす項目と考えられ、温度との関係も考えられるが、他の項目は温度による説明ができない。

(c) 炭素 TF

気温の違い毎にデータを得ることはできなかったが、米と葉菜類で比較したところ、米の TF が 0.17、葉菜類で 0.8 が得られ、作物種によって差があることがわかった。

(d) 多元素の TF

平成 25 年度から平成 29 年度までに収集した農作物 (玄米、ジャガイモ、葉菜類) について、すでに報告済みの全国データと合わせて比較的寒冷地および温暖地における TF に差があるか否かを t-検定により解析を行った。その結果、それぞれの作物について有意差が認められる元素があったが、その差は玄米・ジャガイモで 2-3 倍程度、葉菜類で最大 11 倍であった。多くの元素で気候の違いによる TF の差はほとんどないことがわかった。

本調査研究のきっかけとなった、

(1) 寒冷地における生育期間の延長による重要核種関連元素の TF 増加の可能性

(2) IAEA テクニカルレポートシリーズ No.472 に記載されている温帯と熱帯・亜熱帯データの違いについて、(1) では、農作物は自然の中で半人為的に生産される状況にあるため、ある程度の栽培期間幅以内において収穫されることが影響し、著しい TF 増加につながらないことがわかった。また、(2) では、分析結果についてクオリティが揃えられないことに加え、それぞれの地域で行われた実験条件や作物種の違い、さらにはデータ数自体に限りがあることが、データの評価結果に影響していたと考えられる。また、そのような状況から、それらのデータの代表性についても配慮が必要であろう。

国際的な IAEA データについては、数が充実することによって気候別のデータ比較が可能になると期待できるが、現状ではデータの代表性や、気候別のデータ解析が行える状況にないことも考えると、TRS-472 に報告されている気候別のデータセットが安全評価に用いるために必ずしも適しているとは

言えない可能性がある。本調査による TF データは少なくとも、比較的温暖な地域と寒冷な地域において、TF の差は生じないことから、温暖からやや寒冷な気候条件において、異なる TF を設定する必要はないといえる。

(2) 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

・ 水稲による放射性炭素取り込みに対する環境要因の影響

光合成による $^{14}\text{CO}_2$ ガスの取り込みは、水稲への ^{14}C 移行の主要な経路である。しかしながら、生活圏における放射性炭素の移行には、様々な環境要因が影響するため、これらの影響を統括的に評価する事が重要である。土壌微生物は ^{14}C のガスを担っており、また環境要因にも反応することから、統括的指標となり得ることが期待された。そこで、土壌微生物の呼吸活性および微生物量と ^{14}C のガス化との関係について検討した。

始めにガス化した ^{14}C を測定する方法を開発した。この方法の開発過程で、 ^{14}C 標識酢酸を ^{14}C 源とした場合、発生するガスの主要成分が $^{14}\text{CO}_2$ であることを明らかにした。土壌微生物の呼吸量、および生物量を測定する方法を開発し、これら開発した測定法を用いて $^{14}\text{CO}_2$ 発生との関係を調査した。しかしながら、土壌微生物の呼吸量および微生物量と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量との間に関係性は認められず、本調査の条件では呼吸量や生物量を統括的指標として利用できないことが分かった。土壌特性と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量との関係についても解析したが、関係性は認められなかった。

関係性が見いだせなかった原因を究明するために、水田土壌微生物による炭素資化性について調査した。調査した 95 種類の有機炭素のうち酢酸の資化性は 81 番目であり、水田土壌微生物によって酢酸は利用し難い有機物であることが分かった。さらに、水田土壌に酢酸を添加することにより、微生物の呼吸活性も低下する傾向が確認された。また、トレーサ実験において ^{14}C 源として添加された ^{14}C 標識酢酸は、土壌に添加された直後は利用されるが、時間経過と共に利用されなくなることが分かった。利用されなくなってきた原因は土壌微生物の活性が抑制されたからでは無いことも確認できた。おそらく酢酸は利用しにくい有機物であるため、時間の経過と共に土壌に存在する“より利用しやすい有機物”を利用するようになったことが原因と考えられる。酢酸の利用に対する気温の効果であるが、気温の上昇は $^{14}\text{CO}_2$ ガス速度を速めるが、発生量にはほとんど影響しないことが分かった。また、 ^{14}C 標識酢酸を利用しより多くの $^{14}\text{CO}_2$ ガスを発生させる土壌には、酢酸を利用できる細菌が群集の構成種として存在していることも確認できた。以上の結果より、土壌微生物の呼吸量や生物量と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量との間に関係性が見いだせなかった原因として、酢酸が利用しにくい有機物であること、そして土壌には様々な有機物が存在するために、微生物はそれぞれ利用しやすい有機物を利用して呼吸することが原因として考えられた。炭素はあらゆる生物の必須元素であることから、TRU 廃棄物処分場から生活圏へ移行した ^{14}C も時間と共に様々な化学形態へと変化することが考えられる。移行パラメータは平衡状態での値であることを考えると、自然環境の各コンパートメントにおける放射性炭素同位体比が環境移行パラメータになり得ると考えられる。

水稲による放射性炭素取り込みに対する気温の効果については、異なる気温環境で栽培した水稲を $^{14}\text{CO}_2$ ガスに曝露することで求めた。 $^{14}\text{CO}_2$ ガスによる曝露は、栄養生長期と登熟期に行ったが、曝露期間の違いに寄る ^{14}C 取り込みにほとんど差は無かった。一方、気温は明らかに水稲による ^{14}C 取り込みに影響した。

・ 水稲全体モデル

微生物活動を考慮したこれらの実験的データおよび文献から得られた情報を基に、 ^{14}C の水稲移行モデルを構築し、水稲による ^{14}C の取り込みに対する重要因子の抽出を行った。より現実的な移行モデルを構築するために、文献調査、室内実験、および野外における現場調査を行いモデルパラメータ

の精緻化に資するデータを収集した。最終的に構築した水稻全体モデルに対し不確実さ伝播解析を行い、水稻による ^{14}C の取り込みに対する環境因子を確認した。その結果、土壌 1 から近傍大気への移行半減期が、収穫時における穂部の ^{14}C 含量に最も影響するパラメータであることが分かった。このパラメータは土壌微生物の活動を反映しているため、微生物活動が穂部の ^{14}C 含量に影響すると言い換えることができる。一方、連続曝露における多年解析では、環境大気と近傍大気の交換半減期が、穂部の ^{14}C 含量に影響する重要パラメータであることが分かった。単年曝露と連続曝露の多年解析の結果から、近傍大気中の ^{14}C 含量に影響するパラメータが穂部の ^{14}C 含量を決定する要因であることが分かった。従って、TRU 廃棄物に関する ^{14}C の安全評価では、近傍大気中の ^{14}C 量に影響する要因を重点的に調査する必要がある。

(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

・ Pu の土壌-米間移行係数データの収集

日本の 16 地点から採取した土壌と米試料を Pu 分析し、Pu の土壌-米間移行係数データを収集した。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-米間移行係数 (TF) を求めた。米の TF の範囲は、 4.5×10^{-6} から 1.2×10^{-4} 、幾何平均値は 3.1×10^{-5} であった。

・ 土壌および玄米中の塩素定量と移行係数の導出のまとめ

土壌および植物試料中の Cl 定量のための超高精度分析法を開発した。得られた分析法により土壌および玄米中の Cl 濃度を定量し、TF を導出することができた。その結果、Cl の玄米 TF の幾何平均値として 9.0 (n=20) を得た。この値は IAEA (2010) に報告されている穀類データ (米を除く。n=7) よりも低い。国際的なデータベースよりも多くのデータを得ることができたことから、データの信頼性を高めることができたといえる。また同時に I の TF も測定できる方法であることから、本法を用いることでより多くのデータが得られる。

・ Th の土壌-米間移行係数データの収集

玄米試料 20 点と白米試料 10 点から Th の土壌-米間の TF を求めた。土壌-玄米間の TF (n = 20) は 7.6×10^{-6} から 1.4×10^{-4} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 3.0×10^{-5} と 4.2×10^{-5} であった。土壌-白米間の TF (n= 9) は 5.1×10^{-6} から 3.5×10^{-5} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 1.3×10^{-5} と 1.6×10^{-5} であった。

・ 土壌中 ^{241}Am の濃度分布

本事業で確立された超高精度分析法を用いて、全国の 44 地点から採取した土壌試料中の ^{241}Am 濃度を測定した。畑土中の ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度より低く、0.136 から 0.255 mBq/g の範囲であった。高い濃度値 (>0.2 mBq/g) は、日本海側の青森の多湿黒ボク土試料、富山のグライ台地土試料および山形のグライ低地土試料から検出された。44 件の畑土試料の ^{241}Am 濃度平均値は 0.099 ± 0.052 mBq/g であった。また、44 点の畑土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比は 0.418 ± 0.066 であった。 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比および $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比のデータから、これら土壌試料中の Pu と ^{241}Am の主なソースはグローバルフォールアウトである。

(4) 東電福島第一原発事故後の環境測定から導出した移行パラメータ

環境測定データから導出した放射性 Cs の移行パラメータについて、福島第一原発事故以降のデータを中心にとりまとめた。草本植物や森林域に生息する狩猟動物についてはほぼ平衡に達しており、現在得られる値は将来的にも利用可能であると言える。一方、樹木については直接沈着の影響が見られること、また魚については淡水魚、海水魚とも事故以前と比較すると CR が高いことから、まだ過

渡的状态にあり、適当な CR を示せないことがわかった。

これらのデータは、東電福島第一原発事故により環境中に放出された放射性核種の挙動予測や除染に役立つだけでなく、他の原子力発電所や廃棄物処分の安全評価の高度化に資するものである。

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。

放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討会委員

- 天野 光 : 財団法人 日本分析センター 技術参事(常勤) 平成 25 年-平成 26 年
- 石川 奈緒 : 岩手大学 工学部 システム創成工学科 助教 平成 25 年-平成 29 年
- 小嵐 淳 : 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門
原子力基礎工学研究センター 研究主幹 平成 27 年-平成 29 年
- 坂口 綾 : 筑波大学 数理物質系化学域 准教授 平成 26 年-平成 29 年
- 颯田 尚哉 : 岩手大学 農学部 教授 平成 25 年-平成 29 年
- 武田 晃 : 公益財団法人 環境科学技術研究所 主任研究員 平成 26 年-平成 29 年
- 塚田 祥文 : 公益財団法人 環境科学技術研究所 主任研究員 平成 25 年
- 塚田 祥文 : 福島大学 環境放射能研究所 教授 平成 26 年-平成 29 年
- 中尾 淳 : 京都府立大学大学院 生命環境科学研究科 准教授 平成 27 年-平成 28 年
- 高橋 知之 : 京都大学 原子炉実験所 准教授 平成 25 年-平成 29 年
- 百島 則幸 : 九州大学 アイソトープ総合センター 教授 (委員長) 平成 25 年-平成 27 年
- 百島 則幸 : 一般財団法人 九州環境管理協会 理事長 (委員長) 平成 28 年-平成 29 年

謝 辞

本調査を遂行する上で多くの人々の協力を得た。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）の協力を得た。

また，中国からの客員協力研究員である門 武博士および王海博士，さらに実習生であるト 文庭氏，曹 立国氏および倪 有意氏には環境試料中の Pu の濃縮・分離や分析をサポートしていただいた。農作物採取および農耕地土壌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または（一財）日本食品分析センターの，さらに，放射性炭素の水稲移行解析モデルにおいては（有）γファーストの協力を得た。ここに記して謝意を表する。

調査担当者：

量子科学技術研究開発機構

放射線医学総合研究所

廃棄物技術開発研究チーム

内田 滋夫

石井 伸昌

田上 恵子

鄭 建

楊 国勝

岩田佳代子

王 鍾堂

遠藤 いず貴

芦田 能美

京相 祐子

水谷 浩子

須藤 真澄

内海 弘美

