

平成29年度放射性廃棄物共通技術調査等事業

放射性核種生物圏移行評価高度化開発

平成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

平成29年度 放射性核種生物圏移行評価高度化開発

目 次

第1章 本調査の目的.....	1
第2章 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および K_d) データベースの構築.....	3
2. 1. はじめに	3
2. 2. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査.....	4
2.2.1. 採取場所の選択と採取方法.....	4
2.2.2. 土壌試料の前処理方法.....	4
2.2.3. 農作物試料の前処理方法.....	4
2.2.4. 土壌の物理化学的特性の測定	5
2.2.5. 土壌中の安定元素の分析.....	6
2.2.6. 農作物中の安定元素の分析.....	7
2.2.7. その他の元素の定量.....	8
2.2.8. 平成29年度に採取した試料の分析結果	9
2.2.9. 平成28年度に採取した試料のデータ追加	9
2.2.10. 比較的寒冷地および温暖地の土壌試料中の元素濃度比較.....	10
2.2.11. 比較的寒冷地および温暖地の玄米およびジャガイモの元素濃度比較	10
2.2.12. 比較的温暖地および温暖地を除く全国の葉菜類の元素濃度比較.....	11
2.2.13. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査：データ収集結果のまとめ.....	11
2. 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.....	12
2.3.1. 30°Cにおける土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) の実験方法.....	12
2.3.2. 23°Cにおける K_d - ^{137}Cs の追加測定	12
2.3.3. 30°Cにおける K_d - ^{137}Cs の測定結果	13
2.3.4. 30°Cにおける水田土壌の K_d - ^{137}Cs のまとめ.....	13
2. 4. 移行係数 (TF) の変動要因の解析	14
2.4.1. 玄米の移行係数.....	14
2.4.2. ジャガイモの移行係数.....	14
2.4.3. 葉菜類の移行係数.....	15
2.4.4. 移行係数に及ぼす気候の影響のまとめ	15
2. 5. おわりに	16
2.5.1. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査.....	16
2.5.2. 土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査.....	16
2.5.3. 土壌-植物間移行係数 (TF) の変動要因の解析.....	17
引用文献.....	17
2-補1. 根圏域温度と気温の関係.....	19
2-補2. フナの濃縮係数	20
引用文献.....	21

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.....	49
3. 1. はじめに.....	49
引用文献.....	50
3. 2. 水稲への ^{14}C 移行量に対する気温変化の影響.....	51
3.2.1. はじめに.....	51
3.2.2. 水稲栽培と水稲に関する測定項目.....	51
3.2.3. $^{14}\text{CO}_2$ 取り込みトレーサ試験.....	52
3.2.4. 水稲の生長と $^{14}\text{CO}_2$ 取り込みに対する気温の効果.....	53
3.2.4.1. 水稲の生長に対する気温の効果.....	53
3.2.4.2. 収穫量に対する気温の効果.....	53
3.2.4.3. $^{14}\text{CO}_2$ ガスの吸収.....	53
3.2.4.4. 各部位の ^{14}C 濃度に対する曝露時期と気温の効果.....	55
3.2.5. 土壌微生物の活性.....	55
3.2.5.1. 実験手順.....	55
3.2.5.2. デンケータ内の環境変化.....	56
3.2.5.3. $^{14}\text{CO}_2$ ガスの放出.....	56
3.2.6. 微生物活動と水稲による $^{14}\text{CO}_2$ の取り込みに対する気温の効果.....	57
3.2.7. まとめ.....	58
引用文献.....	58
3. 3. ^{14}C のガス化に対する統括的指標.....	60
3.3.1. はじめに.....	60
3.3.2. 物理化学生物学的特徴による統括的指標の試み.....	60
3.3.2.1. 解析データと解析方法.....	60
3.3.2.2. 単回帰分析および重回帰分析の結果.....	61
3.3.3. 麦芽糖由来の ^{14}C のガス化率と微生物呼吸活性の関係.....	61
3.3.3.1. 水田土壌の特性.....	62
3.3.3.2. 呼吸活性および $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率.....	62
3.3.3.3. 土壌呼吸活性と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率との関係.....	63
3.3.4. まとめ.....	63
引用文献.....	64
3. 4. 微生物活動を反映した ^{14}C の水稲移行モデルの構築.....	65
3.4.1. はじめに.....	65
3.4.2. 水稲内部コンパートメントモデルにおける不確かさ伝播解析.....	65
3.4.2.1. 水稲内部コンパートメントモデルの入力データ.....	65
3.4.2.2. 水稲内部コンパートメントモデルの不確かさ伝播解析.....	67
3.4.3. 多年解析における不確かさ伝播解析.....	68
3.4.3.1. 多年解析の入力データ.....	69
3.4.3.2. 多年解析の不確かさ伝播解析.....	69
3.4.4. 長期多年解析におけるリターの影響.....	70
3.4.4.1. 50年連続曝露多年解析.....	70

3.4.4.2. 単年曝露多年解析.....	71
3.4.5. 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.....	71
3.4.5.1. 水稲全体モデルにおける不確実さ伝播解析の入力データ.....	71
3.4.5.2. 水稲全体モデルにおける不確実さ伝播解析.....	72
3.4.6. 水稲全体モデルパラメータの整理.....	73
3.4.6.1. モデル構築の目的.....	73
3.4.6.2. 水稲全体モデルの構造とモデルの考え方.....	73
3.4.6.3. コンパートメントのモデル式.....	74
3.4.6.4. モデルパラメータの整理.....	76
3.4.6.5. 水稲全体モデルの適応範囲.....	77
3.4.6.6. 微生物の効果.....	77
3.4.3.7. まとめ.....	78
引用文献.....	78
3. 5. おわりに.....	80
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.....	115
4. 1. はじめに.....	115
4. 2. Th の土壌から米への移行係数データ収集.....	116
4.2.1. 測定試料.....	116
4.2.2. 実験手順.....	116
4.2.3. 結果および考察.....	117
4.2.3.1 米中の Th 濃度.....	117
4.2.3.2 Th の土壌-米の移行係数.....	118
4. 3. Pu の土壌-米間移行係数データの収集.....	119
4.3.1. 試料の前処理.....	119
4.3.1.1. 測定試料.....	119
4.3.1.2. 試薬.....	119
4.3.1.3. Pu 化学分離と分析.....	119
4.3.2. 結果および考察.....	120
4.3.2.1. 土壌試料中の Pu 源の判別.....	120
4.3.2.2. 玄米中 Pu 濃度.....	121
4.3.2.3. Pu の土壌-玄米間移行係数.....	121
4. 4. 土壌および玄米中の塩素定量と移行係数の導出.....	123
4.4.1. 塩素の分析方法.....	123
4.4.1.1. 土壌試料.....	123
4.4.1.2. 農作物試料.....	123
4.4.2. 水田土壌および玄米試料中の塩素濃度.....	123
4.4.3. 玄米への塩素の移行係数.....	124
4.4.4. 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.....	124
4. 5. 土壌中 Am の濃度分布.....	125
4.5.1. 測定試料.....	125
4.5.2. 実験手順.....	125

4.5.3. 結果および考察.....	125
4. 6. 文献調査による Pu, Am, Th および Cl の土壌-農作物間移行係数.....	127
4.6.1. はじめに.....	127
4.6.2. データ収集および統計解析.....	127
4.6.3. IAEA TRS 472 との比較.....	128
4. 7. まとめ.....	130
4.7.1 Th の土壌-米間移行係数データの収集.....	130
4.7.2 Pu の土壌-玄米間移行係数データの収集.....	130
4.7.3. 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.....	130
4.7.4. 土壌中 ²⁴¹ Am の濃度分布.....	130
引用文献.....	131
第5章 まとめ.....	151
5. 1. はじめに.....	151
5. 2. 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.....	152
5.2.1. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査.....	152
5.2.2. 土壌-土壌溶液間分配係数 (K _d) に対する気温の影響調査.....	152
5.2.3. 環境移行パラメータ (TF) の変動要因の解析.....	153
5. 3. 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査.....	154
5.3.1. 水稻への ¹⁴ C 移行量に対する気温変化の影響.....	154
5.3.2. ¹⁴ C のガス化に対する統括的指標.....	154
5.3.3. 微生物活動を反映した ¹⁴ C の水稻移行モデルの構築.....	155
5. 4. 重要核種 (Pu, Am, Th および Cl) の超高精度分析による環境移行パラ メータ収集.....	156
5.4.1. Th の土壌から米への移行係数データ収集.....	156
5.4.2. Pu の土壌-玄米間移行係数データの収集.....	156
5.4.3. 土壌および玄米中の塩素定量と移行係数の導出.....	157
5.4.4. 土壌中 Am の濃度分布.....	157
放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会.....	159
放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員.....	161
平成 29 年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会開催日.....	162
謝辞.....	163

図 表 リ ス ト

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

表 2.2-1	ジャガイモ試料の採取場所と採取日	23
表 2.2-2	農作物採取圃場の土壌試料採取日と土壌群	23
表 2.2-3	ジャガイモの廃棄率と可食部の水分含量	23
表 2.2-4	試料到着時の状態 (土壌およびジャガイモ)	24
表 2.2-5	平成 29 年度に採取した土壌試料の物理化学的特性	26
表 2.2-6	平成 26-28 年度および平成 29 年度に採取した畑土壌試料の物理化学 特性の比較	26
表 2.2-7	平成 29 年度に採取した土壌試料の元素濃度	27
表 2.2-8	平成 29 年度に採取した農作物試料の元素濃度	28
表 2.2-9	平成 29 年度に採取した農作物の移行係数	29
表 2.2-10	平成 28 年度に採取した土壌の希土類元素等の濃度	30
表 2.2-11	平成 28 年度に採取した農作物の希土類元素等の濃度	31
表 2.2-12	平成 28 年度に採取した農作物の希土類元素等の移行係数	32
表 2.3-1	畑土壌の Cs の K_d (30°C) および他の温度での K_d	33
表 2.4-1	比較的寒冷地域と温暖地域の玄米 TF のまとめ	34
表 2.4-2	比較的寒冷地域と温暖地域のジャガイモ TF のまとめ	35
表 2.4-3	温暖地を除く全国と温暖地域の葉菜類 TF のまとめ	36
図 2.2-1	比較的寒冷地 (白) と温暖地 (着色) の土壌特性および土壌中 元素濃度の比較	37
図 2.2-2	農耕地土壌中 Mo および La 濃度の地理的分布	39
図 2.2-3	比較的寒冷地 (白) と温暖地 (着色) の作物中元素濃度の比較	40
図 2.2-4	温暖地を除く全国 (白) と比較的温暖地 (緑) の葉菜類中元素濃度の比較	42
図 2.3-1	異なる実験時期 (2004-2007、2017) に得られた K_d 値の比較	43
図 2.3-2	23°C で採取した K_d 値と 10°C、30°C における K_d 値の比較	43
図 2.4-1	比較的寒冷地 (白) と温暖地 (着色) の Log(TF) の比較	44
図 2.4-2	玄米 TF-Se の地理的分布	45
図 2.4-3	ジャガイモ TF-Ba の地理的分布	45
図 2.4-4	温暖地を除く全国 (白) と比較的温暖地 (緑) の葉菜類 Log(TF) の比較	46
図 2-1s	2014 年 12 月から 3 年間の地温 (20 cm) と気温 (地上 0.5-1.5 m) の 1 時間値	47

第 3 章 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

表 3.2-1	水稻栽培実験における気温と照明時間	83
表 3.2-2	収穫時の部位別収量と収量に対する温度効果	83
表 3.2-3	収穫時の水稻各部位における ^{14}C 濃度	83
表 3.3-1	63 水田土壌で得られた ^{14}C ガス化率と物理化学生物学的特徴 (その 1)	84
表 3.3-1	63 水田土壌で得られた ^{14}C ガス化率と物理化学生物学的特徴 (その 2)	85

表 3.3-2	63 水田土壌で得られた ^{14}C ガス化率と物理化学生物学的特徴の標準値 (その 1)	86
表 3.3-2	63 水田土壌で得られた ^{14}C ガス化率と物理化学生物学的特徴の標準値 (その 2)	87
表 3.3-3	^{14}C ガス化率と物理化学生物学的特徴データの単相関係数	88
表 3.3-4	ステップワイズ法により得られた AIC	88
表 3.3-5	各説明変数の係数値と統計量	88
表 3.3-6	選定土壌の採取地および土壌タイプ	88
表 3.4-1	水稲内コンパートメント間の ^{14}C 移行に関するパラメータとその不確かさ幅	89
表 3.4-2	収穫時の穂部内 ^{14}C 存在量に対する水稲内パラメータの寄与寄与	89
表 3.4-3	多年解析に係わる ^{14}C 移行に関するパラメータとその不確かさ幅	90
表 3.4-4	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	90
表 3.4-5	水稲全体モデルにおける重要モデルパラメータと不確かさ幅	90
表 3.4-6	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	91
表 3.4-7	水稲全体モデルを構成するパラメータ	91
表 3.4-8	流入・流出にかかわるモデルパラメータ	92
表 3.4-9	水稲にかかわるモデルパラメータ	92
表 3.4-10	環境にかかわるモデルパラメータ	93
図 3.2-1	トレーサー実験の概略図	94
図 3.2-2	各温度条件における培養期間の積算温度	94
図 3.2-3	高温条件と低温条件における積算温度差	95
図 3.2-4	各栽培条件における水稲草丈の変化	95
図 3.2-5	栄養生長期における ^{14}C 暴露期間中の群落内、群落頂、および群落外の 大気中 ^{14}C 濃度	96
図 3.2-6	栄養生長期と登熟期における ^{14}C 暴露 2 日目の群落内および群落外大気中 CO_2 濃度の経時変化	96
図 3.2-7	登熟期における ^{14}C 暴露期間中の群落内、群落頂、および群落外の大気中 ^{14}C 濃度	97
図 3.2-8	収穫した水稲の各部位における ^{14}C 濃度	97
図 3.2-9	収穫した水稲の各部位における ^{14}C 濃度に対する気温の効果	98
図 3.2-10	デシケータ内の CO_2 濃度と気温の経時変化	98
図 3.2-11	デシケータ内における ^{14}C 放出比に対する気温の効果	99
図 3.2-12	温度変化に伴う微生物活動の変化と ^{14}C の玄米への移行量の関係	99
図 3.3-1	選定土壌の土性三角図	100
図 3.3-2	土壌呼吸活性と麦芽糖由来の $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率の関係	100
図 3.4-1	水稲全体モデルの概念図	101
図 3.4-2	水稲内部コンパートメントおよび近傍大気間の各パラメータの関係	101
図 3.4-3	γ 係数フィティング結果	102
図 3.4-4	γ 係数を構成する各パラメータの変動幅 1) パラメータ A、2) パラメータ B、 3) パラメータ d、4) パラメータ C	102
図 3.4-5	水稲内部コンパートメントモデルの入力データ	103
図 3.4-6	茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化	104
図 3.4-7	多年解析入力データ	105
図 3.4-8	連続曝露解析におけるリターコンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化	106

図 3.4-9	連続曝露解析における茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化	106
図 3.4-10	単年曝露解析におけるリターコンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化	107
図 3.4-11	単年曝露解析における茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化	107
図 3.4-12	50 年連続曝露解析におけるリターコンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化	108
図 3.4-13	50 年連続曝露解析における穂部の ^{14}C 含量の経時変化	108
図 3.4-14	単年曝露多年解析におけるリターコンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化	108
図 3.4-15	単年曝露多年解析における穂部の ^{14}C 含量の経時変化	109
図 3.4-16	水稻全体モデルにおける不確かさ伝播解析の対象パラメータの移行パス	109
図 3.4-17	水稻全体モデルにおける入力データ	110
図 3.4-18	水稻全体モデルにおける穂部の ^{14}C 含量の経時変化	111
図 3.4-19	水稻全体モデルにおける近傍大気コンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化	111
図 3.4-20	水稻全体モデルにおけるモデルパラメータと 4 年後収穫時の穂部 ^{14}C 含量との関係	112
図 3.4-21	水稻全体モデルの構造	113
図 3.4-22	水稻全体モデルの移行パラメータ	113

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

表 4.2-1	白米と玄米試料中 Th 濃度測定結果	137
表 4.2-2	水田土と米中 Th 測定結果および Th の土壌-米間移行係数	137
表 4.2-3	Th の土壌-米間移行係数と他の報告書の値との比較	138
表 4.3-1	水田土試料中の Pu 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比	138
表 4.3-2	玄米中 ^{239}Pu 測定結果および Pu の土壌-玄米間移行係数	139
表 4.3-3	Pu の土壌-米間移行係数の比較	139
表 4.4-1	水田土壌中の TMAH 抽出による塩素、臭素およびヨウ素濃度	140
表 4.4-2	凍結乾燥玄米試料中の塩素、臭素およびヨウ素濃度	141
表 4.4-3	玄米の塩素、臭素およびヨウ素の TF (dry weight basis)	142
表 4.5-1	畑土試料採取場所および ^{241}Am と有機物含有量測定結果	143
表 4.5-2	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	144
表 4.6-1	2008-2017 に発表された文献による Th の土壌-植物間移行係数	145
図 4.2-1	白米 Th 濃度と玄米 Th 濃度の比較	146
図 4.3-1	本研究における土壌および米試料採取地点	146
図 4.3-2	本研究で得られた Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較	147
図 4.4-1	TMAH-トリプル四重極 ICPMS による塩素分析手順	148
図 4.4-2	玄米の塩素、臭素およびヨウ素 TF の確率度数分布	148
図 4.5-1	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	149
図 4.5-2	畑土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比と ^{241}Am 濃度の相関と日本水田中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比文献値 (Yamamoto et al., 1983b) の比較	150

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、Pu, Am, Th および塩素 (Cl) は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価において重要な核種である。しかし、その測定は極めて高度な分析技術が要求されることから、核種移行モデルに使用できる環境移行パラメータは十分蓄積されていない。

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

- (1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および 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

以下、本年度行った調査について、それぞれの課題毎に詳しく述べる。

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

環境移行パラメータには、気温によって値が変動するものがある(炭素- K_d , ヨウ素- K_d , TF等)。放射性廃棄物の地層処分における長期の安全性について現実的な評価を行うためには、気候変動を考慮した我が国独自のデータベースを構築することが必要である。そのために平成29年度は、以下の調査を実施した。

- ① 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査
 - 気温が相対的に低い地域と高い地域から、それぞれ5地点、計10地点を選択し、ジャガイモおよび土壌を収穫時に採取した。
 - 上記試料は前処理の後、土壌および植物試料の元素分析(20元素程度)を実施。
 - 上記分析結果に基づき、TFを導出しデータベースに追加した。なお、平成28年度に採取した試料についても、希土類元素等の定量分析を行い、データベースに追加。
- ② 土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査
 - 畑土壌約20試料を用いて比較的高温条件下(30°C)において、 ^{137}Cs の土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) データを取得した。
- ③ 変動要因の解析
 - 温暖地域と寒冷地域における玄米およびジャガイモの移行係数に関し、データの統計解析を行い、本事業においてこれまでに得た全国のTFデータと比較することにより、TFにおよぼす気候の影響をまとめた。

- (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

放射性廃棄物地層処分における長期的な安全性確保の観点から、放射性炭素の環境移行に関与することが示唆されている微生物活動の影響を評価することは重要であるが、その影響は温度や栄養分など様々な環境要因に左右される。したがって、微生物と環境移行パラメータ、温度変化と微生物活動との関係を調査し、その影響を統括的に評価する事が必要である。

平成 29 年度は、以下の調査を実施した。

① 温度変化と微生物活動の関係についての調査

- 異なる温度条件で水稻を栽培し、
 - a) 土壌中の微生物活性、
 - b) 大気中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度、および
 - c) 収穫後の玄米中の ^{14}C 量

を明らかにする。これにより、温度変化に伴う微生物活動の変化と ^{14}C の玄米への移行量の関係を統括的に評価した。

② 微生物活動を反映したモデルの構築

- 水稻内のモデルパラメータを対象とする不確かさ伝播解析を実施し、モデルパラメータの重要度評価を行った。
- 収穫時における穂部内の ^{14}C 量に影響を及ぼす重要なモデルパラメータについて、水稻内モデルパラメータと環境移行パラメータを合わせた不確かさ伝播解析を行い、より重要なパラメータを抽出した。
- 全モデルパラメータを対象に、設定根拠、結果への影響度および不確かさ幅について整理し、温度に影響される微生物活動の重要度について評価を行った。

(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

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

平成 29 年度は、以下の調査・研究を行った。

① 土壌-米の環境移行パラメータの収集

- 土壌中のPu, Th, AmおよびClの分析を行い、土壌中の濃度データを蓄積した。
- 米中のPu, ThおよびClの分析を行い、米中の濃度データを蓄積した。
- 得られた土壌および米のデータに基づき、Pu, ThおよびClのTFデータを導出した。
- 文献調査を進めるとともに、平成25年度から収集したTFデータベースに、本調査で求められたデータを追加した。

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

地下に建設された放射性廃棄物処分施設が閉鎖された後、長期間経過するうちに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、その線量が十分低いレベルにあることを安全評価で示す必要がある。長期的には我が国において、地殻変動としては隆起・侵食が起これり（若杉ら, 2017）、また生物圏の気候はある一定の周期をもって寒冷期へと変遷すると予想される。海外の事例（Pröhl et al., 2004; Kautsky et al., 2013; Staudt et al., 2013; Becker et al., 2014）からも、長期の安全評価において温暖化および寒冷化に対する考慮が行われている。2017年に発行されたオランダの OPERA 研究プログラムの報告書（Hart et al., 2017）においても、安全評価に気候変動を考慮した旨記載されている。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 を含む生活圏モデルの開発を挙げている（NUMO, 2011）。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。

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（FAO, 2017）。そのため、肉や乳製品からの線量寄与が高いが、我が国ではそれらの摂取割合が欧米に比べて低く、したがって、気候変動を考慮した生物圏評価を行うためには、我が国の生活様式や食習慣に見合った環境移行パラメータのデータベースを準備しておくことが必要である。既存のパラメータ集として IAEA (2010) から気候の違いも考慮して報告されているが、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。

本研究は、生物圏移行パラメータに及ぼす気温等の影響評価を行うと共に、その変動を考慮した環境移行データベースを構築するものであり、そのためには実測値が重要であることから、フィールド調査を行った。本年度は気温が相対的に低い地域（寒冷地域）と高い地域（温暖地域）から、ジャガイモをそれぞれ5地点、計10地点から土壌とともにサンプリングし、最終的には、平成26年度からの4年間の収集により、寒冷地域と温暖地域それぞれ20試料ずつ収集できた。本年度得られた試料は前処理の後、土壌および植物試料の元素分析を行い、20元素以上のデータを得た。この分析結果に基づき、土壌—植物間移行係数（TF）を導出し、データベースに追加した。平成28年度に採取した玄米とジャガイモ（各10試料）、土壌試料（20試料）についても、希土類元素等の定量分析を行い、データベースに追加した。これにより同じデータの質のデータセットが得られた。

土壌—土壌溶液間分配係数（ K_d ）については、本年度は畑土壌試料20試料を用いて、比較的高温条件下（30℃）においてデータを取得した。なお、23℃における K_d は以前取得済みであったが、本研究で行った一連の10℃および30℃における K_d 値とより正確に比較するために再度データを収集した。

さらに、環境移行パラメータの変動要因として温度に着目して解析を行った。すなわち、本研究で得られたデータの質の揃ったデータセットを用い、温暖地域と寒冷地域における玄米およびジャガイモのTFに関し、データの統計解析を行い、本事業においてこれまでに得た全国のTFデータと比較することにより、TFに及ぼす気候の影響をまとめた。これらの研究結果について、以下に報告する。

2. 2. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査

本年度は温暖～寒冷地域で生産が可能なジャガイモについて、温暖地域と寒冷地域において各 5 試料を収穫期に採取するとともに、採取された同じ圃場の土壌を同時期に採取することにより、TF データの蓄積を行った。本作業は平成 26 年度より行っており、これによりジャガイモ-土壌試料のセットは、寒冷地域および温暖地域でそれぞれ 20 検体ずつとなり、これらを用いて TF に対する気温の影響調査を実施した（影響評価については第 2. 4 節に記載）。

2.2.1. 採取場所の選択と採取方法

比較的寒冷地および温暖地の選択については過去の調査と同様に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、鹿児島県、宮崎県、熊本県、長崎県、高知県を選択した。各採取場所におけるジャガイモおよび土壌試料の採取日をそれぞれ表 2.2-1 と表 2.2-2 に示す。各地域の代表的な生産者に協力を依頼し、試料を採取している。

ア 土壌採取

シャベル、スコップ等を用いて作土層（0-20 cm 程度）から一試料の総量約 2.5 kg（生重）（5 点から約 0.5 kg ずつ採取し混合）をポリエチレン袋に採取した。別途、同一スポットから土壌密度測定用試料を、100 cm³ 容コアで採取し、仮比重を算出した。採取地点の土壌を「農耕地土壌分類（第 3 次改訂版）」に従い分類した。

イ 農作物試料の採取

上記土壌の採取地点において、平均的に生育している（目視確認）ジャガイモ 5 kg を採取した。

採取した土壌および農作物試料は、直ちに実験室に送付し、以下に示す前処理を行った後、土壌の物理化学的特性の測定、土壌および農作物の元素分析に供した。土壌分類と仮比重を表 2.2-2 に、ジャガイモ可食部の水分含量を表 2.2-3 に示す。これらの試料到着時の状態については表 2.2-4 に写真と共に示す。

2.2.2. 土壌試料の前処理方法

送付された土壌試料は石や根などの大きな固形物を除去し、指で潰せる土塊については破碎し、良く混合した。この時点で生重量を測定した。室温にて風乾する方法が通常用いられるが、本分析では、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。

2.2.3. 農作物試料の前処理方法

ジャガイモは重量測定の後、汲みおいた水道水に浸漬し、スポンジ等を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 Milli-Q 水（超純水）で洗浄した。水分はペーパータオルで丁寧に拭き取ったのちに重量を測定し、洗浄前後での増減を確認した。痛んだ部分を取り除き、除いた部分を廃棄率として求め、洗浄後の重量ベースで算出した（表 2.2-3 参照）。本調査では新ジャガイモを収穫しており、通常皮ごと食することができることか

ら、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。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。

2.2.4. 土壌の物理化学的特性の測定

(1) pH(H₂O)

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

(2) 陽イオン交換容量 (cation exchange capacity: CEC) (セミマイクロ Schollenberger 法)

洗浄液容器に 1M 酢酸アンモニウム溶液を 100 mL 入れた。脱脂綿及びセルロースパウダーを詰めた浸透管 (内径 13 mm, 高さ 120 mm) に洗浄液容器より 1M 酢酸アンモニウム溶液を 2/3 程度入れ、約 8 cm の厚さとなるように採取した試料を浸透管に気泡が入らないように落下沈降させて充てんした。浸透管下端のコックを開け、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、受け器を取り替え少量の 80 %エタノールで浸透管上部内壁及び洗浄液容器内壁を洗浄した。洗浄液容器に 80 %エタノール 50 mL を入れて浸透管に接続し、滴下しながら余剰の酢酸アンモニウムを除去した。再び受け器を取り替えて洗浄容器に 10 %塩化ナトリウム溶液 100 mL を入れ滴下した。滴下終了後、浸透液を 200 mL の全量フラスコに洗い込み定容とした。浸透塩化ナトリウム溶液から正確に一定量を取り、水蒸気蒸留法によりアンモニウムイオンを定量し陽イオン交換容量を算出した。

(3) 交換性 Ca 及び K

(2) の陽イオン交換容量の操作で得られた酢酸アンモニウム浸透液を 200 mL の全量フラスコに洗い込み定容とした。この溶液の一定量を取り、Sr 濃度が 1000 mg/L となるように SrCl₂ 溶液を加え、水で定容し、原子吸光度計により Ca を測定した。また別途、酢酸アンモニウム浸透液を適宜水で希釈したのち、原子吸光度計により K を測定した。

<原子吸光度計操作条件>

機種 : SpectrAA240FS (アジレント・テクノロジー株式会社)

光源 : カリウムホロカソードランプ (アジレント・テクノロジー株式会社)

カルシウムホロカソードランプ (アジレント・テクノロジー株式会社)

測定波長 : 766.5 nm (K), 422.7 nm (Ca)

フレーム : アセチレン 2.00 L/min, 空気 13.50 L/min

(4) 活性 Al, Fe (酸性シュウ酸塩溶解法)

試料 1.0 g を 250 mL のプラスチック容器に量りとり、0.2 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、Superfloc (高分子凝集剤) を 2 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。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種 : ICPE-9000 (株式会社 島津製作所)

高周波出力：1100 W
プラズマガス (Ar)：15 L/min
補助ガス (Ar)：1.2 L/min
キャリアーガス (Ar)：0.80 L/min
測定波長：396.153 nm (Al), 238.204 nm (Fe)

(5) Al, Fe 総量

検体 0.05 g を分解容器に量りとり，HNO₃ を 3 mL，HCl を 3 mL を加え，マイクロウェーブ分解を行った。放冷後，さらに HNO₃ を 1 mL，HF を 1 mL を加え，再びマイクロ波分解を行った。放冷後，PTFE 製ビーカーに移しかえ，ホットプレート上で乾固直前まで蒸発した。HNO₃ を 2 mL と水 4 mL を加え加温した後，HNO₃ (1+2) で 50 mL に定容したものを適宜希釈し試験溶液とした。この試験溶液について ICP 発光分析装置により各元素の測定を行った。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種：Optima 8300 (株式会社 パーキンエルマージャパン)
高周波出力：1300 W
プラズマガス (Ar)：12 L/min
補助ガス (Ar)：0.2 L/min
キャリアーガス (Ar)：0.55 L/min
測定波長：396.153 nm (Al), 238.204 nm (Fe), 343.489 nm (Rh: 内標準元素)

以上の測定では 2 回分析を行い，その平均値を求めた。ただし，RSD が 10% を超える場合には再測定を行った。結果を表 2.2-5 に示す。

2.2.5. 土壌中の安定元素の分析

土壌の安定元素分析法と測定条件を以下に記す。

(1) ケイ素 (Si)

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

(2) ホウ素 (B)

試料 0.2 g を白金るつぽに量りとり，550°C で 2 時間灰化した。炭酸ナトリウム 1 g を加え，徐々に温度を上昇させ 900°C で 20 分間融解した。放冷後，水を加え 155°C で加温したのち，更に 5% HNO₃ を 50 mL 加えて 175°C で加温した。ろ紙 (No.5C[東洋濾紙株式会社]) でろ過し，水で 100 mL に定容したものを試験溶液とし，ICP 発光分析装置により B を測定した。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種：Optima 8300（株式会社 パーキンエルマージャパン）
高周波出力：1300 W
プラズマガス（Ar）：15 L/min
補助ガス（Ar）：0.2 L/min
キャリアーガス（Ar）：0.55 L/min
測定波長：208.957 nm（B），451.131 nm（In: 内標準元素）

(3) 水銀（Hg）

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

<加熱気化原子吸光光度計操作条件>

機種：MA-3000（日本インスツルメンツ株式会社）
測定波長：253.7 nm

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

2.2.4.(5)の試験溶液を用いて，P（測定波長：213.617 nm）の測定を ICP 発光分析装置により行った。C, Co, Ni, Cu, Zn 及び Cd は ICP 質量分析装置により測定を行った。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種：Optima 8300（株式会社 パーキンエルマージャパン）
高周波出力：1300 W
プラズマガス（Ar）：12 L/min
補助ガス（Ar）：0.2 L/min
キャリアーガス（Ar）：0.55 L/min
測定波長：213.617 nm（P），343.489 nm（Rh: 内標準元素）

<ICP 質量分析装置操作条件>

機種：Agilent 8800（アジレント・テクノロジー株式会社）
高周波出力：1550 W
プラズマガス（Ar）：15 L/min
キャリアーガス（Ar）：1.0 L/min
コリジョンガス（He）：5 mL/min
m/z = 52 (Cr), 59 (Co), 60 (Ni), 63 (Cu), 66 (Zn), 111 (Cd), 103 (Rh: 内標準元素)

2.2.6. 農作物中の安定元素の分析

農作物可食部中の安定元素分析法と測定条件を以下に記す。

(1) ケイ素

試料 1.5 – 3 g を白金るつぼに量りとり，500 °C で灰化したのち炭酸ナトリウム 5 g を加え 900 °C で 20 分間融解した。放冷後，水を加えて加温し，ろ紙（No.5B[東洋濾紙株式会社]）でろ過し，水で定容したのち希釈したものを試験溶液とした。

この試験溶液について，ICP 発光分析装置により Si を測定した。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種：SPECTRO BLUE（アマテック株式会社）

高周波出力：1400 W

プラズマガス（Ar）：13 L/min

補助ガス（Ar）：0.8 L/min

キャリアーガス（Ar）：0.8 L/min

測定波長：251.612 nm（Si），417.206 nm（Ga: 内標準元素）

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

試料 0.5–0.6 g を分解容器に量りとり，5 mL の HNO₃ を加えマイクロウェーブ分解を行った。ポリプロピレン製定容容器に移しかえ，水で 50 mL に定容したものを試験溶液とした。この試験溶液について P, Fe および Zn は ICP 発光分析装置により測定を行った。Co, Ni, Cu および Cd は ICP 質量分析装置により測定を行った。

<ICP 発光分析装置操作条件>

機種：Optima 8300（株式会社 パーキンエルマージャパン）

高周波出力：1300 W

プラズマガス（Ar）：12 L/min

補助ガス（Ar）：0.2 L/min

キャリアーガス（Ar）：0.55 L/min

測定波長：213.617 nm（P），238.204 nm（Fe），213.857 nm（Zn），371.029 nm（Y: 内標準元素）

<ICP 質量分析装置操作条件>

機種：Agilent 8800（アジレント・テクノロジー株式会社）

高周波出力：1550 W

プラズマガス（Ar）：15 L/min

キャリアーガス（Ar）：1.0 L/min

コリジョンガス（He）：5 mL/min

m/z = 59（Co），60（Ni），63（Cu），111（Cd），103（Rh: 内標準元素）

2.2.7. その他の元素の定量

(1) 土壌試料

粉砕試料を約 100 mg 秤量し，テフロン製分解容器に入れて，HNO₃ を 7 mL，HF を 7 mL 加えた（多摩化学工業，分析用超高純度試薬 AA-100）。分解容器をマイクロウェーブ分解装置（CEM 社製，MARS5）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。この試料に 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，Milli-Q 水 (>18MΩ) を用いて全量を 50 mL とし試料母液を得た。この母液の HNO₃ 濃度は 2% であり，元素濃度は，もとの土壌試料中の濃度の 1/500 である。分析操作の確認のために標準試料として旧地質調査所が提供していた岩石標準試料である JB-1a または JB-3 を用いて同様の操作を行った。測定には ICP 発光分光分析装置（Horiba, Activa-M）および ICP 質量分析装置（Agilent, 7500c）を用いた。

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) 農作物試料

80°C で 3 時間乾燥させ、放冷後約 500mg 秤量し、テフロン製分解容器に入れて、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 とし試料母液を得た。この母液の 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。また、標準試料として中国の標準化国立研究センターが作成した灌木試料 (GBW-07604) または NIST が作成したトマトの葉試料 (SRM-1573a) を使用した。測定には ICP 発光分光分析装置 (Horiba, Activa-M) および ICP 質量分析装置 (Agilent, 7500c) を用いた。

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。

以上の分析については、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。

2.2.8. 平成 29 年度に採取した試料の分析結果

表 2.2-5 には本年度収集した各土壌試料の物理化学特性と総炭素および窒素を、表 2.2-6 には土壌試料の物理化学特性をまとめて、平成 26-28 年度に収集した畑土壌データ (放射線医学総合研究所, 2015-2017) と比較した結果を示す。表中の数字について、pH は算術平均値であり、その他の項目については幾何平均値である (括弧内には範囲)。本年度の土壌試料は過去の値と同程度であったことがわかる。

表 2.2-7 および表 2.2-8 に、土壌および農作物試料中の元素濃度の結果を示した。土壌試料については希土類元素までを含めた 40 元素、農作物試料は希土類元素までを含めた 38 元素を記載した。

得られた濃度データから移行係数 (TF) を乾物重ベースで次式により導出した (表 2.2-9) (C と N を除く)。

$$\text{移行係数 (TF)} = \text{農作物中可食部濃度 (mg/kg-dry)} / \text{土壌中濃度 (mg/kg-dry)}$$

2.2.9. 平成 28 年度に採取した試料のデータ追加

上述の第 2.2.7 項に記載した方法により、平成 28 年度に採取した農作物 (玄米及びジャガイモ各 10 試料) および土壌試料各 20 試料について、希土類元素などの TF を追加するための元素濃度データを測定した。土壌分析の結果を表 2.2-10、作物分析の結果を表 2.2-11 に示す。土壌については濃度が高いこともあり、ほとんどの元素で定量できているが、希土類元素の一部については濃度が低く、特に玄米試料では定量できていないものがある。しかしながら、希土類は挙動が類似していることもあり、いくつかの TF データが得られれば測定ができなかった元素のデータを補完することができると考えられる。得られた濃度データより TF を導出し、表 2.2-12 にデータをまとめた。

2.2.10. 比較的寒冷地および温暖地の土壌試料中の元素濃度比較

土壌試料について、過去に放射線医学総合研究所が報告した日本全国のデータ（2002-2006 採取。データまとめ：放射線医学総合研究, 2013）から比較的寒冷地と温暖地を選択し、本研究で収集した水田土壌（寒冷地および温暖地について各 15 試料）および畑土壌（寒冷地：20 試料，温暖地：40 試料）と併せて約 50 項目（pH, CEC, 交換性 Ca, 交換性 K, 活性 Al, 活性 Fe, Li, Be, 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, ¹³⁷Cs）に関し、気温による影響の解析を試みた。

比較に用いた試料総数は以下の通りである。ただし、検出下限値などのデータもあるため、必ずしも全ての項目についてデータ数が総数と一致しているわけではない。寒冷地および温暖地の条件はそれぞれの都道府県県庁所在地において過去 10 年間の年間平均気温 12°C 以下（北海道，青森，秋田，岩手）および 17°C 以上（沖縄，鹿児島，宮崎，熊本，長崎，福岡，高知）とした（気象庁, 2017）。

<水田土壌> 寒冷地：26 試料，温暖地：24 試料

<畑土壌> 寒冷地：30 試料，温暖地：48 試料

比較した結果から 47 項目について図 2.2-1 に示す。本統計解析は KaleidaGraph ver. 4.1.4 の t 検定機能を用いて行った。t 検定により比較的寒冷地と温暖地間で有意差があった項目を同図下にリストアップしたが、 $p < 0.01$ の項目は、水田土壌では、pH, CEC, act. Fe, Li, As, Se, Mo, Sn, Cs, La, Ce, Th, C, N であり、畑土壌では、Be, Mn, Sr, Mo, La, Th であった。水田土壌および畑土壌共に $p < 0.01$ であったのは Mo, La, Th であった。それらの平均値の差は水田土壌では、Mo で 2 倍（寒冷地 > 温暖地），La で 1.5 倍（寒冷地 < 温暖地），Th で 1.6 倍（寒冷地 < 温暖地），畑土壌では、Mo で 1.3 倍（寒冷地 > 温暖地），La で 1.3 倍（寒冷地 < 温暖地），Th で 1.4 倍（寒冷地 < 温暖地）であった。すなわち、有意差は認められるが、平均値に大きな差はなく、むしろそれぞれ地域内における濃度範囲は寒冷地と温暖地の平均値の差よりも大きいといえる。

全国の土壌中 Mo および La の分布を視覚的に捉えるために、日本地図上にこれまで得られた水田土壌および畑土壌それぞれの Mo および La 濃度をプロットした結果を図 2.2-2 に示す。La は西日本で濃度が高く、産業技術総合研究所（2018）の示す地球化学図の分布と類似していた。西日本で多い花崗岩の分布と一致していると考えられる。Th も同様の結果を示していた。すなわち、母岩が土壌中濃度に強く影響していることを示唆している。しかし一方で、U 濃度については水田土壌および畑土壌とも寒冷地および温暖地の差が見られず、人為的に添加されたリン酸肥料の影響を受けている（田上，内田, 2006）と考えられた。Mo については産業技術総合研究所（2018）のデータからは傾向が明確ではなかったが、土地利用別で分類すると北陸～東北地域にやや高い値が見られたことがわかる。

2.2.11. 比較的寒冷地および温暖地の玄米およびジャガイモの元素濃度比較

土壌試料と同様に、過去に放射線医学総合研究所が報告した日本全国のデータ（2002-2006 採取。データまとめ：放射線医学総合研究, 2013）から第 2.2.10 項で示した比較的寒冷地と温暖地を選択し、本研究で収集した玄米（寒冷地および温暖地について各 15 試料）およびジャガイモ（寒冷地：20 試料，温暖地：20 試料）と併せて約 40 項目（Li, Be, 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, Pb, Th, U, [¹³⁷Cs]）に関し、気温による影響の解析を試みた。

比較に用いた試料総数は以下の通りである。ただし、検出下限値などのデータもあるため、必ずしも全ての項目についてデータ数が総数と一致しているわけではない。

< 玄 米 > 寒冷地：26 試料，温暖地：24 試料
< ジャガイモ > 寒冷地：23 試料，温暖地：21 試料

比較した結果を図 2.2-3 に示す。統計解析は KaleidaGraph ver. 4.1.4 の t 検定機能を用いて行い，比較的寒冷地と温暖地間で有意差があった項目を同図下にリストアップしたが， $p < 0.01$ の項目は玄米で 4 元素 (Fe, Cu, Zn, Ba)，ジャガイモには該当する項目はなかった。玄米の 4 元素について，平均値の差は Fe で 1.4 倍 (寒冷地 < 温暖地)，Cu と Zn で 1.3 倍 (寒冷地 < 温暖地)，Ba で 1.7 倍 (寒冷地 < 温暖地) と 2 倍以内であった。これらの結果から，寒冷地と温暖地では玄米もジャガイモもほぼ同じ成分構成であり，むしろそれぞれの地域内における濃度差の方が大きいといえる。

2.2.12. 比較的温暖地および温暖地を除く全国の葉菜類の元素濃度比較

平成 28 年度報告書に濃度を示したが (放射線医学総合研究所, 2017)，検定が終了していなかったため分析結果を本年度に示す。温暖地以外の日本全国のデータは 25 試料，温暖地のデータは 23 試料である。含まれる葉菜類の試料の内訳は以下の通りであった。

< 全 国 > ネギ：8，キャベツ：7，ハクサイ：4，ホウレンソウ：1，その他：5
< 温暖地 > ネギ：6，キャベツ：5，ハクサイ：4，ホウレンソウ：5，その他：3

葉菜類についても約 40 項目 (Li, Be, 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, Pb, Th, U) について比較し，データを図 2.2-4 に示した。t 検定を行ったところ，K, As, Se, Nb, Sb, Eu および C について $p < 0.01$ となり，いずれも温暖地のデータで高くなった。しかしながら，昨年度にも報告したように，その差はわずかである (データは昨年度の報告書 [放射線医学総合研究所, 2017] 参照)。温暖地における葉菜類の採取は実際には秋～冬に行われており，温暖地以外の全国データについては，主に夏～秋に採取されていることから，生育期における気温はむしろ温暖地の方が低い。そのため，昨年度は葉菜類の生育が盛んな収穫期 1 ヶ月前の気温を指標とする試みを行った。その結果，元素濃度差は気温よりも作物種に依る可能性が示され，特にホウレンソウで高い傾向が見られたことから，温暖地でわずかに試料数の多いホウレンソウの影響を受けて有意差が見られた可能性がある。しかしながら，試料数が少ないため，作物間の統計的な有意差を明確にすることはできなかった。

2.2.13. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査：データ収集結果のまとめ

平成 29 年度においてはジャガイモ試料を比較的寒冷地および温暖地において 10 点採取し，これらの収穫期の土壌もサンプリングした。さらに，これらの試料の前処理を行い，土壌特性分析をするとともに，元素濃度定量を農作物および土壌それぞれについて元素分析を行い，濃度データを得るとともに，TF をデータベースに追加した。さらに，平成 28 年度に採取した土壌および作物データセットについて，希土類元素等の定量分析を行い，それらについても TF をデータベースに追加することができた。

また，土壌と農作物 (玄米，ジャガイモ，葉菜類) について，比較的寒冷地，温暖地について日本全国データを元に t 検定により濃度に有意差が認められるかどうかについても調査を行った。その結果，有意差が認められた項目はそれぞれあったが，全ての項目について濃度差は 2 倍以内であり，それぞれの地域の土壌や農作物の濃度範囲に比べて小さい差であった。

2. 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

今年度は、畑土壌について高温条件 (30°C) において土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) を求め、10°C および 23°C の結果と比較した。30°C においては、微生物活性が高まり (例えば Wagai et al., 2013), 有機物分解が促進されて、有機物収着 C_s が放出される (K_d が下がる) 可能性、固相の粘土鉱物の収着サイトが分解された微細な有機物によってマスキングされる (K_d が下がる) 可能性がある一方、鉱物等を覆っていた有機物が分解されてマスキングが解除されて C_s が収着しやすくなる (K_d が上がる) 可能性がある。

2.3.1. 30°C における土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) の実験方法

平成 28 年度の試験結果 (放射線医学総合研究所, 2017) を受けて水田土壌に適用した条件と同様の方法で 30°C における K_d 実験を以下の通り行った。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風乾畑土壌 20 試料 ($\phi < 2$ mm) である。

土壌試料 1 g を 30 mL のポリプロピレン容器に分取し、超純水 (Milli-Q) を 10 mL 加えて、30°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、試料に ^{137}Cs (CsCl) 溶液を 1 試料当たり 4 kBq 添加した。再び振とう機を用いて 30°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) により 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 回繰り返し)。上と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 (L/kg) は以下の式により算出した：

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

ここで、 C_i (Bq/L) は添加初期 ^{137}Cs 濃度、 C_f (Bq/L) は RI 添加・振とう期間終了後の試料溶液中 ^{137}Cs 濃度、 W_l 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。本実験は 3 連で行った。

2.3.2. 23°C における K_d - ^{137}Cs の追加測定

通常 K_d 測定を 3 連で行っているが、その理由は 3 連試料間の K_d 値のバラツキが大きいためである。そのバラツキの理由は明確ではないものの、平成 27 年から本年度にかけて行った K_d 採取実験の結果から、3 連のデータ間のバラツキはそれほど大きくないことが分かった。1 つの試料に対する K_d 値の標準偏差は 10°C の実験で 3-26% (幾何平均値 10%)、30°C の実験で 1-16% (幾何平均値 4%) である。従って、1 試料 1 連でもある程度は代表的な値を提供できることが示唆された。

一方、バラツキの要因として、これまで土壌の保管期間に言及していなかった。本調査において比較していた 23°C における K_d データは、今回供した土壌試料の採取時期と同様の 10 年ほど前 (2003-2007) に測定されたものであり (Ishikawa et al., 2008), 保存期間中の土壌の質の変化により K_d 値が再現できていない可能性がある。そこで、追加的に 23°C における K_d 値の再取得を、上述の結果を受けて 1 連で可能と判断し、水田土壌および畑土壌 40 試料を対象に実験を行った。実験方法は第 2.3.1 項に示す方法と同じであるが、温度条件のみ 23°C とした。

K_d 測定までの土壌保存期間の影響を比較した結果を図 2.3-1 に示す。以前採取されたデータとは相

関が高いものの、全体平均としては以前の値よりも本年度採取した K_d 値が低くなっていることがわかった。10°Cの実験での標準的なバラツキが10%を参考とし、40試料の内、以前の値と今回の値の平均値に対し、差分が±10%以内であったものを調べたところ、わずかに4試料であった。10°Cの K_d 実験で最大の標準偏差は±26%であったが、この値以内に入る試料は13試料となり、特に畑土壌ではほとんど一致しなかった。以下のような値の変化があった。

<以前の K_d 幾何平均値> 水田土壌：2340 L/kg, 畑土壌：4080 L/kg

<今回の K_d 幾何平均値> 水田土壌：2260 L/kg, 畑土壌：1680 L/kg

特に畑土壌では減少しており、t検定の結果、水田土では以前の値と有意差がなかったが、畑土では $p<0.01$ で有意であった。保存期間においてどのようなファクターが K_d に影響を及ぼしたのか明確ではないが、少なくとも土壌溶液pHや電気伝導度(EC)を比較した結果は、大きな差異はなかった。Yasuda(1996)はCsの K_d に影響を与えるファクターとして温度、pH、ECに着目し、ECが最も影響を与えるファクターであると報告しているが、今回得られた結果はこれまでの考え方と一致しなかった。なお、10°Cと30°Cで K_d 値を採取した時期(平成27-29年度)に近い方がより温度の影響を明確に判断できると考えられたため、3者間の比較には、今回得られたデータを使用することとした。

2.3.3. 30°Cにおける K_d - ^{137}Cs の測定結果

30°Cで得られた K_d の結果を表2.3-1に10°Cおよび23°Cの結果とともに示す。また、今回改めて23°Cにおける K_d を取得したことから、昨年検討した水田土壌の結果についても新たに解析し直し、結果を図2.3-2に示す。水田土壌では、23°Cの結果と30°Cの結果がほぼ一致し有意差はなかったが、10°Cでは有意に K_d が高くなる結果が得られた(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の場合と有意差はなく、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。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 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2倍程度の変動があることがわかった。

2.3.4. 30°Cにおける水田土壌の K_d - ^{137}Cs のまとめ

本年度、畑土壌について、10, 23, 30°Cでの K_d を比較したところ、昨年度の水田土壌の結果と異なり、気温が高くなることにより K_d が減少する傾向は明確ではなかったものの、全体としては気温条件が低いほど K_d 値が高くなる傾向を示すことがわかった。なお、23°Cにおける K_d 再取得実験では、畑土壌での K_d 値の経年変化が有意に認められたことから、畑土壌では温度条件以外の要因が K_d を変動させたと考えられた。

2. 4. 移行係数 (TF) の変動要因の解析

比較的寒冷な地域と温暖な地域において栽培される農作物の移行係数に違いが生じるかどうかを明らかにするために、本調査研究で採取した玄米およびジャガイモ試料、および葉菜類について、平成14-18年度に収集した全国データと合わせて比較することにより、移行係数 (TF) に及ぼす気候の影響を解析した。以下にそれらの結果を報告する。

2.4.1. 玄米の移行係数

昨年度は主要な元素についての解析結果を示したが、有意差があった元素でも、寒冷地と温暖地のTFのGM比は2倍以内でありTFの差は小さかったことが分かっている。しかしながら、希土類元素等の微量元素については必須元素とは異なる挙動を示すと考えられることから、本年度得られた結果を含め、全国データと合わせて寒冷地と温暖地の比較解析を行った。なお、本年度の解析では、昨年設定した温暖地の沖縄、鹿児島、宮崎、熊本、高知の5県に加え、長崎と福岡を追加している。寒冷地の選定は変えていない。寒冷地および温暖地の条件はそれぞれの都道府県県庁所在地において過去10年間の年間平均気温12°C以下または17°C以上である。比較するTFは寒冷地26試料、温暖地24試料である。

得られたTFの箱ひげ図を図2.4-1の左側に示す。昨年度解析した主要な元素 (Na, Mg, Al, Si, P, K, Ca, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Sr, Cd, Ba) に加え、Ti, V, As, Se, Rb, Zr, Nb, Mo, Sn, Sb, Cs, La, Ce, Sm, Eu, Gd, Pb, Th およびUを加えた合計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を対数値に変換してt検定を行った。なお、幾何平均値、幾何標準偏差、最小値および最大値を表2.4-1に示す。その結果、有意差が認められたもののうち、 $p<0.01$ の項目はFe, Zn, Se, Moであった。これらの元素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。全ての玄米TF-Seを日本地図上にプロットした結果を図2.4-2に示したが、全国的には濃淡が斑であり一定の傾向は見られなかった。

2.4.2. ジャガイモの移行係数

TF結果を玄米と比較するために、箱ひげ図を玄米と並べて図2.4-1の右側に示す。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。幾何平均値、幾何標準偏差、最小値および最大値については表2.4-2に示した。

解析の結果、ジャガイモではMnとBaで $p<0.01$ となった。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。全てのジャガイモTF-Baを日本地図上にプロットした結果を図2.4-3に示す。ジャガイモについては、全国まんべんなく採取地点がある状況ではなく、北と南に偏っていることから、一見きれいなグラデーションになっているものの、本州中央付近のデータが採取されれば、このプロット図とは異なる様相になる可能性がある。少なくとも、寒冷地と温暖地では傾向は明確であった。

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。

2.4.3. 葉菜類の移行係数

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比較した。幾何平均値、幾何標準偏差、最小値および最大値については表 2.4-3 に示した。全ての値を箱ひげ図で図 2.4-4 に示したが、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) であったものの、隣接する希土類元素である Sm と Gd では約 5 倍であり、La や Ce では 2 倍以内であることから、Eu の結果は違いがやや大きすぎる可能性がある。

上記の解析法では、全国データ（温暖地を除く）と温暖地の TF の比較を行った場合、収穫時期は考慮されていない。そのため H27 年度の報告書には、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た（放射線医学総合研究, 2016）が、As を除く全ての元素で有意差が認められなかった（As のみ $p < 0.01$ ）。収穫期前 1 ヶ月の分類により導出した TF の幾何平均値は As で 3 倍の違いであり、Cu と Sn で約 2 倍、他の元素では 1.4 倍以内とほぼ差がなかった。一方で、葉菜類では種類による違いがあり、結球性（キャベツ等）、非結球性（ホウレンソウ等）では温暖地や寒冷地において非結球性の方がほとんどの元素について TF が高くなる結果が示された。特に Al, Si, V, U は 3 倍以上の違いを示していた。作物種による違いの方が気温よりも影響が大きいことがわかった。

2.4.4. 移行係数に及ぼす気候の影響のまとめ

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、対象とした 36 元素に対し、玄米、ジャガイモ、葉菜類で有意差が認められた元素は少なかった。それぞれの作物について有意差が認められる元素については、その幾何平均値の差は玄米・ジャガイモで 2-3 倍程度、葉菜類ではほとんどが 2 倍以内であり、大きくても 5-11 倍程度であった。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（クオリティ・コントロールができない）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、IAEA TRS-472（2010）に報告されている気候別のデータセットが気候変動の影響を反映させるという観点で安全評価に用いるためには、必ずしも適しているとは言えない可能性がある。しかしながら、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. 5. おわりに

放射性廃棄物処分に関わる安全評価を行うためには、その期間が長期に渡るため、想定される気候変動を考慮し、生物圏モデルに使用するデータベースもそれに合わせて構築することが必要である。そのため、我々は環境移行パラメータ (TF, K_d) に及ぼす気温等の影響評価を行い、気温の影響を受ける場合には気温条件を項目に加えたデータベースを構築することを目的として調査研究を行ってきた。そのためには、比較可能となるデータの質の揃ったデータセットを整え (土壌と農作物試料収集および元素分析・定量と、条件を揃えた K_d 実験), 得られたデータを元に TF や K_d データを蓄積した。

2.5.1. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査

本年度はジャガイモ試料とその畑土壌を比較的寒冷地および温暖地において各 5 点採取して前処理を行い、土壌特性分析を実施した。さらに、農作物および土壌それぞれについて多くの元素分析を行い、濃度データを得るとともに、TF をデータベースに追加した。また、平成 28 年度に採取した土壌および作物データセットについても希土類元素等の定量分析を行い、それらのデータも追加した。

作成したデータベースを用いて、土壌と農作物 (玄米, ジャガイモ, 葉菜類) について、比較的寒冷地と温暖地に分類し、t 検定により濃度に有意差が認められるかどうかについても調査を行った。

(1) 土壌試料

$p < 0.01$ の項目は、水田土壌では、pH, CEC, act. Fe, Li, As, Se, Mo, Sn, Cs, La, Ce, Th, C, N であり、畑土壌では、Be, Mn, Sr, Mo, La, Th であった。水田土壌および畑土壌共に $p < 0.01$ であったのは Mo, La, Th であった。それらの平均値の差は水田土壌では、Mo で 2 倍 (寒冷地 > 温暖地), La で 1.5 倍 (寒冷地 < 温暖地), Th で 1.6 倍 (寒冷地 < 温暖地), 畑土壌では、Mo で 1.3 倍 (寒冷地 > 温暖地), La で 1.3 倍 (寒冷地 < 温暖地), Th で 1.4 倍 (寒冷地 < 温暖地) であった。すなわち、有意差は認められるが、平均値に大きな差はなく、むしろそれぞれ地域内における濃度範囲は寒冷地と温暖地の平均値の差よりも大きいといえた。

(2) 玄米及びジャガイモ

$p < 0.01$ の項目は玄米で元素 (Fe, Cu, Zn, Ba), ジャガイモには該当する項目はなかった。玄米の 4 元素について、平均値の差は Fe で 1.4 倍 (寒冷地 < 温暖地), Cu と Zn で 1.3 倍 (寒冷地 < 温暖地), Ba で 1.7 倍 (寒冷地 < 温暖地) と 2 倍以内であった。これらの結果から、寒冷地と温暖地では玄米もジャガイモも幾何平均値を使えばほぼ同じ成分構成であったと言える。むしろそれぞれの地域内における濃度範囲の方が大きいといえた。

(3) 葉菜類

この項目については、年平均気温を元に、全国データ (温暖地除く) と温暖地間での比較を行った。その結果、K, As, Se, Nb, Sb, Eu および C については $p < 0.01$ となり、いずれも温暖地のデータで高くなったが、その差はわずかであった。

以上の結果から、いずれの項目も寒冷地、温暖地のデータは 2 倍以内程度と小さい幅に留まることがわかった。

2.5.2. 土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査

本年度、畑土壌 20 試料について、30°C における K_d - ^{137}Cs データを取得すると共に、23°C におけるデータの再取得を行った。これらのデータと、これまでに収集した 10 および 30°C での K_d を水田土上 20 試料、畑土壌 20 試料について比較した。それぞれ対数正規分布を示したことから、幾何平均値を

算出した。その結果は以下の通りであった。

<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

本年度の畑土壌では、昨年度の水田土壌の結果と異なり、気温が高くなることにより K_d が減少する傾向は明確ではなかったものの、全体としては気温条件 10°C において K_d 値が高くなる傾向を示すことがわかった。ただし、その差は幾何平均値で 2 倍程度であった。なお 23°C における K_d 再取得実験結果から、畑土壌での K_d 値の経年変化が有意に認められたことから、畑土壌では温度条件以外の要因が K_d を変動させたと考えられた。

2.5.3. 土壌-植物間移行係数 (TF) の変動要因の解析

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 (TF データは対数変換値を使用)。その結果、

(1) 玄米 TF

Fe, Zn, Se, Mo で $p < 0.01$ となり、これらの元素は全て温暖地において TF が高くなることを示した。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。

(2) ジャガイモ TF

Mn と Ba で $p < 0.01$ となった。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。

(3) 葉菜類 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比較した。 $p < 0.01$ 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、収穫期前 1 ヶ月の気温による分類では、有意差があったのは As のみであり、違いは 3 倍であった。

以上に示したように、対象とした 36 元素に対し、玄米, ジャガイモ, 葉菜類で有意差が認められたものは少なく、また有意差があったとしても、その差はほとんど数倍以内であった。したがって、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。

国際的な IAEA データについては、登録されている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から、現状では気候別のデータ解析が行えない。また、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。したがって IAEA TRS-472 (2010) 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

Becker, J. K., Lindborg, T., & Thorne, M. C. (2014). Influence of climate on landscape characteristics in safety assessments of repositories for radioactive wastes. *Journal of environmental radioactivity*, 138, 192-204.

- FAO (2017) FAOSTAT Food Balance Sheet. <http://www.fao.org/faostat/en/#data/FBS> (2017.12.20 アクセス)
- 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.
- 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).
- 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*, 8, 1-7.
- Kautsky, U., Lindborg, T., & Valentin, J. (2013). Humans and ecosystems over the coming millennia: Overview of a biosphere assessment of radioactive waste disposal in Sweden. *Ambio*, 42(4), 383-392.
- 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.
- 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.
- 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. *Journal of environmental radioactivity*, 115, 214-223.
- Uchida, S., and Tagami, K. (2007). Soil-to-crop transfer factors of radium in Japanese agricultural fields. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, 8, 137-142.
- 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.
- Yasuda, H. (1996). Effectiveness of electric conductivity for estimating distribution coefficients of strontium and cesium. *Journal of nuclear science and technology*, 33, 166-170.
- 気象庁 (2017) 過去の気象データ・ダウンロード. <http://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/> (2017.12.12 アクセス)
- 産業技術研究所 (2018) 陸と海の地球化学図. <https://gbank.gsj.jp/geochemmap/index.htm> (2018.02.19 アクセス)
- 田上恵子, 内田滋夫 (2006). U/Th 比を用いたリン鉱石原料のリン酸肥料施用による農耕地土壌中ウラン増加割合の推定. *Radioisotopes* 55, 71-78.
- 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. 千葉.
http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2012/24-19-2.pdf
- 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.
- 若杉圭一郎, 山口正秋, 小尾 繁, 長尾郁弥, 加藤智子, 鈴木祐二, 江橋 健, 梅木博之, 新堀 雄一 (2017). 隆起・侵食による地質・地表環境の長期的変動を考慮した地層処分の安全評価手法の開発. *日本原子力学会和文論文誌*, 16, 15-33.

2-補1. 根圏域温度と気温の関係

作物成長には植物根圏域の温度が重要であることから、気温と根圏域の関係を明らかにするため2014年11月から収集を開始している。昨年までの2年間のデータに加え、2017年1月1日からもデータを2017年11月31日まで採取し、2014年12月から2017年11月までの期間の5分間隔値を取得した。

(1) データ採取場所

放医研敷地内の2箇所において採取した。1つは常に針葉樹の影になる草地土壌を地温測定場所として選択し、日陰条件の地温（根圏域を考慮し20 cm 深）とその直上の気温（木陰、地上0.5 m 位）を測定した。もう1つは日中適時直射日光を受ける草地土壌を選択し、その地温（20 cm 深）と近傍の気温（直射日光を当てない、地上1.5 m 位）を測定した。以下、畑条件と呼ぶ。

(2) データ採取方法

データは2チャンネル温度ロガー（佐藤計量機器製作所、SK-L210T：日陰条件に使用、T&D、TR-71wf：畑条件に使用）により5分間隔でデータ収集を行った。地温データについては、断線等により採取できない時期もあった。

(3) データ処理方法

5分間隔値データは1日を2時間毎に12区分とし、それぞれの区分内での平均温度を求め、各区分の中間時間（1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21, 23 時）における値として整理した。

(4) 気温と地温の比較

3年間の全データ採取期間において、日陰条件と畑条件の気温と地温の結果は以下の通りであった。
<日陰条件> 平均気温：15.9（範囲：-2.4～35.7）℃，平均地温：15.1（範囲：2.1～28.5）℃
<畑条件> 平均気温：16.3（範囲：-2.1～37.6）℃，平均地温：16.3（範囲：5.1～28.7）℃
常に日陰条件では畑条件に比べて地温が1℃ほど低い傾向にあった。日当たりがある畑条件の地温は気温と同じ平均値となり、従って農耕地においても同様のことが言える推定できるため、気温を用いて寒冷地、温暖地を判定し、作物へのTFを比較するのは妥当であったといえる。

(5) 気温と地温の変化の関係

全てのデータ採取期間における日陰条件と畑条件における気温と地温の2時間値の変化を図2sに示した。地温の変変化は気温に比べてある一定の間隔で遅れて生じているのではなく、土壌の暖まり易さや冷め易さが影響していると考えた方がよいことを昨年度述べた（4時間値の平均で検討した結果）。今年度は、データを平均する時間を2時間（最大24データポイント）として、昨年度よりも時間分解能を上げて解析した。すなわち、データ採取0-2時における気温と地温の平均値を、全データ採取期間において選択し（約1100データセット/時間区分）、それぞれの時間区分間の相関を調べた。その結果、相関係数は、

0-2時:0.9614, 2-4時:0.9602, 4-6時:0.9598, 6-8時:0.9589, 8-10時:0.9489, 10-12時:0.9282, 12-14時:0.9145, 14-16時:0.9321, 16-18時:0.9488, 18-20時:0.9574, 20-22時:0.9603, 22-24時:0.9621であった。最も相関が低くなるのは、日中最高気温を示す12-14時台であり、気温が地温に反映されるまでに時間を要するが、夜間に向けて徐々にずれが解消されていくことがわかった。

2-補2. フナの濃縮係数

事故後7年が経過しようとしている現在、湖沼生態系における放射性Cs濃度は平衡状態に近づきつつある。そこで、本年度は環境移行パラメータとしてよく利用される濃縮係数について調査を行った。この調査では、千葉県北西部にある印旛沼において捕獲したフナを対象とした。

(1) 印旛沼の汚染状況

印旛沼は千葉県北西部に位置する利根川水系の湖沼で、コイ、フナ、ウナギ、モツゴなどを対象とした内水面漁業が行われている。環境省は東日本大震災への対応の一環として、公共用水域における放射性セシウムのモニタリングを行っており、2015年11月6日、2016年9月8日、および2017年9月15日における印旛沼の水中の¹³⁷Cs濃度（水深10cmと40cmで採水した試料濃度の平均値）は、それぞれ0.023 Bq/L（環境省2016）、0.030 Bq/L（環境省2017）および0.026 Bq/L（環境省2018）であった。これらの結果から、印旛沼における水中の¹³⁷Cs濃度は変動していないと見なせる。また、この3年間の算術平均値は0.026 Bq/Lであった。

(2) 筋肉-魚全体換算係数

魚の濃縮係数は放射性核種の環境動態モデルにおいてよく利用される環境移行パラメータである。IAEAのTRS479において、水環境における濃縮係数($CR_{wo-water}$)は次式で定義されている(IAEA2014)。

$$CR_{wo-water} = \frac{\text{Activity concentration in whole organism (Bq/kg, fresh weight)}}{\text{Activity concentration in (filtered) water (Bq/L)}} \quad (\text{補2-1式})$$

これまで捕獲した魚は乾燥重量当たりの¹³⁷Cs濃度を求めてきたが、補2-1式からも明らかのように、 $CR_{wo-water}$ 値を得るためには魚全体の新鮮重量当たりの¹³⁷Cs濃度が必要である。

そこで、2017年1月8日から8月19日にかけて印旛沼で捕獲したフナ(23匹)を用いて乾燥重量当たりの¹³⁷Cs濃度から新鮮重量当たりの¹³⁷Cs濃度を推測する換算係数(筋肉-魚全体換算係数)を求めた。始めに、捕獲したフナの筋肉部位の乾燥重量当たりの¹³⁷Cs濃度を定量し、次にこの筋肉部位と筋肉以外の部位を混合し、魚全体の乾燥重量当たりの¹³⁷Cs濃度を測定した。そして筋肉および魚全体の含水率から乾燥重量当たりの濃度を新鮮重量当たりの濃度に変換し、筋肉の新鮮重量¹³⁷Cs濃度に対する魚全体の新鮮重量¹³⁷Cs濃度の比として筋肉-魚全体換算係数を求めた。その結果、筋肉-魚全体換算係数として 0.72 ± 0.10 を得た。

検討に用いたフナであるが、全長の範囲は16.2cmから31.8cmで、平均値は 26.5 ± 3.3 cmであった。同じく新鮮重量の範囲は59.5gから523.0gで平均値は 303.5 ± 101.4 gであった。また、本調査に用いた23匹中9匹については輪紋査定により魚齢を推定した。その結果、生後2年から7年であると推定された。推定年齢と全長の関係から、残り14匹についてもこの範囲の魚齢であると考えられた。これらの項目と筋肉-魚全体換算係数との関係であるが、弱い負の相関関係が観察された。しかしながら、相関関係の傾きが小さく、また同サイズにおいても個体差が比較的大きかったため、本調査では体サイズや魚齢による補正は行わず、印旛沼で捕獲したフナについては0.72を筋肉-魚全体換算係数として用いることとした。

(3) 濃縮係数

導出した筋肉-魚全体換算係数を用いて、2015年11月8日から2017年8月19日の期間、印旛沼で捕獲したフナ(132匹)について $CR_{wo-water}$ を算出した。水質中の¹³⁷Cs濃度であるが、環境省による

2015年から2017年の調査で得られた値の平均値(0.026 Bq/L)を用いた。得られた $CR_{\text{wo-water}}$ の範囲は 56 L/kg-fresh から 1084 L/kg-fresh で、算術平均値と幾何平均値はそれぞれ 437 L/kg-fresh と 409 L/kg-fresh であった。2つの平均値はいずれも TRS-479 で報告されている淡水魚の $CR_{\text{wo-water}}$ の算術平均値と幾何平均値よりも低い値であった。各年において捕獲したフナの体サイズや魚齢が異なるため単純に比較することはできないが、2015年、2016年および2017年に捕獲したフナの $CR_{\text{wo-water}}$ は算術平均で 556 L/kg-fresh, 476 L/kg-fresh, そして 417 L/kg-fresh であった。また、分散分析の結果、これら各年の値に差はなかった。

(4) 濃縮係数変動要因

これまでに捕獲したフナの $CR_{\text{wo-water}}$ は最小値と最大値で1桁以上の差があった。そこで、この差の要因について検討するために、全長、新鮮重量、魚齢、および安定窒素同位体比 ($\delta^{15}\text{N}$) と $CR_{\text{wo-water}}$ 値との相関関係を調べた。但し、全長と新鮮重については132試料全てのデータを用いたが、魚齢は132試料中89試料の、 $\delta^{15}\text{N}$ は30試料のデータを用いて解析を行った。各項目との相関係数は、それぞれ 0.149, 0.145, 0.236, そして 0.450 と、 $\delta^{15}\text{N}$ との相関係数が高かった。 $\delta^{15}\text{N}$ は栄養段階の指標として利用されるので、 $\delta^{15}\text{N}$ との高い相関関係はフナの $CR_{\text{wo-water}}$ が食物に依存している可能性を示唆している。

引用文献

- IAEA (2014) Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer to wildlife. Technical Reports Series No. 479 (IAEA-TRS-479).
- 環境省 (2016) 全国で実施する放射性物質のモニタリング(平成 27 年度) 調査結果一覧(確定値). http://www.env.go.jp/air/rmcm/result/attach/h27_k_zenkoku.pdf (2018.2.6 アクセス).
- 環境省 (2017) 全国で実施する放射性物質のモニタリング(平成 28 年度) 調査結果一覧(確定値). http://www.env.go.jp/air/rmcm/result/attach/h28_s_kanto.pdf (2018.2.6 アクセス).
- 環境省 (2018) 平成 29 年度水環境における放射性物質のモニタリング結果(速報値)について(関東ブロック). http://www.env.go.jp/air/rmcm/result/attach/h28_k_zenkoku.pdf (2018.2.6 アクセス).
- 力石嘉人, 柏山祐一郎, 小川奈々子, 大河内直彦 (2007) 生態学指標としての安定同位体:アミノ酸の窒素同位体分析による新展開. *Radioisotopes* 56, 463-477.

表 2.2-1 ジャガイモ試料の採取場所と採取日

Sample code	場所	市町村名	採取日	作物	品種
EFII-CF-51	鹿児島	出水市	2017/5/27	ジャガイモ	トヨシロ
EFII-CF-52	長崎	雲仙市	2017/5/29	ジャガイモ	アイユタカ
EFII-CF-53	高知	室戸市	2017/5/31	ジャガイモ	メイクイン
EFII-CF-54	熊本	八代市	2017/6/5	ジャガイモ	メイクイン
EFII-CF-55	宮崎	宮崎市	2017/6/15	ジャガイモ	男爵
EFII-CF-56	青森	八戸市	2017/7/28	ジャガイモ	キタアカリ
EFII-CF-57	秋田	大館市	2017/7/31	ジャガイモ	男爵
EFII-CF-58	岩手	紫波郡紫波町	2017/8/4	ジャガイモ	きたかむい
EFII-CF-59	北海道	稚内市	2017/9/12	ジャガイモ	アンデスレッド
EFII-CF-60	北海道	標津郡中標津町	2017/9/30	ジャガイモ	ワセシロ

表 2.2-2 農作物採取圃場の土壌試料採取日と土壌群

Sample code	場所	採取日	土壌群	土壌亜群	土壌統群	仮比重
EFII-SD-51	鹿児島	2017/5/27	褐色低地土	水田化褐色低地土	礫質	0.93
EFII-SD-52	長崎	2017/5/29	黄色土	ばん土質黄色土	細粒質	0.88
EFII-SD-53	高知	2017/5/31	黄色土	ばん土質黄色土	細粒質	1.05
EFII-SD-54	熊本	2017/6/5	グライ低地土	斑鉄型グライ低地土	中粒質	1.04
EFII-SD-55	宮崎	2017/6/15	灰色低地土	普通灰色低地土	中粒質	0.74
EFII-SD-56	青森	2017/7/28	黒ボク土	普通黒ボク土	腐植質	0.73
EFII-SD-57	秋田	2017/7/31	黒ボク土	普通黒ボク土	多腐植質	0.99
EFII-SD-58	岩手	2017/8/4	褐色森林土	山地褐色森林土	細粒質	0.62
EFII-SD-59	北海道	2017/9/13	褐色森林土	台地褐色森林土	典型	0.51
EFII-SD-60	北海道	2017/9/11	黒ボク土	普通黒ボク土	礫質	0.60

表 2.2-3 ジャガイモの廃棄率と可食部の水分含量

試料コード	道県名	廃棄率 (湿重ベース)	可食部水分含量
EFII-SD- 51	鹿児島	3.5%	80.4%
EFII-SD- 52	長崎	3.8%	82.3%
EFII-SD- 53	高知	5.6%	81.0%
EFII-SD- 54	熊本	3.2%	81.1%
EFII-SD- 55	宮崎	3.5%	80.4%
EFII-SD- 56	青森	6.7%	80.8%
EFII-SD- 57	秋田	19.7%	82.7%
EFII-SD- 58	岩手	11.7%	79.3%
EFII-SD- 59	北海道	10.0%	74.3%
EFII-SD- 60	北海道	9.7%	77.4%

表 2.2-4 試料到着時の状態（土壌およびジャガイモ）

番号	採取場所	土壌	ジャガイモ
1	鹿児島 2017.5.30 2017.5.30		
2	長崎 2017.6.1 2017.6.1		
3	高知 2017.6.2 2017.6.2		
4	熊本 2017.6.7 2017.6.7		
5	宮崎 2017.6.19 2017.6.19		

表 2.2-4 試料到着時の状態（土壌およびジャガイモ）（続き）










番号		土壌	作物
6	青森 2017.7.31 2017.7.31		
7	秋田 2017.8.2 2017.8.2		
8	岩手 2017.8.5 2017.8.5		
9	北海道 1(稚内) 2017.9.16 2017.9.16		
10	北海道 2(中標津) 2017.10.3 2017.10.3		

表 2.2-5 平成 29 年度に採取した土壌試料の物理化学的特性

検体 No.	pH (H ₂ O)	CEC meq/100g	置換性 Ca mg/100g	置換性 K mg/100g	活性 Al g/kg	活性 Fe g/kg	総炭素 g/kg	総窒素 g/kg
EFII-SD- 51	5.7	16	190	28	2.6	3.5	26	3.0
EFII-SD- 52	4.7	15	82	39	4.6	3.6	10	0.97
EFII-SD- 53	6.4	15	150	30	6.1	4.6	13	1.3
EFII-SD- 54	4.9	16	200	16	1.1	5.1	9.7	1.0
EFII-SD- 55	7.2	30	630	70	38	9.4	37	3.4
EFII-SD- 56	6.7	44	700	143	27	14	56	4.9
EFII-SD- 57	6.9	43	730	69	8.0	6.7	62	4.0
EFII-SD- 58	5.4	34	330	22	7.1	13	58	4.0
EFII-SD- 59	5.4	27	110	12	17	14	68	4.8
EFII-SD- 60	6.1	24	220	9	26	10	57	3.9

表 2.2-6 平成 26-28 年度および平成 29 年度に採取した畑土壌試料の物理化学特性の比較.
(上段：幾何平均値 [pH は算術平均値]、下段括弧内：範囲)

Sample	pH (H ₂ O)	CEC meq/100g	置換性 Ca mg/100g	置換性 K mg/100g	活性 Al g/kg	活性 Fe g/kg
H26-28	5.9 (3.9 - 7.5)	20 (10 - 38)	192 (28 - 805)	33 (10 - 71)	9.6 (1.5 - 48.5)	7.2 (1.7 - 19.6)
H29	5.9 (4.7 - 7.2)	24 (15 - 44)	255 (82 - 731)	31 (9 - 143)	8.6 (1.1 - 38.3)	7.4 (3.5 - 14.4)

表 2.2-7 平成 29 年度に採取した土壌試料の元素濃度（乾重ベース）

Sample code	Li mg/kg	Be mg/kg	B mg/kg	Na mg/kg	Mg mg/kg	Al mg/kg	Si mg/kg	P mg/kg	K mg/kg	Ca mg/kg
EFII-SD-51	1.2E+1	6.3E-1	7.9E+1	1.4E+4	2.3E+4	8.0E+4	2.4E+5	1.9E+3	7.3E+3	4.1E+4
EFII-SD-52	3.6E+1	1.4E+0	3.5E+1	1.1E+4	6.2E+3	5.5E+4	2.8E+5	2.4E+3	1.6E+4	7.7E+3
EFII-SD-53	3.2E+1	1.9E+0	1.2E+1	4.3E+3	6.2E+3	6.0E+4	2.2E+5	1.7E+3	6.9E+3	4.4E+3
EFII-SD-54	4.4E+1	9.8E-1	4.0E+1	3.1E+3	4.2E+3	5.8E+4	3.1E+5	2.6E+3	1.3E+4	2.9E+3
EFII-SD-55	2.6E+1	1.4E+0	2.7E+1	1.3E+4	6.8E+3	6.1E+4	2.9E+5	1.3E+3	2.3E+4	4.9E+3
EFII-SD-56	3.5E+1	1.4E+0	3.3E+1	9.9E+3	6.9E+3	7.0E+4	2.3E+5	4.9E+3	1.4E+4	1.3E+4
EFII-SD-57	1.4E+1	1.0E+0	1.9E+1	1.0E+4	8.0E+3	6.9E+4	1.9E+5	5.2E+3	6.9E+3	1.4E+4
EFII-SD-58	1.2E+1	9.2E-1	1.4E+1	1.1E+4	9.3E+3	6.7E+4	2.4E+5	5.5E+3	1.1E+4	1.8E+4
EFII-SD-59	2.2E+1	9.7E-1	1.5E+1	8.5E+3	3.0E+3	5.8E+4	2.4E+5	2.1E+3	7.7E+3	4.6E+3
EFII-SD-60	2.6E+1	1.1E+0	3.5E+1	1.0E+4	7.3E+3	6.0E+4	2.4E+5	1.2E+3	1.2E+4	5.1E+3

	Ti mg/kg	V mg/kg	Cr mg/kg	Mn mg/kg	Fe mg/kg	Co mg/kg	Ni mg/kg	Cu mg/kg	Zn mg/kg	As mg/kg
EFII-SD-51	4.5E+3	2.0E+2	4.7E+1	1.5E+3	6.9E+4	2.4E+1	1.8E+1	3.8E+1	1.1E+2	5.3E+0
EFII-SD-52	3.8E+3	9.6E+1	6.1E+1	3.7E+2	3.3E+4	1.2E+1	2.2E+1	3.5E+1	1.3E+2	6.5E+0
EFII-SD-53	8.5E+3	2.3E+2	3.9E+1	1.3E+3	7.4E+4	2.3E+1	1.5E+1	2.5E+1	1.4E+2	4.7E+0
EFII-SD-54	4.4E+3	9.9E+1	6.4E+1	7.7E+2	4.1E+4	8.2E+0	2.4E+1	2.8E+1	1.0E+2	1.6E+1
EFII-SD-55	3.3E+3	5.9E+1	4.3E+1	3.6E+2	3.3E+4	9.2E+0	1.7E+1	1.4E+1	9.7E+1	3.3E+0
EFII-SD-56	3.3E+3	1.1E+2	4.1E+1	6.3E+2	3.9E+4	1.2E+1	1.8E+1	3.3E+1	1.4E+2	9.8E+0
EFII-SD-57	4.0E+3	1.2E+2	3.0E+1	1.2E+3	5.1E+4	1.4E+1	1.5E+1	3.6E+1	1.8E+2	9.4E+0
EFII-SD-58	2.8E+3	6.8E+1	3.5E+1	1.5E+3	3.2E+4	7.4E+0	1.3E+1	2.8E+1	2.5E+2	8.9E+0
EFII-SD-59	3.9E+3	9.9E+1	3.8E+1	1.0E+3	4.5E+4	1.2E+1	1.5E+1	2.4E+1	8.8E+1	4.1E+1
EFII-SD-60	4.9E+3	1.2E+2	2.5E+2	9.3E+2	4.0E+4	1.5E+1	5.6E+1	1.7E+1	1.1E+2	9.7E+0

	Se mg/kg	Rb mg/kg	Sr mg/kg	Y mg/kg	Zr mg/kg	Nb mg/kg	Mo mg/kg	Cd mg/kg	Sn mg/kg	Sb mg/kg
EFII-SD-51	2.4E-1	2.2E+2	2.1E+2	1.5E+1	5.7E+1	3.9E+0	7.2E-1	1.9E-1	1.1E+0	5.4E-1
EFII-SD-52	4.4E-1	5.9E+1	9.6E+1	1.1E+1	9.1E+1	9.1E+0	8.7E-1	2.3E-1	1.9E+0	8.9E-1
EFII-SD-53	4.0E-1	2.3E+1	6.1E+1	1.1E+1	1.7E+2	1.4E+1	1.3E+0	1.8E-1	2.2E+0	3.3E-1
EFII-SD-54	8.1E-1	5.4E+1	3.1E+1	1.0E+1	1.4E+2	1.3E+1	1.9E+0	2.1E-1	3.1E+0	1.3E+0
EFII-SD-55	1.9E-1	6.7E+1	1.4E+2	7.8E+0	2.8E+1	1.0E+1	3.4E-1	9.4E-2	1.4E+0	1.9E-1
EFII-SD-56	5.7E-1	3.9E+1	7.0E+1	1.3E+1	1.3E+2	8.8E+0	1.5E+0	3.4E-1	2.2E+0	6.4E-1
EFII-SD-57	6.5E-1	1.1E+1	1.1E+2	1.9E+1	9.1E+1	4.3E+0	1.5E+0	3.3E-1	8.7E-1	4.9E-1
EFII-SD-58	7.3E-1	2.9E+1	1.4E+2	1.8E+1	9.7E+1	6.5E+0	1.2E+0	9.1E-1	1.1E+0	3.7E-1
EFII-SD-59	8.6E-1	2.3E+1	5.2E+1	1.0E+1	1.0E+2	7.5E+0	2.2E+0	4.4E-1	1.7E+0	1.2E+0
EFII-SD-60	9.4E-1	4.4E+1	8.9E+1	6.1E+0	8.9E+1	8.4E+0	9.5E-1	1.7E-1	1.7E+0	5.4E-1

	Cs mg/kg	Ba mg/kg	La mg/kg	Ce mg/kg	Sm mg/kg	Eu mg/kg	Hg mg/kg	Pb mg/kg	Th mg/kg	U mg/kg
EFII-SD-51	2.2E+0	2.7E+2	8.1E+0	1.7E+1	2.4E+0	7.4E-1	4.7E-2	9.8E+0	2.7E+0	1.5E+0
EFII-SD-52	5.3E+0	3.5E+2	1.4E+1	2.1E+1	2.2E+0	6.4E-1	1.4E-1	2.3E+1	5.1E+0	2.6E+0
EFII-SD-53	1.9E+0	3.7E+2	1.0E+1	3.0E+1	2.5E+0	7.5E-1	3.0E-2	1.8E+1	4.4E+0	2.3E+0
EFII-SD-54	6.0E+0	3.3E+2	1.4E+1	4.2E+1	2.4E+0	5.1E-1	1.0E-1	4.7E+1	7.4E+0	4.1E+0
EFII-SD-55	3.2E+0	4.9E+2	1.3E+1	2.4E+1	2.2E+0	6.1E-1	1.1E-1	1.4E+1	3.7E+0	1.9E+0
EFII-SD-56	4.6E+0	2.6E+2	1.2E+1	2.3E+1	2.5E+0	6.0E-1	6.9E-2	2.4E+1	5.5E+0	3.2E+0
EFII-SD-57	1.6E+0	3.1E+2	9.1E+0	1.6E+1	2.6E+0	7.4E-1	1.3E-1	1.7E+1	2.4E+0	1.4E+0
EFII-SD-58	2.0E+0	3.5E+2	1.5E+1	1.7E+1	2.8E+0	7.5E-1	2.5E-1	6.6E+1	3.5E+0	2.1E+0
EFII-SD-59	3.5E+0	2.5E+2	7.4E+0	1.1E+1	1.6E+0	4.5E-1	1.6E-1	1.9E+1	1.8E+0	2.1E+0
EFII-SD-60	3.9E+0	3.8E+2	8.4E+0	1.4E+1	1.4E+0	3.9E-1	1.2E-1	1.6E+1	3.0E+0	1.9E+0

表 2.2-8 平成 29 年度に採取した農作物試料の元素濃度（乾物重ベース）

Sample code	Li mg/kg	C mg/kg	N mg/kg	Na mg/kg	Mg mg/kg	Al mg/kg	Si mg/kg	P mg/kg	K mg/kg	Ca mg/kg
EFII-SD-51	6.5E-3	4.2E+5	1.5E+4	5.9E+1	1.2E+3	1.3E+1	3.4E+1	3.4E+3	2.5E+4	3.2E+2
EFII-SD-52	5.5E-3	4.1E+5	1.6E+4	2.2E+1	1.3E+3	1.5E+1	2.4E+1	2.5E+3	2.5E+4	1.2E+2
EFII-SD-53	4.7E-3	4.2E+5	1.2E+4	1.8E+1	1.0E+3	1.1E+1	1.9E+1	3.7E+3	2.5E+4	2.0E+2
EFII-SD-54	6.3E-3	4.2E+5	1.5E+4	2.6E+1	9.8E+2	9.2E+0	2.1E+1	2.5E+3	2.1E+4	2.0E+2
EFII-SD-55	3.7E-3	4.1E+5	1.5E+4	3.1E+1	1.2E+3	1.0E+1	2.0E+1	3.6E+3	2.5E+4	4.2E+2
EFII-SD-56	5.6E-3	4.2E+5	1.2E+4	1.2E+1	1.3E+3	2.3E+0	6.2E+0	3.9E+3	2.5E+4	2.2E+2
EFII-SD-57	4.1E-4	4.1E+5	1.5E+4	1.8E+1	1.2E+3	2.8E+0	1.1E+1	3.8E+3	2.4E+4	4.0E+2
EFII-SD-58	1.4E-3	4.2E+5	1.5E+4	1.3E+1	1.1E+3	4.8E+0	1.1E+1	2.2E+3	2.0E+4	1.6E+2
EFII-SD-59	2.6E-3	4.2E+5	1.3E+4	3.5E+1	8.6E+2	5.4E+0	1.3E+1	2.2E+3	1.6E+4	8.0E+1
EFII-SD-60	3.7E-3	4.3E+5	1.5E+4	1.9E+1	7.6E+2	6.0E+0	7.9E+0	2.7E+3	1.5E+4	1.2E+2

	Ti mg/kg	V mg/kg	Cr mg/kg	Mn mg/kg	Fe mg/kg	Co mg/kg	Ni mg/kg	Cu mg/kg	Zn mg/kg	As mg/kg
EFII-SD-51	2.2E+0	7.3E-2	3.0E-2	5.6E+0	2.7E+1	5.4E-2	4.8E-2	5.8E+0	1.4E+1	6.1E-3
EFII-SD-52	1.6E+0	2.2E-2	3.4E-2	1.5E+1	2.7E+1	7.3E-2	8.7E-2	6.7E+0	1.7E+1	5.9E-3
EFII-SD-53	2.1E+0	2.2E-2	4.6E-2	4.6E+0	1.6E+1	3.4E-2	7.6E-2	5.0E+0	1.2E+1	6.1E-3
EFII-SD-54	1.6E+0	2.1E-2	4.5E-2	6.3E+0	2.1E+1	3.7E-2	6.0E-1	6.0E+0	1.7E+1	4.0E-3
EFII-SD-55	2.1E+0	2.7E-2	5.5E-2	5.5E+0	2.0E+1	4.9E-2	7.7E-2	4.7E+0	1.3E+1	8.8E-3
EFII-SD-56	1.4E+0	2.0E-2	1.2E-2	4.5E+0	1.4E+1	2.9E-2	3.4E-2	4.9E+0	1.2E+1	7.4E-3
EFII-SD-57	1.5E+0	2.4E-2	3.3E-2	5.1E+0	1.9E+1	2.9E-2	5.1E-2	1.9E+0	1.5E+1	8.8E-3
EFII-SD-58	9.0E-1	1.2E-2	4.3E-2	5.7E+0	2.0E+1	6.0E-2	2.0E-1	5.3E+0	1.4E+1	9.4E-3
EFII-SD-59	1.4E+0	2.0E-2	6.6E-2	4.8E+0	1.7E+1	8.1E-2	8.5E-1	3.7E+0	1.2E+1	4.9E-3
EFII-SD-60	1.4E+0	1.0E-2	6.2E-2	6.4E+0	1.5E+1	3.6E-2	1.3E-1	3.7E+0	1.8E+1	8.0E-3

	Se mg/kg	Rb mg/kg	Sr mg/kg	Zr mg/kg	Nb mg/kg	Mo mg/kg	Cd mg/kg	Sn mg/kg	Sb mg/kg
EFII-SD-51	2.3E-3	6.3E+0	1.1E+0	3.0E-2	3.4E-2	4.3E-1	5.5E-2	2.3E-2	1.2E-3
EFII-SD-52	4.9E-3	3.4E+1	1.6E+0	2.9E-2	2.2E-2	4.9E-2	2.6E-1	2.0E-2	1.1E-3
EFII-SD-53	3.8E-3	6.4E+0	4.7E-1	2.6E-2	1.6E-2	6.6E-1	1.6E-1	3.4E-3	7.3E-4
EFII-SD-54	7.8E-3	6.3E+0	1.1E+0	8.9E-3	1.0E-2	1.8E-1	9.3E-2	1.6E-3	3.2E-4
EFII-SD-55	6.1E-3	9.3E+0	5.0E-1	2.4E-2	7.7E-3	9.3E-1	4.0E-2	1.1E-3	2.1E-3
EFII-SD-56	4.5E-3	6.6E+0	4.6E-1	1.0E-2	2.2E-2	5.1E-1	1.0E-2	n.d.	2.2E-3
EFII-SD-57	4.6E-3	1.2E+1	4.8E-1	9.0E-3	9.5E-3	5.4E-1	8.8E-2	2.3E-3	1.3E-3
EFII-SD-58	1.3E-2	1.0E+1	7.1E-1	8.2E-3	4.5E-3	2.1E-1	2.1E-1	6.6E-4	8.7E-4
EFII-SD-59	9.7E-3	2.7E+1	6.5E-1	5.8E-3	4.0E-3	1.1E-1	6.1E-2	2.1E-2	1.7E-3
EFII-SD-60	8.1E-3	1.4E+1	4.2E-1	1.1E-2	2.1E-3	3.4E-1	4.8E-2	6.1E-4	1.4E-3

	Cs mg/kg	Ba mg/kg	La mg/kg	Ce mg/kg	Sm mg/kg	Eu mg/kg	Pb mg/kg	Th mg/kg	U mg/kg
EFII-SD-51	6.2E-3	9.7E-1	5.0E-3	1.0E-2	2.1E-3	1.5E-3	3.4E-3	4.7E-3	1.4E-3
EFII-SD-52	5.4E-2	4.7E+0	4.6E-2	4.5E-2	6.8E-3	3.1E-3	1.3E-2	3.9E-3	1.0E-3
EFII-SD-53	8.3E-3	9.8E-1	2.5E-3	6.1E-3	3.2E-3	7.6E-4	3.2E-2	3.1E-3	9.9E-4
EFII-SD-54	1.4E-2	6.1E-1	2.3E-2	3.4E-2	4.0E-3	1.3E-3	1.9E-2	2.0E-3	1.0E-3
EFII-SD-55	1.4E-2	7.3E-1	2.5E-3	5.4E-3	1.4E-3	1.5E-4	8.1E-3	2.2E-3	1.1E-3
EFII-SD-56	1.3E-3	2.8E-1	2.4E-3	2.9E-3	1.8E-3	1.3E-3	n.d.	5.5E-3	6.2E-4
EFII-SD-57	1.9E-3	2.6E-1	1.2E-3	1.6E-3	1.1E-3	4.9E-4	6.6E-3	2.5E-3	1.4E-4
EFII-SD-58	4.5E-2	1.0E+0	1.5E-3	2.2E-3	8.2E-4	4.8E-4	7.4E-3	1.5E-3	1.9E-4
EFII-SD-59	4.7E-2	2.0E+0	2.7E-3	3.4E-3	6.3E-4	8.6E-4	3.5E-3	1.8E-3	3.6E-4
EFII-SD-60	2.7E-1	6.0E-1	8.2E-4	9.0E-4	6.0E-4	4.6E-4	1.4E-2	1.5E-3	2.1E-4

表 2.2-9 平成 29 年度に採取した農作物の移行係数（乾物重ベース）

Sample code	Li	Na	Mg	Al	Si	P	K	Ca	Ti
EFII-SD-51	1.8E-4	5.4E-3	1.9E-1	2.4E-4	1.2E-4	1.4E+0	1.6E+0	4.2E-2	5.6E-4
EFII-SD-52	1.7E-4	5.1E-3	2.1E-1	2.5E-4	1.1E-4	1.4E+0	3.6E+0	2.8E-2	1.9E-4
EFII-SD-53	1.1E-4	5.8E-3	2.4E-1	1.9E-4	6.3E-5	1.4E+0	1.9E+0	6.9E-2	4.9E-4
EFII-SD-54	2.4E-4	2.0E-3	1.5E-1	1.5E-4	7.3E-5	1.9E+0	9.1E-1	4.2E-2	4.9E-4
EFII-SD-55	1.0E-4	3.1E-3	1.7E-1	1.5E-4	8.9E-5	7.3E-1	1.8E+0	3.1E-2	6.3E-4
EFII-SD-56	3.9E-4	1.2E-3	1.7E-1	3.3E-5	3.2E-5	7.6E-1	3.6E+0	1.6E-2	3.6E-4
EFII-SD-57	3.3E-5	1.7E-3	1.3E-1	4.2E-5	4.4E-5	6.9E-1	2.2E+0	2.3E-2	5.4E-4
EFII-SD-58	6.4E-5	1.5E-3	3.6E-1	8.4E-5	4.7E-5	1.0E+0	2.6E+0	3.4E-2	2.3E-4
EFII-SD-59	9.9E-5	3.4E-3	1.2E-1	9.0E-5	5.5E-5	1.8E+0	1.3E+0	1.6E-2	2.8E-4
EFII-SD-60	4.1E-4	1.1E-3	1.1E-1	8.8E-5	3.2E-5	1.6E+0	2.6E+0	9.8E-3	3.4E-4

	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	As
EFII-SD-51	7.6E-4	4.9E-4	1.5E-2	8.4E-4	4.6E-3	2.2E-3	1.6E-1	1.1E-1	9.4E-4
EFII-SD-52	9.6E-5	8.7E-4	1.1E-2	3.7E-4	3.1E-3	5.9E-3	2.6E-1	1.2E-1	1.2E-3
EFII-SD-53	2.3E-4	7.2E-4	5.9E-3	4.0E-4	4.1E-3	3.2E-3	1.8E-1	1.2E-1	3.8E-4
EFII-SD-54	3.5E-4	1.0E-3	1.7E-2	6.3E-4	4.0E-3	3.5E-2	4.1E-1	1.7E-1	1.2E-3
EFII-SD-55	2.5E-4	1.4E-3	8.8E-3	5.3E-4	4.0E-3	4.2E-3	1.4E-1	9.2E-2	9.0E-4
EFII-SD-56	1.6E-4	4.1E-4	3.8E-3	2.7E-4	2.1E-3	2.2E-3	1.4E-1	6.7E-2	7.9E-4
EFII-SD-57	3.5E-4	9.3E-4	3.4E-3	6.0E-4	3.9E-3	3.9E-3	6.7E-2	5.8E-2	9.9E-4
EFII-SD-58	1.2E-4	1.1E-3	5.5E-3	4.4E-4	4.9E-3	1.4E-2	2.2E-1	1.6E-1	2.3E-4
EFII-SD-59	1.7E-4	2.7E-4	5.1E-3	4.2E-4	5.3E-3	1.5E-2	2.2E-1	1.0E-1	5.1E-4
EFII-SD-60	1.5E-4	7.8E-3	6.1E-3	4.3E-4	5.1E-3	3.7E-2	2.6E-1	2.0E-1	1.4E-3

	Se	Rb	Sr	Zr	Nb	Mo	Cd	Sn	Sb
EFII-SD-51	5.2E-3	1.1E-1	1.1E-2	3.3E-4	3.7E-3	4.9E-1	2.4E-1	1.2E-2	1.4E-3
EFII-SD-52	1.2E-2	1.5E+0	2.7E-2	1.7E-4	1.5E-3	3.9E-2	1.5E+0	8.8E-3	3.5E-3
EFII-SD-53	4.6E-3	1.2E-1	1.5E-2	1.9E-4	1.2E-3	3.4E-1	7.5E-1	1.1E-3	5.6E-4
EFII-SD-54	4.2E-2	9.4E-2	7.7E-3	3.2E-4	1.0E-3	5.3E-1	9.9E-1	1.1E-3	1.7E-3
EFII-SD-55	1.1E-2	2.4E-1	7.1E-3	1.8E-4	8.8E-4	6.2E-1	1.2E-1	5.2E-4	3.3E-3
EFII-SD-56	6.9E-3	5.7E-1	4.1E-3	1.1E-4	5.2E-3	3.5E-1	3.0E-2		4.5E-3
EFII-SD-57	6.3E-3	4.2E-1	3.5E-3	9.3E-5	1.5E-3	4.5E-1	9.6E-2	2.1E-3	3.4E-3
EFII-SD-58	1.5E-2	4.4E-1	1.4E-2	8.1E-5	5.9E-4	9.8E-2	4.8E-1	3.9E-4	7.5E-4
EFII-SD-59	1.0E-2	6.3E-1	7.3E-3	6.5E-5	4.8E-4	1.2E-1	3.5E-1	1.2E-2	3.1E-3
EFII-SD-60	1.2E-2	1.2E+0	3.4E-3	1.1E-4	6.0E-4	2.7E-1	2.4E-1	5.6E-4	3.6E-3

	Cs	Ba	La	Ce	Sm	Eu	Pb	Th	U
EFII-SD-51	1.2E-3	2.8E-3	3.5E-4	5.0E-4	9.5E-4	2.3E-3	1.5E-4	9.2E-4	5.6E-4
EFII-SD-52	2.8E-2	1.3E-2	4.6E-3	1.5E-3	2.7E-3	4.1E-3	7.3E-4	8.8E-4	4.3E-4
EFII-SD-53	1.4E-3	3.0E-3	1.7E-4	1.5E-4	1.3E-3	1.5E-3	6.9E-4	4.2E-4	2.4E-4
EFII-SD-54	4.6E-3	1.3E-3	1.9E-3	1.4E-3	1.9E-3	2.1E-3	1.3E-3	5.5E-4	5.3E-4
EFII-SD-55	3.0E-3	2.8E-3	2.1E-4	2.4E-4	5.6E-4	2.4E-4	3.5E-4	3.9E-4	3.3E-4
EFII-SD-56	7.8E-4	9.2E-4	2.6E-4	1.9E-4	7.1E-4	1.7E-3		2.3E-3	4.4E-4
EFII-SD-57	9.5E-4	7.3E-4	7.6E-5	9.2E-5	4.0E-4	6.6E-4	1.0E-4	7.2E-4	6.6E-5
EFII-SD-58	1.3E-2	4.1E-3	2.0E-4	2.0E-4	5.1E-4	1.1E-3	3.9E-4	8.4E-4	9.0E-5
EFII-SD-59	1.2E-2	5.3E-3	3.2E-4	2.4E-4	4.5E-4	2.2E-3	2.2E-4	5.9E-4	1.9E-4
EFII-SD-60	1.9E-1	2.3E-3	1.5E-4	9.0E-5	2.9E-4	7.6E-4	1.3E-3	1.2E-3	1.7E-4

表 2.2-10 平成 28 年度に採取した土壌の希土類元素等の濃度（乾重ベース）

Sample code	Li mg/kg	Be mg/kg	C mg/kg	N mg/kg	Sc mg/kg	Ti mg/kg	V mg/kg	As mg/kg	Se mg/kg	Y mg/kg	Zr mg/kg
EPII-SD-21	3.3E+1	1.4E+0	1.8E+4	2.3E+3	6.7E+0	3.7E+3	9.9E+1	3.7E+0	3.9E-1	8.9E+0	1.1E+2
EPII-SD-22	3.2E+1	1.4E+0	1.0E+4	1.3E+3	8.2E+0	3.4E+3	1.1E+2	4.4E+0	2.7E-1	8.6E+0	9.1E+1
EPII-SD-23	4.4E+1	1.1E+0	1.2E+4	1.7E+3	5.2E+0	2.9E+3	7.1E+1	2.4E+0	3.4E-1	9.1E+0	8.2E+1
EPII-SD-24	3.1E+1	1.0E+0	8.9E+3	1.0E+3	7.7E+0	3.2E+3	1.1E+2	1.0E+1	4.5E-1	1.3E+1	7.1E+1
EPII-SD-25	1.9E+1	1.1E+0	1.6E+4	1.4E+3	1.2E+1	4.2E+3	1.6E+2	8.9E+0	5.1E-1	1.3E+1	1.0E+2
EPII-SD-26	1.4E+1	8.8E-1	2.2E+4	2.5E+3	1.3E+1	3.4E+3	1.2E+2	6.2E+0	3.9E-1	2.1E+1	1.2E+2
EPII-SD-27	1.8E+1	1.2E+0	1.9E+4	2.3E+3	1.1E+1	3.8E+3	1.7E+2	1.1E+1	5.7E-1	1.5E+1	1.0E+2
EPII-SD-28	1.8E+1	1.2E+0	1.5E+4	1.5E+3	2.5E+1	5.0E+3	3.0E+2	4.7E+0	3.8E-1	1.9E+1	1.3E+2
EPII-SD-29	2.0E+1	1.1E+0	2.0E+4	2.3E+3	1.2E+1	4.2E+3	1.6E+2	6.3E+0	8.1E-1	1.7E+1	1.2E+2
EPII-SD-30	1.3E+1	7.7E-1	5.8E+4	5.7E+3	1.5E+1	3.7E+3	1.9E+2	8.7E+0	9.9E-1	1.5E+1	7.2E+1
EFII-SD-41	1.7E+1	1.1E+0	2.2E+4	2.2E+3	2.9E+1	1.0E+4	2.5E+2	5.1E+0	1.3E+0	2.0E+1	1.9E+2
EFII-SD-42	3.0E+1	1.4E+0	8.4E+3	9.1E+2	1.1E+1	4.2E+3	1.1E+2	2.5E+1	2.4E-1	1.3E+1	8.7E+1
EFII-SD-43	1.1E+1	1.6E+0	8.1E+3	7.6E+2	1.4E+1	1.0E+4	1.9E+2	3.4E+0	4.8E-1	2.5E+1	2.2E+2
EFII-SD-44	2.5E+1	1.2E+0	2.1E+4	1.6E+3	1.0E+1	4.2E+3	9.1E+1	1.6E+1	3.4E-1	1.1E+1	7.8E+1
EFII-SD-45	3.7E+1	1.3E+0	3.4E+4	3.1E+3	8.0E+0	3.3E+3	6.2E+1	5.7E+0	4.1E-1	1.5E+1	1.0E+2
EFII-SD-46	1.1E+1	7.1E-1	4.9E+4	3.6E+3	1.0E+1	2.5E+3	7.0E+1	4.1E+0	3.6E-1	1.3E+1	2.8E+1
EFII-SD-47	2.3E+1	1.2E+0	2.6E+4	2.1E+3	1.2E+1	5.2E+3	1.1E+2	1.2E+1	6.1E-1	1.6E+1	1.3E+2
EFII-SD-48	3.9E+1	1.4E+0	7.5E+4	4.6E+3	7.5E+0	4.6E+3	1.0E+2	1.4E+1	1.3E+0	1.2E+1	1.7E+2
EFII-SD-49	2.2E+1	1.2E+0	3.3E+4	2.5E+3	1.2E+1	4.7E+3	1.3E+2	5.5E+0	4.6E-1	1.1E+1	1.1E+2
EFII-SD-50	1.2E+1	6.3E-1	2.3E+4	2.0E+3	2.4E+1	4.5E+3	2.0E+2	5.3E+0	2.4E-1	1.5E+1	5.7E+1

	Nb mg/kg	Sn mg/kg	Sb mg/kg	La mg/kg	Ce mg/kg	Sm mg/kg	Eu mg/kg	Gd mg/kg	Pb mg/kg	Th mg/kg	U mg/kg
EPII-SD-21	1.0E+1	2.2E+0	4.8E-1	7.6E+0	1.6E+1	1.4E+0	3.6E-1	1.5E+0	2.0E+1	3.5E+0	2.6E+0
EPII-SD-22	7.5E+0	1.8E+0	9.5E-1	7.9E+0	1.6E+1	1.3E+0	3.8E-1	1.4E+0	1.9E+1	3.2E+0	2.1E+0
EPII-SD-23	9.1E+0	2.2E+0	5.6E-1	9.1E+0	2.0E+1	1.3E+0	2.7E-1	1.3E+0	2.3E+1	3.5E+0	2.5E+0
EPII-SD-24	7.7E+0	1.9E+0	6.0E-1	1.0E+1	2.3E+1	2.2E+0	4.8E-1	2.3E+0	1.6E+1	4.4E+0	2.0E+0
EPII-SD-25	6.7E+0	1.6E+0	7.2E-1	7.9E+0	1.6E+1	2.1E+0	5.8E-1	2.2E+0	2.1E+1	3.7E+0	2.6E+0
EPII-SD-26	5.7E+0	1.9E+0	1.0E+0	7.7E+0	1.4E+1	2.9E+0	7.2E-1	3.3E+0	3.9E+1	2.5E+0	2.9E+0
EPII-SD-27	8.9E+0	1.9E+0	7.2E-1	1.1E+1	2.0E+1	2.8E+0	7.1E-1	2.9E+0	3.8E+1	4.3E+0	2.6E+0
EPII-SD-28	8.0E+0	1.7E+0	6.2E-1	1.7E+1	3.3E+1	4.0E+0	1.2E+0	4.0E+0	1.5E+1	6.3E+0	2.6E+0
EPII-SD-29	7.5E+0	1.8E+0	6.6E-1	1.2E+1	2.0E+1	3.2E+0	8.7E-1	3.4E+0	1.9E+1	4.1E+0	2.9E+0
EPII-SD-30	4.7E+0	1.4E+0	7.4E-1	7.4E+0	1.3E+1	2.4E+0	6.4E-1	2.7E+0	1.9E+1	2.3E+0	3.5E+0
EFII-SD-41	1.3E+1	2.2E+0	5.3E-1	9.3E+0	2.5E+1	3.1E+0	8.5E-1	3.0E+0	1.8E+1	4.7E+0	2.5E+0
EFII-SD-42	9.3E+0	6.8E+0	2.8E+0	1.4E+1	3.0E+1	2.9E+0	7.6E-1	2.8E+0	5.5E+1	5.8E+0	2.1E+0
EFII-SD-43	1.7E+1	2.2E+0	3.2E-1	8.6E+0	2.4E+1	2.0E+0	5.9E-1	2.0E+0	1.8E+1	3.8E+0	2.3E+0
EFII-SD-44	8.4E+0	1.8E+1	2.3E+0	1.4E+1	2.5E+1	2.9E+0	7.4E-1	2.7E+0	7.2E+1	4.8E+0	1.5E+0
EFII-SD-45	9.6E+0	3.4E+0	1.4E+0	1.4E+1	2.7E+1	2.6E+0	5.6E-1	2.5E+0	2.6E+1	6.5E+0	2.7E+0
EFII-SD-46	3.6E+0	1.1E+0	2.2E-1	7.7E+0	1.1E+1	2.2E+0	5.8E-1	2.4E+0	1.1E+1	2.5E+0	9.6E-1
EFII-SD-47	9.8E+0	2.4E+0	8.3E-1	8.6E+0	1.5E+1	2.5E+0	6.6E-1	2.7E+0	2.0E+1	3.2E+0	2.2E+0
EFII-SD-48	2.0E+1	3.7E+0	1.1E+0	1.3E+1	2.5E+1	2.1E+0	3.8E-1	2.1E+0	4.6E+1	4.7E+0	2.7E+0
EFII-SD-49	7.4E+0	1.8E+0	1.2E+0	6.7E+0	1.4E+1	1.7E+0	4.6E-1	1.7E+0	1.9E+1	2.9E+0	3.1E+0
EFII-SD-50	3.9E+0	1.1E+0	5.4E-1	8.1E+0	1.7E+1	2.4E+0	7.4E-1	2.8E+0	9.8E+0	2.7E+0	1.5E+0

注) EP**は水田土壌、EF**は畑土壌.

表 2.2-11 平成 28 年度に採取した農作物の希土類元素等の濃度
(乾物重ベース)

Sample code	Be mg/kg	C mg/kg	N mg/kg	Ti mg/kg	V mg/kg	As mg/kg	Se mg/kg	Y mg/kg	Zr mg/kg	Nb mg/kg
EP11-CF-21	3.3E-4	4.3E+5	1.6E+4	2.4E+0	1.0E-2	8.0E-2	1.2E-2	3.9E-3	6.5E-3	9.5E-3
EP11-CF-22	7.3E-4	4.2E+5	1.2E+4	2.0E+0	3.8E-3	8.0E-2	2.6E-2	2.6E-3	3.7E-3	3.6E-3
EP11-CF-23	7.5E-4	4.2E+5	1.2E+4	2.2E+0	8.9E-3	7.5E-2	3.1E-2	2.6E-3	3.4E-3	2.3E-3
EP11-CF-24	1.1E-3	4.3E+5	1.2E+4	3.5E+0	1.4E-2	9.9E-2	5.2E-2	5.7E-3	1.9E-2	6.9E-3
EP11-CF-25	7.1E-4	4.2E+5	1.1E+4	2.1E+0	3.1E-3	5.8E-2	2.7E-2	1.9E-3	4.4E-3	2.3E-3
EP11-CF-26	5.6E-4	4.3E+5	1.3E+4	1.6E+0	3.0E-3	6.0E-2	1.3E-2	1.6E-3	2.3E-3	2.1E-3
EP11-CF-27	6.3E-4	4.3E+5	1.4E+4	1.8E+0	3.5E-3	7.0E-2	3.8E-2	1.9E-3	3.6E-3	2.0E-3
EP11-CF-28	2.5E-4	4.2E+5	1.3E+4	2.0E+0	3.9E-3	5.0E-2	1.8E-2	1.1E-3	1.8E-3	1.8E-3
EP11-CF-29	5.9E-4	4.4E+5	1.1E+4	1.7E+0	6.9E-3	6.1E-2	3.6E-2	2.1E-3	6.3E-3	1.7E-3
EP11-CF-30	1.8E-4	4.2E+5	1.3E+4	1.8E+0	3.4E-3	6.5E-2	2.0E-2	1.4E-3	4.0E-5	8.7E-4
EF11-CF-41	1.8E-3	4.2E+5	1.9E+4	3.8E+0	6.6E-2	8.1E-3	6.5E-4	2.3E-1	7.1E-2	5.0E-3
EF11-CF-42	6.6E-4	4.1E+5	1.0E+4	2.5E+0	2.0E-2	9.3E-3	1.0E-2	5.5E-3	1.6E-2	1.8E-3
EF11-CF-43	7.2E-4	4.2E+5	1.2E+4	2.3E+0	1.9E-2	4.8E-3	7.0E-3	5.3E-2	3.7E-2	2.8E-3
EF11-CF-44	4.2E-4	4.2E+5	1.1E+4	2.1E+0	2.6E-2	1.1E-2	7.1E-3	4.8E-3	5.8E-2	2.0E-3
EF11-CF-45	3.4E-4	4.1E+5	1.4E+4	2.0E+0	1.2E-2	6.5E-3	4.1E-3	8.0E-4	5.8E-3	1.6E-3
EF11-CF-46	2.0E-4	4.1E+5	1.2E+4	1.8E+0	2.0E-2	8.7E-3	4.2E-3	2.1E-3	7.3E-3	1.8E-3
EF11-CF-47	5.0E-4	4.1E+5	1.2E+4	1.6E+0	1.1E-2	7.9E-3	9.8E-3	3.6E-3	7.2E-3	2.4E-3
EF11-CF-48	6.1E-4	4.2E+5	1.3E+4	1.2E+0	1.0E-2	8.8E-3	4.9E-3	3.2E-3	3.0E-3	1.7E-3
EF11-CF-49	4.4E-4	4.1E+5	9.6E+3	1.9E+0	1.5E-2	4.7E-3	2.3E-3	1.7E-3	5.9E-3	2.1E-3
EF11-CF-50	5.4E-4	4.2E+5	8.5E+3	1.6E+0	1.8E-2	5.3E-3	6.7E-3	3.8E-3	3.7E-2	2.2E-3

	Sn mg/kg	Sb mg/kg	Cs mg/kg	La mg/kg	Ce mg/kg	Sm mg/kg	Eu mg/kg	Pb mg/kg	Th mg/kg	U mg/kg
EP11-CF-21	3.0E-2	2.1E-3	3.1E-3	2.9E-3	5.8E-3	8.8E-4	6.1E-4	2.9E-2	7.3E-3	3.6E-4
EP11-CF-22	3.1E-2	1.9E-3	3.7E-3	9.6E-4	2.1E-3	6.0E-4	5.9E-4	9.4E-3	3.0E-3	7.2E-4
EP11-CF-23	2.6E-2	2.4E-3	3.1E-3	1.8E-3	3.4E-3	1.2E-3	8.0E-4	1.6E-2	1.5E-3	4.2E-4
EP11-CF-24	2.3E-2	5.6E-3	3.9E-3	4.2E-3	7.7E-3	1.2E-3	6.0E-4	8.9E-2	2.4E-3	8.6E-4
EP11-CF-25	1.7E-2	1.7E-3	1.5E-2	5.7E-4	1.0E-3	6.1E-4	4.7E-4	3.7E-2	1.1E-3	5.3E-4
EP11-CF-26	3.0E-2	1.1E-3	2.6E-3	1.3E-3	3.2E-3	8.9E-4	1.1E-3	1.3E-2	1.3E-3	6.2E-4
EP11-CF-27	4.1E-2	1.1E-3	3.2E-3	6.5E-4	9.3E-4	7.6E-4	5.2E-4	2.0E-2	6.1E-4	2.0E-4
EP11-CF-28	2.9E-2	2.2E-3	1.7E-2	2.9E-4	4.7E-4	9.4E-4	4.3E-4	1.6E-2	4.5E-4	1.1E-4
EP11-CF-29	4.9E-2	2.9E-3	1.0E-2	1.1E-3	2.2E-3	6.3E-4	4.7E-4	1.8E-2	9.8E-4	5.0E-4
EP11-CF-30	3.4E-2	2.2E-3	3.7E-3	1.6E-4	2.0E-4	5.2E-4	2.7E-4	2.4E-2	6.9E-4	8.6E-5
EF11-CF-41	2.2E-2	1.7E-3	5.5E-2	1.5E-1	9.2E-2	2.1E-2	6.3E-3	2.0E-2	3.7E-3	1.3E-3
EF11-CF-42	1.3E-2	2.1E-3	7.8E-3	4.7E-3	6.7E-3	1.4E-3	4.8E-4	2.1E-2	1.1E-3	7.8E-4
EF11-CF-43	1.8E-2	4.1E-3	6.2E-2	4.9E-2	3.7E-2	7.0E-3	3.0E-3	2.5E-2	9.9E-4	3.7E-4
EF11-CF-44	2.3E-2	2.2E-3	7.9E-3	2.3E-3	3.2E-3	1.0E-3	3.4E-4	2.6E-2	4.2E-4	2.6E-4
EF11-CF-45	1.9E-2	1.4E-3	5.6E-3	1.1E-3	1.9E-3	1.0E-3	3.1E-4	7.0E-3	4.0E-4	1.9E-4
EF11-CF-46	3.3E-2	3.9E-3	2.3E-3	2.5E-3	3.9E-3	1.2E-3	4.2E-4	1.0E-2	3.9E-4	3.8E-4
EF11-CF-47	3.1E-2	2.4E-3	5.8E-3	2.3E-3	2.5E-3	1.4E-3	4.5E-4	8.9E-3	1.1E-3	4.8E-4
EF11-CF-48	3.6E-2	2.2E-3	1.2E-2	6.0E-3	6.5E-3	9.8E-4	3.6E-4	2.4E-2	2.0E-4	6.8E-5
EF11-CF-49	4.1E-2	2.3E-3	4.7E-2	1.7E-3	1.7E-3	9.5E-4	3.5E-4	1.3E-2	2.8E-4	2.1E-4
EF11-CF-50	3.7E-2	2.6E-3	1.1E-2	2.1E-3	2.8E-3	1.4E-3	4.4E-4	1.3E-2	3.3E-4	4.4E-4

注) EP**は玄米、EF**はジャガイモ。

表 2.2-12 平成 28 年度に採取した農作物の希土類元素等の移行係数（乾物重ベース）

Sample code	採取場所	Li	Ti	V	As	Se	Y	Zr	Nb	Sn
EPII-CF-21	宮崎	1.4E-4	6.4E-4	1.0E-4	2.2E-2	3.1E-2	4.4E-4	5.8E-5	9.3E-4	1.4E-2
EPII-CF-22	鹿児島	1.4E-4	5.9E-4	3.5E-5	1.8E-2	9.4E-2	3.0E-4	4.1E-5	4.7E-4	1.7E-2
EPII-CF-23	高知	1.3E-4	7.7E-4	1.2E-4	3.2E-2	9.0E-2	2.9E-4	4.2E-5	2.5E-4	1.2E-2
EPII-CF-24	沖縄	2.3E-4	1.1E-3	1.4E-4	9.7E-3	1.2E-1	4.5E-4	2.8E-4	8.9E-4	1.2E-2
EPII-CF-25	北海道	1.3E-4	5.0E-4	1.9E-5	6.6E-3	5.2E-2	1.5E-4	4.4E-5	3.5E-4	1.1E-2
EPII-CF-26	青森	4.2E-4	4.8E-4	2.5E-5	9.7E-3	3.4E-2	7.6E-5	2.0E-5	3.7E-4	1.5E-2
EPII-CF-27	北海道	9.7E-5	4.6E-4	2.0E-5	6.6E-3	6.7E-2	1.3E-4	3.4E-5	2.2E-4	2.2E-2
EPII-CF-28	熊本	9.9E-5	3.9E-4	1.3E-5	1.1E-2	4.6E-2	5.7E-5	1.4E-5	2.2E-4	1.7E-2
EPII-CF-29	秋田	1.8E-4	4.2E-4	4.4E-5	9.7E-3	4.4E-2	1.2E-4	5.5E-5	2.2E-4	2.7E-2
EPII-CF-30	岩手	1.1E-4	4.7E-4	1.8E-5	7.5E-3	2.0E-2	9.3E-5	5.6E-7	1.8E-4	2.4E-2
EFII-CF-41	鹿児島	7.1E-4	3.8E-4	2.7E-4	1.6E-3	5.1E-4	1.1E-2	3.8E-4	3.8E-4	1.0E-2
EFII-CF-42	宮崎	1.2E-4	6.1E-4	1.8E-4	3.7E-4	4.3E-2	4.2E-4	1.8E-4	1.9E-4	1.9E-3
EFII-CF-43	長崎	2.6E-4	2.3E-4	9.8E-5	1.4E-3	1.5E-2	2.1E-3	1.6E-4	1.6E-4	8.3E-3
EFII-CF-44	福岡	6.4E-5	5.0E-4	2.8E-4	6.6E-4	2.1E-2	4.2E-4	7.5E-4	2.3E-4	1.3E-3
EFII-CF-45	高知	2.5E-5	6.1E-4	1.9E-4	1.2E-3	1.0E-2	5.5E-5	5.7E-5	1.6E-4	5.6E-3
EFII-CF-46	岩手	1.3E-4	7.3E-4	2.9E-4	2.1E-3	1.2E-2	1.5E-4	2.6E-4	5.1E-4	3.0E-2
EFII-CF-47	青森	1.5E-4	3.0E-4	1.0E-4	6.5E-4	1.6E-2	2.3E-4	5.5E-5	2.5E-4	1.3E-2
EFII-CF-48	秋田	3.1E-5	2.7E-4	1.0E-4	6.2E-4	3.9E-3	2.6E-4	1.8E-5	8.6E-5	9.7E-3
EFII-CF-49	北海道	6.2E-5	4.1E-4	1.1E-4	8.6E-4	5.0E-3	1.5E-4	5.3E-5	2.9E-4	2.3E-2
EFII-CF-50	北海道	1.5E-4	3.6E-4	9.0E-5	1.0E-3	2.7E-2	2.6E-4	6.4E-4	5.6E-4	3.4E-2

Sample code	Sb	Cs	La	Ce	Sm	Eu	Gd	Pb	Th	U
EPII-CF-21	4.3E-3	7.0E-4	3.8E-4	3.6E-4	6.0E-4	1.7E-3	6.4E-4	1.4E-3	2.1E-3	1.4E-4
EPII-CF-22	2.0E-3	6.5E-4	1.2E-4	1.4E-4	4.5E-4	1.5E-3	4.7E-4	4.9E-4	9.2E-4	3.4E-4
EPII-CF-23	4.4E-3	7.6E-4	2.0E-4	1.7E-4	9.2E-4	3.0E-3	3.8E-4	6.9E-4	4.3E-4	1.7E-4
EPII-CF-24	9.3E-3	9.3E-4	4.2E-4	3.3E-4	5.5E-4	1.2E-3	4.9E-4	5.4E-3	5.5E-4	4.4E-4
EPII-CF-25	2.4E-3	4.2E-3	7.3E-5	6.6E-5	2.9E-4	8.2E-4	2.2E-4	1.8E-3	3.1E-4	2.1E-4
EPII-CF-26	1.1E-3	1.1E-3	1.7E-4	2.3E-4	3.1E-4	1.5E-3	3.8E-4	3.4E-4	5.3E-4	2.2E-4
EPII-CF-27	1.6E-3	1.0E-3	6.2E-5	4.6E-5	2.7E-4	7.3E-4	1.5E-4	5.3E-4	1.4E-4	7.8E-5
EPII-CF-28	3.5E-3	5.1E-3	1.8E-5	1.4E-5	2.4E-4	3.7E-4	1.2E-4	1.1E-3	7.2E-5	4.2E-5
EPII-CF-29	4.4E-3	3.4E-3	8.7E-5	1.1E-4	2.0E-4	5.4E-4	1.2E-4	9.5E-4	2.4E-4	1.7E-4
EPII-CF-30	3.0E-3	2.1E-3	2.2E-5	1.6E-5	2.2E-4	4.2E-4	5.9E-5	1.3E-3	3.1E-4	2.4E-5
EFII-CF-41	3.2E-3	2.3E-2	1.6E-2	3.6E-3	6.7E-3	7.4E-3	8.8E-3	1.1E-3	7.9E-4	5.3E-4
EFII-CF-42	7.8E-4	1.4E-3	3.3E-4	2.3E-4	4.7E-4	6.3E-4	3.8E-4	3.8E-4	1.8E-4	3.7E-4
EFII-CF-43	1.3E-2	4.7E-2	5.7E-3	1.6E-3	3.4E-3	5.1E-3	4.3E-3	1.4E-3	2.6E-4	1.6E-4
EFII-CF-44	9.7E-4	2.1E-3	1.6E-4	1.3E-4	3.5E-4	4.6E-4	1.6E-4	3.6E-4	8.9E-5	1.7E-4
EFII-CF-45	9.7E-4	9.6E-4	8.2E-5	7.0E-5	4.0E-4	5.5E-4	1.0E-4	2.7E-4	6.3E-5	7.0E-5
EFII-CF-46	1.8E-2	1.2E-3	3.3E-4	3.4E-4	5.4E-4	7.1E-4	1.9E-4	9.1E-4	1.6E-4	4.0E-4
EFII-CF-47	2.9E-3	1.7E-3	2.7E-4	1.7E-4	5.7E-4	6.8E-4	2.5E-4	4.5E-4	3.5E-4	2.1E-4
EFII-CF-48	2.0E-3	1.6E-3	4.6E-4	2.6E-4	4.7E-4	9.5E-4	2.5E-4	5.3E-4	4.2E-5	2.5E-5
EFII-CF-49	1.9E-3	7.9E-3	2.5E-4	1.2E-4	5.7E-4	7.5E-4	2.1E-4	6.5E-4	9.7E-5	6.8E-5
EFII-CF-50	4.8E-3	4.7E-3	2.6E-4	1.6E-4	5.6E-4	5.9E-4	1.4E-4	1.3E-3	1.2E-4	3.0E-4

注) EP**は玄米、EF**はジャガイモ。

表 2.3-1 畑土壌の Cs の K_d (30°C) および他の温度での K_d .
(全て予備振とう 1 日、RI 添加後振とう 7 日)

Sample code	10°C	23°C	30°C
EF-SD-44	<u>1180</u>	820	720 ±10
EF-SD-45	<u>260</u>	160	160 ±10
EF-SD-46	<u>2870</u>	2210	2090 ±130
EF-SD-47	<u>950</u>	610	650 ±30
EF-SD-48	<u>360</u>	200	200 ±10
EF-SD-49	<u>6480</u>	3100	4190 ±140
EF-SD-50	3150	3050	<u>3470</u> ±370
EF-SD-51	<u>12400</u>	7780	10100 ±1160
EF-SD-52	<u>1160</u>	730	840 ±70
EF-SD-53	<u>1650</u>	1240	1390 ±50
EF-SD-54	<u>3490</u>	2340	2670 ±100
EF-SD-55	<u>3310</u>	1370	1580 ±40
EF-SD-56	4820	2910	<u>4940</u> ±770
EF-SD-57	<u>2940</u>	1610	1530 ±100
EF-SD-58	<u>5620</u>	2760	4040 ±270
EF-SD-59	<u>3740</u>	2690	2670 ±70
EF-SD-60	<u>6920</u>	5030	4200 ±270
EF-SD-61	<u>2040</u>	990	1010 ±30
EF-SD-62	10000	10690	<u>14100</u> ±1600
EF-SD-63	<u>2850</u>	2300	2090 ±20
幾何平均値	2600	1680	1850
GSD	2.7	2.9	3.1

下線：3つの温度設定で最も高い K_d 値

表 2.4-1 比較的寒冷地域と温暖地域の玄米 TF のまとめ

元素	寒冷地					温暖地				
	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

表 2.4-2 比較的寒冷地域と温暖地域のジャガイモ TF のまとめ

元素	寒冷地					温暖地				
	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

表 2.4-3 温暖地を除く全国と温暖地域の葉菜類 TF のまとめ

元素	温暖地を除く全国					温暖地				
	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

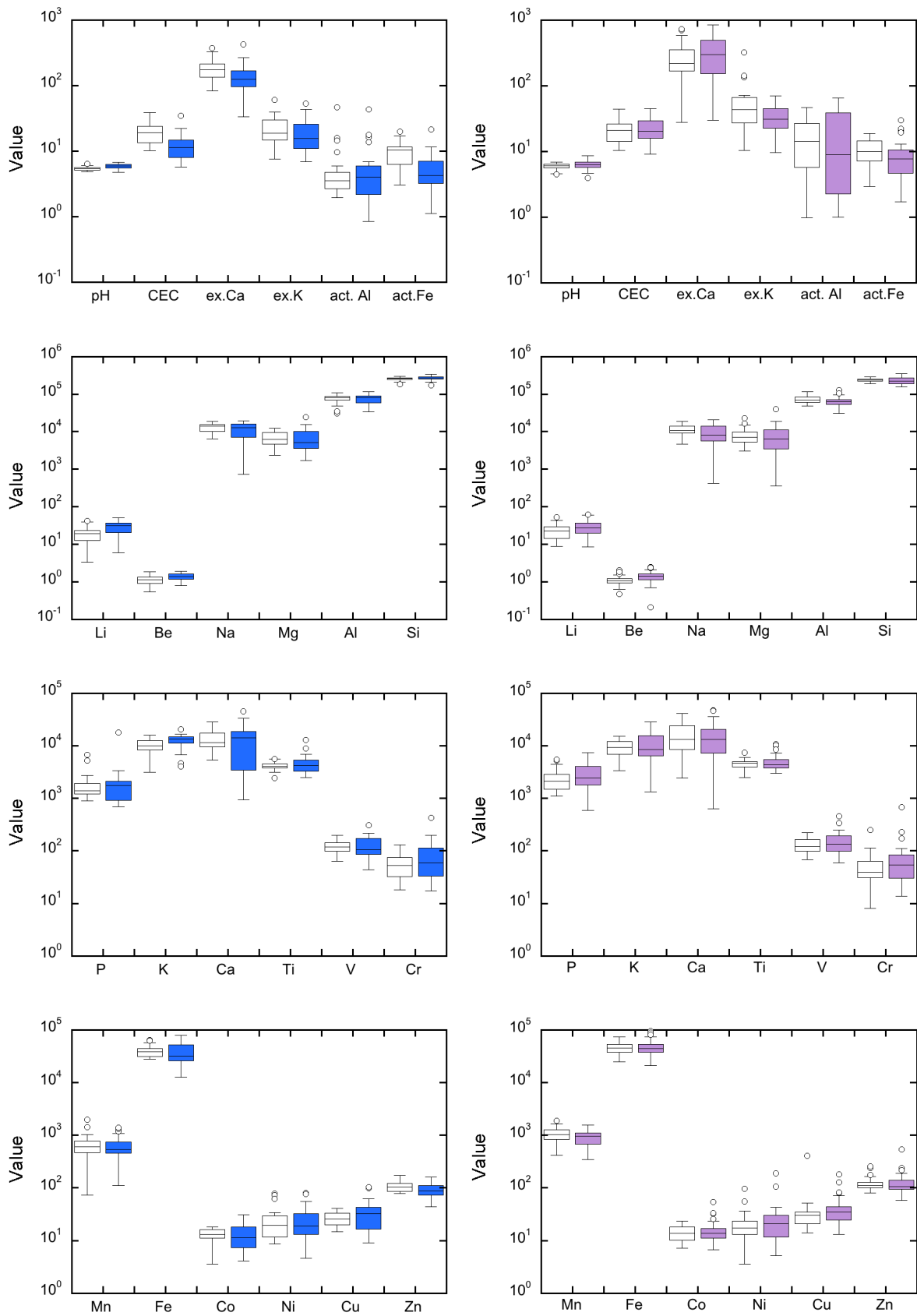


図 2.2-1 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の土壤特性および土壤中元素濃度の比較
（左：水田土、右：畑土）

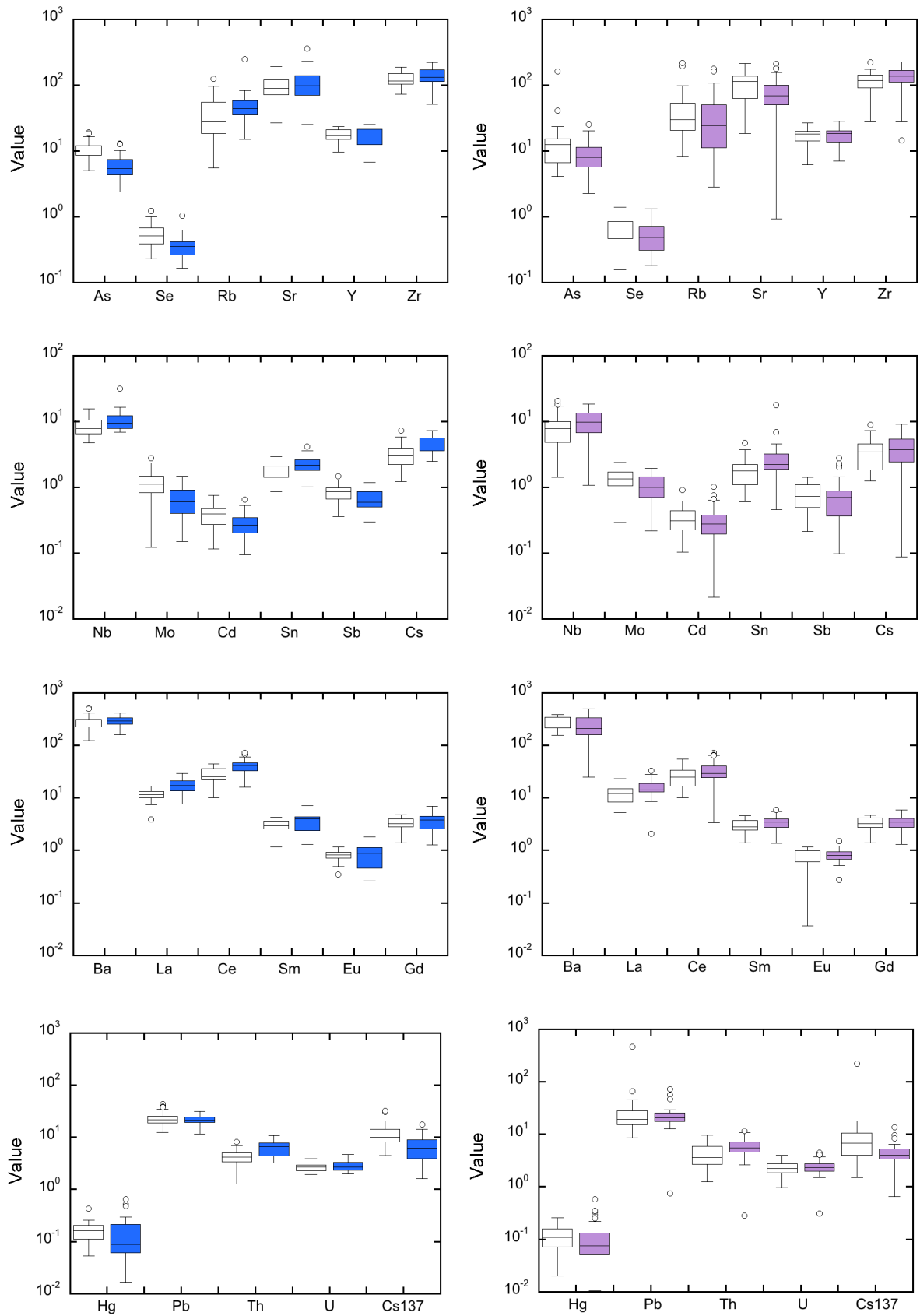


図 2.2-1 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の土壤特性および土壤中元素濃度の比較
（左：水田土、右：畑土）（続き）

- 縦軸 (Value)は以下の単位を示す。

pH: 単位無し. CEC (陽イオン交換容量) : meq/100g. ex. Ca (交換性カルシウム)、ex. K (交換性カリウム)、act. Al (活性アルミニウム)、act. Fe (活性鉄) : mg/100g.

Li, Be, 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 : mg/kg-dry. Cs-137: Bq/kg-dry.

- t-検定により寒冷-温暖地域間の土壤中濃度で有意差があったものは以下の通り。

p 値	水田土壌	畑土壌
<0.01	pH, CEC, act. Fe, Li, As, Se, <u>Mo</u> , <u>Sn</u> , Cs, <u>La</u> , <u>Ce</u> , <u>Th</u> , (C), (N)	Be, Mn, Sr, <u>Mo</u> , <u>La</u> , <u>Th</u>
0.01- <0.05	<u>Be</u> , K, Cd, Sb	pH, Zr, <u>Sn</u> , <u>Ce</u> , Sm

赤 (p<0.01) 及び青 (0.01- <0.05) は水田土と畑土の両方の土地利用で有意差があった項目。下線の項目は両土地利用において p<0.01。

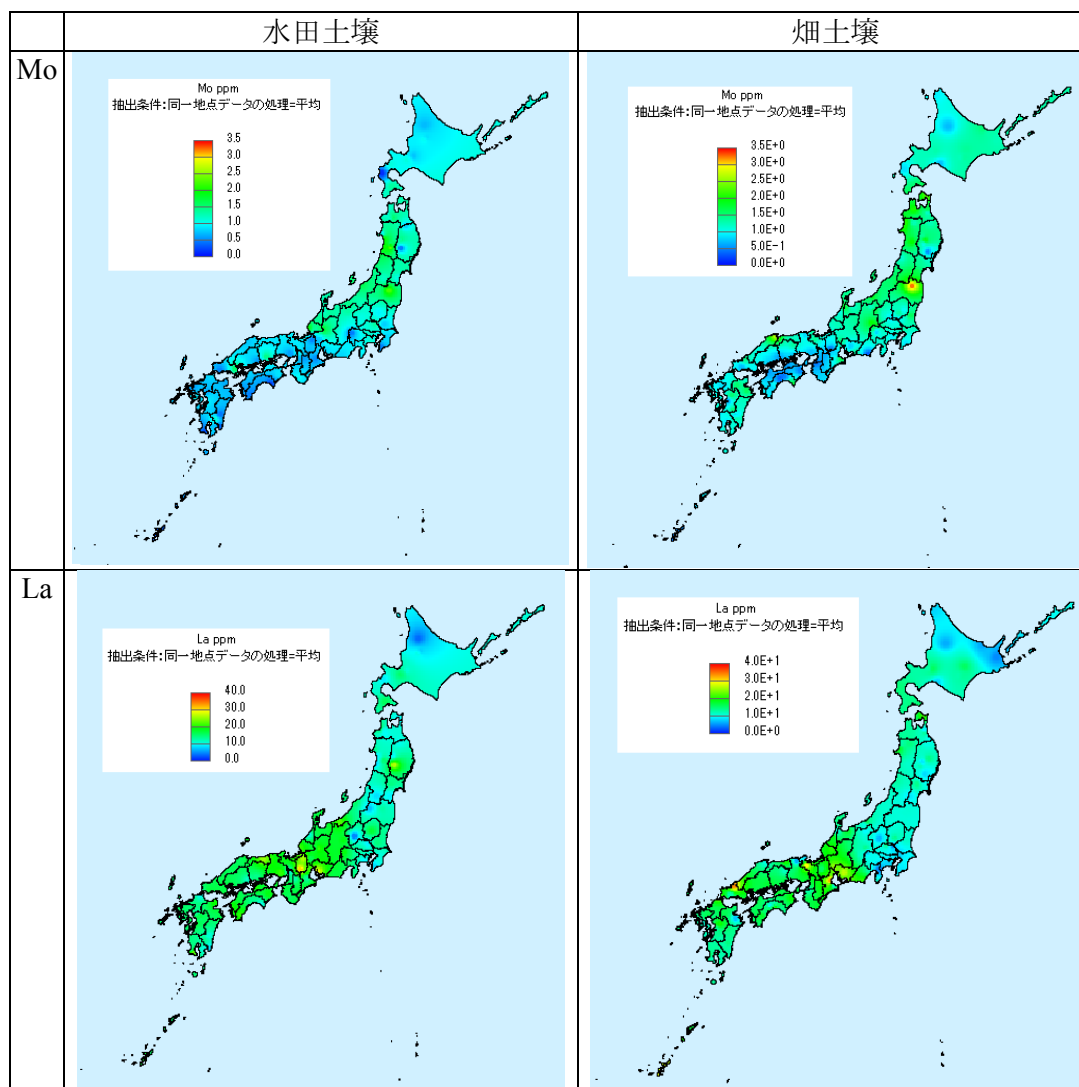


図 2.2-2 農耕地土壌中 Mo および La 濃度の地理的分布

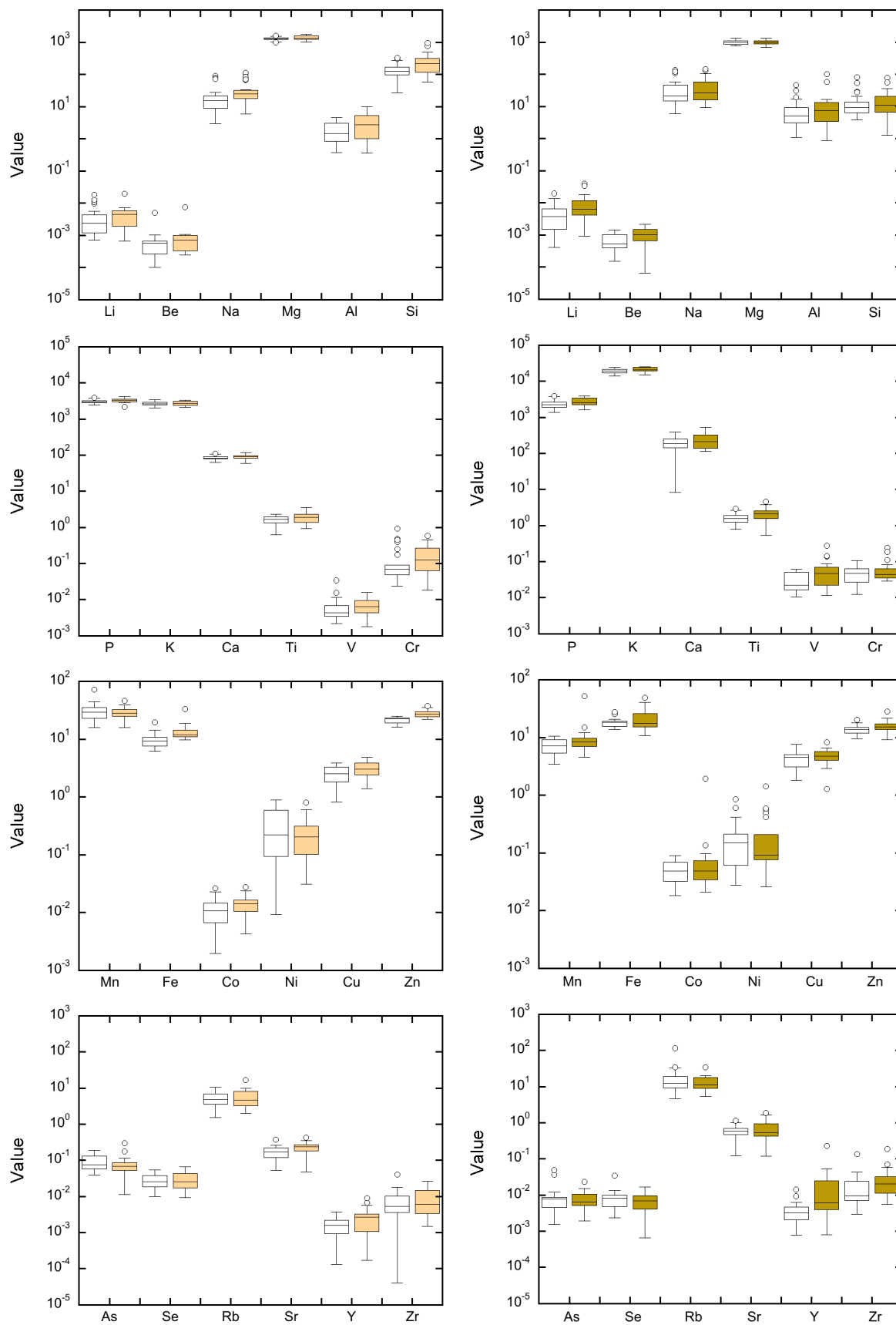


図 2.2-3 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の作物中元素濃度の比較
 （左：玄米、右：ジャガイモ）

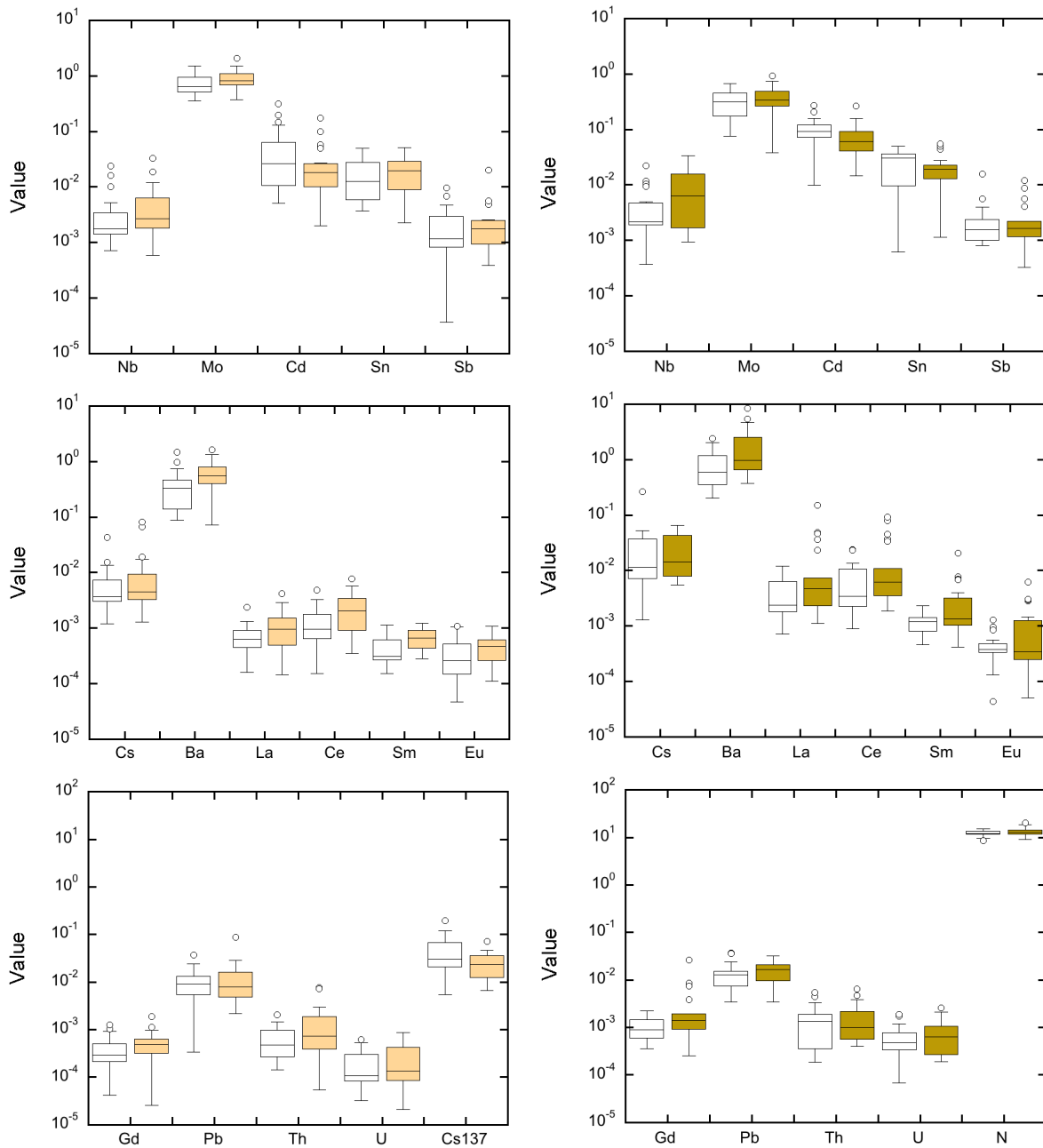


図 2.2-3 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の作物中元素濃度の比較
 （左：玄米、右：ジャガイモ）（続き）

・縦軸 (Value)は以下の単位を示す。

Li, Be, 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, Pb, Th, U : mg/kg-dry. N: g/kg-dry. Cs-137: Bq/kg-dry.

・t-検定により寒冷-温暖地域間の作物中濃度で有意差があったものは以下の通り。

p 値	玄米	ジャガイモ
<0.01	Fe, Cu, Zn, Ba	
0.01- <0.05	Al, Si, Co, Sr, Ce, Sm	Be, K, Ti, V, Ba

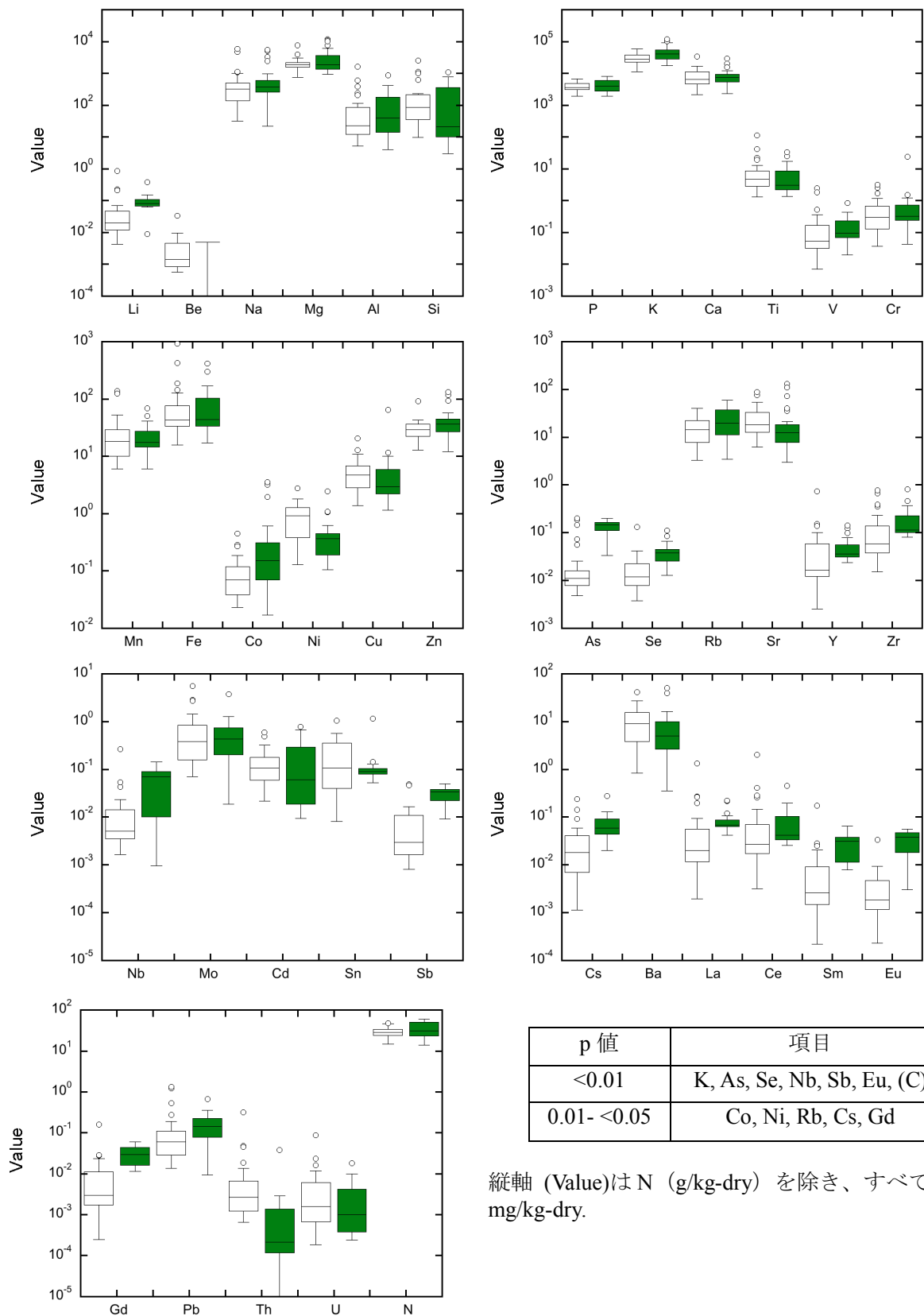


図 2.2-4 温暖地を除く全国（白）と比較的温暖地（緑）の葉菜類中元素濃度の比較
 (注) 温暖地を除く全国での葉菜類データは夏季～秋季に採取、比較的温暖な地域での採取は冬季であり、作物収穫時における気温の状況は温暖な地域の方が低いことがある。

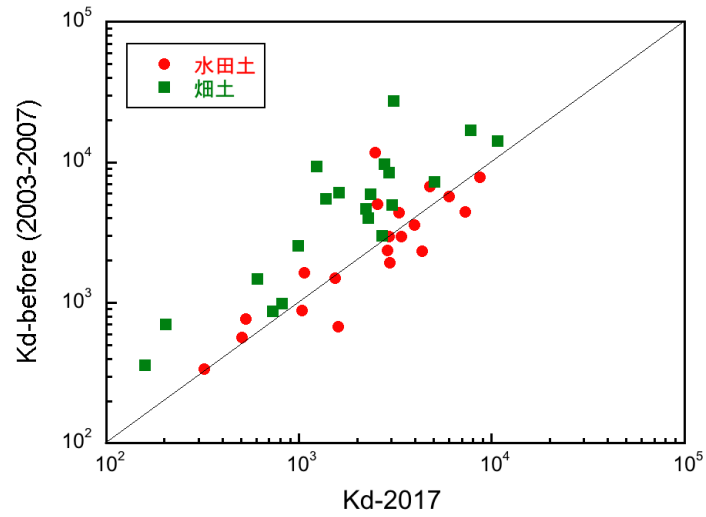


図 2.3-1 異なる実験時期（2004-2007、2017）に得られた K_d 値の比較
 （データ採取条件：温度 23℃。添加前に 24 時間予備振とう。RI 添加後 7 日間連続振とう）

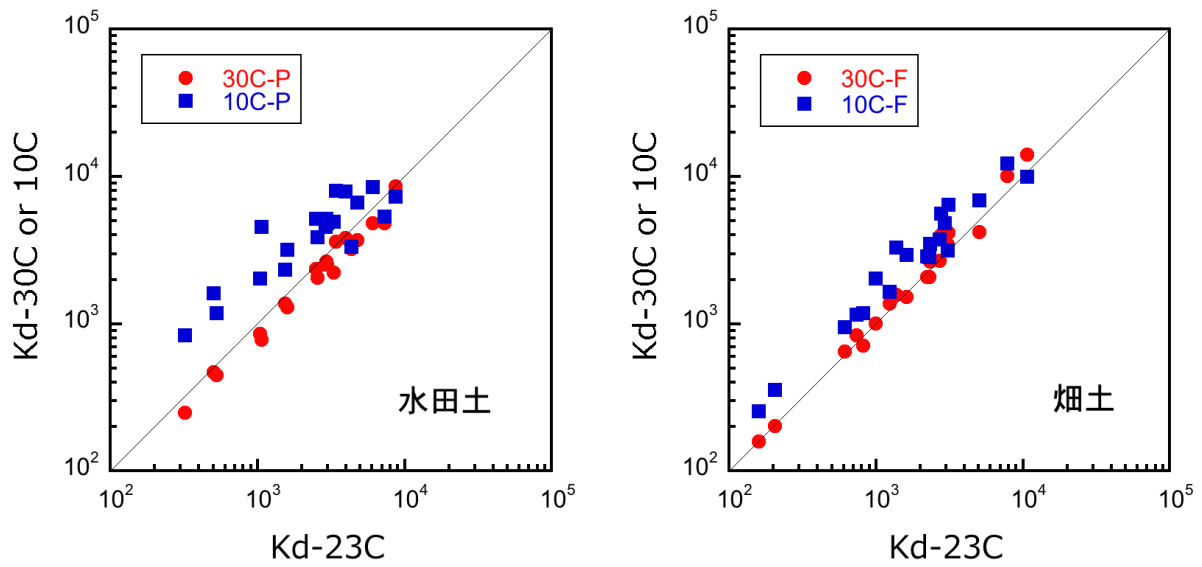


図 2.3-2 23℃で採取した K_d 値と 10℃、30℃における K_d 値の比較
 （左：水田土、右：畑土）

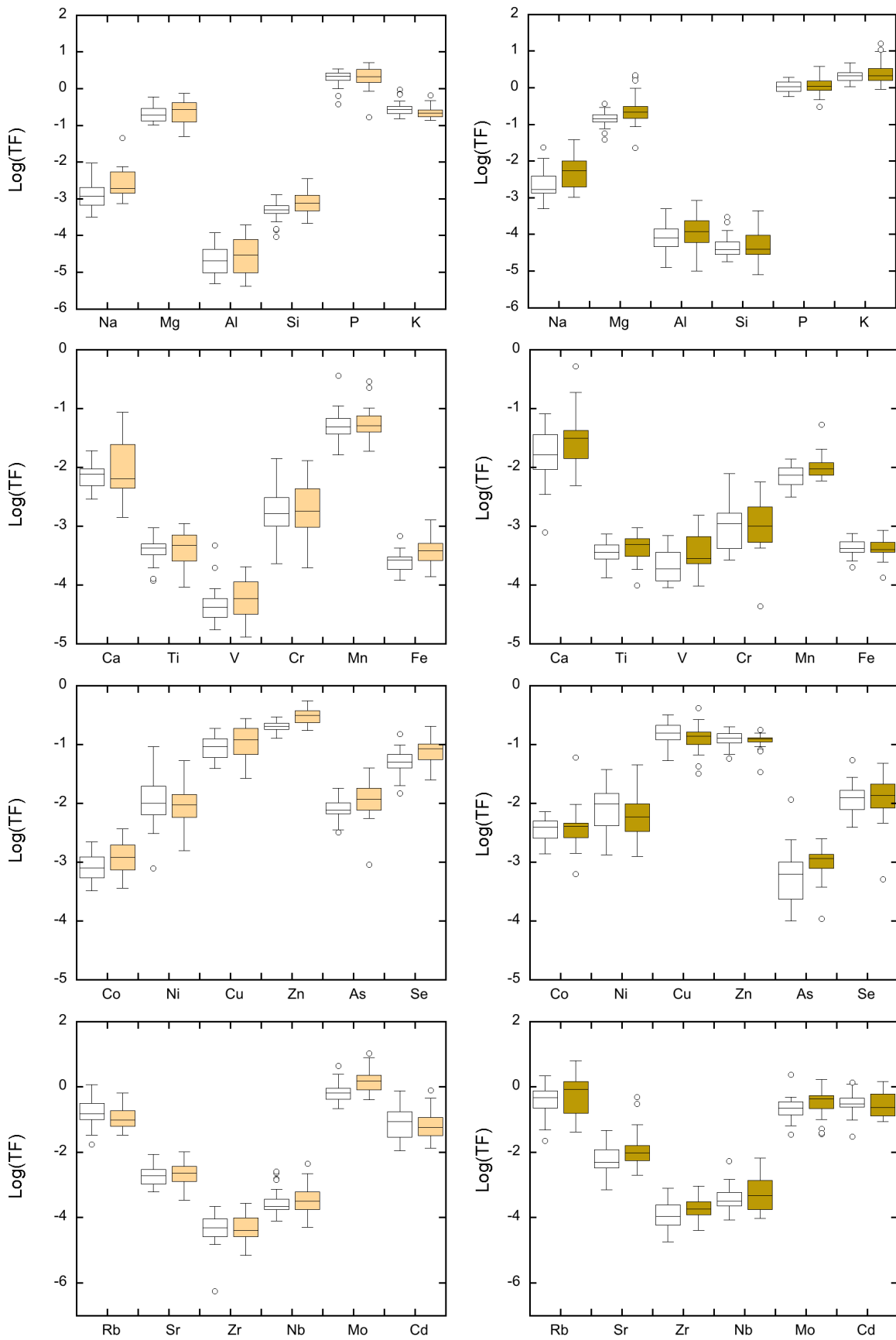


図 2.4-1 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の Log(TF) の比較
 (左：玄米、右：ジャガイモ)

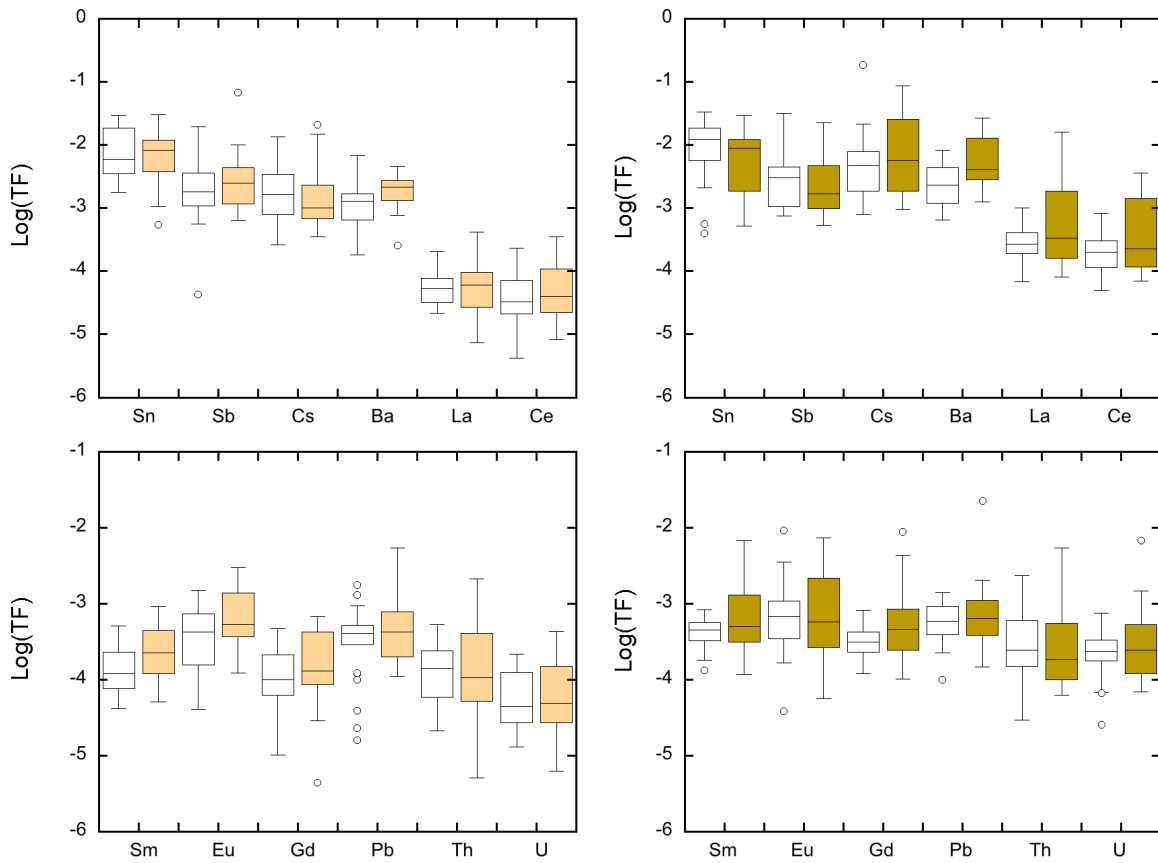


図 2.4-1 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の Log(TF)の比較
（左：玄米、右：ジャガイモ）（続き）

・ t-検定により寒冷-温暖地間の TF で有意差があったものは以下の通り。

p 値	玄米	ジャガイモ
<0.01	Fe, Zn, Se, Mo	Mn, Ba
0.01- <0.05	Na, Si, Co, As, Ba	Na, Mg, Ca, V, Gd

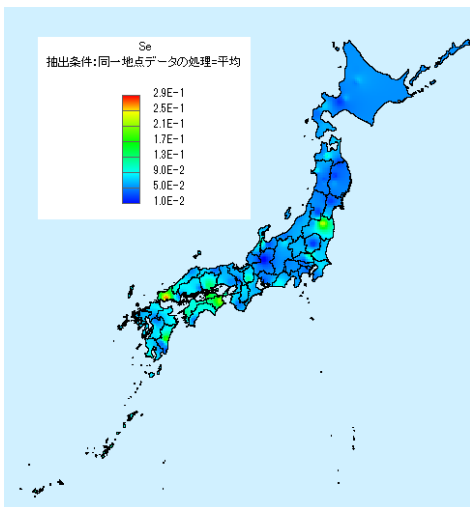


図 2.4-2 玄米 TF-Se の地理的分布

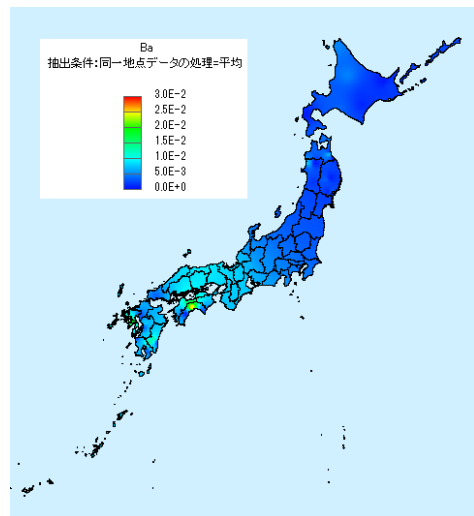


図 2.4-3 ジャガイモ TF-Ba の地理的分布

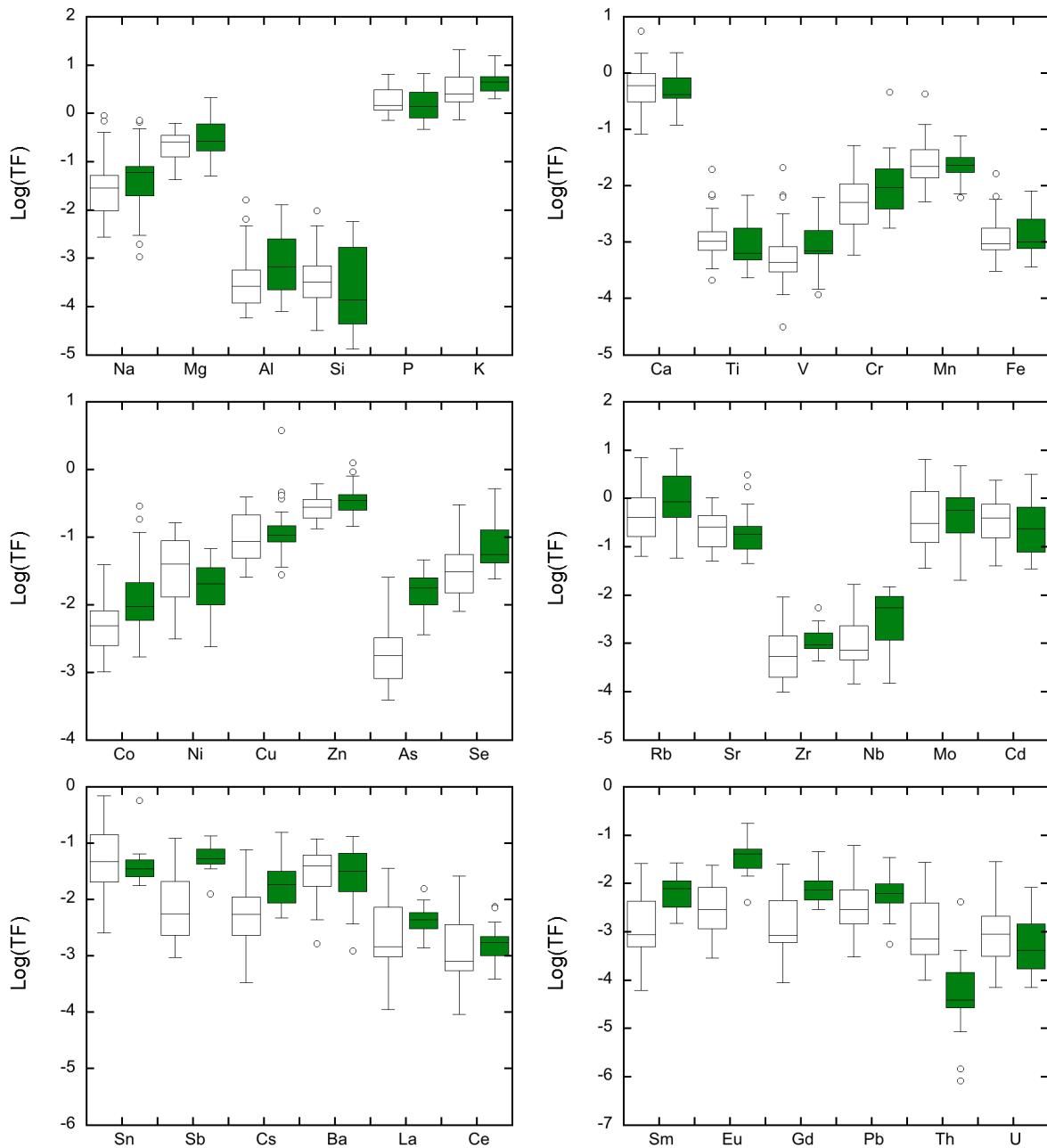


図 2.4-4 温暖地を除く全国（白）と比較的温暖地（緑）の葉菜類 Log(TF)の比較

(注) 温暖地を除く全国での葉菜類データは夏季～秋季に採取、比較的温暖な地域での採取は冬季であり、作物収穫時における気温の状況は温暖な地域の方が低いことが多い。

・ t検定により全国データと比較的温暖地の TF で有意差があったものは以下の通り。

p 値	項目
<0.01	Co, As, Se, Nb, Sb, Cs, Sm, Eu, Gd, Th
0.01- <0.05	K, Zn, Zr, La

これらの項目のうち、H27年度に解析を行ったように収穫期1ヶ月前の気温による分類で解析を行ったところ、Asだけが温暖地と寒冷地における TF に有意差があった (ANOVA) が違いは3倍程度であった。

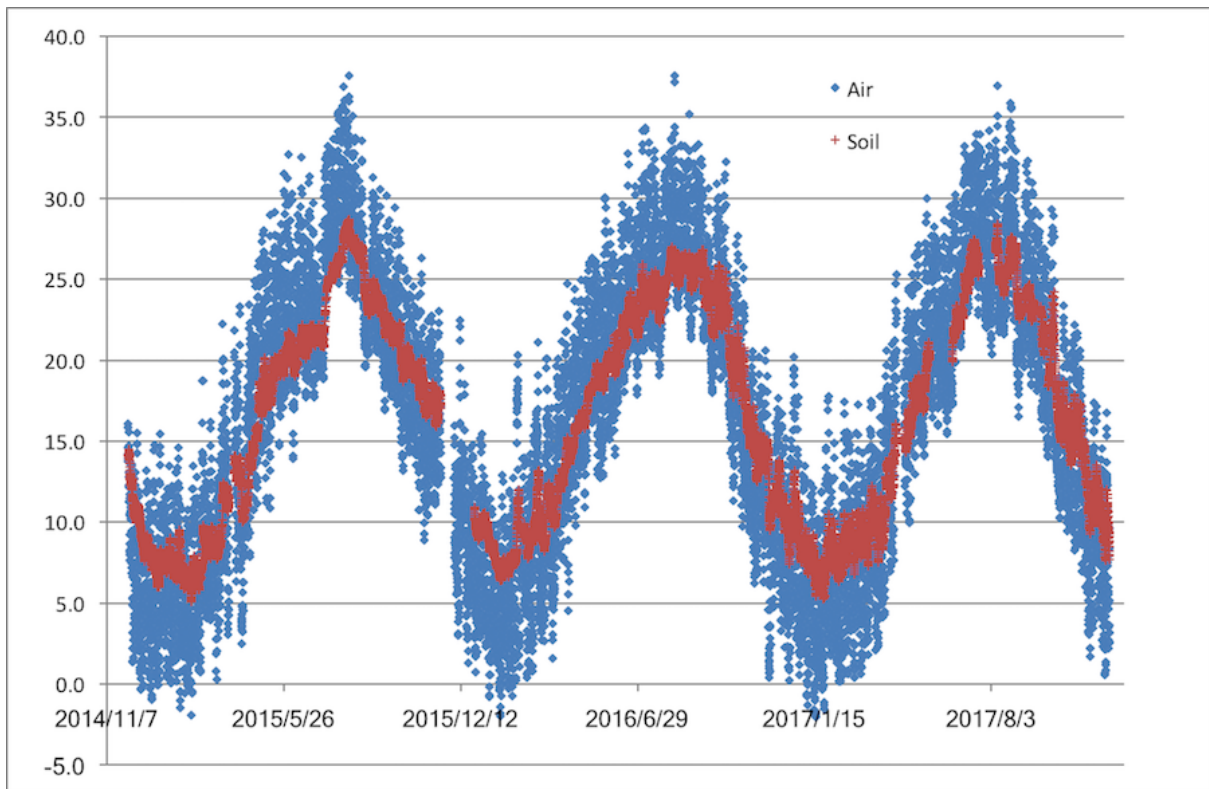
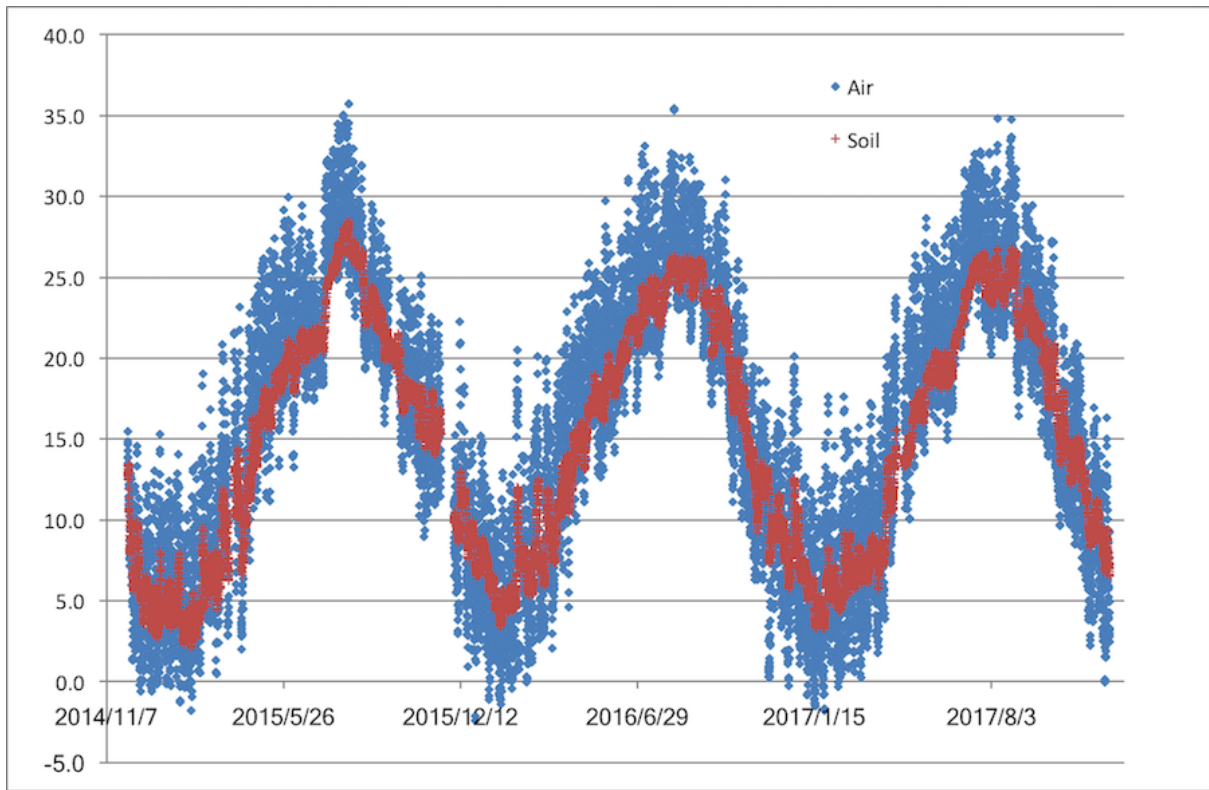


図 2-1s 2014 年 12 月から 3 年間の地温 (20 cm) と気温 (地上 0.5-1.5 m) の 1 時間値
 (上) 日陰条件 (下) 畑条件

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、そして処分場を構成する人工バリア材や母岩への吸着率が小さいことから、TRU 廃棄物の被ばく線量の概算において線量支配核種と評価されている (JAEA and FEPC, 2007)。 ^{14}C を含む長半減期放射性核種の地層処分における最終的な目標は、遠い将来にわたって放射性廃棄物がヒトとヒトの生活環境に影響を及ぼさないようにすることである。この目標を達成するために、大きく分けて二つのシナリオ (地下水シナリオおよび近接シナリオ) でシミュレーションが行われ、安全評価に役立てられている。このうち地下水シナリオでは、処分場から漏洩した放射性核種が地下水を介して最終的にヒトの生物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。

本事業では、 ^{14}C がヒトに移行する場として生物圏に着目しており、農耕地土壌から農作物への ^{14}C 移行データを収集している。これまでの調査から、生物圏に到達した ^{14}C の大部分は、農耕地においてガスとして大気中に放出されることを明らかにしてきた (Ishii et al., 2015)。標準状態 (25°C , 1 気圧) でガス化する放射性核種は限られているため、ガス化は ^{14}C の特徴的な環境移行プロセスといえる。環境移行パラメータとしてよく利用される土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) や土壌-農作物間移行係数 (TF) は、ガス化を考慮しておらず、したがって、 ^{14}C の移行プロセスの評価においてガス化を考慮した新たな環境移行パラメータの取得が必要である。

これまでの本事業の成果として、 ^{14}C のガス化は主に微生物活動が原因であることが分かってきた (Ishii et al., 2015)。例えば、水田土壌に ^{14}C 標識酢酸を添加すると ^{14}C ガスを発生するが、同じ水田土壌を高熱高压処理あるいは化学的殺菌処理すると、 ^{14}C のガス化はほとんど認められなくなる。この結果は、農耕地における ^{14}C のガス化が、そこに生息する微生物の活動に依存していることを意味している。

近年、温暖化や寒冷化といった将来的な地球環境の変化が示唆されており (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ため、 ^{14}C のガス化に寄与する微生物の活動は、ガス化に対する環境要因を統括する指標になりうる可能性がある。しかしながら、微生物活動の指標である呼吸活性およびアデノシン三リン酸 (ATP) 量を指標とした微生物バイオマスは、酢酸分子に含まれる ^{14}C のガス化とは有意な相関関係が得られておらず (放射線医学総合研究所 2015)、 ^{14}C のガス化に対しこれらの指標単独では統括的な指標とはならないことが、これまでの本調査研究で分かってきた。相関が得られなかった要因として、水田土壌微生物群による ^{14}C 標識酢酸に対する資化性 (微生物が酢酸を栄養源として利用できるかどうか) の違いが考えられた。そこで、水田の微生物による 95 種類の炭素資化性を調査したところ、調査対象の炭素源の中で酢酸は利用しにくい炭素源の一つであることが分かった (放射線医学総合研究所 2016)。さらに、 $2 \times 10^{-2} \text{ cmol/kg-soil}$ 以上の濃度の酢酸が付加されれば、水田土壌からの $^{14}\text{CO}_2$

発生が抑制されることも分かった（放射線医学総合研究所 2017）。

以上の結果を踏まえ、気温の変化が微生物活動に及ぼす影響、その結果が放射性炭素の移行パラメータに与える影響を明らかにするために、本年度は次の2点を実施した。

- ・ 水稲への ^{14}C 移行量に対する気温変化の影響

温度変化に伴う微生物活動の変化と ^{14}C の玄米への移行量の関係を統括的に評価するために、異なる温度条件で水稲を栽培し、土壌中の微生物活性、大気中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度、および収穫後した玄米中の ^{14}C 量を明らかにする。

- ・ 微生物活動を反映した ^{14}C の水稲移行モデルによる解析

水田における ^{14}C の動態をシミュレートするために、水稲内のモデルパラメータを対象とする不確実さ伝播解析を実施し、収穫した穂部内の ^{14}C 含量に影響を及ぼすモデルパラメータの重要度評価を行う。さらに、全モデルパラメータを対象に、設定根拠、結果への影響度および不確実さ幅について整理し、温度に影響される微生物活動の重要度を評価する。

引用文献

- Castro, H.F., Classen, A.T., Austin, E.E., Norby, R.J., Schadt, C.W., 2010. Soil microbial community responses to multiple experimental climate change drivers. *Applied and environmental microbiology* 76, 999-1007.
- Frölicher, T.L., Winton, M., Sarmiento, J.L., 2014. Continued global warming after CO₂ emissions stoppage. *Nature Climate Change* 4, 40-44.
- 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.
- JAEA (Japan Atomic Energy Agency), FEPC (The Federation of Electric Power Companies of Japan), 2007. Second progress report on research and development for TRU waste disposal in Japan Repository design - safety assessment and means of implementation in the generic phase-, JAEA-REVIEW-2007-010, FEPC TRU-TR2-2007-01.
- Schindlbacher, A., Rodler, A., Kuffner, M., Kitzler, B., Sessitsch, A., Zechmeister-Boltenstern, S., 2011. Experimental warming effects on the microbial community of a temperate mountain forest soil. *Soil biology & biochemistry* 43, 1417-1425.
- 核燃料サイクル開発機構, 1999. わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 -地層処分研究開発第2次取りまとめ-, JNC TN1400 99-020.
- 放射線医学総合研究所, 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.
- 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, 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.

3. 2. 水稻への¹⁴C 移行量に対する気温変化の影響

3.2.1. はじめに

放射化金属 TRU 廃棄物であるハルやエンドピースなどから発生する¹⁴C の化学形態は、酢酸、ギ酸、ホルムアルデヒド、メタノールなどの低級炭化水素化合物であることが知られている (Kaneko et al., 2003)。いずれの化合物に含まれる¹⁴C も、農耕地環境においてその大部分がガスとして大気中に放出されるため (放射線医学総合研究所 2013)、ガス化は¹⁴C の特徴的な環境挙動と言える。本事業は、微生物活動と¹⁴C のガス化との関係を踏まえ、ガス化を考慮した環境移行パラメータが導出可能か検討することを目的としている。昨年度は、¹⁴C ガス発生量に対する温度の効果について調査した。その結果、気温の上昇とともに¹⁴C ガス発生速度は速くなることが分かった。一方、総¹⁴C ガス発生量は 25°C から 30°C の範囲内であれば一定であることも分かった。本年度は異なる気温で水稻を栽培し、土壌の微生物活性、大気中の二酸化炭素と¹⁴CO₂ 濃度、および収穫後の玄米中の¹⁴C 濃度を明らかにし、温度変化に伴う微生物活動の変化と¹⁴C の玄米への移行量の関係について調査した。

3.2.2. 水稻栽培と水稻に関する測定項目

健全な水稻苗作りは、その後の栽培に影響する。そこで、以下の手順で苗を育てた：1) 良好な種子の選定、2) 消毒、3) 催芽および育苗、そして4) 植え付け。栽培品種は日本晴を用いた。まず種子の選定であるが、NaCl で比重 1.13 の塩水 (水: 100 mL, NaCl: 20.15 g) を作成し、この溶液に種籾を浸漬し、沈む種籾を良好な種子として選定した。選定した種籾は消毒のために 2 倍希釈次亜塩素酸ナトリウム溶液中で 15 分間浸漬攪拌した後、脱イオン水で 3 回洗浄した。そして、浸る程度の脱イオン水中で催芽を促し、ハト胸程度に出芽した種籾をホーネンス培土 1 号 (ホーネンス, 株式会社ホーネンアグリ) に移し育苗した。苗が 15 cm 程度に育ったところで植え付けを行った。植え付けは水道水で湛水した 1.5 kg のホーネンス入りワグネルポット (1/5000 アール) に行った。ワグネルポットは 14 ポット準備し、それぞれに苗を 10 本植え付けた。植え付けた苗であるが、栽培の途中で間引きし、最終的には、ポット当たり 3 本とした。

苗を植え付けたワグネルポットは 7 ポットずつに分け、一方の水稻を高温で、もう一方を低温で栽培した。栽培は気温と照明が管理できる気象室で行った。高温条件は千葉県、低温条件は北海道における水稻栽培期間の平均気温を参考に決定した。両栽培における気温 (最低, 最高, 平均) および明時間を表 3.2-1 に示す。栽培期間中の積算温度であるが、日平均気温を積算した。また、日平均気温は 1 時間毎の設定温度を積算し、24 で除した値として求めた。例えば、1 日の設定温度を 22°C で 14 時間、28°C で 10 時間と設定した場合、日平均温度は 24.5°C とした。

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何も遮るものがない条件下で、ワグネルポットの上端部において光合成有効放射量 (Photosynthetic Active Radiation) が約 600 μmol/m²/s であった。¹⁴CO₂ 取り込みトレーサ試験のために、栽培の途中、すなわち栄養生長期および登熟期において一部の水稻を¹⁴C ガスで曝露した。この曝露実験の詳細については次項で述べる。高温および低温条件で栽培した水稻の収穫は、それぞれ栽培開始から 180 日目と 201 日目に行った。

水稻の草丈は、栽培開始 64 日目から全ポットの水稻について測定した。本実験では、地際から最も高い葉の葉先までを草丈として測定した。

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。また、穂部に関しては¹⁴C 分析に供する前に試験用電動粃すり器 (TR-200, ケット科学研究所) を用いて、粃殻と玄米に分離した。

茎葉部、籾殻、および玄米試料は ^{14}C 分析のためにミキサー (LM-PLUS, 大阪ケミカル) で粉砕した。約 20 mg の粉砕試料はサンプルオキシダイザーで燃焼処理し、発生した $^{14}\text{CO}_2$ は 8 mL の炭素吸収剤で捕集し、10 mL のシンチレーションカクテルと混合し、これを液体シンチレーションカウンタ (Tri-Carb-25WTR Liquid Scintillation Analyzer) で測定する試料とした。

3.2.3. $^{14}\text{CO}_2$ 取り込みトレーサ試験

$^{14}\text{CO}_2$ 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、水稻の栄養生長期および登熟期において ^{14}C トレーサ実験を行った。高温栽培では栽培開始 99 日目から 101 日目までと 135 日目から 137 日目まで、低温栽培では栽培開始 106 日目から 108 日目までと 149 日目から 151 日目までの期間に行った。またこの実験期間中、気象器内を限りなく密封状態を保つため扉の開閉は行わなかった。この期間、給水も行えないため曝露期間は 3 日間とした。

水稻による ^{14}C の取り込みの主要経路は光合成による $^{14}\text{CO}_2$ ガスの取り込みであることから (Ishii et al., 2015), このトレーサ実験では水稻を $^{14}\text{CO}_2$ ガスで曝露し ^{14}C を取り込ませた。 $^{14}\text{CO}_2$ ガスを発生させるために、水稻栽培ポットとは別に 200 g のホーネンスを充填したポリプロピレン容器に準備し、そこに 120 mL の [1,2- ^{14}C]酢酸ナトリウム (^{14}C 標識酢酸) 溶液 (20 kBq/mL) を添加した。用いたホーネンスは昨年水稻を栽培した土壌であり、そこでは既に微生物が繁殖しており、微生物活動により ^{14}C 標識酢酸が分解され、その結果発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスで水稻を曝露した。

トレーサ実験の概略図を図 3.2-1 に示す。昨年度、実際の圃場で行った風向風速の調査において、水稻群落外と比較して群落内で風はほとんど吹いていないことを確認した (放射線医学総合研究所 2017)。 $^{14}\text{CO}_2$ ガス曝露期間においてこの風の動きを模擬するために、一部の水稻栽培ポットを気象器内に設置したビニールで囲った。この囲いは底面が 45 cm×45 cm、高さが 65 cm で、体積は約 0.13 m³であった。ビニール囲いは上部が開放されており、空気の交換は可能とした。囲いの高さは栄養生長期の水稻丈の約 3 分の 2 程度であり、葉先や穂部は囲いよりも上部にあった。高温環境および低温環境を模擬した気象器には水稻をそれぞれ 7 ポット準備し、栄養生長期に 3 ポット、登熟期には別の 3 ポットをビニール囲いの中に設置した。 $^{14}\text{CO}_2$ ガス源はこの囲いの中心に設置した。残りの 1 ポットはコントロールとし、栽培期間を通じて絶えずビニール囲いの外に設置した。具体的には、図 3.2-1 におけるポット 1 からポット 3 を栄養生長期においてビニール囲いの中に置き、3 日間 $^{14}\text{CO}_2$ ガスで曝露した。このとき、ポット 4 からポット 7 の水稻は気象器内で栽培を継続しており、 $^{14}\text{CO}_2$ ガスがビニール囲い上部から群落外へ拡散した場合、このガスを利用できる状態にあった。曝露後は囲いからポットを取り出し、他のポットと同様に気象器内で栽培を継続した。同様に、登熟期ではポット 4 からポット 6 をビニールで囲い、ポット 1 からポット 3、およびポット 7 は、同じ気象器内ではあるがビニール囲いの外で栽培を継続した。

$^{14}\text{CO}_2$ ガスによる曝露は 3 日間行った。曝露状況下における群落内、群落頂、および群落外の大気中 ^{14}C 量を明らかにするために、それぞれ気象器底面から 33 cm, 77 cm, および 146 cm の場所に採気管を設置し、気象器外からそれぞれの位置の大気が回収できるようにした。回収した気象器内のガスはテドラーバックに回収し、 ^{14}C 分析試料とした。ガスの回収は各日とも 9 時 30 分, 11 時 30 分, 16 時に行った。 $^{14}\text{CO}_2$ ガスを曝露する水稻はビニールで囲っているため、群落内の大気を回収すると群落外の大気を群落内に呼び込む可能性がある。そこで、各位置の大気の回収は群落外、群落頂、群落内の順で回収した。

初回のガス回収 (初日の 9 時 30 分に回収されたガス) は、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス源設置直後であった。曝露期間、照明の点灯は 10 時から 20 時まで行った。つまり、9 時 30 分のガス回収時は、気象器内は暗条件であり、11 時 30 分と 16 時のガス回収時は明条件であった。同様に気象器内における通常の CO_2 ガ

スの濃度変化はデータロガー（おんどとり TR-76Ui, 株式会社ティアンドデイ）を用いて連続的に測定した。この機器は気象器底面から 20 cm の群落内と 146 cm の群落外に設置した。

テドラーバッグに回収した気体に含まれる $^{14}\text{CO}_2$ は水酸化ナトリウム溶液で回収した。16 g の 1 mol/L NaOH 溶液を含むガス捕集ビンを 3 本連結し、これでテドラーバッグの気体を洗浄した。 $^{14}\text{CO}_2$ を捕集した NaOH 溶液は、Hionic-Fluor (PerkinElmer) と混合し、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。測定条件として、0-156 KeV 領域を 3 分間測定した。測定により得られた計数値 (dpm) から ^{14}C の濃度に換算した。

3.2.4. 水稻の生長と $^{14}\text{CO}_2$ 取り込みに対する気温の効果

3.2.4.1. 水稻の生長に対する気温の効果

高温および低温条件における積算温度を図 3.2-2 に、気温差を図 3.2-3 に示す。収穫時の日平均気温の積算温度は、高温条件において 3929°C、低温条件において 4062°C であった。低温条件で積算温度が高いのは、収穫までの日数が高温条件よりも長かったことが原因である。積算温度の差が最大となったのは高温条件における収穫日においてであり、この時、高温条件の積算温度は低温条件の積算温度より 326°C 高かった。水稻の収穫後は気温が積算されないため、気温差は小さくなり、最終的には低温条件での積算温度が高温条件の積算温度を上回った。

草丈の経時変化を図 3.2-4 に示す。高温条件と低温条件の気温差は水稻の生長にも影響した。草丈の測定を開始した 63 日目には既に 2.4 cm の有意な差 (t -test, $P < 0.05$) が生じており、この日までの積算気温差は 87°C であった。 $^{14}\text{CO}_2$ 取り込みトレーサ試験を開始した培養 99 日目と 106 日目には、それぞれ積算温度で 165°C と 184°C の差があった。草丈の差は 99 日目において 11.8 cm、106 日目において 17.3 cm であった。出穂は高温条件では培養 124 日目に確認でき、この日までの積算温度は 2611°C であった。一方、低温条件では培養 141 日目に確認でき、この日までの積算温度は 2752°C であった。以上の結果から、低温条件では出穂までの時間と共に積算温度も高温条件以上に必要であることが分かった。

3.2.4.2. 収穫量に対する気温の効果

収穫時における茎葉部と穂部の乾燥重量を表 3.2-2 に示す。いずれも高温と低温で有意な差が得られた。興味深いことに茎葉部の乾燥重量は、高温条件より低温条件で重くなることが分かった。一般に、冷害には不稔発生を引き起こす障害型冷害と屑米発生を引き起こす遅延型冷害がある (佐竹 1980)。幼穂分化期における冷害は遅延型冷害の一つであり、この時期の冷害は主稈葉数を増加させ出穂を遅延させることが報告されている (柴田ら 1973)。幼穂分化期は水稻にとって低温に対する感受性が高い時期であり、この時期における不稔発生の限界温度は 18°C~20°C とされている (農研機構 2018)。低温条件で栽培した水稻の幼穂分化期の気温は、1 日当たり 10 時間、18°C に設定していたために、茎葉部をより発育させ出穂およびその後の穂の発育を遅らせた可能性がある。

穂部の収穫量であるが、高温条件における収穫量は低温条件での収穫量の約 2 倍であったが、ポット当たり約 20 g と少なかった。収穫量が少なかった原因については不明である。少なくとも、高温条件における少ない収穫量は気温が影響していたとは考えにくい。高温条件において、栄養生長期以降の最低気温は 20°C であり、日平均気温は 24°C 以上であった。この気温は不稔が発生する温度ではなく、従って気温が原因で収量が低下したのではないと結論した。

3.2.4.3. $^{14}\text{CO}_2$ ガスの吸収

栄養生長期および登熟期にある水稻を $^{14}\text{CO}_2$ ガスで 3 日間曝露した。栄養生長期における水稻群落

内、群落頂、および群落外から回収した大気中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度を図 3.2-5 に示す。高温、低温条件とも、開始直後（1 日目 9 時 30 分）の群落内において曝露期間で最も高い濃度の ^{14}C が検出された。但し、この 1 日目の 9 時 30 分の試料については、 ^{14}C 源を設置してから大気回収まで約 20 分間のタイムラグが生じたことが原因で、最高濃度の ^{14}C が検出されたものと考えられる。 ^{14}C を曝露した水稻ポットはビニールで囲われており、群落内はほとんど風の流れが無い状態であり、また空気に対する CO_2 の比重は 1.529 と重いため、ビニールの囲内で発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは囲い内に蓄積されたはずである。しかしながら、同じ 9 時 30 分の時点において、群落頂や群落外でも群落内の ^{14}C 濃度の 1/5 倍および 1/10 倍の ^{14}C が検出されたということは、 ^{14}C 源から発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは拡散によって群落外へと移行した可能性を示唆している。

群落内の ^{14}C はその後急速に薄まり、当日の 11 時には高温条件で 2 Bq/L に、低温条件で 5.3 Bq/L になった（図 3.2-5）。気象器の照明はいずれの温度条件においても 10 時に点灯したことから、水稻の光合成により $^{14}\text{CO}_2$ ガスが吸収され、 ^{14}C 濃度が低下したと考えられる。一方、本実験では 20 時から翌日の 10 時まで消灯としたため、この期間、光合成により $^{14}\text{CO}_2$ ガスが水稻に吸収されることはない。このことは気象器内の CO_2 濃度の経時変化から明らかである（図 3.2-6）。高温、低温条件共に、照明が点灯された直後に CO_2 濃度が低下し、消灯と共に CO_2 濃度が高くなった。これは点灯により光合成が活発に行われ、消灯により光合成活性が抑制されたことを意味している。光合成が行われなければ、囲い内で発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは利用されることなく囲い内に蓄積されると予想されたが、最も増加が期待された群落内においてさえ、 ^{14}C の濃度は前日の 16 時に回収した気体中の ^{14}C 濃度を超えることは無かった。おそらく、拡散による ^{14}C の希釈が原因であろう。曝露 2 日目の 10 時までは群落内、群落外共に CO_2 濃度が点灯後の CO_2 濃度よりも高いことから、土壌微生物活動および水稻の呼吸活動は活発に行われたと考えられる。 ^{14}C 源としてホーネンスに添加した[1,2- ^{14}C]酢酸塩は、炭素源として利用しにくい有機化合物である（放射線医学総合研究所 2016）。従って、培養 2 日目には ^{14}C のガス化率が低下したために、曝露 2 日目以降において大気中の ^{14}C 濃度が低い状態を維持した可能性がある。

登熟期において水稻群落内、群落頂、および群落外から回収した気体中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度を図 3.2-7 に示す。曝露実験開始直後に栄養生長期で見られたような高い ^{14}C 濃度は観察されなかった。栄養生長期と登熟期の実験の違いは、水稻の生長段階と ^{14}C 曝露源設置から大気回収までのタイムラグのみで、 ^{14}C 源として使用した ^{14}C 標識酢酸溶液やこれを添加した土壌、光そして条件や温度条件は同じであった。特にタイムラグに関しては栄養生長期の実験では曝露源設置から大気回収まで約 20 分であったが、今回は約 5 分程度で回収を終えた。また、 ^{14}C 標識酢酸溶液添加土壌からの $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度については第 3.5.2 項で述べるが、設置から 1 時間以内に指数関数的に $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生した。これらのことから、大気回収における時間差が開始直後の群落内における ^{14}C ガス濃度に影響したと考えられる。

高温条件の気象器内では曝露期間を通じて、群落内、群落頂、群落外のいずれの位置から回収した気体からも ^{14}C はほとんど検出することはできなかった。この期間に ^{14}C 源から $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生していないとは考えられないので、水稻による吸収および拡散による希釈により、大気中の ^{14}C 濃度が低くなったと考えられる。一方、低温条件の気象器内では曝露期間を通じて絶えず ^{14}C が検出された。これは ^{14}C 源から $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生していたことを示す結果である。1 日目の 9 時 30 分と 3 日目の 11 時に回収した試料を除き、群落内で高く、群落頂や群落外で低い結果となった。低温のため、高温条件と比較すると $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量は少なかったと考えられるが、この様に ^{14}C が検出された結果は、低温条件では登熟期における光合成活性が高温条件よりも抑制されていた可能性を示唆している。

曝露期間における ^{14}C 濃度の変動は、環境が制御された気象器内ですら安定せず、時間と大気を回

収した場所に依存して変動した(図 3.2-5, 図 3.2-7)。光合成の影響を受けない消灯期間においても ^{14}C が検出できないことがあった。この結果は TRU 廃棄物地層処分場からガスとして ^{14}C が生物圏に移行したとしても、 ^{14}C の大気への放出量を正確に見積もることは難しいことを示唆している。一般の CO_2 は安定して測定できていることから(図 3.2-6)、 ^{14}C の場合、発生する $^{14}\text{CO}_2$ 量が大气中の CO_2 と比較して極めて微量であることが原因で安定した濃度が得られなかったのかもしれない。大气中の ^{14}C 濃度に対する植物体の ^{14}C 濃度の割合も大気を介した移行パラメータの一つであるが、大气中の ^{14}C 濃度が一定とならない以上、この割合を移行パラメータとして利用することは難しい。

3.2.4.4. 各部位の ^{14}C 濃度に対する曝露時期と気温の効果

収穫した水稻は ^{14}C を分析するために茎葉部、籾殻、玄米に分けた。各部位における ^{14}C 濃度を表 3.2-3 に示す。いずれの部位においても ^{14}C が検出された。ビニール囲い中で ^{14}C 曝露を行わなかったコントロールで検出されたことは、発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスがビニール囲い外へ拡散したことを意味している。特に玄米に関しては栄養生長期や登熟期に曝露した水稻玄米中の ^{14}C 濃度とほとんど差が無かった。低温条件ではむしろコントロールの玄米で ^{14}C 濃度が高くなる傾向がみられた。

収穫した玄米の炭素含量であるが、高温条件において $405 \pm 4 \text{ mg-C/g}$ -玄米、低温条件で $405 \pm 1 \text{ mg-C/g}$ -玄米と差は無かった。従って、温度差による ^{14}C 濃度の差は収穫した玄米の炭素含量の差で生じたのでは無く、低温条件において水稻がより多くの $^{14}\text{CO}_2$ を吸収したことを示唆している。

曝露時期が各部位中の ^{14}C 濃度に与える効果について検討した。有意な濃度差は高温条件で栽培した水稻の茎葉部でのみ確認された(図 3.2-8)。家畜の場合、水稻は茎葉部も含めて飼料とする。そのため、飼料として水稻を栽培する場合、曝露時期が家畜の ^{14}C 取り込み量に影響する可能性を示唆している。但し、食用の水稻と飼料用の水稻では品種が異なるため、より詳細な調査が必要である。

次に、気温が各部位中の ^{14}C 濃度に与える効果について検討した(図 3.2-9)。興味深いことに、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。長期的には地球の寒冷化が予想されており、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。低温条件で ^{14}C 濃度が高くなった原因についての考察は第 3.2.6 項で行う。

3.2.5. 土壤微生物の活性

3.2.5.1. 実験手順

水稻栽培条件での土壤微生物活性を明らかにするために、高温条件では培養開始 106 日目から 108 日目にかけて、低温条件では培養 113 日目から 115 日目にかけて、土壤微生物活性実験を行った。これらの期間の気温および明暗条件は、先に述べた栄養生長期における $^{14}\text{CO}_2$ 取り込みトレーサ試験と同じであった(表 3.2-1)。

土壤微生物活性は CO_2 と放射性の $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量を指標とした。 $^{14}\text{CO}_2$ 取り込みトレーサ試験と同じ ^{14}C 源(200 g ホーネンス + ^{14}C 標識酢酸溶液)を作成し、これをデシケータ内に密封した。デシケータ内における CO_2 と $^{14}\text{CO}_2$ ガスの発生源は、共に ^{14}C 標識酢酸溶液で湛水したホーネンスである。つまり、ホーネンスに含まれる有機物を土壤微生物が利用した結果発生したのが CO_2 で、ホーネンスに添加した ^{14}C 標識酢酸溶液を利用した結果発生したのが $^{14}\text{CO}_2$ である。

ホーネンスに添加した ^{14}C 標識酢酸溶液の初期濃度は高温条件の実験では 16 kBq/mL であったが、低温条件では 21 kBq/mL であった。そのため、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量は初期濃度に対する割合として表した。

CO_2 の濃度変化はデータロガー(おんどとり TR-76Ui, 株式会社ティアンドデイ)を用いて連続的に

測定・記録した。 $^{14}\text{CO}_2$ ガスは、デシケータの下流に16gの1mol/L NaOH溶液を含むガス捕集ビンを3本連結し、更にその下流から空気を100mL吸引することで回収した。吸引には気体採取器(GV-100, ガステック)を用いた。ガスの回収は各日の9時30分, 11時30分, 16時に開始し, それぞれ開始1時間後まで15分間隔で回収した。例えば, 9時30分に回収を開始した後, 9時45分, 10時, 10時15分, そして10時30分の計5回ガスを回収した。

3.2.5.2. デシケータ内の環境変化

気象器内に設置したデシケータ内の CO_2 濃度と気温の変化を図3.2-10に示す。デシケータは水稻栽培と同じ気象器に設置したため, 初期の CO_2 濃度は気象器内の CO_2 濃度が反映される。初回の測定値は高温条件において416ppm, 低温条件では460ppmと低温で CO_2 濃度が高かった。デシケータ内はガスを採取する時を除き完全密封されているため, CO_2 濃度は実験終了時まで上昇し続けた。この CO_2 濃度の上昇傾向は, 少なくとも実験期間中, 上昇する CO_2 分圧がデシケータ内に設置した ^{14}C 源からの $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生を抑制するものでは無いことを意味している。実験開始から約34時間後に, 両気温条件の CO_2 濃度はほぼ同じ値となり, 最大値は高温, 低温条件それぞれ638ppmと644ppmであった。

CO_2 濃度の上昇は気温とも関連していた。特に高温条件では明確に気温の上昇と共に CO_2 濃度が上昇した。例えば, 22.5°C前後を維持していた14時間目から22.5時間目にかけて, CO_2 濃度の上昇割合は2.4ppm/hであったが, 31.8°C前後を維持していた26時間目から31時間目までの CO_2 濃度の上昇割合は7.0ppm/hであった。つまり, 本実験環境では1°C当たり, 1時間当たり約0.5ppmの CO_2 発生が促進される事が分かった。 $^{14}\text{CO}_2$ ガスも気温の上昇と共に発生量が増大したと考えられる。

デシケータ内の温度変化であるが, 必ずしも気象器の設定温度とは一致しなかった。高温条件における気象器の設定温度は, 最低温度が20°Cで最高温度が28°Cであった。一方, デシケータ内の最低温度と最高温度は22.3°Cと32.7°Cであった。同じく低温条件における気象器の設定温度は, 最低温度が18°Cで最高温度が25°Cであった。一方, デシケータ内の最低温度と最高温度は12.9°Cと28.5°Cであった。気象器内の温度は高さ約140cmの位置における気温を基準として温度コントロールが行われている。また, 気象室内の気体は下から上に循環するため, 気象器内のエアコンの冷気は下から吹き出す仕組みとなっている。デシケータは気象器の床に直接設置したため, 特に低温条件では下から吹き上げる冷気にデシケータが直接曝される頻度が高く, 気象器で設定した温度よりも低い温度となったと考えられる。

3.2.5.3. $^{14}\text{CO}_2$ ガスの放出

このデシケータ内に ^{14}C 源を設置し, 1日3回, 各1時間, 経時的に $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量を測定した。初期の ^{14}C 量(Q_0)に対し t 時間後にデシケータ内で測定された ^{14}C ガス量(Q_t)の比(Q_t/Q_0 , 放出比)を図3.2-11に示す。放出速度は高温条件で速いものの, どちらの温度条件においても ^{14}C 源の設置直後から $^{14}\text{CO}_2$ ガスが放出され, 1440時間以降, この放出比には変化が見られなくなった。この結果から, ^{14}C 源設置の翌日以降, $^{14}\text{CO}_2$ ガスはほとんど放出されないことが分かった。また, 1440時間以降の放出比は高温と低温条件においてそれぞれ 6.1×10^{-2} と 6.4×10^{-2} とほとんど差が無かった。従って, 気温は放出比に影響しないことが確認できた。先に述べたように, デシケータは水稻栽培行っている気象器内で実施したにもかかわらず, デシケータ内の結果は必ずしも気象器内設置した ^{14}C 源からの $^{14}\text{CO}_2$ ガス放出を模擬するものでは無いかもしれない。しかしながら, 放出の傾向は類似していると考えられるので, 気象器内の水稻が光合成により吸収したのは, ^{14}C 源設置直後から1440時間までに発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスと考えられる。

$^{14}\text{CO}_2$ ガスの放出とデシケータ内の CO_2 濃度変化との関係であるが、これらは一致した変動を示さなかった。 $^{14}\text{CO}_2$ は 1440 時間以降ほとんど放出されないが、 CO_2 は実験期間中放出され続けた。この結果は細菌の炭素資化性が影響しているのかもしれない。先にも述べたように、 CO_2 分圧の上昇が $^{14}\text{CO}_2$ ガスの放出を抑制したとは考えにくい。興味深いことに、デシケータ内の CO_2 濃度は実験直後に上昇するが、高温条件では実験開始 1 時間後に、低温条件では 3 時間後に一度低下する。そして、その後再び濃度が上昇し始める。本実験では、 ^{14}C 源作成において風乾したホーネンスを用いた。このような状態の土壤に存在していた土壤微生物は、おそらく休眠状態であったと考えられる。そこに水分が供給されれば、休眠状態を打破するために微生物は急速に供給された水分を細胞内に取り込み活動を開始し始める。この水分の取り込みと同時に ^{14}C 標識酢酸分子も細胞内に取り込むために、実験開始直後から $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生したと考えられる。一旦休眠が打破されると、細胞は通常の代謝活動を行い、そこで細胞内に取り込む炭素源を選別するようになるのでは無いかと考えた。土壤に存在する他の炭素源と比較して利用しにくい酢酸は、この選別により利用されなくなり、1440 時間目以降ほとんど発生しなくなったと考えられる。休眠の打破により一度は呼吸活性が落ちつき、 CO_2 濃度の上昇も落ち着くのだが、生きるために呼吸をしなければならず、また細胞の増殖などの影響もあり CO_2 濃度がふたたび上昇し続けたと考える。この仮説を証明するにはさらなる検証が必要である。

3.2.6. 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

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、気象器内で水稻を栽培し、 $^{14}\text{CO}_2$ 取り込み実験と同じ気象器内で同時に微生物活性測定のためのデシケータ試験を行った。

水稻は気温と照明が制御された気象器内で栽培した。水稻栽培と同時に、この気象器内にデシケータを設置し、その中で CO_2 の濃度経時変化および $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量を指標とし、微生物活動を評価した。 CO_2 の発生量から、本実験の条件では 1°C 温度が上昇すると 1 時間当たり CO_2 濃度が約 0.5 ppm 増加することが分かった。この傾向は実験期間中続いた。 CO_2 の発生は微生物の呼吸活動の結果であり、気温の上昇が微生物活動を活発化させていることを意味している。この様に、微生物が活発に活動しているにもかかわらず、 ^{14}C 源から放出された $^{14}\text{CO}_2$ は実験開始 24 時間目以降、顕著な発生が確認できなくなった。また、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量は気温条件にかかわらず、初期 ^{14}C 量の約 6% であった。

水稻を栽培した気象器内の CO_2 濃度は光の点灯により減少し、消灯により増加した。また、その濃度変化は高温条件下で顕著であった (図 3.2-6)。低温条件では微生物活動による CO_2 の発生も抑制されるにもかかわらず、高温条件よりも CO_2 濃度が高い傾向にあった。低温環境において光合成活性が低下することは既に知られているので (Yamori et al., 2005)、この結果は、低温条件において CO_2 発生の抑制以上に光合成活性が抑制されるか、あるいは CO_2 の大気拡散が抑制された可能性を示唆している。

収穫した水稻からは、いずれの部位からも ^{14}C が検出された。 ^{14}C 曝露源から絶えずビニール囲いを隔てていたコントロールの水稻からも同様に ^{14}C が検出された (表 3.2-3)。この結果から、囲い内で発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは、開放されていた上部から群落外へと拡散したことを意味している。

高温条件で栽培した水稻の場合、曝露時期 (栄養生長期および登熟期) にかかわらず、コントロール水稻を含め玄米中の ^{14}C 濃度に差が無いことが分かった。一方、低温条件で栽培した場合、玄米中の ^{14}C 濃度は栄養生長期曝露水稻 < 登熟期曝露水稻 < コントロール水稻の順で高くなることが分かった。以上の結果より、曝露時期の影響は低温条件において顕著であることが分かった。

温度条件の違いによる ^{14}C 濃度を比較したところ、曝露時期に関係なく高温条件より低温条件で玄米中の ^{14}C 濃度が高くなることが分かった。この結果は、光合成による $^{14}\text{CO}_2$ 吸収速度と群落内から

群落頂近傍大気（群落頂周辺環境で光合成による CO₂ の取り込みが及ぶ範囲）への ¹⁴C₂O₂ 拡散速度で説明できる（図 3.2-12）。前述のように、本調査の条件下では気温条件により ¹⁴C₂O₂ 発生量は影響を受けない。一方、光合成活性は低温条件下で抑制されるため、群落内には ¹⁴C₂O₂ が蓄積されやすいと推察される。さらに、高温条件と比較すればガス拡散速度も遅く、より多くの ¹⁴C₂O₂ が群落頂近傍大気に存在する状況が形成されやすい。実際、低温条件では高温条件よりも群落外で多くの ¹⁴C₂O₂ ガスが検出された（図 3.2-7）。この様に、高温条件と比較して低温条件では光が直接当たる群落頂において ¹⁴C₂O₂ が存在しやすい状況となりやすいために、穂部の ¹⁴C 濃度が高くなったと考えられる。

地球環境の寒冷化が進み低温条件で水稻が栽培されるならば、現状よりも多くの ¹⁴C が玄米中に取り込まれる可能性がある。しかしながら、実際の圃場では ¹⁴C₂O₂ ガスの拡散が風速等の微気象条件に影響されること、玄米中の ¹⁴C 濃度が高くなる温度の閾値や、大気中の CO₂ に対する ¹⁴C₂O₂ ガスの比率効果など、不明な点も多くある。また、ここで示した考えは ¹⁴C の化学形態、水稻の品種や土壌有機物の種類、微生物活性などにも影響されるので、より多くの科学的根拠を蓄積し判断する必要がある。

デシケータ試験の結果から、本試験条件では ¹⁴C 源から放出された ¹⁴C₂O₂ は初期 ¹⁴C 量に対して放出比 6.0×10^{-2} で放出されることが分かった。またこの放出比は温度に影響されないことも分かった。水稻栽培試験とデシケータ試験の ¹⁴C 源は同じ材料を用いて同じ手順で作成されたことより、放出比も両実験間で差は無いと考えられる。そこで、気象器内で発生した ¹⁴C₂O₂ 量と玄米中の ¹⁴C 量から大気-玄米間移行係数を求めた。気象器内に設置した ¹⁴C 源（2 MBq）から放出比 6.0×10^{-2} で ¹⁴C₂O₂ が放出されたとすると、気象器内に 120 kBq の ¹⁴C₂O₂ ガスが放出されたと試算された。気象器の空間体積（幅 1.4 m × 奥 1.9 m × 高 2 m, 機械室含む）は約 5.3 m³ なので、もし発生した ¹⁴C₂O₂ 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/m³ となる。玄米中の ¹⁴C 濃度は 24.3 Bq/g-dry から 136.6 Bq/g-dry なので（表 3.2-3）、立方メートル当たりの ¹⁴C 濃度に対する玄米中の ¹⁴C 濃度の割合は 1.0 m³/kg-dry から 6.0 m³/kg-dry と見積もられた。

3.2.7. まとめ

温度変化に伴う微生物活動の変化と ¹⁴C の玄米への移行量の関係を明らかにするために、異なる気温で水稻を栽培し、土壌微生物の活性、周辺環境の CO₂ 濃度変化、水稻の茎葉部、籾殻、そして玄米に取り込まれた ¹⁴C 量について調査した。その結果、高温条件では微生物活動が活発となり ¹⁴C₂O₂ 発生速度は速くなるが、¹⁴C 初期添加量に対する ¹⁴C₂O₂ ガスの総発生量は気温に影響されないことが分かった。また、玄米中の ¹⁴C 濃度は低温条件において高くなることが分かった。温度条件により、玄米の収穫量は減少したが、炭素含量には差が認められなかった。従って、玄米中の炭素含量が ¹⁴C 濃度に影響したのではなく、¹⁴C₂O₂ がより多く水稻に吸収された結果と言える。その要因としては、低温条件において高温条件と同量程度の ¹⁴C₂O₂ ガスが発生し、かつガス拡散速度が緩やかなために、光合成が活発に行われる群落頂付近で ¹⁴C₂O₂ 濃度が高くなったことが考えられた（図 3.2-12）。以上のことから、微生物活動は ¹⁴C 源を ¹⁴C₂O₂ ガスに変換することにおいて極めて重要な役割を果たし、土壌から発生した ¹⁴C₂O₂ ガスが光合成の影響が及ぶ範囲に留まる時間が、玄米中 ¹⁴C 濃度に影響すると考えられた。

引用文献

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.
- 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.
- Kaneko, S., Tanabe, H., Sasoh, M., Takahashi, R., Shibano, T., Tateyama, S., 2003. A study on the chemical forms and migration behavior of Carbon-14 leached from the simulated hull waste in the underground condition. *Materials Research Society Proceedings* 757, II3.8.1.
- Yamori, W., Noguchi, K., Terashima, I., 2005. Temperature acclimation of photosynthesis in spinach leaves: analyses of photosynthetic components and temperature dependencies of photosynthetic partial reactions. *Plant, Cell & Environment* 28, 536-547.
- 佐竹徹夫, 1980. イネ冷害の機構と栽培的対策. *農業気象* 35, 251-261.
- 柴田 和博, 佐々木 一男., 島崎 佳郎, 1973. 時期別の気温・水温処理が水稲の生育に及ぼす影響 : 第 2 報 昼夜別気温・水温および処理日数と出穂期との関係. *日本作物學會紀事* 42, 267-274.
- 農業・食品産業技術総合研究機構, 2018. 図説 : 東北の稲作と冷害 低温に弱い稲の生育ステージ. <http://www.reigai.affrc.go.jp/zusetu/panforst.html>.
- 放射線医学総合研究所, 2013. 平成 24 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 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, 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, 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.

3. 3. ^{14}C のガス化に対する統括的指標

3.3.1. はじめに

水稻による ^{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。ガス化を考慮した移行パラメータが設定できれば、より精度の高い安全評価が実施できる可能性が高まる。本節では ^{14}C のガス化を考慮した統括的指標について報告する。

3.3.2. 物理化学生物学的特徴による統括的指標の試み

ガス化を考慮したパラメータとは、例えば近傍大気中の ^{14}C 濃度に対する玄米中の ^{14}C 濃度比である。しかしながら、近傍大気中の ^{14}C 濃度は光合成や風、降雨といった自然環境条件により短期間で激しく変動することが予想される。特に風は瞬間的に ^{14}C 濃度を変化させてしまう可能性があることから、これをパラメータの分母として利用するには問題がある。この問題を解決するためには、近傍大気中の ^{14}C 濃度を、より変動が少ない別の指標で置き換える必要がある。

近傍大気中の ^{14}C 濃度は、 ^{14}C ガス発生量と光合成による炭酸ガスの消費および環境大気とのガス交換による希釈のバランスで決まる。ここでいう近傍大気とは光合成の影響を受ける大気で、環境大気はそれ以外の大気を意味する。先に述べたように、近傍大気の ^{14}C 濃度に対する消費や希釈の効果は大きく、これらは ^{14}C 濃度変動の主要因である。そこで、消費や希釈に影響されない ^{14}C ガス発生量が ^{14}C 濃度に変わる指標となり得るのではないかと考えた。また、 ^{14}C のガス化は主に微生物が担っているため (Ishii et al., 2015)、微生物活動もまた ^{14}C 濃度に変わる指標となり得る可能性がある。微生物活動も気温、酸化還元電位、pH などの環境条件に反応するが、瞬間的な反応ではないため、ガス化を考慮したパラメータの分母となり得る。むしろ、微生物活動はこれら環境条件を統括した指標となり得ることが期待される。

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)、およびバイオマス (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。

3.3.2.1. 解析データと解析方法

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。各項目の測定方法については、過去の報告書を参考にされたい (放射線医学総合研究所 2015, 2016)。 ^{14}C ガス化率についても過去に行った試験結果を利用した (放射線医学総合研究所 2015)。試験手順を簡単に述べる。日本全国各地より採取した 63 の水田土壌試料を脱イオン水で湛水し、7 日間、 25°C で培養した後、 $[1,2-^{14}\text{C}]$ 酢酸ナトリウムを添加した。1 時間培養後、発生した $^{14}\text{CO}_2$ を水酸化ナトリウム溶液に捕集し、これに含まれる ^{14}C を液体シンチレーションカウンタ (Tri-Carb 2100TR, PerkinElmer JapanCo., Ltd.) で測定した。

解析に用いたデータを、表 3.3-1 に示す。解析に用いた項目は、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との差を標準偏差で除すことにより、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。標準化した値を表 3.3-2 に示す。これらの値を用いて、¹⁴C 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。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 ¹⁴C ガス化率の重回帰分析を行った。標準化の計算は Excel で行い、単回帰分析、重回帰分析、および AIC の計算は R version 3.3.1 for windows を用いた。

3.3.2.2. 単回帰分析および重回帰分析の結果

¹⁴C ガス化率と物理化学生物学的特徴データの単相関係数を表 3.3-3 に示す。¹⁴C 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無かった。

次に、物理化学生物学的特徴を説明変数とし ¹⁴C ガス化率について重回帰分析を行った。これらの説明変数の中から重回帰分析に用いる変数を選択するために、赤池情報量基準 (AIC) を用いた。変数減少法によるステップワイズ法で AIC 値が最も小さくなる変数を選択した。除いた項目と AIC の関係を表 3.3-4 に示す。すべての項目を説明変数とした場合、AIC は 3.85 で、含水率から粘土までの項目を除くことで AIC は最小 (-12.34) となった。この結果から、説明変数として、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が確認できた。これらの説明変数による重回帰式は以下の通りである：

$$\begin{aligned} {}^{14}\text{C ガス化率} = & \text{ATP 量} + \text{粗粒砂の割合} + \text{細粒砂の割合} + \text{シルトの割合} \\ & + \text{pH} + \text{活性 Al} + \text{活性 Fe} + \text{切片} \quad (\text{式 3.3-1}) \end{aligned}$$

各説明変数の係数値、標準誤差、*t* 値および *p* 値を表 3.3-5 に示す。この重回帰分析における決定係数は 0.2695 であり、*p* 値は <0.001 であった。つまり、この回帰式は有意ではあるが、¹⁴C 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 ¹⁴C ガス化率の統括的指標として適さないと結論された。

3.3.3. 麦芽糖由来の ¹⁴C のガス化率と微生物呼吸活性の関係

上述の水田土壌を用いた試験において、トレーサとして添加した ¹⁴C の化学形態は酢酸であった。酢酸は比較的に利用しにくい有機物であり (放射線医学総合研究所 2016)、この利用のしにくさが ¹⁴C のガス化率と土壌微生物の呼吸活性との関係を不明瞭にしている可能性がある。つまり、利用しやすい有機物を分解することで微生物の呼吸活性は増加するが、¹⁴C を含む酢酸は利用されにくいために、呼吸活性の増加ほどには ¹⁴C のガス化が進まなかったのではないかと考えられる。そこで、水田土壌微生物に最もよく利用される麦芽糖を用いて、¹⁴C のガス化と微生物呼吸活性との関係について調査した。

土壌には様々な形態の有機物が存在している。微生物は利用しやすい有機物から順に利用すると仮定すると、もし、土壌中に利用しやすい有機物が多量にあり、一方 ¹⁴C が微生物にとって利用しにくい化学形態であったならば、呼吸活性は高いものの ¹⁴C ガス発生率は低くなると予想される。この様な理由のために、土壌呼吸活性と ¹⁴C のガス化率の間に相関関係が認められなかったのかもしれない。本項では、土壌微生物が利用しやすい有機物と ¹⁴C ガス化率の関係を用いて統括指標を示すことが可能か検討を行った結果について報告する。

3.3.3.1. 水田土壌の特性

平成 14 年度から平成 18 年度にかけて本事業で採取された 63 水田土壌から 15 水田土壌を選定し、水田土壌微生物群による炭素資化性データを収集した。第 2.3.2 項で述べたように、この水田土壌は採取してから 10 年以上経過しているが、 K_d 値から判断して、その土壌特性は大きく変化していないと判断した。選定した水田土壌の地域別および土壌タイプ別一覧を表 3.3-6 に示す。選定基準については平成 27 年度の報告書（放射線医学総合研究所 2016）を参照されたい。

岩石など土の元となる材料（母材）が礫、砂利、砂、シルト、そして粘土と風化し、さらには腐植などの生物的作用も関与して土壌ができる。この風化作用により生じた砂、シルト、および粘土の土壌中での割合により土性が決まり、土性の分類は土性三角図が用いられる。そこで、選定 15 土壌の土性の違いを視覚的に表すため、それぞれの土壌に含まれる砂、シルト、および粘土の割合を土性三角図にプロットした（図 3.3-1）。この図から明らかなように、選定土壌はローム、粘土質ローム、砂質粘土ローム、および砂質ロームのいずれかに分類されることが確認できた。

3.3.3.2. 呼吸活性および $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率

呼吸活性は本事業において 2015 年に開発した方法を用いた（放射線医学総合研究所 2015）。手順を以下に示す。

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

ここで使用した略語は以下の通りである：

INT：2-(4-Iodophenyl)-3-(4-nitrophenyl)-5-phenyl-2H-tetrazolium chloride

DMF: N,N-dimethylformamide

この測定によって得られた吸光度から形成された INT-フォルマザンの定量を行うために検量線を作成した。市販の INT-フォルマザン（ICN-Biomedicals Inc.）を 15% DMF in エタノールで希釈し、各濃度と吸光度の関係から検量線を作成した。この検量線は用事調整した。

次に $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率の測定方法について述べる。呼吸活性の結果と比較するために、土壌呼吸活性測定で使用した土壌と同じ土壌を使用した。以下に試験手順を示す。

- 1) 0.5 g 乾燥土壌 + 500 μL 超純水 in 50 mL 容ガスクロ用バイアル
- 2) 培養（25°C, 暗条件, 7 日間）
- 3) 125 μL ^{14}C 標識麦芽糖溶液（約 2.5 kBq）添加

- 4) 25°C, 1 時間培養
- 5) 1 時間の培養期間中に発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスを 16 mL 1N NaOH × 3 連で捕集
- 6) その NaOH を液体シンチレーションカクテルと混合
- 7) 液体シンチレーションカウンタによる ^{14}C 測定

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

3.3.3.3. 土壤呼吸活性と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率との関係

土壤呼吸活性と麦芽糖由来の $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率の関係を図 3.3-2 に示す。有機物は生物の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が湛水土壤試料に添加された INT を還元し INT-フォルマザンを形成する。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、土壤呼吸活性から ^{14}C ガス化率を見積ることが可能であり、統括的指標となり得るのではないかと期待した。しかしながら、土壤呼吸活性と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率の間に明確な相関関係は認められず、 ^{14}C 標識麦芽糖の分解も統括的指標に適さないことが分かった。

^{14}C のガス化に微生物が関与することは明らかであり (Ishii et al., 2015), 麦芽糖が水田土壤微生物にとって利用しやすい有機炭素であることも報告されている (放射線医学総合研究所 2016)。それにもかかわらず土壤呼吸活性と $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率の間に相関関係が得られなかったのは、 ^{14}C で標識された以外の有機物も土壤呼吸に関与していることを示唆している。つまり、水田微生物は特定の有機物だけを利用しているのではなく、様々な有機物を利用し生活していることを意味する。また、炭素はあらゆる生物にとって必須元素であるため、 ^{14}C は生物圏において様々な化学形態へと変化することが推測されるので、今後 ^{14}C ガス化の統括的指標を考える場合、微生物による様々な有機物の利用を考慮し検討する必要がある。

3.3.4. まとめ

^{14}C のガス化を考慮した移行パラメータを提案するために、微生物活動と ^{14}C ガス化率の関係について検討した。昨年度までの本事業において、土壤呼吸活性および土壤微生物のバイオマスと ^{14}C のガス化率の間に明確な関係性が見いだせないことを確認した。そこで、本年度は土壤微生物の活動に影響する土壤特性も加味した物理化学生物学的特徴から、 ^{14}C ガス化率の指標を示すことが可能か検討した。AIC により最適モデルパラメータを選定し重回帰分析を行ったが、それらの選定されたパラメータでは ^{14}C ガス化率の約 30%程度しか説明できないことが分かった。

これまで ^{14}C のガス化は ^{14}C 標識酢酸をトレーサとした試験で得られた値を用い、微生物活動との関係について検討されてきた。一方で、酢酸は水田土壤微生物にとって決して利用しやすい有機物でないことも分かっている。そこで、これら水田土壤微生物が利用しやすい有機物を用い、微生物の呼吸活性と ^{14}C のガス化との関係についても検討した。しかしながら、こちらの検討においても微生物活動と ^{14}C のガス化との間に明確な関係性は見いだせなかった。

以上の結果は、水田微生物が様々な有機物を利用している可能性を示唆している。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物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様々な化学形態の炭素が ^{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。

引用文献

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.

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.

3. 4. 微生物活動を反映した ^{14}C の水稻移行モデルの構築

3.4.1. はじめに

TRU 廃棄物から放出される可能性のある有機態 ^{14}C を対象に、日本の特徴である水田生態系における ^{14}C の動態および水稻による ^{14}C 取り込みに対する重要因子を明らかにする目的で、水稻移行モデル（水稻全体モデル）を構築してきた。これまで構築した水稻全体モデルを図 3.4-1 に示す。本事業におけるこれまでの調査から、TRU 廃棄物由来の有機態 ^{14}C は、その多くが炭酸ガスとして土壌から近傍大気へ放出され、 ^{14}C -炭酸ガスの一部が光合成により農作物に取り込まれることが分かってきた（Ishii et al., 2015）。さらに、収穫後の水稻穂部の ^{14}C 含量は近傍大気から環境大気への ^{14}C 移行半減期に強く影響されることも分かってきた（放射線医学総合研究所 2017）。一方、水稻内モデルパラメータの重要度や刈り株のすき込み等を考慮しなければならない多年解析については十分な検討が行われておらず、課題として残っている。本年度はこの2つの課題、水稻内モデルパラメータの重要度評価および多年解析について取り組んだ。

本節では、収穫した穂部の ^{14}C 量に対する水稻内モデルパラメータの影響度合いを把握するために行った不確実さ伝播解析の結果、および水稻内モデルパラメータと環境移行パラメータを合わせた不確実さ伝播解析の結果について報告する。さらに、多年解析の結果についても報告する。最後に構築した水稻全体モデルの構造、移行式、パラメータについて整理し、このモデルの適応範囲を述べる。

3.4.2. 水稻内部コンパートメントモデルにおける不確実さ伝播解析

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おり、さらに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（図 3.4-1）。昨年度までは主に環境コンパートメントに関連するパラメータの精緻化により、水稻穂部における ^{14}C 含量の評価精度の向上を図ってきた。水稻に取り込まれた ^{14}C の一部は同化され、一部は呼吸により本体から大気へ放出される。同化の割合および呼吸による放出割合は、水稻穂部への ^{14}C 蓄積に直接関わりがあり、且つこれらの割合は水稻の生長に依存して変化すると考えられる。従って、 ^{14}C 蓄積量に対する水稻内部コンパートメントモデルの影響度評価も環境コンパートメントモデルと同様に重要である。そこで、本年度は水稻内部コンパートメントモデルを対象に水稻穂部における ^{14}C 蓄積に対する各パラメータの重要度評価を試みた。

^{14}C 蓄積の蓄積に対する各パラメータの影響度合いを把握するには、対象とする複数のモデルパラメータを不確実さ幅内でランダムにサンプリングしたパラメータセットを水稻全体モデルの入力データとして与えて解析を実施する不確実さ伝播解析が有用である。そこで、水稻内部コンパートメントモデルパラメータの重要度評価は不確実さ伝播解析により行った。

3.4.2.1. 水稻内部コンパートメントモデルの入力データ

不確実さ伝播解析は、次の4つのステップを経て行った：1) 入力データの作成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決定。

入力データは、水稻内部コンパートメント間の ^{14}C 移行パラメータ値を不確実さ幅内でランダムにサンプリングすることで作成した。対象とするモデルパラメータを表 3.4-1 に、各パラメータ間の関係を図 3.4-2 に示す。各パラメータ値の不確実さ幅であるが、以下の手順で決定した。

No. 1 CO₂の近傍大気からの吸収割合

炭素安定同位体自然存在比を利用した試験において、水稻による土壌起源炭素吸収率は最大1.6%と推定されている(田上ら, 2009)。そこで、経根吸収による炭素取り込み寄与を0.016とし、CO₂の近傍大気からの吸収割合として0.95~1.0の幅を与え、基準を0.984とした。

No. 2 吸収したCO₂に対する茎葉部の成長呼吸の割合

生長呼吸や維持呼吸は直接測定することができないため、理論的および経験的知見に基づき決定することとした。大崎と田中(1979)は、水稻に対して¹⁴CO₂の曝露試験を行い、光合成産物の各器官への分配割合の量的関係を調査した。その結果、光合成産物を基質とする呼吸の割合は茎葉部において8%~34%の範囲で変動し、この割合は水稻の生長と共に減少すると報告している。検討の結果、水稻全体モデルでは全期間一定の割合で呼吸するとし、値として0.25を設定した。変動幅は基準値を中央値とし、0.15~0.35とした。

No. 3 吸収したCO₂に対する穂部の成長呼吸の割合

茎葉部の生長呼吸の割合と同様に、大崎と田中(1979)の試験結果を基に水稻全体モデルでは穂部の成長呼吸の割合を0.15とした。また、出穂後の生長呼吸の割合は7%~20%であることから、変動幅は0.07~0.2とした。

No. 4 & 5 吸収したCO₂に対する茎葉部の維持呼吸の割合

No. 6 & 7 吸収したCO₂に対する穂部の維持呼吸の割合

水稻全体モデルにおいて茎葉部および穂部における維持呼吸はいずれもそれぞれ別のパラメータとしている。さらに、維持呼吸は生育段階において異なることが報告されていることから(山口ら 1975, 大崎と田中 1979)、維持呼吸の割合は乳熟期(120日目)を堺に独立したパラメータとして設定している。つまり、吸収したCO₂に対する茎葉部および穂部の維持呼吸の割合は、4つの独立したパラメータから構成されている。この4つのパラメータ間の関係が不明であることから、基準値および変動幅の設定条件は全て同一に扱った。

維持呼吸は実測できないため、様々な方法で推定されている。山口と田中(1970)はイネ科植物であるトウモロコシを暗条件下で栽培し、そのときの呼吸活性から維持呼吸速度が14~21 mg-CH₂O g⁻¹ day⁻¹であると推定した。一方、大崎と田中(1979)はイネに対する¹⁴CO₂の曝露試験の結果から、植物体の維持呼吸速度が2.3~6.1 mg-乾物 g⁻¹ day⁻¹であることを報告している。呼吸速度の単位がこの2つの報告で異なるが、大崎と田中(1979)は[乾物]×0.9≈CH₂Oであると報告している。以上の結果から、水稻の維持呼吸速度はおおよそ2.3~21 mg-CH₂O g⁻¹ day⁻¹と推定される。そこで上述の4つのパラメータに関して、維持呼吸の割合の変動幅は0.0023~0.021とし、基準値を0.01とした。

No. 8, 9, 10, 11 穂部への光合成産物の直接供給割合

出穂後、光合成産物は茎葉部と穂部に分配される。光合成産物が十分である場合、穂部へ供給される炭素の全てがその次点の光合成産物でまかなわれるが、供給が不足すると茎葉部からの転流により炭素の供給が補われる。つまり、光合成産物の分配割合は時間経過と共に変化する。大崎と田中(1979)は実験データを基にこの光合成産物の分配割合を模式図化した。水稻全体モデルでは、この模式図を関数で表現するためにWeibull分布の確立密度関数を適応し、これを γ 係数とした。 γ 係数を構成するパラメータA, B, Cおよびdについては、EMRAS Potato シナリオ

(EMRAS Tritium/C14 Working Group, 2008) を用いてトレース解析を行い、その結果得られた値を水稻全体モデルの基準値として設定している (表 3.4-1)。図 3.4-3 に EMRAS Potato シナリオから算出した γ 係数のフィッティング結果を示す。

γ 係数の各パラメータ値は互いに連動しているため、パラメータ値に具体的な数値を与え、トライアンドエラーを繰り返し、その変動幅を決定した。まずパラメータ A であるが、これは γ 係数がとる最小値の時期に影響するパラメータであり、値を大きくすると γ 係数の最小値が収穫期から離れる。パラメータ A の値を基準値以下とすると γ 係数の収穫直前の状態を模擬できなくなるため、数値を大きくする方向のみ検討した。結果を図 3.4-4 に示す。パラメータ A の値を大きくすることにより、 γ 係数の最小値が 0 に近づくことが分かった。A=3 の時、他のパラメータを変更することにより γ 係数が負の値を取る可能性があることから、パラメータ A の上限値を 2.0 とし、下限値を基準値 (1.02) とする変動幅を与えた。

パラメータ B の結果を図 3.4-4 に示す。これは γ 係数の最小値に影響する。 γ 係数が負とならない値 0.75 を上限値とし、基準値 (0.6) を中央値と考え、下限値を 0.45 とする変動幅を与えた。

パラメータ d は茎葉部から穂部への転流にかかわる係数である。例えば、d=0 の時、パラメータ A, B, および C の関与が無ければ穂部への転流が無いことを意味する。パラメータ d を 0 から 0.1 に変更した場合の結果を図 3.4-4 に示す。基準値 (0.04) を考慮し、上限値を 0.1、下限値を 0 とする変動幅を与えた。

パラメータ C の結果を図 3.4-4 に示す。このパラメータもパラメータ B と同様に γ 係数の最小値に影響することが分かった。そのため、B と C 両パラメータを同時に変動させると γ 係数が負の値と成る可能性があることから、パラメータ C は不確実さ伝播解析の対象から外し基準値 (0.45) のみとした。

不確実さ伝播解析を行うに当たり、変動幅内の範囲でデータをランダムにサンプリングする必要がある。また、どのような確率分布でサンプリングを行うか決定する必要がある。水稻全体モデルの基準値は文献調査や本事業における試験の結果、そして様々な仮定の基、設定された値である。従って、必ずしも現実の水稻の生長を代表する値とは限らない。そこで、不確実さ伝播解析に用いるデータのサンプリングの分布形式は一様分布が適切であると考えた。サンプリングはモンテカルロ法で行い、サンプリング数は断りが無い限り 100 とした。このサンプル数はパラメータの寄与を調査するには十分な数と考えられる。各パラメータのサンプリングには Statistical Pre Processor (PREP; Homma and Saltelli 1991) を用いた。図 3.4-5 にサンプリングの結果を示す。いずれのパラメータも不確実さの変動幅内で一様にサンプリングできたことが確認できた。

3.4.2.2 水稻内部コンパートメントモデルの不確実さ伝播解析

前項で作成した入力データに基づき、不確実さ伝播解析を実施した。茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化を、図 3.4-6 に示す。茎葉部、穂部共に ^{14}C 含量の変動幅は小さく、不確実さ幅は小さいことが分かった。

次に、 ^{14}C 含量に対する各パラメータの影響について、SPOP コード (Saltelli and Homma, 1992) を用いて相関分析を行った。ここでは、偏相関係数 (PCC ; Partial Correlation Coefficient) 及び順位偏相関係数 (PRCC ; Partial Rank Correlation Coefficient) を指標に用いた。

PCC は見かけ上の相関 (疑似相関 spurious correlation) を危惧して他の変数の影響を除いた他の二つの変数の相関係数を求める手法である。ここで、x, y, z の変数があり、x, y の相関係数を R_{xy} 、x と z の相関係数を R_{xz} 、y と z の相関係数を R_{yz} としたとき、z を制御変数とした偏相関係数 $R_{xy.z}$ は以下

の式になる。

$$R_{xy \cdot z} = \frac{R_{xy} - R_{xz}R_{yz}}{\sqrt{1 - R_{xz}^2} \sqrt{1 - R_{yz}^2}} \quad \text{式 3.4-1}$$

偏相関係数は、 $-1 \leq R \leq 1$ の範囲をとり、絶対値が 1 に近いほど関係が強いことを示す。

PRCC は、独立変数（入力パラメータ）と従属変数（解析結果）の順位（ランク）を対象にした相関係数であり、下式で表わされる。

$$R = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - y_i)^2}{n(n^2 - 1)} \quad \text{式 3.4-2}$$

PRCC も $-1 \leq R \leq 1$ の範囲をとり、絶対値が 1 に近いほど関係が強いことを示す。

表 3.4-2 に収穫時の穂部内 ^{14}C 存在量と水稻内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。PCC も PRCC もほぼ同じ結果が得られており、その序列も上位 7 位までは同じであった。最も影響が大きい（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。この結果は、収穫時の穂部 ^{14}C 含量に対して光合成産物の直接供給割合のピーク位置（パラメータ A）とピーク頂の大きさ（パラメータ B）が直接影響していることを意味している。また、どちらも負の相関を示しており、これはピーク位置が収穫期に近いほど（パラメータ A が 1 に近いほど）、またピーク頂が小さいほど（パラメータ B が小さいほど）、収穫時の穂部 ^{14}C 含量が大きくなることが分かった。パラメータ B のピークが小さいと言うことは、収穫直前における茎葉部から穂部への ^{14}C 転流量が少ないことを意味する（図 3.4-4）。 ^{14}C 転流量が少ないにも係わらず、穂部の ^{14}C 量が増加するのは、穂部が登熟する過程において ^{14}C 転流量が多いからである。

γ 係数以外で収穫時の穂部 ^{14}C 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 CO_2 の乳熟期以降の維持呼吸割合であった。茎葉部の維持呼吸率が大きい方が、また穂部の維持呼吸率が小さい方が、収穫時の穂部 ^{14}C 含量が大きくなることが分かった。これは吸収した ^{14}C が呼吸により再度環境に放出されなければ収穫時の穂部 ^{14}C 量が大きくなるためである。

以上の結果から上述の 4 つのパラメータは収穫時の穂部 ^{14}C 含量と相関が高く影響力があるように見えるが、一方で、水稻全体モデルにおける不確実さ幅が小さいため、水稻内部コンパートメントモデルの構成パラメータは、穂部における ^{14}C 含量にほとんど影響しないと言える。

3.4.3. 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壌中にすき込まれ、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可能性がある。そこで、水稻全体モデルでは茎葉部の一部を刈り株とし、易分解性リターコンパートメントと難分解性のリターコンパートメントの 2 つのパラメータを設けてモデル化している（図 3.4-1）。本項では、多年解析時において茎葉部からリターコンパートメントへの ^{14}C 移行割合、及びリターコンパートメントから土壌への移行半減期が収穫時の水稻穂部への ^{14}C の移行に対する影響を評価した。そして、これを多年解析に係るモデルパラメータの不確実さ伝播解析によって検討した結果について報告する。

3.4.3.1. 多年解析の入力データ

不確実さ伝播解析の基本的な方法は、水稻内部コンパートメントモデルの解析で行った方法に準じた。解析の前提条件として、パラメータ間それぞれ独立しているものとしてサンプリングを行った。以上の条件のもと得られた多年解析に係わるモデルパラメータの基準値と不確実さ幅を表 3.4-3 に示す。各パラメータ値の不確実さ幅は以下の手順で決定した。

No.1 茎葉部（刈り株）内の易分解成分比率

志賀（1985）により報告された水田における稲わらの炭素含量の変化をトレースすることにより、すき込んだ刈り株の分解は易分解性と難分解性の2成分として表すことができることが分かった。そこで、永井ら（2009）の野外における稲わらの分解試験結果をトレース解析したところ、易分解成分は20～40%となった。この結果から基準値は最大値である40%を採用し0.4とした。また、変動幅は基準値±10%と想定されていたことから、不確実さ幅を0.3～0.5とした。

No.2 リター1から土壌1への移行半減期（易分解成分の分解半減期）

速見（1985）の稲わら分解試験を易分解性と難分解性の成分に分けてトレース解析した結果、易分解成分の半減期は73～99日であった。同様に、志賀ら（1985）による稲わらの分解に対する地域間差の結果をトレース解析した結果、易分解成分の半減期は168日であった。そこで、水稻全体モデルでは基準値を73 daysとし、不確実さ幅を73～168 daysと設定した。

No.3 リター2から土壌2への移行半減期（難分解成分の分解半減期）

速見（1985）の稲わら分解試験を易分解性と難分解性の成分に分けてトレース解析した結果、難分解成分の半減期は730～1069日であった。同様に、志賀ら（1985）による稲わらの分解に対する地域間差の結果をトレース解析した結果、難分解成分の半減期は2811日であった。そこで、水稻全体モデルでは基準値を730 daysとし、不確実さ幅を73～2810 daysと設定した。

本不確実さ分析においても設定された基準値が日本の水田の分解を表す代表値ではない。従って、サンプリングを行う確率分布は一様分布とした。易分解成分および難分解成分の分解半減期は桁単位で変化することから、分布形は対数一様分布とした。サンプリング数は50とした。パラメータが少ないため、このサンプル数で十分パラメータの寄与を調査することができると考えた。図 3.4-7 にサンプリングの結果を示す。いずれのパラメータも不確実さの変動幅内で様にサンプリングできたことが確認できた。

3.4.3.2. 多年解析の不確実さ伝播解析

上述のようにして作成した入力データに基づき不確実さ伝播解析を実施した。多年解析の¹⁴C曝露源条件として、水稻栽培期間中灌漑水に絶えず¹⁴Cが含まれているとした。つまり、灌漑水を常時曝露源とした。

始めにリター1およびリター2コンパートメントにおける¹⁴C含量の経時変化について解析した（図 3.4-8）。すき込みによる茎葉部からリターへの¹⁴Cの供給と、分解によるリターから土壌への移行により、年々リター中の¹⁴C含量が増加することが分かった。特に難分解性のリター2でこの傾向が顕著であった。リターから土壌への¹⁴C移行半減期が1年を超えるため、土壌へ移行する量よりも

茎葉部からの供給される量が勝った結果と考えられる。

一方、茎葉部や穂部における ^{14}C 含量は、パラメータを変動させたにも係わらず、その変動幅は極めて小さく、ほぼ重なった状態であった (図 3.4-9)。刈り株の ^{14}C 含量は灌漑水の ^{14}C 量と比較して少なく、またリターコンパートメントから土壌への移行半減期も長くそして量的にも少ないため、このような結果になったと考えられる。従って、ここでは重要度評価は実施しなかった。

次に、最初の1年目のみ灌漑水が曝露源となる場合について解析を行った。つまり、水稻2年目以降の栽培時において、リター1とリター2に存在する ^{14}C のみが曝露源となる場合である。図 3.4-10 にリター1およびリター2コンパートメントにおける ^{14}C 含量の経時変化を示す。1年目の収穫の後は、単調的に ^{14}C 量が減少した。この減少度合いは各不確かさ解析ケースで設定した移行半減期に従っている。リター1において2年目以降で不連続的な変化が見られたが、これはリター1から土壌1への移行半減期が短い場合、リター1内の ^{14}C 量の減少が大きく、翌年に刈り株からリター1に移行した ^{14}C 量が多いためにリター1内の ^{14}C 量が増えた結果と言える。一方、リター2は1年目に蓄積された ^{14}C が緩やかに減少することが分かった。

図 3.4-11 に茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化の結果を示す。茎葉部および穂部共に、1年ごとにコンパートメント内の ^{14}C 含量が度低下することが分かった。また、年ごとにコンパートメント内 ^{14}C 含量の変動が、少しずつ大きくなることも分かった。しかし、その変動幅は4年後の収穫時においても小さく、最大でも2倍程度の差であった。

次に、PCC および PRCC を指標として ^{14}C 含量に対する各パラメータの影響を調べた。表 3.4-4 に収穫時の穂部内 ^{14}C 存在量と水稻内パラメータの確かさ伝播解析結果に基づく相関分析結果を示す。PCC も PRCC も同じ結果が得られた。相関係数は最小でも PCC の 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、不確かさ幅が最大で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これら3つのパラメータの穂部の ^{14}C 含量に対する影響度は小さいと考えられた。

3.4.4. 長期多年解析におけるリターの影響

連続曝露および単年曝露の多年解析の結果 (第 3.4.3 項)、収穫時の穂部の ^{14}C 含量に対し、易分解性および難分解性リター共に影響度は小さい可能性が示された。しかしながら、連続曝露においてリターコンパートメントにおける ^{14}C は、その分解性に係わらず年々増加し続けており (図 3.4-8)、長期的には穂部 ^{14}C 含量に影響する可能性がある。そこで、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。

3.4.4.1. 50年連続曝露多年解析

各コンパートメントの基準値に対し、50年間の連続曝露多年解析を行った。リター1およびリター2における ^{14}C 含量の経時変化を図 3.4-12 に示す。リター1において ^{14}C の蓄積傾向は認められず、 10^{-5} ~ 10^{-4} の範囲で変動を繰り返した。リター1から土壌1への移行半減期は73日なので (表 3.4-3)、水田土壌に鋤込まれた刈り株は1年以内にはほぼ全てが分解され、その結果 ^{14}C は土壌1へと移行する。そしてまた翌年の刈り株により ^{14}C がリター1に供給される。この繰り返しのため ^{14}C がリター1に蓄積されることはほとんど無い。一方、リター2は年間の変動を繰り返しつつ、約15年間 ^{14}C 含量の増加が認められた。最小値は2年目の収穫時であり $4.68 \times 10^{-4} \text{ Bq}$ であった。最大値は15年目以降の収穫後に得られ、 $2.26 \times 10^{-3} \text{ Bq}$ であった。リター2から土壌2への移行半減期は730日なので (表 3.4-3)、 ^{14}C はリター2に蓄積されるものの、土壌2への移行による減少分と、刈り株として供給される分が平衡となった時点でそれ以上変動しなくなったと考えられた。

穂部における¹⁴C含量の経時変化を図3.4-13に示す。リター2の¹⁴C含量は15年間増加し続けるにもかかわらず、穂部における¹⁴C含量に変化はなかった。つまり、穂部の¹⁴C含量に対するリター2の¹⁴C含量の影響度は小さいと言える。以上の結果から、連続的に¹⁴Cが供給される場合でも、曝露開始年における穂部¹⁴C量が分かれば、数十年後も同じ穂部¹⁴C量であると予測することができる。

3.4.4.2. 単年曝露多年解析

各コンパートメントの基準値に対し、1年目のみ水稻を¹⁴Cで曝露し、その後50年間の多年解析を行った。リター1およびリター2における¹⁴C含量の経時変化を図3.4-14に示す。2年目以降、新たな¹⁴Cの供給がないために、リター1およびリター2の¹⁴C含量は減少し続けた。5年目以降、リター1の¹⁴C含量がリター2から結果的に供給される¹⁴C量を下回ることが分かった。リター2からの¹⁴Cの供給により易分解性の¹⁴Cがわずかに生産されることで、リター1の¹⁴Cは年ごとに増減を繰り返しながら減少し続けることが分かった。

穂部における¹⁴C含量の経時変化を図3.4-15に示す。単年曝露では、年ごとに穂部内¹⁴C量は急激に減少した。最初の年に灌漑水から¹⁴Cが流入した以降、系内の¹⁴Cはリターを介して土壌、近傍大気、環境大気を経て系外に移行する(図3.4-1)。これらに関連する移行半減期は年単位で見れば短いものであり、¹⁴Cが系内に留まる役割を果たすのはリター1およびリター2である。2年目以降の穂部¹⁴C量は、リター内の残存量に影響を受け、5年目位までは半減期の短いリター1から土壌1の移行半減期による影響により急激に減少し、その後は半減期の長いリター2から土壌2への移行半減期により、5年目までの減少に比べると緩やかな減少となる。以上の結果から、単年曝露では、新たな¹⁴Cが流入してこないの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ことが予測できる。

3.4.5. 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

これまでに実施したモデルパラメータの不確かさ伝播解析、すなわち、昨年度に実施した環境コンパートメントのモデルパラメータ(放射線医学総合研究所2017)、さらに本報告書の第3.4.2項の水稻内モデルパラメータ、および第3.4.3項の多年解析のモデルパラメータの結果から選択された重要なパラメータに関して、水稻全体モデルにおけるそれらパラメータの不確かさ伝播解析を実施することで、水稻収穫時の穂部内¹⁴C量に影響を与える最も重要なパラメータの評価を行った。

3.4.5.1. 水稻全体モデルにおける不確かさ伝播解析の入力データ

水稻全体モデルを次の3つのパラメータに分類した: 1) 環境移行パラメータ, 2) 水稻内モデルパラメータ, そして3) 多年解析モデルパラメータ。それぞれの分類において、各不確かさ伝播解析から得られた重要度の高いモデルパラメータは以下の通りであった。

- ・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→近傍大気への移行半減期(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

不確実さ伝播解析は以上のモデルパラメータを対象に行うこととした。図 3.4-16 に水稻全体モデルにおける対象パラメータが該当する移行パスを赤線で示した。不確実さ伝播解析の基本的な方法は、水稻内部コンパートメントモデルの解析で行った方法に準じた(第 3.4.2.項)。解析の前提条件として、サンプリング数は 50 とし、パラメータ間それぞれ独立しているものとしてサンプリングを行った。これらの条件のもと得られた多年解析に係わるモデルパラメータの基準値と不確実さ幅を表 3.4-5 に示す。この表における各パラメータの不確実さ幅の決定根拠については第 3.4.2.項, 第 3.4.3 項, および昨年度の報告書(放射線医学総合研究所 2017)を参照されたい。サンプリングで得られた各パラメータの値を図 3.4-17 に示す。いずれのパラメータも不確実さの変動幅内で一様にサンプリングできたことが確認できた。

3.4.5.2. 水稻全体モデルにおける不確実さ伝播解析

前項で作成した入力データに基づき不確実さ伝播解析を実施した。ここでの不確実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 ^{14}C が曝露源となる。

変動幅内でサンプリングした値を用いて、水稻全体モデルにおける不確実さ伝播解析を行った。穂部における ^{14}C 含量の経時変化を図 3.4-18 に示す。1年目以降、系外から新たな ^{14}C の供給がないために、穂部における ^{14}C 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。これは、環境移行パラメータの不確実さの影響と考えられる。そこで、近傍大気コンパートメント内の ^{14}C 含量の経時変化の結果を整理した(図 3.4-19)。水稻穂部と同様に、近傍大気中の ^{14}C 含量も不確実さ幅が大きく、且つ、年々その変動幅が広がった。以上の結果から、穂部の ^{14}C 含量は近傍大気中の ^{14}C 含量に強く影響される可能性が示唆された。

穂部の ^{14}C 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。解析方法については第 3.4.2.項を参照されたい。表 3.4-6 に収穫時の穂部内 ^{14}C 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 ^{14}C 含量は近傍大気中の ^{14}C 含量に対する影響度が高いことが確認できた。そこで、「近傍大気-環境大気交換半減期」および「土壌1→近傍大気移行半減期」と「4年後収穫時の穂部における ^{14}C 含量」との関係を整理した(図 3.4-20)。この結果、明らかに「土壌1→近傍大気移行半減期」と「4年後収穫時の穂部における ^{14}C 含量」間の相関が良いことが分かった。

2年目以降は刈り株に残存する ^{14}C 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 ^{14}C 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と言える。

3.4.6. 水稲全体モデルパラメータの整理

本項ではこれまで構築してきた水稲全体モデルにおけるモデルパラメータについて整理する。始めにモデル構築の目的、水稲全体モデルの構造とモデルの考え方を概説し、次にコンパートメントにおける ^{14}C 含量変化の移行モデル式についてまとめる。最後に移行モデル式を構成するパラメータについて、設定根拠と変動幅についてまとめる。

3.4.6.1. モデル構築の目的

放射性炭素 (^{14}C) は TRU 廃棄物処分及び余裕深度処分において天然バリアへの収着性が低いことから、処分場から地下水を介して生物圏に到達する可能性がある。従って、農作物が地上に到達した ^{14}C に曝露されることを想定し、可食部への移行を評価しておくことは重要である。そこで、我が国の主食であるコメに着目し、 ^{14}C の曝露により収穫された穂への ^{14}C の移行を評価できるモデルの構築を目的とした。この目的を達成するために、水田生態系における ^{14}C の移行モデルを構築してきた。

放射性廃棄物由来の ^{14}C を対象とする水稲全体モデルにおいて、どのような化学形態の ^{14}C がどのような経路で曝露源となるかを想定する必要があるものの、基本的には植物及びその周辺環境の炭素の挙動をモデル化することであり、通常の炭素と異なるものではない。植物内の炭素の挙動については、光合成、呼吸、転流、エネルギー循環 (C3 植物, C4 植物) など、既に様々な知見が蓄積されている (Jones 2014)。また、植物と周囲の環境を考慮した長期的な炭素循環についても先行研究が行われている (農業環境技術研究所 2004)。しかし、発芽から収穫までの植物の成長を短期的視点で考慮し、その周辺環境との相互移行を考慮した炭素のモデルは少なく、特に水稲のように収穫物についても評価することを念頭に構築されたモデルはほとんど見られない。

短期的な視点で水田における ^{14}C の動態をモデル化するには、水稲の生長期間の挙動を模擬し、短期的な挙動を把握・考慮した上で、長期的な炭素の挙動を把握する必要がある。したがって、イネ作物内の炭素挙動、その周辺環境との移行、周辺環境間の移行などの必要なプロセスを考慮し、文献調査および実験による移行モデルのパラメータを取得し、トレーサ解析等によるパラメータ推定を行うことで水稲全体モデルを構築した。

3.4.6.2. 水稲全体モデルの構造とモデルの考え方

水稲全体モデルの構造を図 3.4-21 に、このモデルを構成するコンパートメントのリストを表 3.4-7 に示す。当該モデルは 20 のコンパートメントと 2 つのソース、および 3 つのシンクから構成されており、これらは次の 3 つの要素に大別できる：流入・流出、水稲、環境。まず始めに、このモデルを構成する 3 つの要素の考え方について概説する。

- ・ 流入・流出

地中の埋設処分場から環境中に漏出した放射性廃棄物は、河川や地下水を経由して灌漑水に移行すると考えられているが、水田とは離れた場所で揮発した場合やモデルの汎用性なども考え、大気が曝露源になることも考慮した。つまり、曝露源から近傍大気と灌漑水への流入を考慮した。大気曝露では環境大気が汚染されるとするのが一般的であるが、保守的な評価を行うため、近傍大気が $^{14}\text{CO}_2$ に汚染されるとした。曝露源が灌漑水の場合、灌漑水からのガス化による近傍大気への移行が速く、また、灌漑水が水田に流入して直ぐに土壌へも移行するため、流入源を灌漑水、近傍大気、及び土壌の 3 つのコンパートメントに分割した。

- 水稻

水稻部位は、無機炭素部、茎葉部、穂部の3つのコンパートメントに分けてモデル化した。穂部以外の部分は穂部への輸送や有機炭素が蓄積される部位と考え、茎・葉・根を別々に扱う必要はなく、全て合わせて茎葉部とした。無機炭素部には光合成による近傍大気からの吸収と、経根吸収による土壌からの移行を考えた。無機炭素部と近傍大気は、水稻の光呼吸を模擬するため相互に炭素が移行するとした。そして無機炭素コンパートメントから茎葉部および穂部コンパートメントへと炭素が移行するとし、茎葉部からも転流により穂部へ¹⁴Cが移行するとした。また、暗呼吸を模擬するために、茎葉部と穂部から近傍大気へ炭素が移行する経路を設けた。水稻部位の3つのコンパートメント間の移行は水稻の生長に依存するよう設定した。茎葉部については収穫後に裁断され稲わらとして田に散布、すき込まれるとし、すき込まれた稲わらは易分解性と難分解性の2つのリターコンパートメントに移行するとした。

- 周辺環境

周辺環境は7つのコンパートメントから構成されている：大気コンパートメント2つ、土壌コンパートメント2つ、灌漑水コンパートメント、そしてリターコンパートメント2つ。

灌漑水から放出されたCO₂は、水稻群落近傍で濃度が高くなると予想される。そこで、大気は水稻によるCO₂取り込みに直接関係する近傍大気と、関係しない環境大気に分けた。近傍大気と環境大気は相互に移行（交換）するが、環境大気ではCO₂が拡散し希釈することを模擬するため、系外への移行を考慮した。

灌漑水と2つの土壌コンパートメントは、水稻が栽培されている水田の状態を模擬した。土壌1は易分解性の炭素、土壌2は難分解性の炭素として設定した。灌漑水から土壌2、土壌2から土壌1への移行は一方向のみで、相互的な移行は無いとした。一方、灌漑水、近傍大気、及び土壌1は相互に移行するとした。灌漑水と他のコンパートメントとの移行は、灌漑水が存在するときのみ考慮することとした。作土層以外の土壌への移行を考慮し、土壌1と土壌2からも炭素が系外へ移行するとした。これは土壌深部への浸透を考慮するものであるが、現水稻全体モデルでは移行はゼロと設定している。水稻による経根吸収は、土壌1からのみとした。

リターコンパートメントは、汚染した稲わらの刈り株が、水田に鋤き込まれる状態を模擬するために設けた。これは、翌年以降の水稻への曝露源にもなる。リター1は易分解性の刈り株およびせん断された稲わら残留物、リター2は易分解性以外の刈り株や稲わらを想定して設定した。刈り株や稲わら残留物中の¹⁴Cは、分解後それぞれ土壌1と土壌2に移行するとした。

3.4.6.3. コンパートメントのモデル式

各コンパートメント内における¹⁴C含量変化のモデル式を以下に整理する。図3.4-22に各移行係数*k*のモデル内での位置を示す。

1) 近傍大気

$$\frac{dA_A}{dt} = k_{YA}A_Y + k_{S_1A}A_{S_1} + k_{WA}A_W + k_{PA}A_P + k_{LA}A_L + k_{EA}A_E - (k_{AY} + k_{AS_1} + k_{AW} + k_{AP} + \lambda_p)A_A + p_A + p_{W1} \quad \text{式 3.4-3}$$

2) 環境大気

$$\frac{dA_Y}{dt} = k_{AY}A_A - (k_{YA} + \lambda_{out_Y} + \lambda_p)A_Y \quad \text{式 3.4-4}$$

3) 土壤 1

$$\begin{aligned} \frac{dA_{S_1}}{dt} = & k_{AS_1}A_A + k_{S_2S_1}A_{S_2} + k_{WS_1}A_W + k_{L_1S_1}A_{L_1} \\ & - (k_{S_1P} + k_{S_1A} + k_{S_1W} + \lambda_{out_S_1} + \lambda_p)A_{S_1} \end{aligned} \quad \text{式 3.4-5}$$

4) 土壤 2

$$\frac{dA_{S_2}}{dt} = k_{WS_2}A_W + k_{L_2S_2}A_{L_2} - (k_{S_2S_1} + \lambda_{out_S_2} + \lambda_p)A_{S_2} + p_{W3} \quad \text{式 3.4-6}$$

5) 灌溉水

$$\frac{dA_W}{dt} = k_{AW}A_A + k_{S_1W}A_{S_1} - (k_{WA} + k_{WS_1} + \lambda_p)A_W + p_{W2} \quad \text{式 3.4-7}$$

6) リター-1

$$\frac{dA_{L_1}}{dt} = k_{LL_1}A_L - (k_{L_1S_1} + \lambda_p)A_{L_1} \quad \text{式 3.4-8}$$

7) リター-2

$$\frac{dA_{L_2}}{dt} = k_{LL_2}A_L - (k_{L_2S_2} + \lambda_p)A_{L_2} \quad \text{式 3.4-9}$$

8) 無機炭素 (植物全体)

$$\frac{dA_P}{dt} = k_{AP}A_A + k_{S_1P}A_{S_1} - (k_{PA} + k_{PL} + k_{PE} + \lambda_p)A_P \quad \text{式 3.4-10}$$

9) 茎葉部 (有機炭素)

$$\frac{dA_L}{dt} = k_{PL}A_P - (k_{LA} + k_{LE} + k_{LL_1} + k_{LL_2} + \lambda_p)A_L \quad \text{式 3.4-11}$$

10) 穂部 (有機炭素)

$$\frac{dA_E}{dt} = k_{LE}A_L + k_{PE}A_P - (k_{EA} + \lambda_p)A_E \quad \text{式 3.4-12}$$

ここで,

- A_x : コンパートメント x の放射エネルギー(Bq)
 k_{xy} : コンパートメント x から y への移行係数 (1/sec)
 λ_p : 物理的崩壊定数 (1/sec)
 λ_{out_x} : コンパートメント x から系外への減少割合(1/sec)
 p_x : 曝露源からコンパートメント x への流入 (Bq/sec)

であり、添字は以下の通りである。

- A : 近傍大気, Y : 環境大気, S₁ : 土壌 1, S₂ : 土壌 2,
W : 灌漑水, L₁ : リター1, L₂ : リター2, P : 無機炭素, L : 茎葉部, E : 穂部
W₁ : 灌漑水曝露における近傍大気への流入
W₂ : 灌漑水曝露における灌漑水への流入
W₃ : 灌漑水曝露における土壌 2 への流入

3.4.6.4. モデルパラメータの整理

各コンパートメントは交換半減期, 移行半減期, 生長関数等のパラメータで構成されている。流入・流出, 水稲, および環境の 3 つの要素毎にこれらが係わるパラメータを整理する。

流入・流出に関するパラメータを表 3.4-8 に示す。本事業におけるこれまでの試験から, ¹⁴C の一部は湛水水田土壌に供給されてから短期間の間に気相と固相に分配されることが知られている。そこで ¹⁴C を含む灌漑水が水田に流入した時点で, ¹⁴C は近傍大気と土壌に素早く移行すると考え, 近傍大気と土壌が曝露源となるようモデル化した。各コンパートメントへの分配比率は, トレース解析により決定した。なお, 過去の湛水水田土壌を用いた ¹⁴C トレース試験から, 土壌への流入分は比較的分解されにくい成分に分配されると推察されたので, 土壌 2 を ¹⁴C の流入先とした。モデル系外への移行経路として, 土壌 1 と土壌 2 から土壌深層への浸透, 環境大気での拡散・希釈, および灌漑水の排水の 3 つを設定した。土壌 1, 2 から土壌深層への浸透については情報が無いため, 保守的に系外への移行は起こらないとした。環境大気の拡散は気象条件に依存するので, 系外への移行半減期も本来は変動する。しかし, 風速 1m/s の弱風でも十分な希釈効果があり, 移行半減期も 1day に満たないような速い移行と考えられるため, 変動幅は設けず値を固定した。灌漑水については, 実際の水田での灌漑水排出速度を仮定した。

水稲に関するパラメータを表 3.4-9 に示す。水稲栽培期間であるが, 4 月 1 日に代掻きを行い, 4 月 20 日に田植えをし, 8 月 28 日に稲刈りをするとして設定した。茎葉部と穂部の成長曲線は, シグモイド曲線で表し, トレース解析の結果, 表 3.4-9 の数値を得た。水稲による炭素の取り込みは, 田上ら (2009) の報告に基づき 0.984 と設定した。無機炭素の割合であるが, 大気から葉に吸収された二酸化炭素と呼吸により各部位で発生した二酸化炭素と仮定した。葉の重量は水稲全体の約 20% であり, その 10% が無機炭素と仮定し 0.02 とした。茎葉部の有機炭素については, 乾燥重量全体の主成分であるセルロースや糖の多糖類(C₆H₁₂O₅)_n が主成分と仮定し, その炭素比率 (0.409) に対する作物中の多糖類含有率 (約 0.9, 石津ら 1986) の積として 0.37 を得た。一方, 穂部の有機炭素 (0.4) は実測値に基づき決定した (未発表)。生長につながる生長呼吸と作物の生命体を維持するための維持呼吸については, それぞれ大崎と田中 (1979) および Amthor (1989) で得られた情報を基に設定した。

環境に関するパラメータを表 3.4-10 に示す。環境大気, 近傍大気, 土壌, 灌漑水, およびリターコンパートメントの体積は暫定的な値として設定した。環境大気および近傍大気中の炭素濃度は全て二酸化炭素由来とし, 1 気圧, 20°C の条件下で大気中に二酸化炭素が 0.03% 含まれると仮定し, 0.15 g-C/m³ と算出した。土壌 1 と土壌 2 コンパートメントの炭素濃度は 9540 g-C/m² とした。この炭素濃度

は本事業で採取した土壌試料の炭素濃度の幾何平均値と土壌密度 (2.6 g/cm^3) から算出した値である (放射線医学総合研究所 2009)。灌漑水の炭素濃度は大気中から溶け込んだ二酸化炭素が主成分と考え、二酸化炭素の溶解度から算出した。具体的には二酸化炭素が 1 cm^3 の水に 1 cm^3 溶解したと仮定して得られた 12.15 g-C/m^3 を基準値とした。二酸化炭素の溶解度は pH や大気圧により変化することから、実測によりその変動幅を決定した (放射線医学総合研究所 2009)。リター 1 とリター 2 は、収穫後の茎葉部の炭素量がそのまま移行したものであるため、コンパートメントの体積や炭素濃度はモデルを動かす上で必要ないが、濃度を算出するために暫定的に表 3.4-10 の値を設定した。炭素濃度および易分解成分の割合の設定根拠については第 3.4.3.項で述べた。環境大気と近傍大気との交換半減期は圃場での実測地に基づき決定した (放射線医学総合研究所 2016)。また、湛水土壌を用いた ^{14}C のトレーサ実験の結果をトレース解析することにより、近傍大気から灌漑水、近傍大気から土壌 1、灌漑水から近傍大気、灌漑水から土壌 2、および土壌 2 から土壌 1 への移行半減期を決定した (放射線医学総合研究所 2009, 2010)。土壌 1 から近傍大気や灌漑水への移行半減期であるが、気温変化を考慮して基準値と変動幅を決定した (放射線医学総合研究所 2015)。リター 1 から土壌 1 およびリター 2 から土壌 2 の移行半減期の設定根拠と設定幅については、志賀ら (1985) と速見 (1985) の報告を基に決定した (放射線医学総合研究所 2011)。詳細については第 3.4.3.項を参照されたい。

3.4.6.5. 水稻全体モデルの適応範囲

田植えから収穫までの時間スケールをベースに、水稻全体モデルを構築した。各モデルパラメータは短期的な実験結果や水稻の単年度の観測結果をトレースして設定したものが殆どであるが、刈り株のすき込みを模擬することにより多年解析にも有効なモデルである。ただし、環境コンパートメント間の移行半減期については、知見が充分揃っていない状況であるため、長期的な解析を実施した場合には、パラメータの不確かさが増幅して現れる可能性がある。

水稻全体モデルでは ^{14}C 標識酢酸を用いたトレーサ実験で得られたデータを中心に解析し、モデルパラメータとして利用してきた。しかしながら、水田生態系における炭素の化学形態は、例え ^{14}C が酢酸として流入したとしても、時間経過と共に様々な化学形態に変化する。近傍大気からの炭素の吸収は CO_2 が主であるが、土壌中や灌漑水中の炭素の化学形態は必ずしも CO_2 とは限らない。生物の代謝活動により無機炭素や糖など酢酸以外の様々な有機物に変換される。化学形態が異なれば微生物による分解率や、分解速度にも影響するため、各コンパートメント間の移行半減期も変化すると推定される。水稻全体モデルではこのような化学形態の変化に伴う移行半減期の変化には対応していないことに注意が必要である。

3.4.6.6. 微生物の効果

水稻全体モデルを用いた解析から、収穫時における穂部の ^{14}C 含量は近傍大気中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度に強く影響されることがわかった。水稻全体モデルにおいて、近傍大気の ^{14}C は環境大気、灌漑水、易分解性土壌、そして水稻の呼吸からの流入が経路となっている。このうち易分解性土壌からの移行経路に微生物が関与している。つまり、土壌有機物の分解による ^{14}C のガス化に微生物が関わっている。多年解析において、 ^{14}C による連続暴露は単年暴露より影響が小さいとの結果が得られたが、これは ^{14}C で汚染された灌漑水が水田に引かれた瞬間に $^{14}\text{CO}_2$ の一部が近傍大気へ移行すると仮定しているからである。つまり、毎年灌漑水を介して供給される ^{14}C 量が易分解性土壌から近傍大気へ移行する ^{14}C 量よりも多いために、年々微生物の効果が小さくなるとの評価である。しかしながら、水田に引かれた ^{14}C 汚染灌漑水からの ^{14}C ガス発生も微生物が関与していることを考えれば、やはり収穫時における穂部 ^{14}C 含量に対する微生物活動の影響は無視できない。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、ガス状へと変化した¹⁴Cが近傍大気へと移行する。水田土壌には様々な微生物が存在しており、また微生物の種類により利用できる有機物が異なる。そして分解率や分解速度も異なる。したがって、評価対象となる生物圏付近の水田において、微生物の種類とそれらの微生物が利用する有機物の特定が重要になると考えられる。

3.4.3.7. まとめ

収穫時における穂部の¹⁴C含量に影響する水稻内パラメータを明らかにすることを目的に、不確実さ伝播解析を実施した。その結果、穂部への光合成産物の直接供給割合（ γ 係数）を構成する式のパラメータAが最も穂部の¹⁴C含量に影響することが分かった。これは光合成産物が穂部へ直接移行する割合のピークが近ければ近いほど、穂部の¹⁴C含量が多くなることを意味している。しかしながら、 γ 係数のパラメータAを変動させても収穫時における穂部の¹⁴C含量の変動幅は1.2倍（=最大値/最小値）と小さく、従って、水稻内パラメータは穂部の¹⁴C含量に影響する因子では無いと結論された。

次に、多年解析に係わるパラメータとして易分解成分の割合とリター成分について、不確実さ伝播解析を行った。その結果、いずれのパラメータにおいても収穫時における穂部の¹⁴C含量と相関が高いことが分かった。但し、水稻内パラメータと同様に、多年解析に係わるこれらのパラメータを変動させたところで穂部自体の¹⁴C含量は2倍程度しか変動せず、水稻全体モデルにおいて収穫時における穂部の¹⁴C含量を決定づけるような因子では無いとの結論が得られた。50年にわたる多年解析も試みたが、穂部の¹⁴C含量に対するこれらのパラメータの影響は無かった。

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。単年曝露の多年解析では、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¹⁴C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ので、微生物活動が穂部の¹⁴C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¹⁴C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¹⁴C含量に影響するパラメータが穂部の¹⁴C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¹⁴Cの安全評価では、近傍大気中の¹⁴C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

- Amthor, J.S., 1989. Crop growth and maintenance respiration, in: Amthor, J.S. (Ed.), *Respiration and crop productivity*. Springer-Verlag, New York, pp. 69-104.
- EMRAS Tritium/C14 Working Group, 2008. *The potato scenario*, IAEA, Vienna 49 pp.
- 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, 33 pp.
- 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.
- Jones, H.G., 2014. *Plants and Microclimate - a Quantitative Approach to Environmental Plant Physiology*, 3rd edition ed. Cambridge University Press, New York.
- 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, 55 pp.
- Sheppard, M.I., Sheppard, S.C., Amiro, B.D., 1991. Mobility and plant uptake of inorganic ¹⁴C and ¹⁴C-labelled

- PCB in soils of high and low retention. *Health Phys* 61, 481-492.
- 石津 純一, 内藤 豊, 原田 宏, 松本 忠夫, 柳沢 富雄, 山田 晃弘, 1986. 図解 生物学データブック. 丸善, 東京.
- 大崎 満, 田中 明, 1979. 水稻の呼吸基質としての”初期光合成産物”と”貯蔵物質”. *日本土壤肥料学雑誌* 50, 540-546.
- 志賀 一一, 1985. 各種有機物の水田土壤中における分解過程と分解特性に基づく評価. *農業研究センター研究報告* 5, 1-19.
- 志賀 一一, 大山 信雄, 前田 乾一, 鈴木 正昭, 1985. 環境条件別の有機物の分解率とその年次変化(1) 施用有機物分解の地域間差, in: 江川 友治, 児玉 賀典, 坂井 健吉. (Eds.), 農耕地における土壤有機物変動の予測と有機物施用基準の策定. 農林水産省農林水産技術会議事務局, 東京, pp. 24-29.
- 田上 恵子, 石井 伸昌, 内田 滋夫, 2009. 炭素安定同位体自然存在比を用いた水稻による土壤起源炭素吸収率及び炭素移行係数の推定. *Radioisotopes*, 58, 641-648.
- 永井 勝, 坂田 洋, 多胡 靖宏, 中村裕二, 2009. 微生物系物質循環に関する調査研究 —土壤における炭素の蓄積と放出の調査—, in: 平成 21 年度報告書 (Eds. 環境科学技術研究所), 48-50.
- 農業環境技術研究所, 2004. 農業生態系における炭素と窒素の循環. 養賢堂, 東京.
- 速見 和彦, 1985. 各種有機物資材の分解特性, in: 江川 友., 児玉 賀., 坂井 健. (Eds.), 農耕地における土壤有機物変動の予測と有機物施用基準の策定. 農林水産省農林水産技術会議事務局, 東京, 20-24.
- 放射線医学総合研究所, 2009. 平成 20 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 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, 2010. 平成 21 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 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, 2011. 平成 22 年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 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, 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.
- 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, 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.
- 山口 淳一, 田中 明, 1970. 作物の生長効率に関する研究(第 3 報): 生育条件を異にしたトウモロコシの生長効率. *日本土壤肥料学雑誌* 41, 509-513.
- 山口 淳一, 渡部 幸一郎, 田中 明, 1975. 作物の生長効率に関する研究(第 4 報): 水稻およびトウモロコシの器官別呼吸能および生長効率. *日本土壤肥料学雑誌* 46, 113-119.

3. 5. おわりに

本事業は、気温変化に敏感な微生物の代謝活性と ^{14}C のガス化との関係を踏まえ、ガス化を考慮した環境移行パラメータについて検討することを目的としている。本年度は、土壤微生物活性および水稲各部位における ^{14}C 量に対する気温の効果について調査した。さらに、これまで取得した ^{14}C 標識酢酸のガス化データを用い、水田土壤の物理科学生物学的特性と ^{14}C のガス化の関係についても検討した。また、農耕地における ^{14}C の挙動を解析するための水稲全体モデルに関しては、モデルパラメータに対する不確かさ伝播解析を行い、重要度の高いパラメータを確認した。

温度変化に伴う微生物活動の変化と ^{14}C の玄米への移行量の関係を明らかにするために、異なる気温で水稲を栽培し、土壤微生物の活性、周辺環境の CO_2 濃度変化、水稲の茎葉部、籾殻、そして玄米に取り込まれた ^{14}C 量について調査した。

まず土壤微生物活性であるが、本実験の条件では 1°C 当たり、1時間当たり約 0.5 ppm の CO_2 を発生させる微生物活動が確認できた。一方、 ^{14}C 標識酢酸を ^{14}C 源とした場合、 ^{14}C 源が供給された24時間以内に急速に $^{14}\text{CO}_2$ ガスが発生するが、24時間目以降は $^{14}\text{CO}_2$ ガスの発生が抑制される結果となった。この様に、土壤微生物の呼吸と ^{14}C のガス化は必ずしも一致するものでは無かった。これは土壤微生物による炭素資化性が影響していると考えられる。従って、TRU 廃棄処分における安全評価においても、どのような化学形態の ^{14}C が生物圏に移行する可能性があるのか明らかにすることが重要である。

高温条件で栽培した水稲の栄養生長期あるいは登熟期において $^{14}\text{CO}_2$ ガスを曝露したが、玄米中の ^{14}C 濃度に差は見られなかった。一方、低温条件で栽培した場合、栄養生長期よりも登熟期に $^{14}\text{CO}_2$ ガスを曝露した水稲で、玄米中の ^{14}C 濃度が高くなった。高温条件の場合、群落内は光不足で光合成による $^{14}\text{CO}_2$ の取り込みは限られており、例え群落外へ移行したとしても拡散により希釈されてしまう。低温条件の場合、高温条件と比較して土壤から放出された $^{14}\text{CO}_2$ ガスが水稲群落頂近傍の大気中に蓄積されやすく、その結果、より多くの ^{14}C が水稲に取り込まれたのではないかと考えている。低温条件で ^{14}C 取り込み量が増大するならば、寒冷化が示唆されている将来において、水稲への ^{14}C の移行量は現在の試算よりも多くなる可能性がある。

^{14}C のガス化を考慮した移行パラメータを提案するために、微生物活動と ^{14}C ガス化率の関係について検討した。土壤微生物の活動に影響する土壤特性も加味した物理化学生物学的特徴から、 ^{14}C ガス化率の指標を示すことが可能か検討したが、重回帰分析において選定されたパラメータでは ^{14}C ガス化率の約 30% 程度しか説明できないことが分かった。これまで ^{14}C のガス化は ^{14}C 標識酢酸をトレーサとした試験で得られた値を用い、微生物活動との関係について検討されてきた。一方で、酢酸は水田土壤微生物にとって決して利用しやすい有機物でないことも分かっている。そこで、これら水田土壤微生物が利用しやすい有機物を用い、微生物の呼吸活性と ^{14}C のガス化との関係についても検討したが、この検討においても微生物活動と ^{14}C のガス化との間に明確な関係性は見いだせなかった。以上の結果は、水田微生物が様々な有機物を利用している可能性を示唆している。 ^{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物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。

水稲全体モデルに関しては、モデルパラメータに対する不確かさ伝播解析では、土壤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壤微生物の活動を反映しているので、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。

表 3.2-1 水稻栽培実験における気温と照明時間

高温条件					低温条件				
栽培期間 (日目)	平均気温 (°C)	最低温度 (°C)	最高温度 (°C)	明時間 (時間)	栽培期間 (日)	平均気温 (°C)	最低温度 (°C)	最高温度 (°C)	明時間 (時間)
1-31	18.2	16.0	21.0	14	0-31	16.8	15.0	19.0	14
32-63	20.1	17.0	23.0	14.5	32-63	18.6	16.0	21.0	14.5
64-86	21.5	18.0	25.0	14.5	64-86	19.6	17.0	22.0	14.5
87-93	24.0	20.0	28.0	14.0	87-100	21.3	18.0	25.0	14.0
94-107	24	20.0	28.0	10	101-114	21.3	18.0	25.0	10
108-130	24	20.0	28.0	14	115-119	21.3	18.0	25.0	14
131-136	24	20.0	28.0	10	120-144	21.8	18.0	26.0	14
137-170	24	20.0	28.0	12	145-150	21.8	18.0	26.0	10
171-180	21.4	18.0	25.0	12	151-201	21.8	18.0	26.0	12

表 3.2-2 収穫時の部位別収量と収量に対する温度効果

部位	収穫量 (g-dry)		t-test P値
	高温	低温	
茎葉部	68.1 ± 5.1	80.1 ± 7.2	0.004
穂部	20.6 ± 4.2	10.1 ± 4.3	0.001

表 3.2-3 収穫時の水稻各部位における ¹⁴C 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

表 3.3-1 63 水田土壌で得られた ¹⁴C ガス化率と物理化学的生物学的特徴(その1)

ID	ガス化率 (%)	呼吸活性 (μg INT-Fig soil-dry/h)	ATP (RLU)	粗粒砂 (%)	細粒砂 (%)	シルト (%)	粘土 (%)	仮比重 (g/ml)	土壌粒子密度 (g/cm ³)	含水率 (%)	EC (1:5)	pH	交換性Ca	交換性K	活性Al	活性Fe	炭素	窒素
P01	28.4	461.5	564.7	5.2	22.5	31.5	40.8	1.0	2.5	4.1	129.1	5.0	173.4	25.9	3.7	10.4	37.2	3.2
P02	28.2	863.5	438.7	22.3	30.1	30.6	17.0	0.6	2.4	13.3	95.9	6.1	369.9	7.6	46.2	16.0	84.7	6.4
P03	22.8	1128.0	481.0	11.1	19.6	22.1	47.2	1.0	2.5	5.4	112.0	6.1	258.3	20.6	4.9	12.4	28.5	2.6
P04	22.3	884.9	804.0	8.5	39.2	24.7	27.6	0.9	2.5	2.5	111.6	5.6	199.9	21.0	1.8	5.6	24.7	2.6
P05	24.0	1112.0	644.3	3.2	18.2	28.7	49.9	0.8	2.6	3.7	108.2	6.0	219.3	22.6	4.3	8.5	20.3	2.6
P06	20.8	340.0	488.0	20.0	22.8	21.0	36.2	0.9	2.6	4.1	118.4	5.2	219.1	16.3	2.9	13.3	27.6	2.4
P07	21.7	350.6	700.3	22.2	35.9	21.5	20.4	1.0	2.6	5.7	71.4	5.6	116.5	18.7	8.3	5.5	35.1	3.1
P08	23.1	492.6	558.3	31.3	29.1	18.0	21.6	1.2	2.6	2.0	71.8	6.0	185.9	21.2	1.2	2.3	21.2	2.0
P09	22.1	326.9	419.0	16.2	36.7	21.5	25.6	1.2	2.6	2.2	98.1	6.8	253.7	9.1	2.5	3.5	19.6	2.0
P10	23.3	623.3	1134.0	29.8	23.4	19.7	27.1	1.1	2.6	1.4	252.5	5.3	89.9	7.4	1.1	3.6	19.2	1.9
P11	18.6	976.2	517.7	12.3	23.3	35.2	29.2	1.2	2.7	2.5	94.8	6.7	264.0	16.3	2.3	8.7	21.3	2.2
P12	28.8	217.9	365.7	9.6	7.5	37.9	45.0	0.9	2.6	6.3	80.5	5.6	236.5	15.0	2.3	11.9	34.8	2.9
P13	28.7	0.0	385.7	4.9	37.4	39.8	17.9	0.9	2.5	7.2	87.0	5.0	127.1	12.9	4.8	4.5	25.7	2.6
P14	20.3	271.0	279.3	20.7	29.3	33.0	17.0	0.7	2.5	18.8	109.4	6.7	793.3	14.4	55.4	16.8	108.0	7.4
P15	25.2	485.5	614.0	6.4	15.4	27.6	50.6	0.9	2.6	7.0	123.2	5.5	257.4	19.4	2.3	10.0	19.2	2.3
P16	31.1	0.0	358.3	3.8	20.9	35.1	40.2	1.2	2.6	10.6	141.7	5.7	114.4	13.6	1.3	8.1	16.5	1.9
P17	29.6	345.8	430.0	2.6	22.6	36.4	38.4	0.9	2.6	10.0	92.5	5.4	296.9	23.7	2.1	19.3	23.5	2.7
P18	24.7	36.2	284.0	21.3	24.3	29.3	25.1	0.8	2.6	9.4	74.8	6.1	191.1	28.6	8.3	9.2	29.8	2.7
P19	23.8	516.5	299.3	10.0	41.6	28.9	19.5	1.2	3.6	2.5	75.0	6.7	336.6	16.2	1.7	4.4	15.6	1.9
P20	28.6	483.0	524.7	28.2	24.6	19.7	27.5	0.9	2.6	3.0	91.9	5.3	205.7	11.9	1.5	5.3	18.3	2.0
P21	26.1	261.4	297.3	15.9	35.3	29.3	19.5	1.3	2.7	4.2	56.9	6.0	125.7	15.4	1.3	4.1	15.6	1.9
P22	27.7	815.0	618.7	5.7	28.9	40.7	24.7	1.0	2.6	5.6	75.3	5.5	305.3	59.0	1.7	5.3	22.0	2.7
P23	27.5	495.4	523.7	32.0	24.3	18.2	25.5	1.2	2.6	2.6	71.8	5.3	122.7	21.5	0.9	5.7	16.2	1.9
P24	27.6	0.0	202.0	15.9	44.6	23.7	15.8	1.1	2.5	8.0	113.6	6.0	109.9	15.7	6.8	3.1	14.0	1.8
P25	27.2	377.0	667.3	16.5	33.3	24.5	25.7	0.9	2.5	4.1	89.4	4.8	82.6	39.5	2.2	10.9	24.7	2.2
P26	20.6	844.4	1068.3	20.6	26.4	28.9	24.1	0.7	2.5	3.9	96.0	5.3	121.0	29.7	3.3	7.0	33.2	3.1
P27	25.6	1442.9	837.0	15.4	14.2	41.7	28.7	0.7	2.5	5.1	74.3	5.7	346.1	36.7	3.4	16.3	46.6	3.2
P28	33.1	524.1	355.7	29.9	17.9	24.5	27.7	0.9	2.6	4.8	62.6	5.5	231.3	9.2	6.0	12.6	23.4	2.2
P29	27.0	544.1	686.7	16.0	32.5	32.5	19.0	0.7	2.5	6.2	65.2	5.5	114.5	25.6	13.6	6.1	43.5	4.3
P30	21.5	612.7	788.7	12.9	39.5	25.0	22.6	0.9	2.6	2.3	80.5	5.5	78.5	48.1	2.6	3.6	16.1	1.6

表 3.3-1 63 水田土壌で得られた ¹⁴C ガス化率と物理化学的生物学的特徴(その2)

ID	ガス化率 (%)	呼吸活性 (μg INT-F/g soil-dry/h)	ATP (RLU)	粗粒砂 (%)	細粒砂 (%)	シルト (%)	粘土 (%)	仮比重 (g/mL)	土壌粒子密度 (g/cm ³)	含水率 (%)	EC (1:5)	pH	交換性Ca	交換性K	活性Al	活性Fe	炭素	窒素
P31	24.1	664.7	610.0	20.6	30.3	17.5	31.6	1.1	2.5	3.8	63.6	5.6	184.3	19.8	2.8	7.5	17.1	1.7
P32	29.7	97.2	409.3	39.4	19.4	23.0	18.2	0.8	2.6	5.7	48.7	5.8	152.7	20.9	5.8	5.9	29.2	2.2
P33	29.8	1233.0	707.0	21.2	26.5	32.5	19.8	0.9	2.6	2.0	170.3	6.7	189.0	20.4	1.1	3.1	30.2	2.7
P34	21.9	1161.7	671.0	63.4	11.6	11.5	13.5	1.1	2.6	1.3	60.9	6.2	81.1	7.4	1.2	3.7	16.2	1.4
P35	31.9	301.7	647.3	30.4	33.4	18.7	17.5	1.2	2.5	2.3	53.6	5.8	95.3	14.8	3.2	4.2	16.8	1.9
P36	27.4	516.0	770.3	5.2	15.9	35.2	43.7	1.0	2.5	4.9	88.7	5.3	134.7	27.4	5.5	10.9	22.9	2.6
P37	24.8	159.9	436.0	15.6	26.6	22.2	35.6	0.8	2.7	4.3	64.8	5.9	120.7	16.7	16.0	4.6	25.2	2.9
P38	31.9	207.0	409.3	28.7	43.7	13.5	14.1	0.9	2.5	5.6	64.7	5.5	161.6	18.7	4.8	11.5	18.9	2.0
P39	32.3	535.5	763.7	10.6	34.4	24.8	30.3	1.0	2.6	6.1	93.0	5.4	393.9	33.6	2.8	14.9	30.4	2.7
P40	24.2	506.2	421.7	10.9	62.5	15.3	11.3	0.9	2.5	5.7	61.4	6.2	313.2	36.2	3.9	11.9	29.7	2.8
P41	31.5	458.7	598.7	15.5	54.7	18.4	11.4	1.0	2.5	4.5	88.3	5.1	152.9	41.9	4.1	13.6	19.4	2.0
P42	29.3	53.5	401.0	36.4	32.1	14.0	17.5	0.9	2.5	3.6	58.0	5.7	198.4	31.6	4.6	7.8	18.8	1.9
P43	22.6	718.7	1517.7	26.0	24.0	35.1	15.0	0.5	2.3	10.9	107.6	5.8	295.2	36.3	35.7	8.1	125.3	10.0
P44	31.9	52.9	451.7	17.8	45.1	21.6	15.5	1.3	2.5	2.2	60.2	5.6	89.7	26.0	1.4	2.9	14.7	1.6
P45	29.6	448.7	460.0	27.4	44.4	14.4	13.8	1.0	2.6	2.0	132.1	6.2	195.7	14.3	1.0	9.9	18.9	2.1
P46	28.8	890.4	1150.3	14.1	40.1	28.0	17.8	0.9	2.5	2.1	128.4	5.2	131.2	15.8	1.4	3.1	29.0	3.3
P47	27.8	248.7	407.0	29.8	32.8	22.9	14.5	1.3	2.6	0.9	95.0	5.8	62.9	17.2	0.7	1.5	13.8	1.7
P48	28.2	726.6	487.0	16.7	52.1	16.8	14.4	1.3	2.6	2.5	53.2	5.9	90.9	28.0	2.1	5.8	19.0	2.1
P49	18.9	958.8	1135.7	26.1	41.9	17.8	14.2	1.1	2.3	2.6	76.9	5.2	69.4	21.4	2.9	5.5	22.6	2.7
P50	21.5	484.9	393.0	19.8	41.0	24.9	14.2	0.9	2.5	8.4	96.8	6.1	124.0	25.5	13.6	3.3	28.4	3.4
P51	37.0	58.7	245.7	12.8	31.9	28.1	27.3	0.9	2.6	8.3	71.6	5.6	172.0	31.2	3.6	6.6	18.2	2.1
P52	31.6	536.3	709.0	9.2	30.6	33.1	27.2	0.8	2.6	8.0	88.4	5.2	215.0	12.0	4.4	17.0	37.4	3.2
P53	31.5	1012.3	1199.0	9.5	36.9	26.2	27.5	0.6	2.5	5.8	91.4	4.8	134.0	34.5	2.5	10.9	34.6	3.3
P54	30.0	134.5	474.3	29.7	20.5	20.4	29.5	0.8	2.5	5.4	61.7	5.6	271.0	17.6	4.2	6.9	24.6	2.2
P55	37.1	119.1	404.7	43.3	19.9	26.9	10.0	1.1	2.4	3.5	93.8	5.9	185.0	12.3	9.4	5.9	21.6	2.2
P56	25.3	29.2	305.3	12.5	36.8	33.9	16.9	0.7	2.5	15.9	69.0	5.8	244.0	5.9	29.9	6.6	58.3	5.6
P57	19.2	100.5	400.0	30.7	24.9	25.7	18.8	1.1	2.5	2.9	67.0	6.9	299.0	23.5	5.1	4.8	19.0	1.9
P58	21.8	271.1	686.7	45.8	18.8	20.1	15.4	1.0	2.5	2.5	82.1	6.2	229.0	18.1	2.2	2.6	34.4	3.3
P59	21.9	282.5	1241.3	35.3	29.8	21.7	13.3	0.8	2.5	3.2	80.7	5.6	121.0	16.8	6.9	1.8	44.9	4.9
P60	28.3	292.3	757.7	17.5	25.5	31.0	26.1	1.0	2.6	2.2	56.6	5.2	62.0	14.9	1.7	7.8	17.5	2.0
P61	22.9	351.3	479.0	18.4	30.7	25.3	25.7	1.1	2.6	2.8	72.4	5.3	136.0	11.0	1.7	7.5	17.9	1.8
P62	27.9	139.9	216.0	9.0	45.4	22.0	23.7	1.1	2.5	5.5	128.6	6.3	237.0	43.4	4.2	7.8	15.0	1.4
P63	24.1	489.7	432.3	13.3	24.3	35.0	27.5	1.2	2.6	1.7	108.7	6.3	179.0	10.2	1.2	6.2	15.8	1.6

表 3.3-2 63 水田土壌で得られた ¹⁴C ガス化率と物理化学的生物学的特徴の標準値(その1)

ID	ガス化率 (%)	呼吸活性 (μg INT-F/g soil-dry/h)	ATP (RLU)	粗粒砂 (%)	細粒砂 (%)	シルト (%)	粘土 (%)	仮比重 (g/mL)	土壌粒子密度 (g/cm ³)	含水率 (%)	EC (1:5)	pH	交換性Ca	交換性K	活性Al	活性Fe	炭素	窒素
P01	0.45	-0.04	-0.07	-1.23	-0.73	0.78	1.66	0.04	-0.28	-0.27	1.21	-1.57	-0.19	0.39	-0.25	0.62	0.44	0.34
P02	0.41	1.11	-0.53	0.23	-0.02	0.66	-0.73	-1.97	-0.99	2.38	0.18	0.64	1.56	-1.32	3.94	1.94	2.82	2.53
P03	-0.86	1.88	-0.37	-0.73	-1.00	-0.52	2.30	0.31	-0.19	0.09	0.68	0.71	0.57	-0.10	-0.13	1.09	0.00	-0.08
P04	-0.97	1.18	0.81	-0.95	0.83	-0.16	0.33	-0.19	-0.21	-0.74	0.67	-0.21	0.05	-0.07	-0.44	-0.50	-0.19	-0.09
P05	-0.58	1.83	0.22	-1.40	-1.13	0.39	2.57	-0.74	0.29	-0.40	0.56	0.47	0.22	0.08	-0.19	0.18	-0.41	-0.11
P06	-1.31	-0.39	-0.35	0.04	-0.70	-0.67	1.20	-0.19	-0.02	-0.26	0.88	-1.07	0.22	-0.50	-0.33	1.30	-0.04	-0.24
P07	-1.11	-0.36	0.43	0.23	0.52	-0.60	-0.39	0.04	-0.01	0.19	-0.57	-0.34	-0.70	-0.28	0.20	-0.53	0.33	0.28
P08	-0.78	0.05	-0.09	1.01	-0.11	-1.08	-0.27	1.54	-0.08	-0.89	-0.56	0.60	-0.08	-0.05	-0.49	-1.26	-0.36	-0.47
P09	-1.01	-0.43	-0.60	-0.29	0.60	-0.60	0.13	1.20	0.50	-0.82	0.25	2.20	0.53	-1.18	-0.37	-0.99	-0.44	-0.51
P10	-0.73	0.42	2.01	0.88	-0.64	-0.85	0.28	0.70	0.17	-1.05	5.01	-0.86	-0.94	-1.34	-0.51	-0.97	-0.46	-0.57
P11	-1.83	1.44	-0.24	-0.62	-0.65	1.29	0.49	1.43	1.01	-0.73	1.15	1.87	0.62	-0.50	-0.39	0.23	-0.36	-0.39
P12	0.56	-0.74	-0.79	-0.86	-2.13	1.67	2.08	-0.19	0.08	0.36	-0.29	-0.25	0.37	-0.63	-0.38	0.99	0.32	0.15
P13	0.52	-1.37	-0.72	-1.26	0.66	1.93	-0.64	-0.52	-0.20	0.62	-0.09	-1.47	-0.60	-0.82	-0.14	-0.75	-0.14	-0.10
P14	-1.43	-0.59	-1.11	0.10	-0.09	0.99	-0.73	-1.52	-0.37	3.96	0.60	1.93	5.35	-0.68	4.85	2.14	3.98	3.23
P15	-0.29	0.03	0.11	-1.13	-1.39	0.24	2.64	-0.41	-0.04	0.56	1.03	-0.39	0.56	-0.22	-0.39	0.53	-0.46	-0.32
P16	1.08	-1.49	-0.82	-1.35	-0.88	1.28	1.60	1.04	0.51	1.61	1.60	-0.09	-0.72	-0.76	-0.48	0.09	-0.60	-0.53
P17	0.74	-0.37	-0.56	-1.46	-0.72	1.46	1.42	-0.46	0.23	1.44	0.08	-0.64	0.91	0.18	-0.40	2.72	-0.25	-0.04
P18	-0.41	-1.26	-1.09	0.15	-0.56	0.48	0.08	-1.08	0.32	1.25	-0.46	0.82	-0.03	0.65	0.20	0.35	0.07	0.00
P19	-0.63	0.12	-1.03	-0.82	1.05	0.42	-0.48	1.43	6.86	-0.73	-0.46	1.97	1.27	-0.52	-0.45	-0.79	-0.64	-0.55
P20	0.49	0.02	-0.21	0.74	-0.53	-0.85	0.32	-0.30	0.11	-0.58	0.06	-0.78	0.10	-0.92	-0.47	-0.57	-0.51	-0.51
P21	-0.08	-0.62	-1.04	-0.31	0.46	0.48	-0.48	1.87	0.67	-0.24	-1.02	0.46	-0.62	-0.59	-0.49	-0.84	-0.64	-0.57
P22	0.28	0.98	0.13	-1.19	-0.13	2.05	0.04	0.31	0.17	0.17	-0.45	-0.56	0.99	3.49	-0.45	-0.57	-0.32	0.00
P23	0.24	0.06	-0.22	1.07	-0.56	-1.06	0.12	1.04	0.34	-0.71	-0.56	-0.80	-0.64	-0.02	-0.53	-0.47	-0.61	-0.56
P24	0.27	-1.52	-1.39	-0.31	1.33	-0.30	-0.85	0.93	-0.32	0.87	0.73	0.57	-0.76	-0.56	0.06	-1.08	-0.73	-0.63
P25	0.18	-0.28	0.31	-0.26	0.28	-0.19	0.14	-0.58	-0.18	-0.28	-0.01	-1.81	-1.00	1.66	-0.39	0.74	-0.19	-0.39
P26	-1.36	1.06	1.77	0.09	-0.37	0.42	-0.02	-1.30	-0.73	-0.34	0.19	-0.97	-0.66	0.75	-0.29	-0.17	0.24	0.24
P27	-0.20	2.78	0.93	-0.36	-1.50	2.19	0.44	-1.24	-0.25	0.02	-0.48	-0.02	1.35	1.40	-0.28	2.00	0.91	0.32
P28	1.54	0.14	-0.83	0.89	-1.16	-0.19	0.34	-0.19	0.29	-0.07	-0.84	-0.43	0.33	-1.17	-0.02	1.16	-0.25	-0.34
P29	0.14	0.20	0.38	-0.31	0.20	0.92	-0.53	-1.35	-0.39	0.34	-0.76	-0.51	-0.72	0.37	0.72	-0.37	0.75	1.08
P30	-1.16	0.39	0.75	-0.57	0.86	-0.12	-0.17	-0.58	0.50	-0.78	-0.29	-0.55	-1.04	2.46	-0.36	-0.97	-0.62	-0.78

表 3.3-2 63 水田土壌で得られた ¹⁴C ガス化率と物理化学的生物学的特徴の標準値(その2)

ID	ガス化率 (%)	呼吸活性 (μg INT-F/g soil-dry/h)	ATP (RLU)	粗粒砂 (%)	細粒砂 (%)	シルト (%)	粘土 (%)	仮比重 (g/mL)	土壌粒子密度 (g/cm ³)	含水率 (%)	EC (1:5)	pH	交換性Ca	交換性K	活性Al	活性Fe	炭素	窒素
P31	-0.55	0.54	0.10	0.09	0.00	-1.15	0.73	0.65	-0.12	-0.36	-0.81	-0.28	-0.09	-0.18	-0.34	-0.05	-0.57	-0.71
P32	0.75	-1.09	-0.63	1.70	-1.02	-0.39	-0.61	-0.74	-0.03	0.19	-1.27	0.21	-0.38	-0.08	-0.04	-0.43	0.04	-0.39
P33	0.78	2.18	0.45	0.14	-0.36	0.92	-0.45	-0.41	0.00	-0.87	2.48	1.96	-0.05	-0.12	-0.51	-1.08	0.09	-0.01
P34	-1.05	1.97	0.32	3.76	-1.75	-1.98	-1.08	0.48	0.09	-1.09	-0.89	0.86	-1.01	-1.34	-0.50	-0.94	-0.61	-0.94
P35	1.27	-0.50	0.23	0.93	0.29	-0.99	-0.68	1.43	-0.69	-0.79	-1.12	0.15	-0.89	-0.64	-0.30	-0.82	-0.58	-0.58
P36	0.21	0.12	0.68	-1.23	-1.34	1.29	1.95	0.09	-0.40	-0.04	-0.04	-0.93	-0.54	0.53	-0.07	0.75	-0.28	-0.12
P37	-0.39	-0.91	-0.54	-0.34	-0.35	-0.50	1.14	-0.80	0.75	-0.22	-0.77	0.39	-0.66	-0.47	0.96	-0.73	-0.16	0.12
P38	1.27	-0.77	-0.63	0.79	1.24	-1.70	-1.03	-0.19	-0.48	0.16	-0.78	-0.39	-0.30	-0.28	-0.14	0.89	-0.48	-0.48
P39	1.35	0.17	0.66	-0.77	0.38	-0.15	0.60	0.20	0.11	0.32	0.10	-0.70	1.78	1.11	-0.34	1.69	0.10	0.00
P40	-0.52	0.09	-0.59	-0.74	3.00	-1.46	-1.31	-0.58	-0.28	0.19	-0.88	1.02	1.06	1.35	-0.23	0.97	0.06	0.02
P41	1.18	-0.05	0.06	-0.35	2.27	-1.03	-1.29	-0.02	-0.46	-0.15	-0.05	-1.32	-0.37	1.89	-0.21	1.39	-0.45	-0.49
P42	0.66	-1.21	-0.66	1.45	0.17	-1.64	-0.68	-0.19	-0.35	-0.42	-0.98	-0.05	0.03	0.92	-0.16	0.01	-0.48	-0.58
P43	-0.89	0.70	3.41	0.55	-0.59	1.28	-0.93	-2.35	-1.61	1.70	0.55	0.04	0.90	1.36	2.91	0.10	4.85	5.06
P44	1.27	-1.22	-0.48	-0.15	1.38	-0.59	-0.88	1.76	-0.29	-0.81	-0.92	-0.33	-0.94	0.40	-0.48	-1.13	-0.69	-0.74
P45	0.73	-0.08	-0.45	0.67	1.31	-1.58	-1.06	-0.08	0.41	-0.89	1.30	0.97	0.01	-0.70	-0.51	0.51	-0.48	-0.40
P46	0.54	1.19	2.07	-0.47	0.92	0.30	-0.65	-0.35	-0.43	-0.85	1.19	-1.09	-0.57	-0.56	-0.47	-1.07	0.03	0.37
P47	0.32	-0.65	-0.64	0.87	0.23	-0.41	-0.98	1.65	-0.07	-1.18	0.16	0.14	-1.18	-0.42	-0.54	-1.45	-0.73	-0.72
P48	0.40	0.72	-0.35	-0.25	2.03	-1.25	-1.00	1.70	0.28	-0.73	-1.13	0.35	-0.93	0.59	-0.41	-0.45	-0.47	-0.41
P49	-1.75	1.39	2.01	0.56	1.08	-1.12	-1.01	0.59	-1.45	-0.71	-0.40	-1.13	-1.12	-0.03	-0.33	-0.51	-0.29	0.02
P50	-1.16	0.03	-0.69	0.02	1.00	-0.13	-1.01	-0.46	-0.70	0.97	0.21	0.82	-0.63	0.35	0.73	-1.03	0.00	0.45
P51	2.47	-1.20	-1.23	-0.58	0.15	0.31	0.30	-0.30	0.45	0.94	-0.56	-0.27	-0.20	0.89	-0.26	-0.26	-0.51	-0.40
P52	1.21	0.17	0.46	-0.89	0.03	1.00	0.29	-0.74	0.05	0.85	-0.05	-1.07	0.18	-0.91	-0.18	2.18	0.45	0.33
P53	1.17	1.54	2.25	-0.87	0.61	0.05	0.32	-1.91	-0.54	0.22	0.05	-1.88	-0.54	1.20	-0.37	0.75	0.31	0.39
P54	0.83	-0.98	-0.40	0.87	-0.92	-0.75	0.52	-0.74	-0.28	0.10	-0.87	-0.27	0.68	-0.38	-0.20	-0.19	-0.19	-0.35
P55	2.48	-1.03	-0.65	2.04	-0.97	0.14	-1.43	0.70	-0.95	-0.44	0.12	0.34	-0.09	-0.88	0.31	-0.43	-0.34	-0.36
P56	-0.27	-1.28	-1.01	-0.61	0.60	1.11	-0.74	-1.74	-0.29	3.13	-0.64	0.14	0.44	-1.48	2.33	-0.27	1.50	2.01
P57	-1.68	-1.08	-0.67	0.95	-0.51	-0.02	-0.55	0.87	-0.49	-0.62	-0.71	2.36	0.93	0.17	-0.11	-0.69	-0.47	-0.60
P58	-1.08	-0.59	0.38	2.25	-1.07	-0.79	-0.89	-0.02	-0.14	-0.73	-0.24	0.95	0.31	-0.34	-0.40	-1.19	0.30	0.40
P59	-1.07	-0.56	2.40	1.35	-0.05	-0.57	-1.10	-0.85	-0.33	-0.53	-0.28	-0.27	-0.66	-0.46	0.07	-1.39	0.83	1.52
P60	0.42	-0.53	0.64	-0.18	-0.45	0.71	0.18	0.31	0.33	-0.82	-1.03	-1.07	-1.19	-0.64	-0.45	0.02	-0.55	-0.51
P61	-0.82	-0.36	-0.38	-0.10	0.04	-0.08	0.14	0.93	0.11	-0.65	-0.54	-0.87	-0.52	-1.00	-0.45	-0.05	-0.53	-0.67
P62	0.34	-0.97	-1.34	-0.91	1.41	-0.53	-0.06	0.76	-0.47	0.13	1.19	1.15	0.38	2.03	-0.20	0.02	-0.67	-0.89
P63	-0.55	0.04	-0.55	-0.54	-0.56	1.26	0.32	1.26	0.45	-0.96	0.58	1.15	-0.14	-1.08	-0.49	-0.35	-0.63	-0.76

表 3.3-3 ¹⁴C ガス化率と物理化学生物学的特徴データの単相関係数

特徴	相関係数	特徴	相関係数
呼吸活性	-0.284	EC (1:5)	-0.083
ATP	-0.233	pH	-0.329
粗粒砂	-0.069	交換性Ca	-0.136
細粒砂	0.064	交換性K	0.055
シルト	0.047	活性Al	-0.149
粘土	-0.021	活性Fe	0.203
仮比重	0.006	炭素	-0.19
土壌粒子密度	-0.063	窒素	-0.193
含水率	0.076		

表 3.3-4 ステップワイズ法により得られた AIC

除去パラメータ	AIC
なし	3.85
- 含水率	1.86
- 土壌粒子密度	-0.13
- 仮密度	-2.12
- 呼吸活性	-4.06
- 交換性Ca	-5.94
- 交換性K	-7.68
- C	-8.95
- N	-10.75
- EC	-11.53
- 粘土	-12.34

表 3.3-5 各説明変数の係数値と統計量

	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

表 3.3-6 選定土壌の採取地および土壌タイプ

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

表 3.4-1 水稲内コンパートメント間の ¹⁴C 移行に関するパラメータとその不確かさ幅

No.	パラメータ	適用条件	変数記号	基準値	不確かさ幅	分布形	単位
1	CO ₂ の近傍大気からの吸収割合	水稲生育期間	R_AIR	0.984	0.95-1.0	一樣	-
2	吸収したCO ₂ に対する茎葉部の成長呼吸の割合	水稲生育期間	BET_P	0.25	0.15-0.35	一樣	-
3	吸収したCO ₂ に対する穂部の成長呼吸の割合	出穂以降	BET	0.15	0.07-0.2	一樣	-
4	吸収したCO ₂ に対する茎葉部の維持呼吸の割合	乳熟期(120日)前	BET2_P2	0.01	0.0023-0.021	一樣	-
5	同上	乳熟期(120日)後	BET2_P3	0.01	0.0023-0.021	一樣	-
6	吸収したCO ₂ に対する穂部の維持呼吸の割合	乳熟期(120日)前	BET2_2	0.01	0.0023-0.021	一樣	-
7	同上	乳熟期(120日)後	BET2_3	0.01	0.0023-0.021	一樣	-
8	γアクトマー*のパラメータ A	水稲生育期間	WB_A	1.02	1.02-2.00	一樣	-
9	γアクトマー*のパラメータ B	水稲生育期間	WB_B	0.6	0.45-0.75	一樣	-
10	γアクトマー*のパラメータ d	水稲生育期間	WB_BK	0.04	0.0-0.1	一樣	-
11	γアクトマー*のパラメータ C	水稲生育期間	WB_C	0.45	不変	一樣	-

* γアクトマーは穂部への光合成産物直接供給割合を意味し、WEIBULL関数で表される。

表 3.4-2 収穫時の穂部内 ¹⁴C 存在量に対する水稲内パラメータの寄与

No.	パラメータ	変数記号	PCC*	PRCC*
			相関係数	相関係数
1	CO ₂ の近傍大気からの吸収割合	R_AIR	0.06(8)	0.06(9)
2	吸収したCO ₂ に対する茎葉部の成長呼吸の割合	BET_P	0.29(7)	0.21(7)
3	吸収したCO ₂ に対する穂部の成長呼吸の割合	BET	0.69(5)	0.58(5)
4	吸収したCO ₂ に対する茎葉部の維持呼吸の割合	BET2_P2	-0.06(9)	0.02(10)
5	同上	BET2_P3	0.86(3)	0.81(3)
6	吸収したCO ₂ に対する穂部の維持呼吸の割合	BET2_2	-0.02(10)	-0.09(8)
7	同上	BET2_3	-0.83(4)	-0.74(4)
8	γアクトマー*のパラメータ A	WB_A	-0.94(1)	-0.92(1)
9	γアクトマー*のパラメータ B	WB_B	-0.92(2)	-0.9(2)
10	γアクトマー*のパラメータ d	WB_BK	-0.33(6)	-0.29(6)
11	γアクトマー*のパラメータ C	WB_C		

* ()内は順位

表 3.4-3 多年解析に係わる ¹⁴C 移行に関するパラメータとその不確かさ幅

No.	パラメータ	適用条件	変数記号	基準値	不確かさ幅	分布形	単位
1	茎葉部 (刈り株) 内の易分解成分比率		R_LT_ORG	0.4	0.3 - 0.5	一様	—
2	リター1から土壌1への移行半減期	易分解成分の分解半減期	T_HF_LSI	73	73 - 168	対数一様	day
3	リター2から土壌2への移行半減期	難分解成分の分解半減期	T_HF_LS2	730	730 - 2810	対数一様	day

表 3.4-4 収穫時の穂部内 ¹⁴C 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	変数記号	PCC*	PRCC*
1	茎葉部 (刈り株) 内の易分解成分比率	R_LT_ORG	-0.94 (2)	-0.95 (2)
2	リター1から土壌1への移行半減期	T_HF_LSI	0.83 (3)	0.90 (3)
3	リター2から土壌2への移行半減期	T_HF_LS2	-0.99 (1)	-0.99 (1)

* ()内は順位

表 3.4-5 水稻全体モデルにおける重要モデルパラメータと不確かさ幅

No.	パラメータ	適用条件	変数記号	基準値	不確かさ幅	分布形	単位
a	近傍大気⇄環境大気の交換半減期	水稻生育期間	HALF_ENV1~3	0.1	0.01-1	対数一様	day
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)	水稻生育期間の落水期	T_HF_SA2	2.5	1.9-24	一様	day
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	水稻生育期間	WB_A	1.02	1.02-2.00	一様	—
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	水稻生育期間	WB_B	0.6	0.45-0.75	一様	—
e	茎葉部の維持呼吸の割合 - 乳熟期後	乳熟期(120日)後	BET2_P2	0.01	0.0023-0.021	一様	—
f	穂部の維持呼吸の割合 - 乳熟期後	乳熟期(120日)後	BET2_2	0.01	0.0023-0.021	一様	—
g	リター2→土壌2への移行半減期	全期間	T_HF_LS2	730	730-2810	一様	day

表 3.4-6 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

No.	パラメータ	変数記号	PCC*	PRCC*
			相関係数	相関係数
a	近傍大気⇄環境大気の交換半減期	HALF_ENV1~	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)	T_HF_SA2	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	WB_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	WB_B	0.11 (6)	-0.10 (7)
e	茎葉部の維持呼吸の割合-乳熟期後	BET2_P2	0.12 (5)	0.11 (6)
f	穂部の維持呼吸の割合-乳熟期後	BET2_2	0.21 (3)	-0.12 (5)
g	リター2→土壌2への移行半減期	T_HF_LS2	0.19 (4)	-0.22 (4)

* ()内は順位

表 3.4-7 水稻全体モデルを構成するパラメータ

No.*	コンパートメント	説明	タイプ
1	Plant_inorg	水稻全体の無機炭素	Dynamic compartment
2	Ear_org	穂部	Dynamic compartment
3	StemLeaf_org	茎葉部	Dynamic compartment
4	Soil 1	土壌1	Dynamic compartment
5	Air	近傍大気	Dynamic compartment
6	Sink-soil	土壌からの流出	Sink
7	Conc. in inorg	無機炭素中の ^{14}C 濃度	Static compartment
8	Conc. in SL	茎葉部の ^{14}C 濃度	Static compartment
9	Conc. in Ear	穂部の ^{14}C 濃度	Static compartment
10	Conc. in Air	近傍大気の ^{14}C 濃度	Static compartment
11	Conc. in S1	土壌1の ^{14}C 濃度	Static compartment
12	Soil 2	土壌2	Dynamic compartment
13	Atmosphere	環境大気	Dynamic compartment
14	Irrigation water	灌漑水	Dynamic compartment
15	Conc. in Atmos	環境大気の ^{14}C 濃度	Static compartment
16	Conc. in S2	土壌2の ^{14}C 濃度	Static compartment
17	Conc. in Water	灌漑水の ^{14}C 濃度	Static compartment
18	Source 2	流入	Source
19	Litter2	リター2(難分解性)	Dynamic compartment
20	Sink-air	大気からの流出	Sink
21	Conc in Litter2	リター2の ^{14}C 濃度	Static compartment
22	Sink-ear	収穫による流出	Sink
23	Litter1	リター1(易分解性)	Dynamic compartment
24	Conc. in Litter1	リター1の ^{14}C 濃度	Static compartment
25	Source 3	流入	Source

* No. は図3.4-21に示す番号と一致する。

表 3.4-8 流入・流出にかかわるモデルパラメータ

パラメータ	変動幅*	単位	根拠
灌漑水が曝露源の時の初期分配比率	近傍大気	34~43~54	% ワイファースト(2010)
	灌漑水	2~5~11	% //
	土壌2	38~52~61	% //
放出源から灌漑水への流入速度	解析条件による	Bq/day	
Sinkへの流出半減期	環境大気から	0.1	day 仮定
	土壌1から	1,000	day 仮定:土壌深層への移行はほとんど無し
	土壌2から	1,000	day 仮定:土壌深層への移行はほとんど無し
	灌漑水から	1	day 仮定

* "最小値~基準値~最大値"として記載

ワイファースト, 2010. 平成21年度 炭素 (C-14)の水稲移行モデルにおける移行パラメータの検討

表 3.4-9 水稲にかかわるモデルパラメータ

パラメータ	基準値	単位	根拠
耕作区分 代掻き開始日	0	day	日本の平均的な水稲栽培暦を参照
	田植え日	20	day //
	幼保形成期	46	day //
	出穂/開花期	83	day //
	登熟期開始	120	day //
	収穫日	150	day //
成長曲線関数(生長度合い)	茎葉部	0	l/day 放医研(2010)
	穂部	0.063	l/day //
成長曲線関数(1/2最大重量となる日数)	茎葉部	66	day 放医研(2010)
	穂部	120	day //
収穫時乾燥重量	茎葉部	50	g 実測に基づく
	穂部	50	g //
水稲による炭素取り込み	近傍大気	0.984	- 田上ら(2010)
維持呼吸による稲の炭素取り込み	近傍大気	0.02	day
	土壌1	2.5	day 光合成による炭素取り込みを満足させる為の半減期
無機炭素割合	水稲全体	0.02	-
有機炭素割合	茎葉部	0.37	- 石津ら(1986)
	穂部	0.4	- 実測(未発表)
生長呼吸に利用される有機炭素の割合	茎葉部	0.25	- 大崎と田中(1979)
	穂部	0.15	- //
維持呼吸に利用される有機炭素の割合	茎葉部	0.01	- Amthor(1989)
	穂部	0.01	- //
穂部への光合成産物の移行割合	γ係数A	1.02	- ワイファースト(2010)
	γ係数B	0.6	- //
	γ係数C	0.45	- //
	γ係数d	0.04	- //

放医研, 2010. 平成21年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 放射性核種生物圏移行評価高度化調査

田上ら, 2009. RADIOISOTOPES 58, 641-648.

石津ら, 1986. 図解 生物学データブック, 丸善, 東京.

大崎と田中, 1979. 土肥誌 50, 540-546.

Amthor, J.S., 1989. Respiration and crop productivity. Springer-Verlag, New York.

表 3.4-10 環境にかかわるモデルパラメータ

パラメータ	変動幅*	単位	根拠
環境大気 容量	10 ⁶	m ³	仮定(開放系を想定)
炭素濃度	0.15	g-C/m ³	大気中のCO ₂ 濃度から算出
近傍大気 容量	10 ⁵	m ³	仮定
炭素濃度	0.15	g-C/m ³	大気中のCO ₂ 濃度から算出
土壌 容量	10	m ³	水稲が生育する範囲の土壌堆積を想定
炭素濃度	9,540	g-C/m ³	実測値
土壌2の割合	1	-	放医研(2009)
灌漑水 容量	10	m ³	仮定
炭素濃度	0.16~12.18~19.6	g-C/m ²	CO ₂ の溶解度から算出
リター 容量	1	m ³	仮定
炭素濃度	100	g-C/m ²	茎葉部重量の2倍と仮定
リター1の割合	0.4	-	
近傍大気と環境大気との交換半減期	0.01~0.1~1	day	放医研(2016)
近傍大気から灌漑水への移行半減期	4~25~25	day	放医研(2009)
灌漑水から近傍大気への移行半減期	0.5~2~2	day	放医研(2010)
近傍大気から土壌1への移行半減期	4~25~25	day	放医研(2009);
土壌1から近傍大気への移行半減期	1,000	day	直接移行は極めて少ないと仮定
水耕期	1.9~2.5~24	day	放医研(2015)
中干し期	27~67~114	day	放医研(2015)
休閑期	1.9~6.1~24	day	放医研(2015)
灌漑水から土壌1への移行半減期	1.9~6.1~24	day	放医研(2015)
土壌1から灌漑水への移行半減期	0.5~2~2	day	放医研(2010)
灌漑水から土壌2への移行半減期	1.5~1.5~10	day	放医研(2010)
土壌2から土壌1への移行半減期	73~73~168	day	志賀ら(1985), 速見(1985)
リター1から土壌1への移行半減期	730~730~2,810	day	志賀ら(1985), 速見(1985)

* "最小値~基準値~最大値"として記載

放医研. 2009. 平成20年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 放射性核種生物圏移行評価高度化調査
 放医研. 2010. 平成21年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 放射性核種生物圏移行評価高度化調査
 放医研. 2015. 平成26年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 放射性核種生物圏移行評価高度化調査
 放医研. 2016. 平成27年度放射性廃棄物共通技術調査等委託費 放射性核種生物圏移行評価高度化調査
 志賀ら, 1985. 環境条件別の有機物の分解率とその年次変化(1)施用有機物分解の地域間差.
 速見, 1985. 各種有機物資材の分解特性.

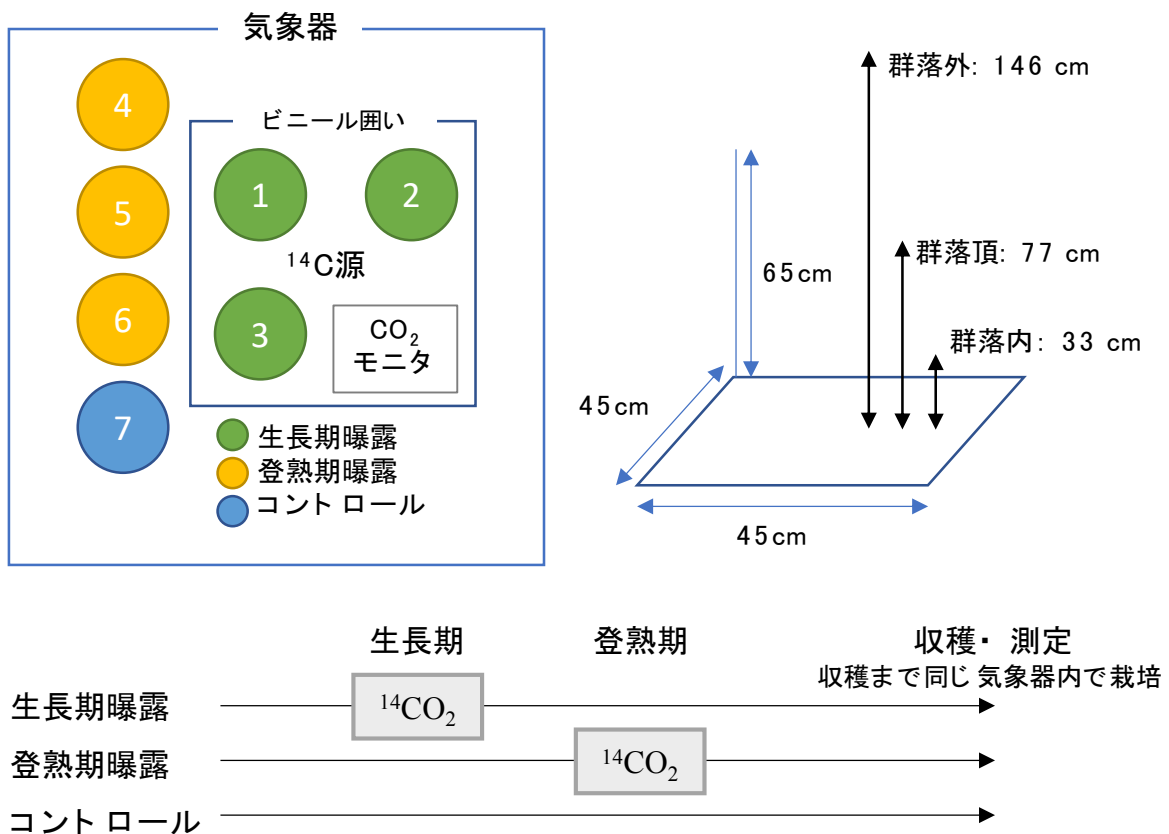


図 3.2-1 トレーサー実験の概略図
生長期曝露、登熟期曝露およびコントロールは、曝露期間も含め同じ気象器内で同じ期間栽培を継続した。

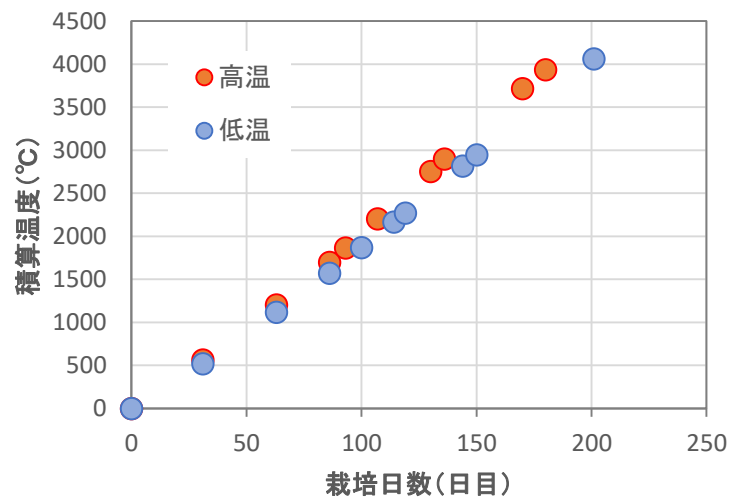


図 3.2-2 各温度条件における培養期間の積算温度

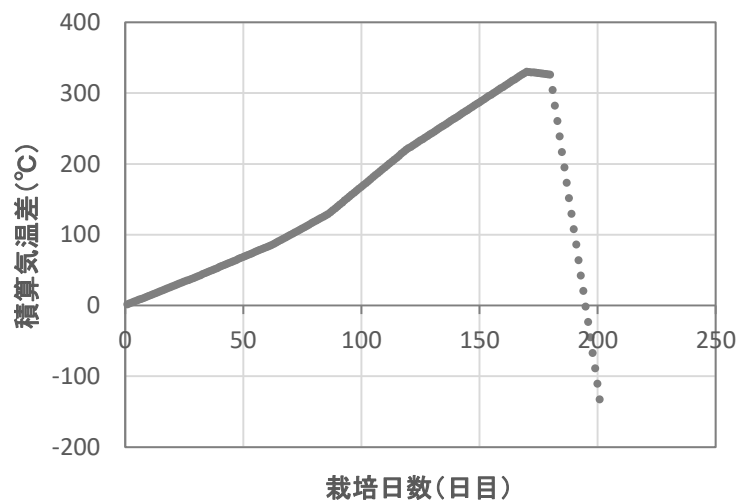


図 3.2-3 高温条件と低温条件における積算温度差

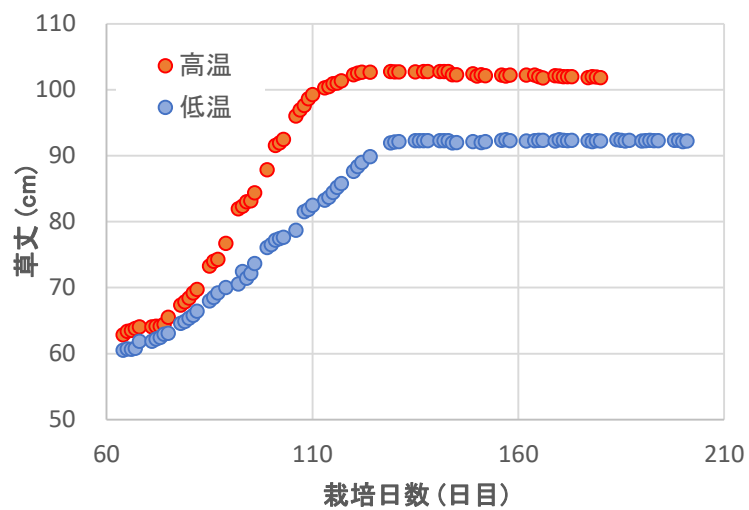


図 3.2-4 各栽培条件における水稲草丈の変化

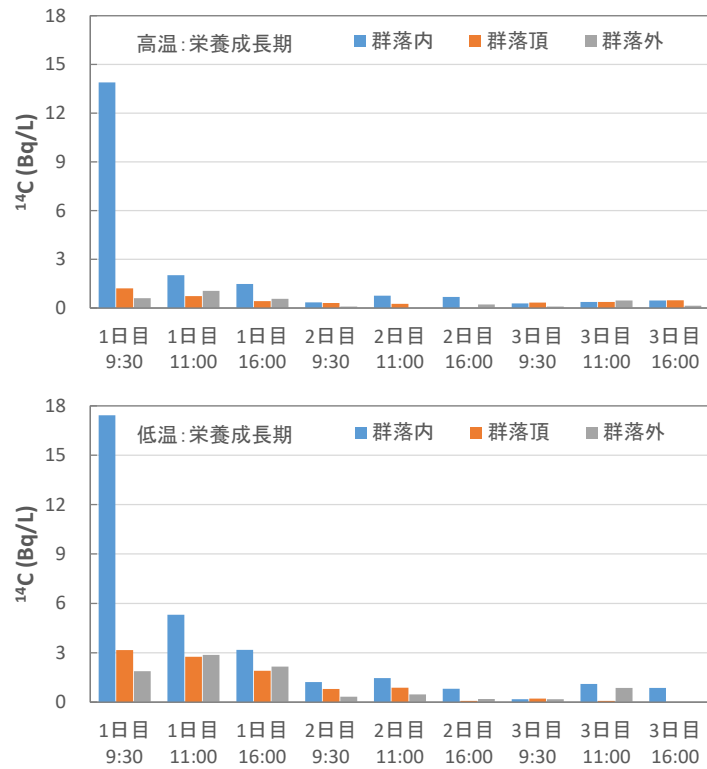


図 3.2-5 栄養成長期における ^{14}C 暴露期間中の群落内、群落頂、および群落外の大気中 ^{14}C 濃度

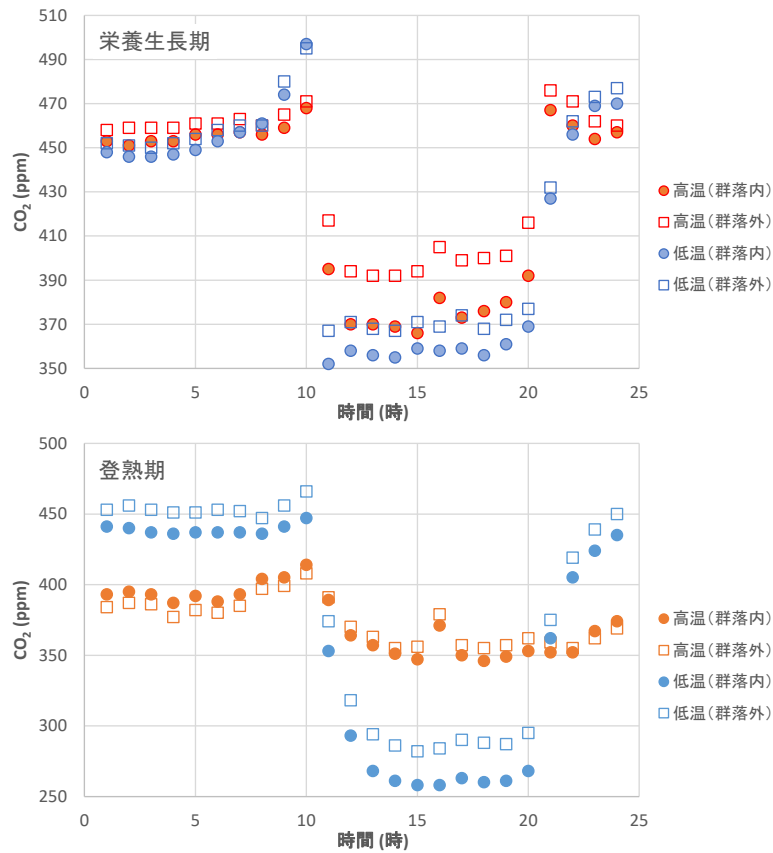


図 3.2-6 栄養成長期と登熟期における ^{14}C 暴露 2 日目の群落内および群落外大気中 CO_2 濃度の経時変化

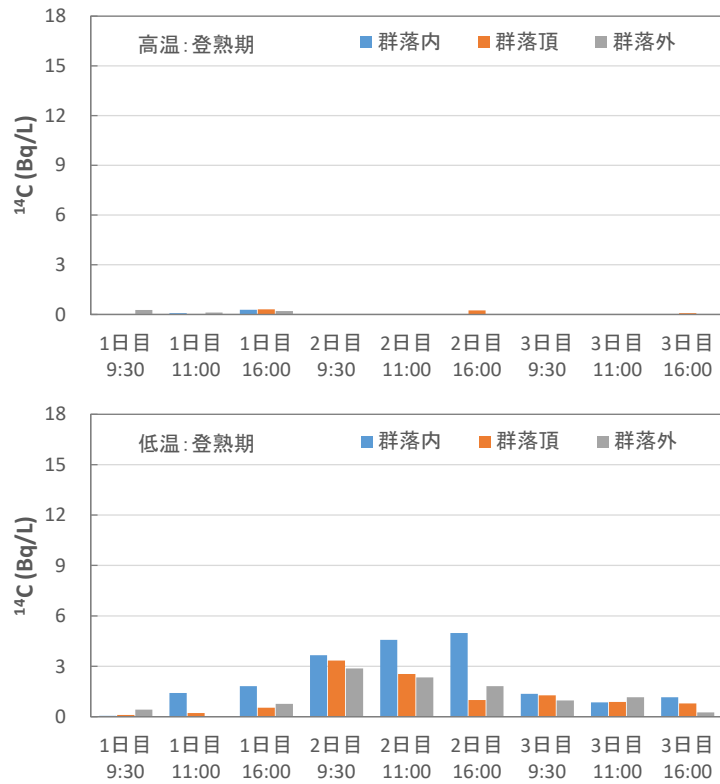


図 3.2-7 登熟期における ^{14}C 暴露期間中の群落内、群落頂、および群落外の大気中 ^{14}C 濃度

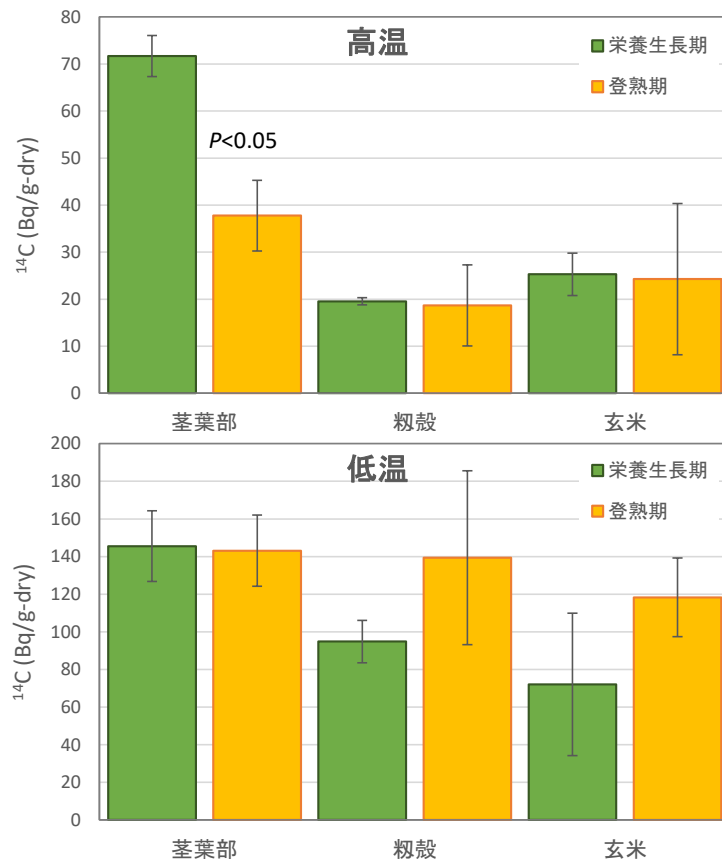


図 3.2-8 収穫した水稻の各部位における ^{14}C 濃度

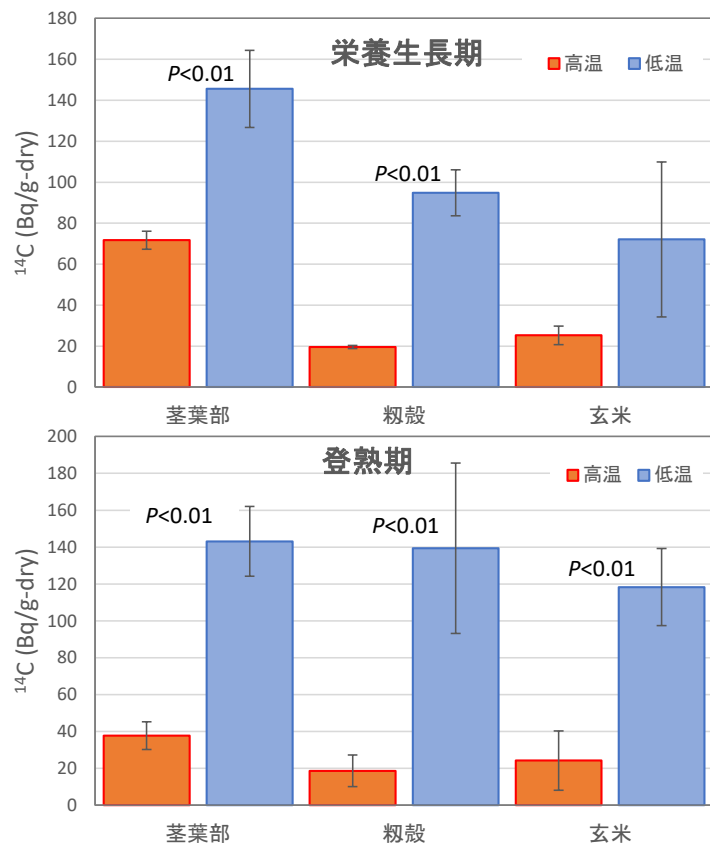


図 3.2-9 収穫した水稻の各部位における ^{14}C 濃度に対する気温の効果

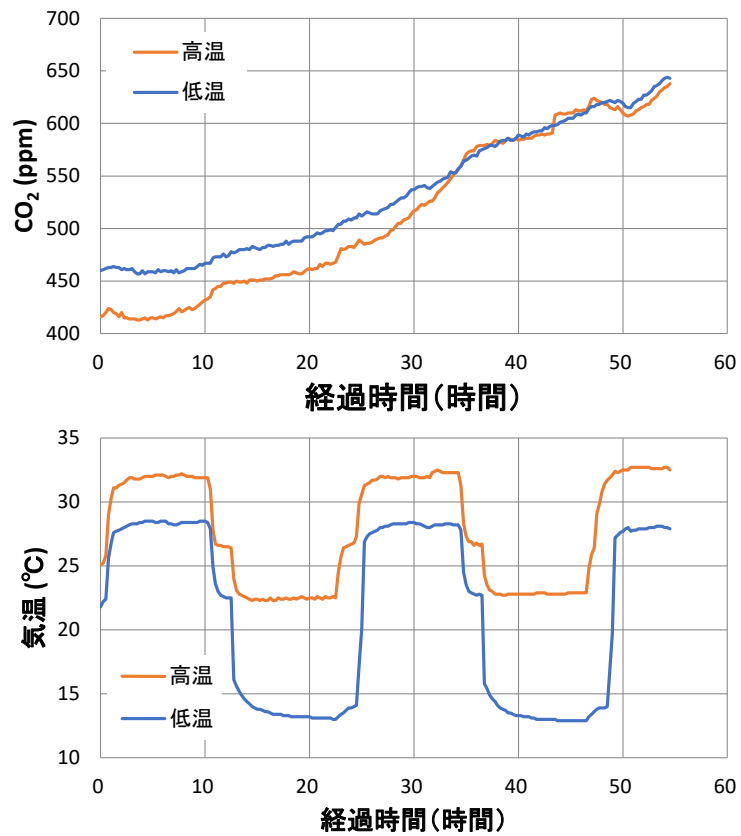


図 3.2-10 デシケーター内の CO₂ 濃度と気温の経時変化

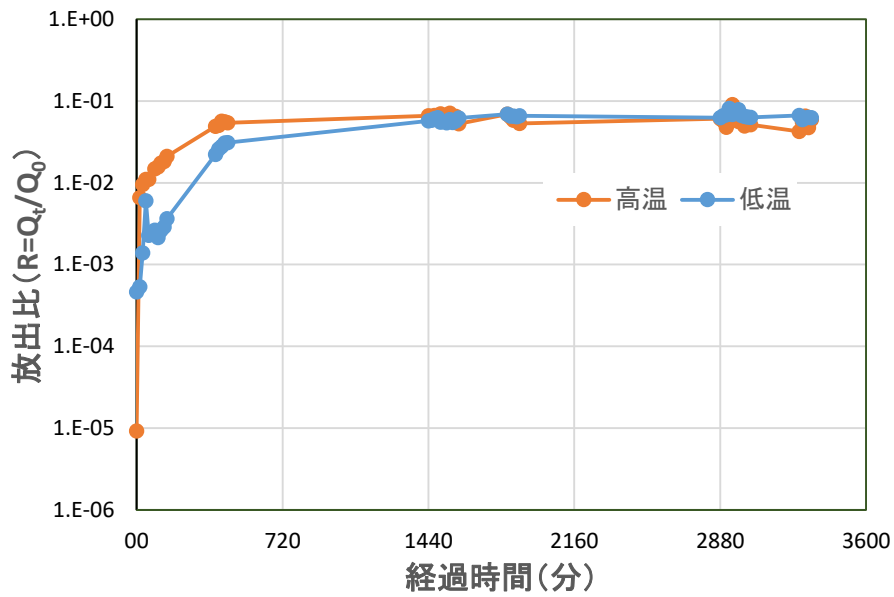


図 3.2-11 デシケーター内における ^{14}C 放出比に対する気温の効果

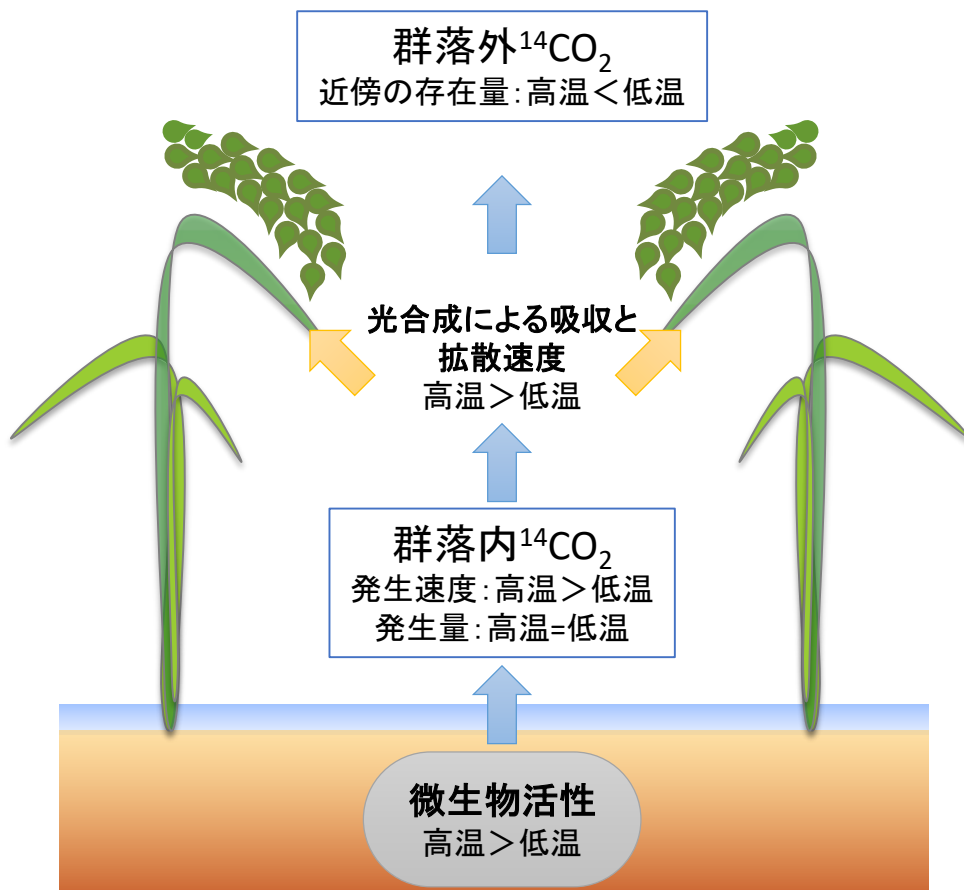


図 3.2-12 温度変化に伴う微生物活動の変化と ^{14}C の玄米への移行量の関係

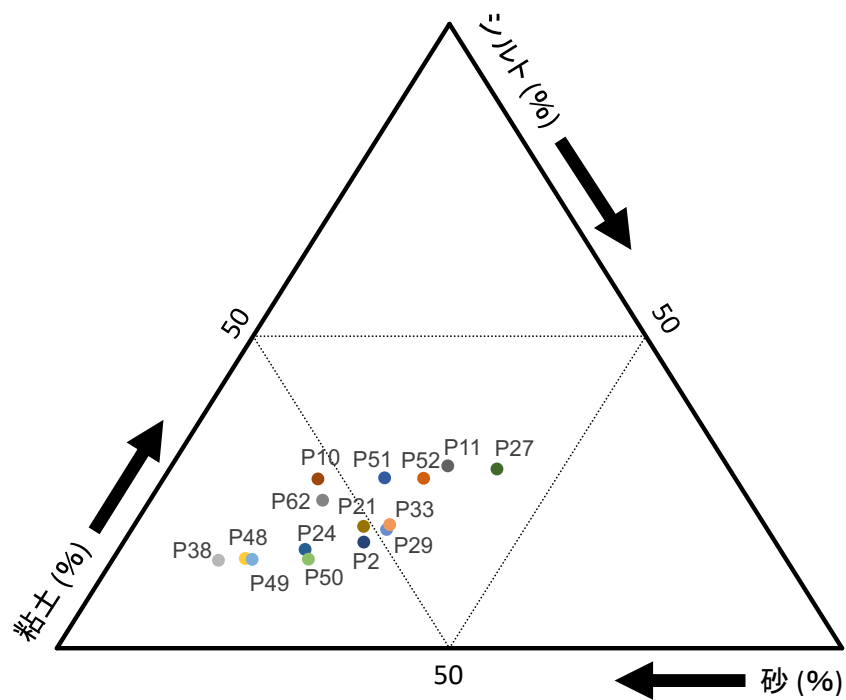


図 3.3-1 選定土壌の土性三角図

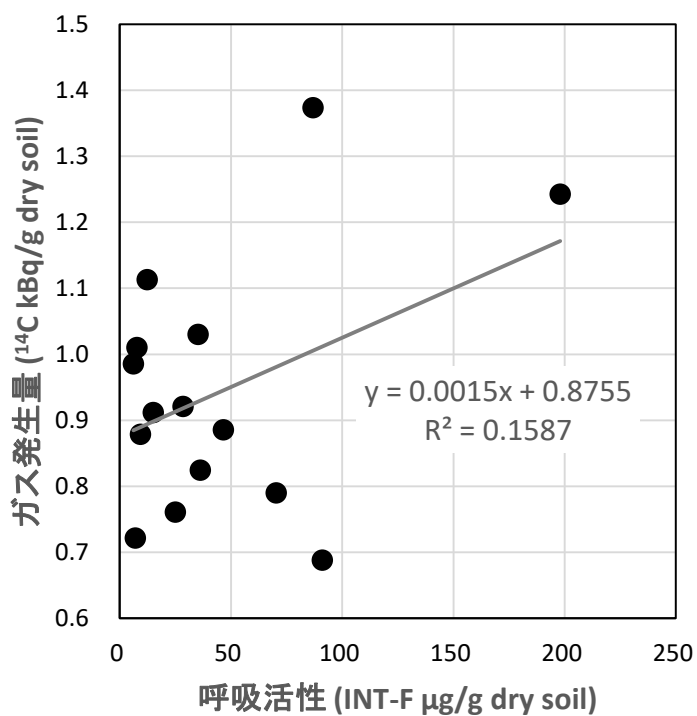


図 3.3-2 土壌呼吸活性と麦芽糖由来の $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生率の関係

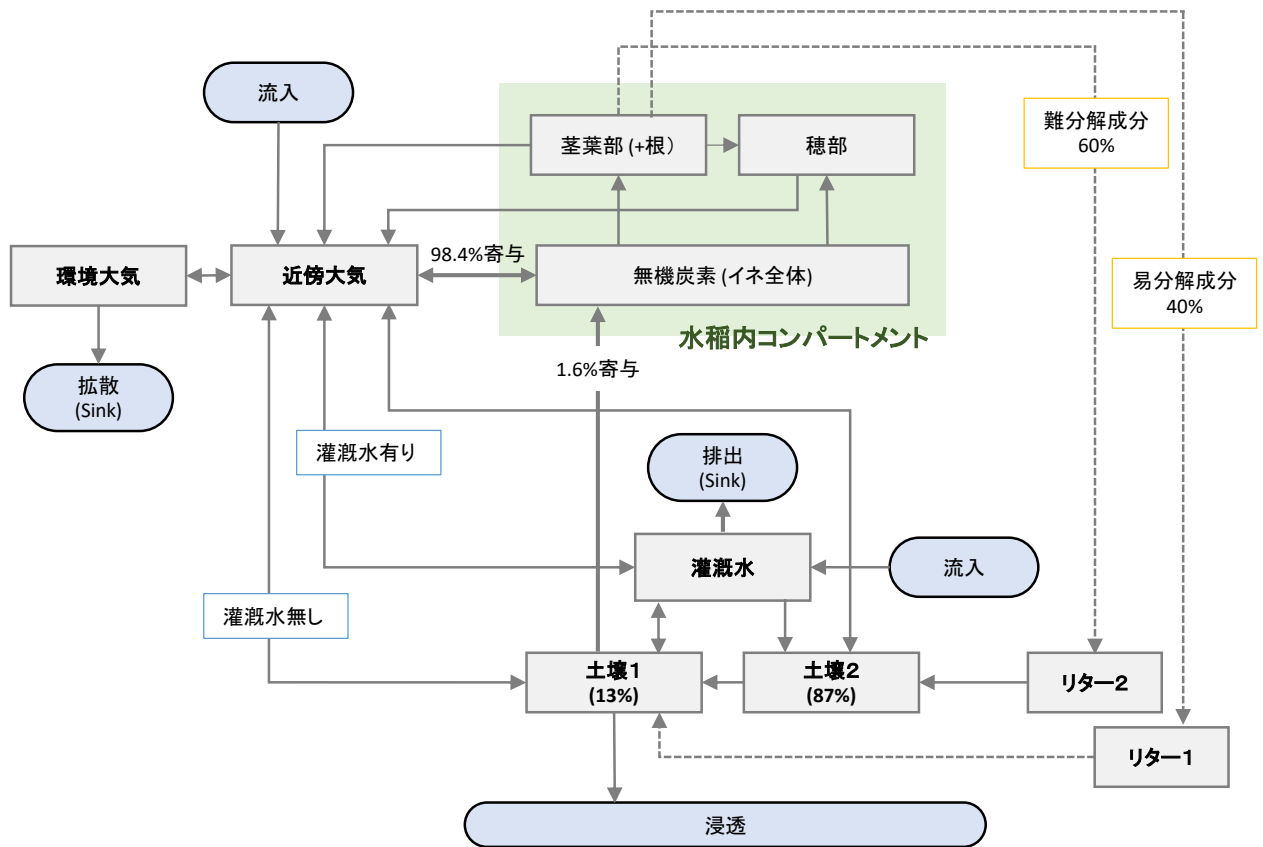


図 3.4-1 水稲全体モデルの概念図

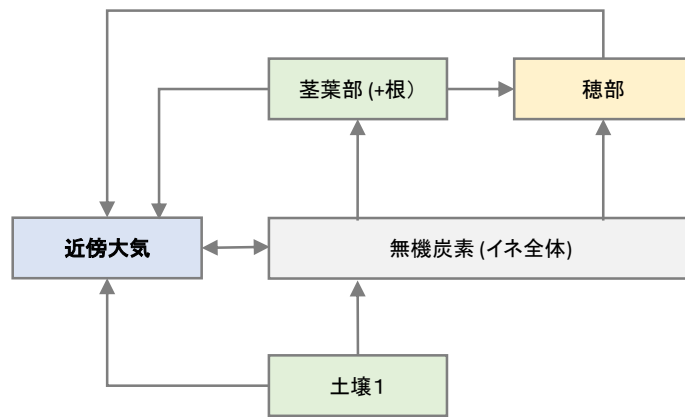


図 3.4-2 水稲内部コンパートメントおよび近傍大気間の各パラメータの関係

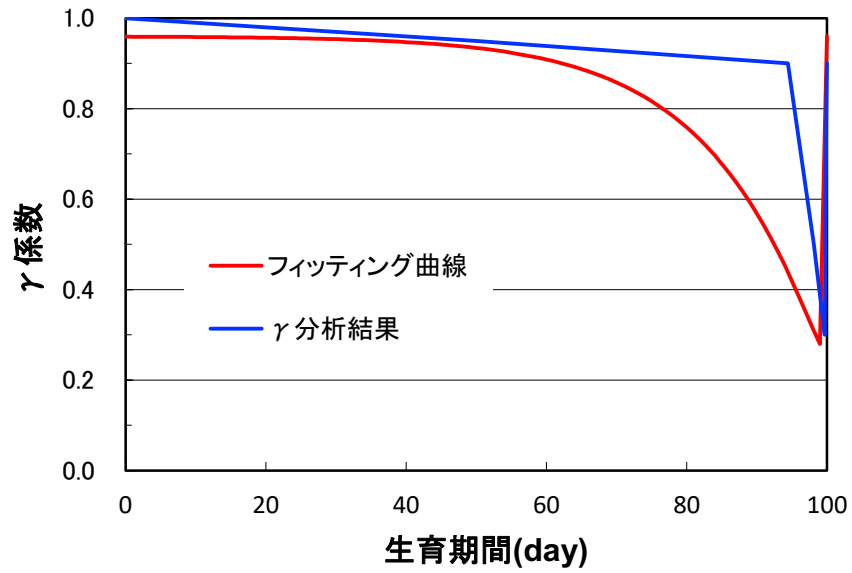


図 3.4-3 γ 係数フィッティング結果

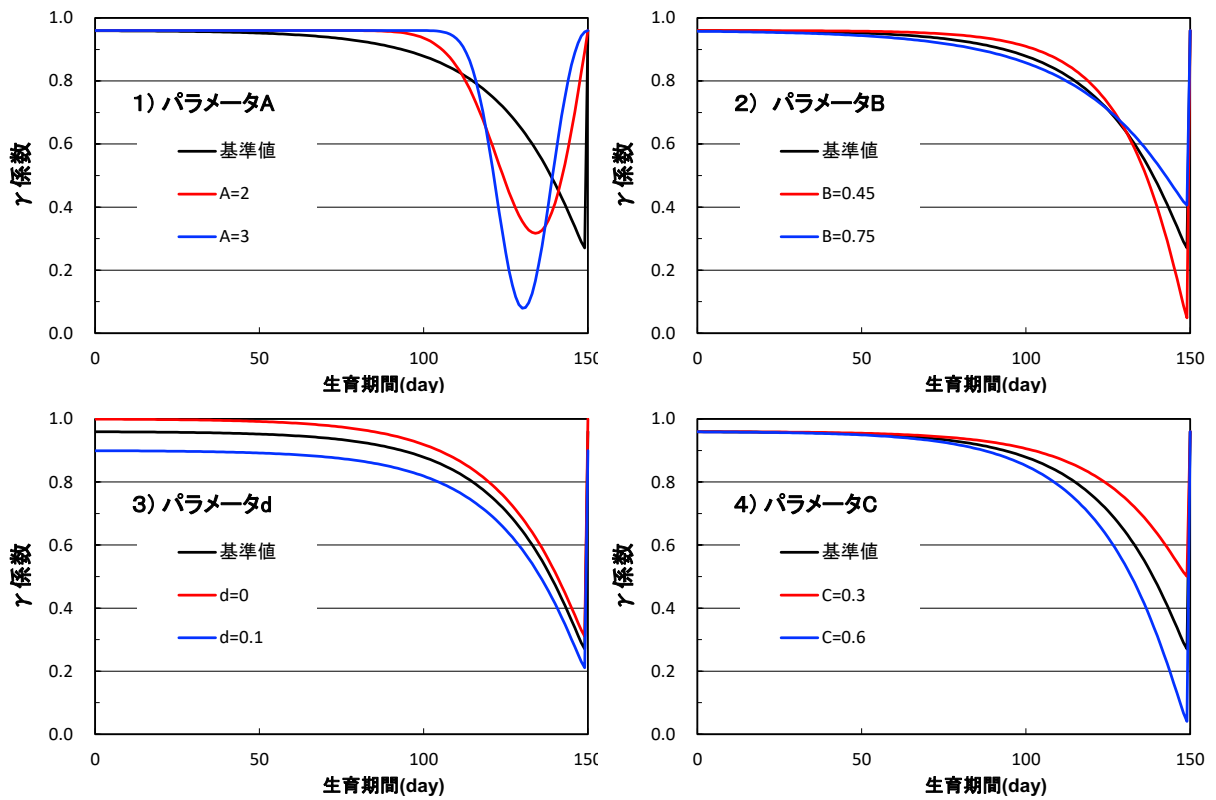


図 3.4-4 γ 係数を構成する各パラメータの変動幅
 1) パラメータ A、2) パラメータ B、3) パラメータ d、4) パラメータ C

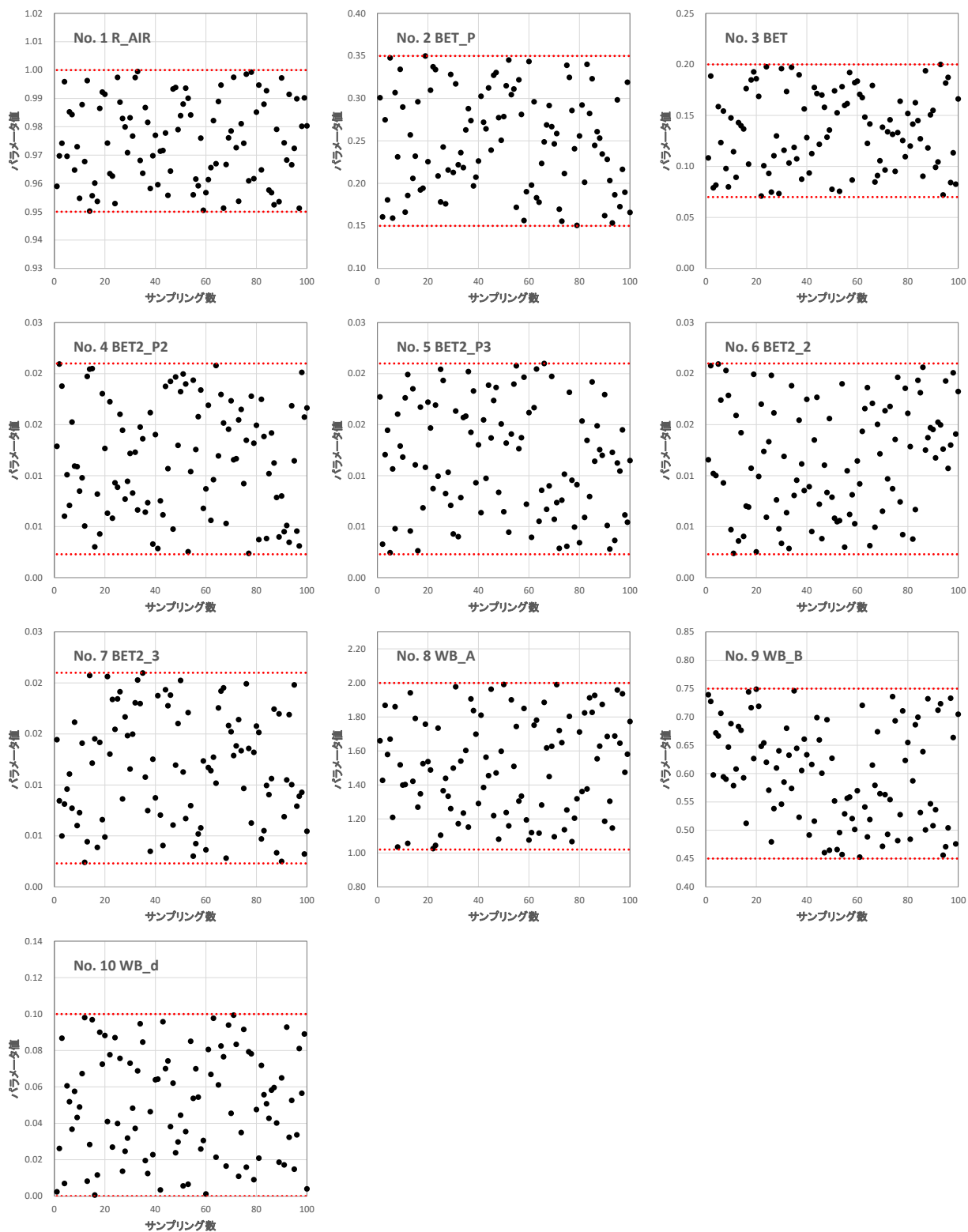


図 3.4-5 水稲内部コンパートメントモデルの入力データ
赤点線は不確かさ幅の上下限值

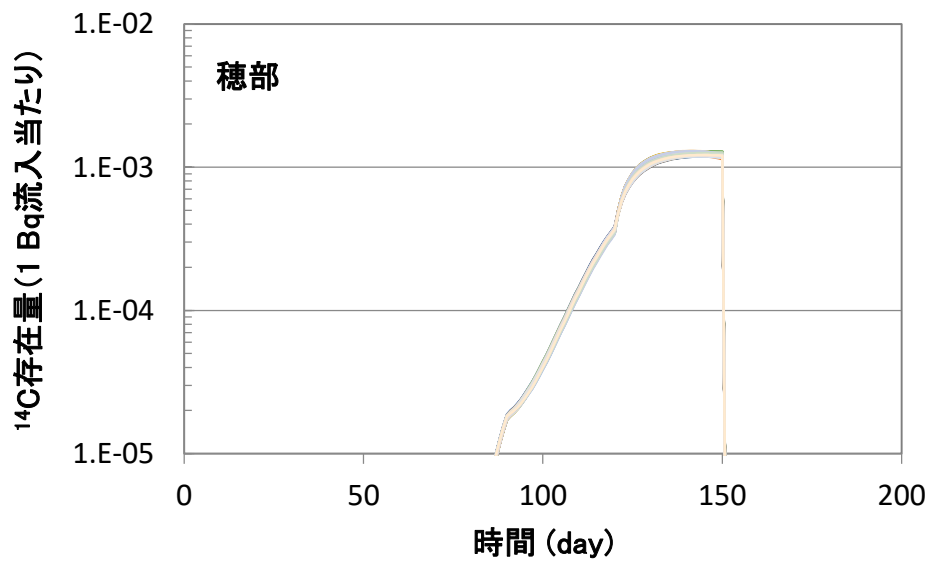
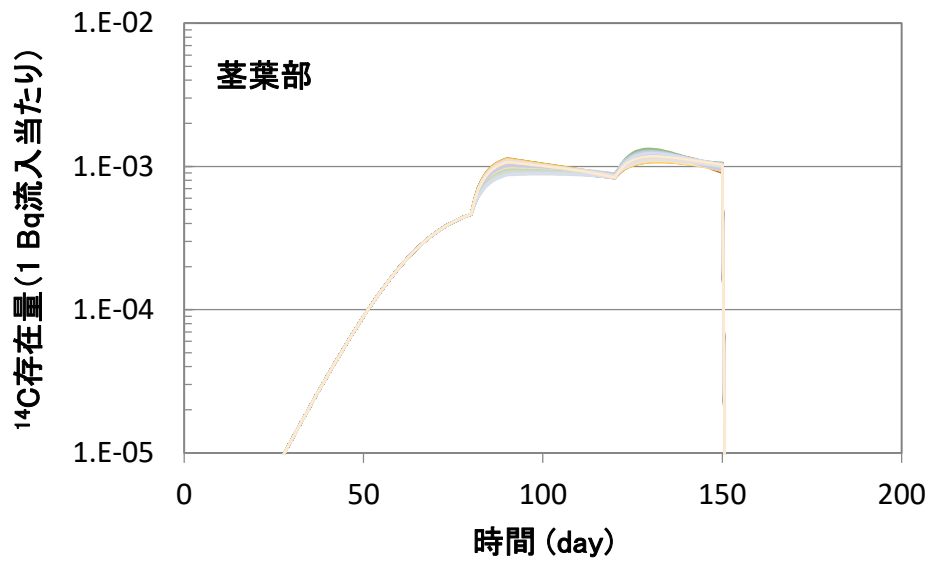


図 3.4-6 茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化

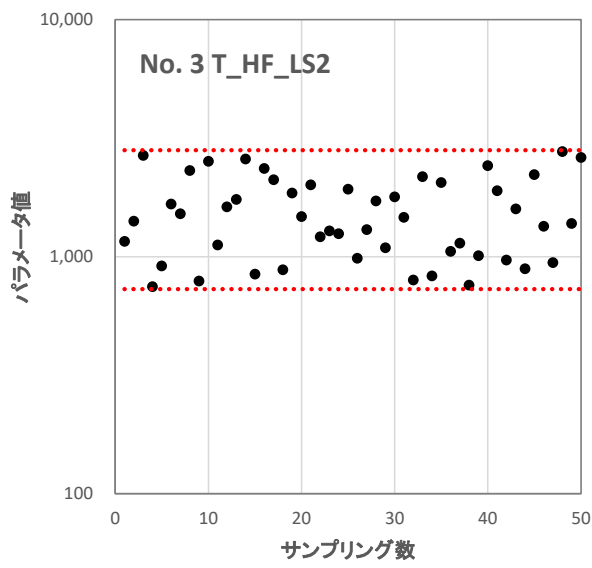
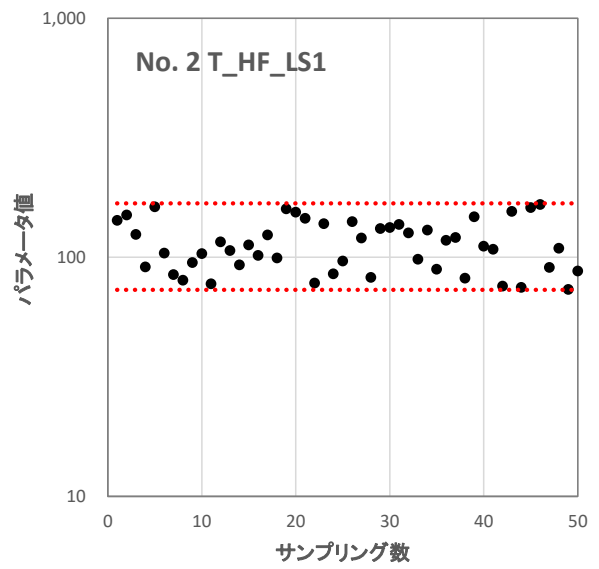
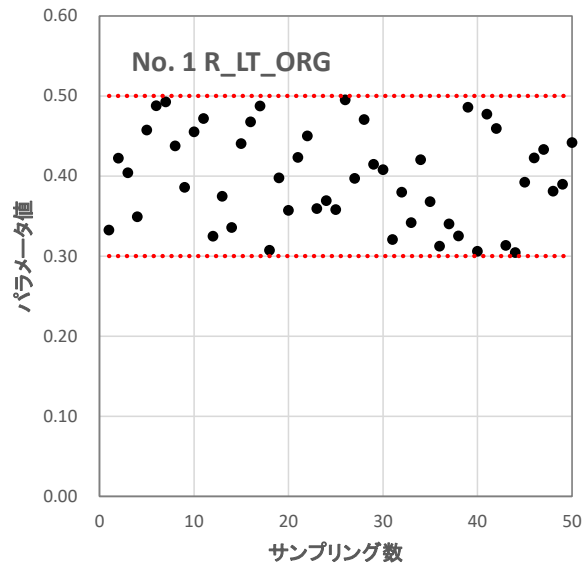


図 3.4-7 多年解析入力データ
赤点線は不確かさ幅の上下限值

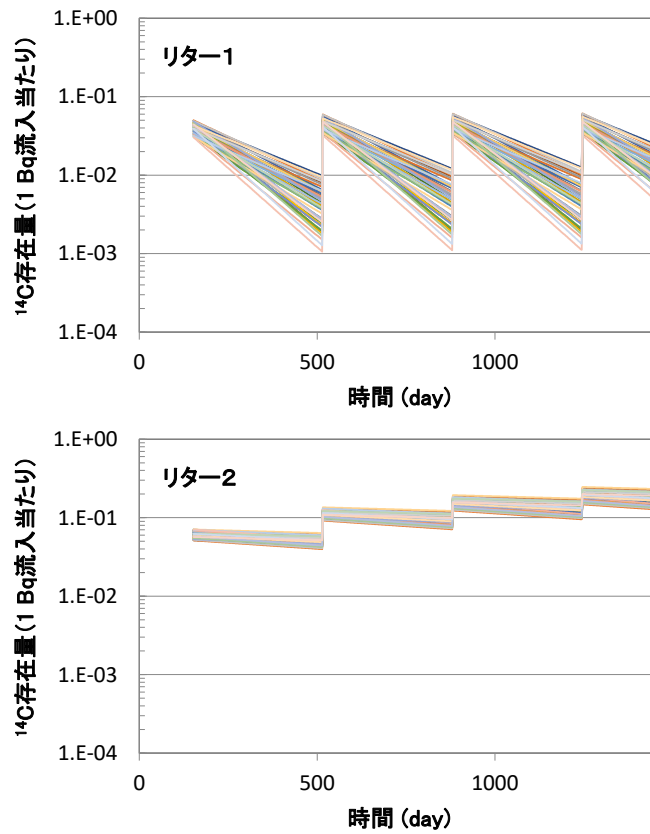


図 3.4-8 連続曝露解析におけるリターコンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化

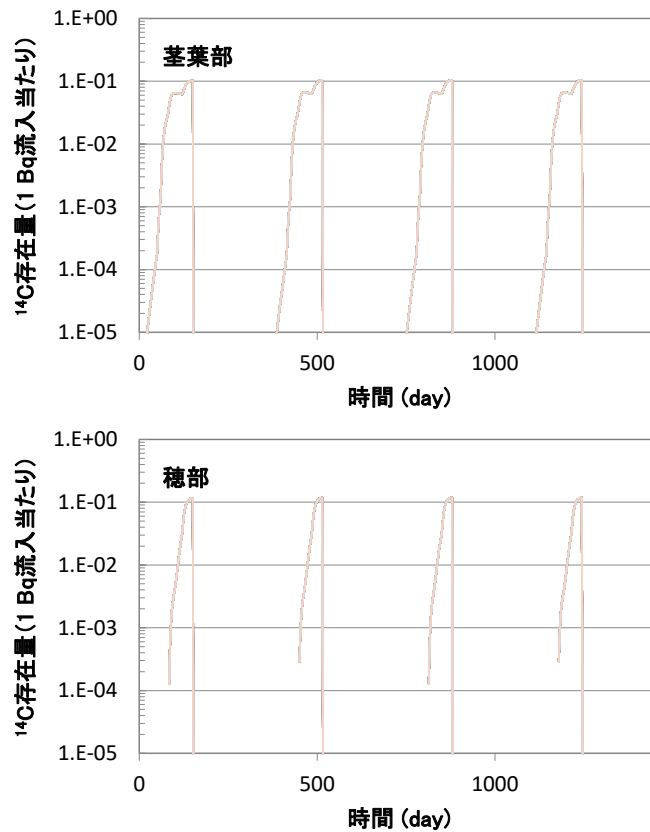


図 3.4-9 連続曝露解析における茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化

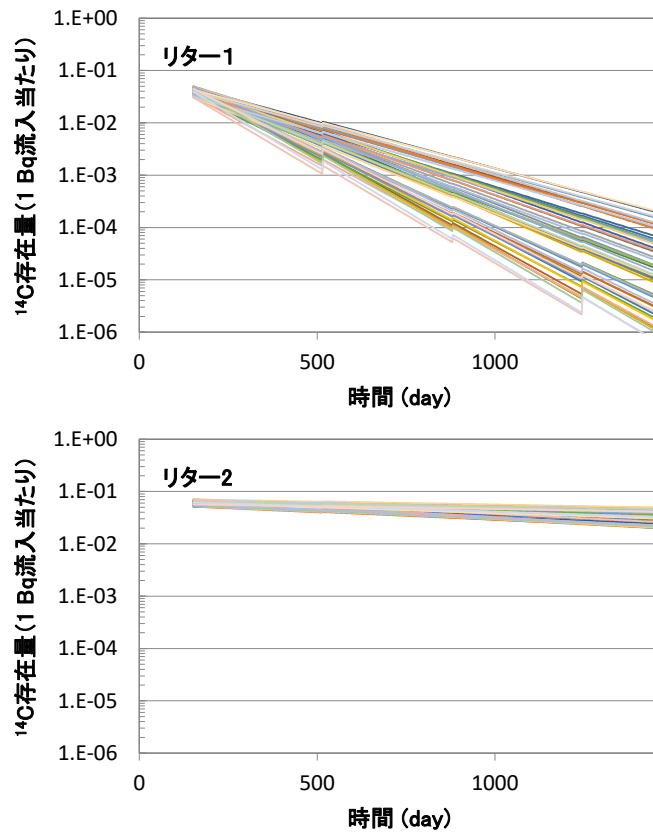


図 3.4-10 単年曝露解析におけるリターコンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化

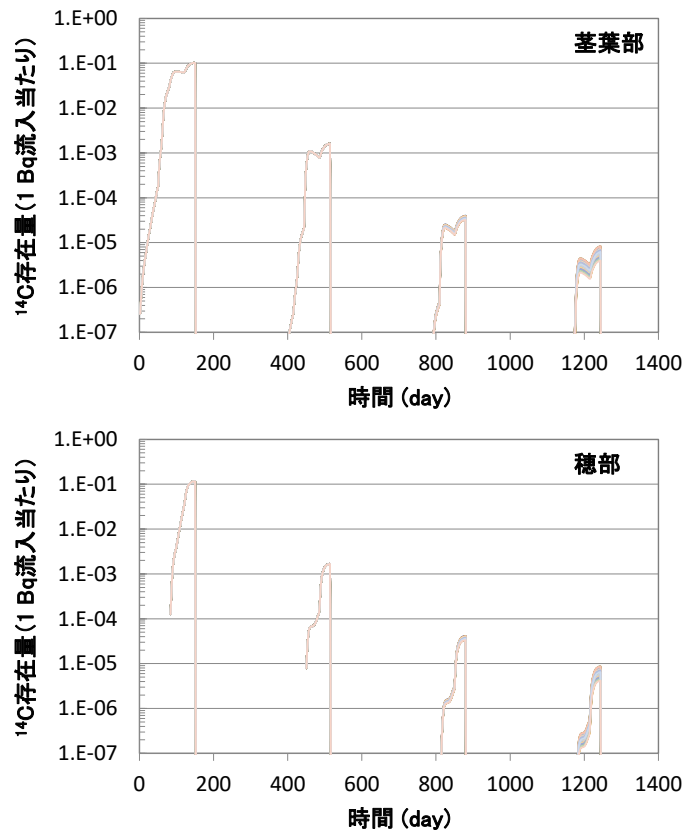


図 3.4-11 単年曝露解析における茎葉部および穂部の ^{14}C 含量の経時変化

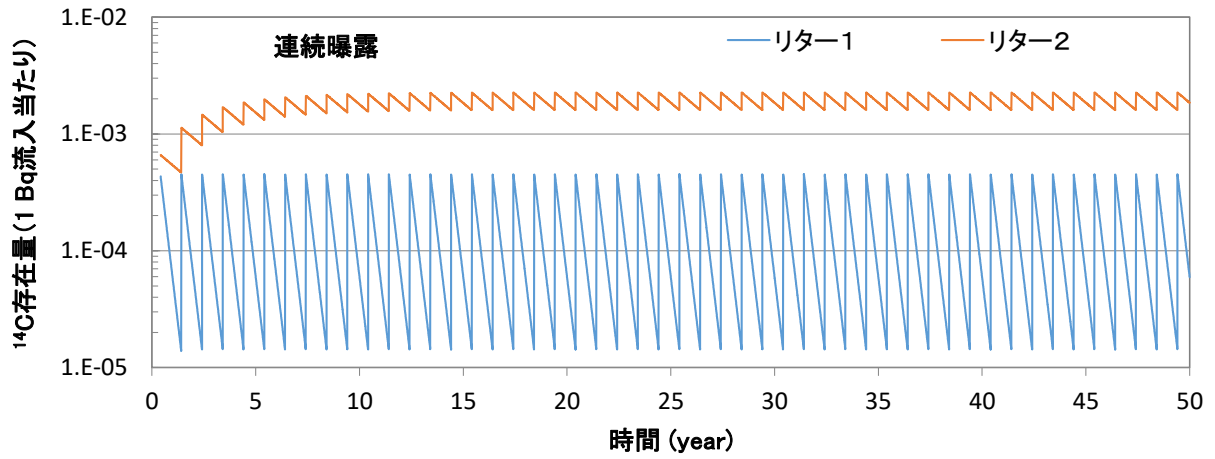


図 3.4-12 50年連続曝露解析におけるリターコンパートメントの¹⁴C含量の経時変化

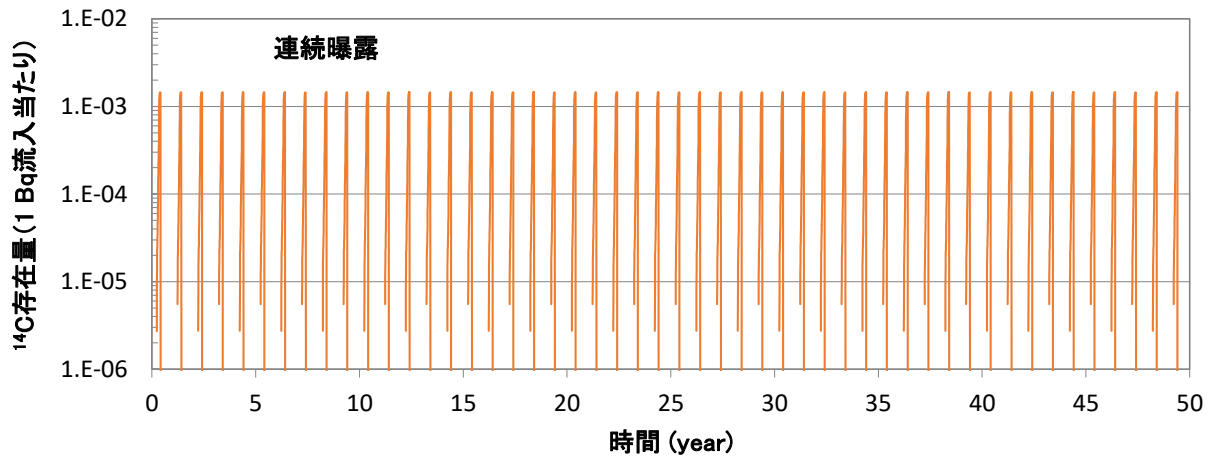


図 3.4-13 50年連続曝露解析における穂部の¹⁴C含量の経時変化

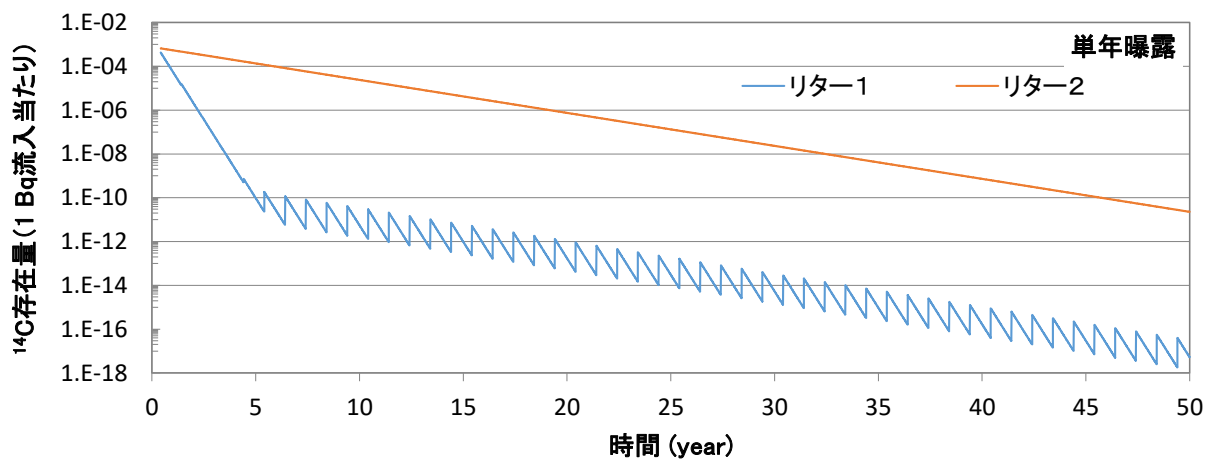


図 3.4-14 単年曝露多年解析におけるリターコンパートメントの¹⁴C含量の経時変化

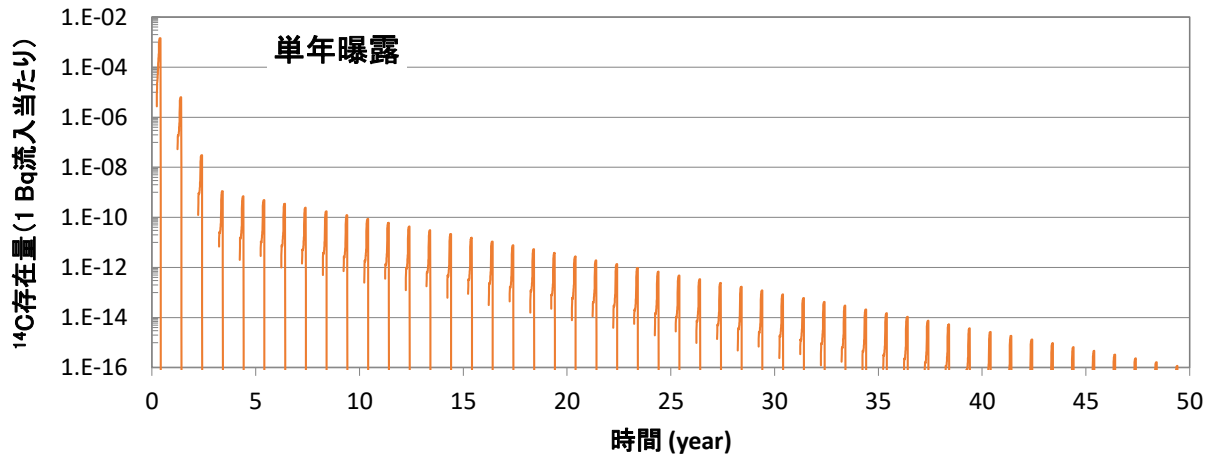


図 3.4-15 単年曝露多年解析における穂部の ^{14}C 含量の経時変化

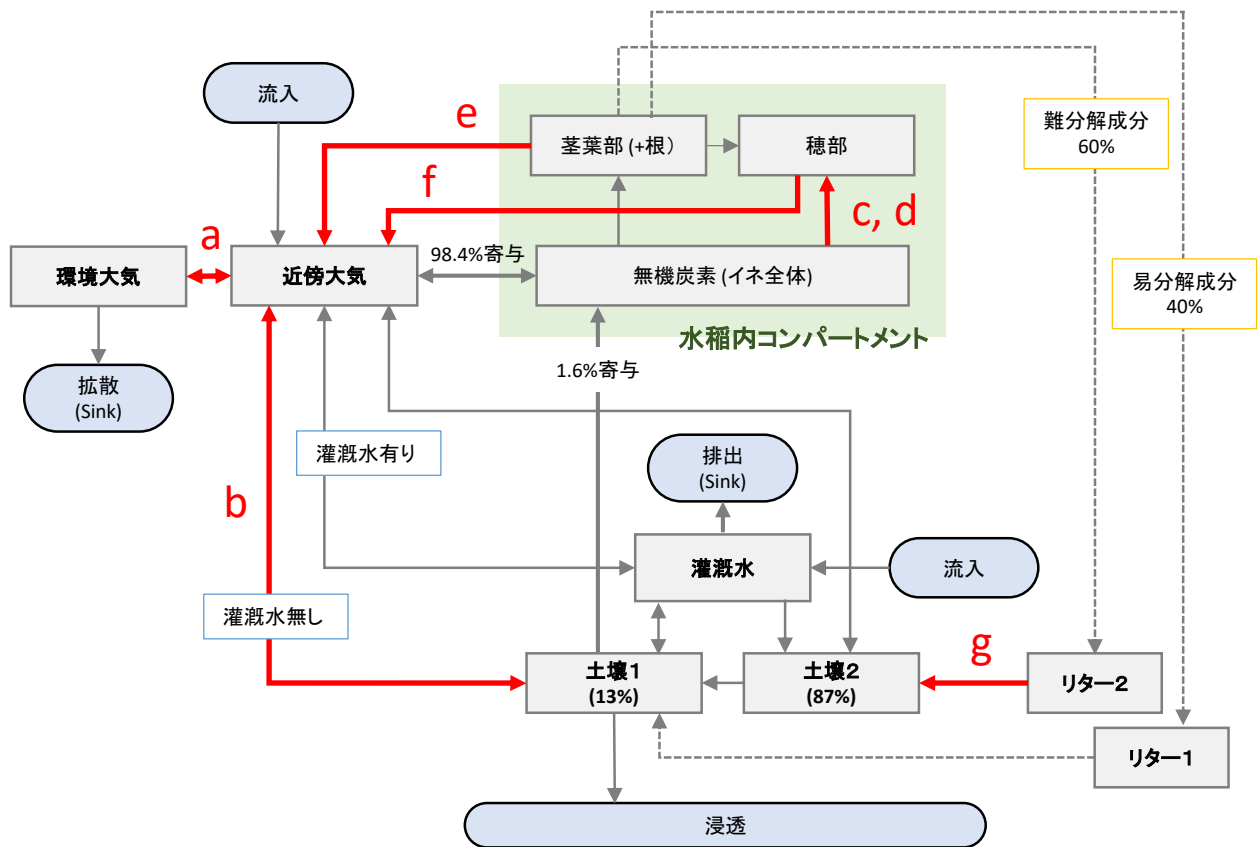


図 3.4-16 水稲全体モデルにおける不確かさ伝播解析の対象パラメータの移行パス

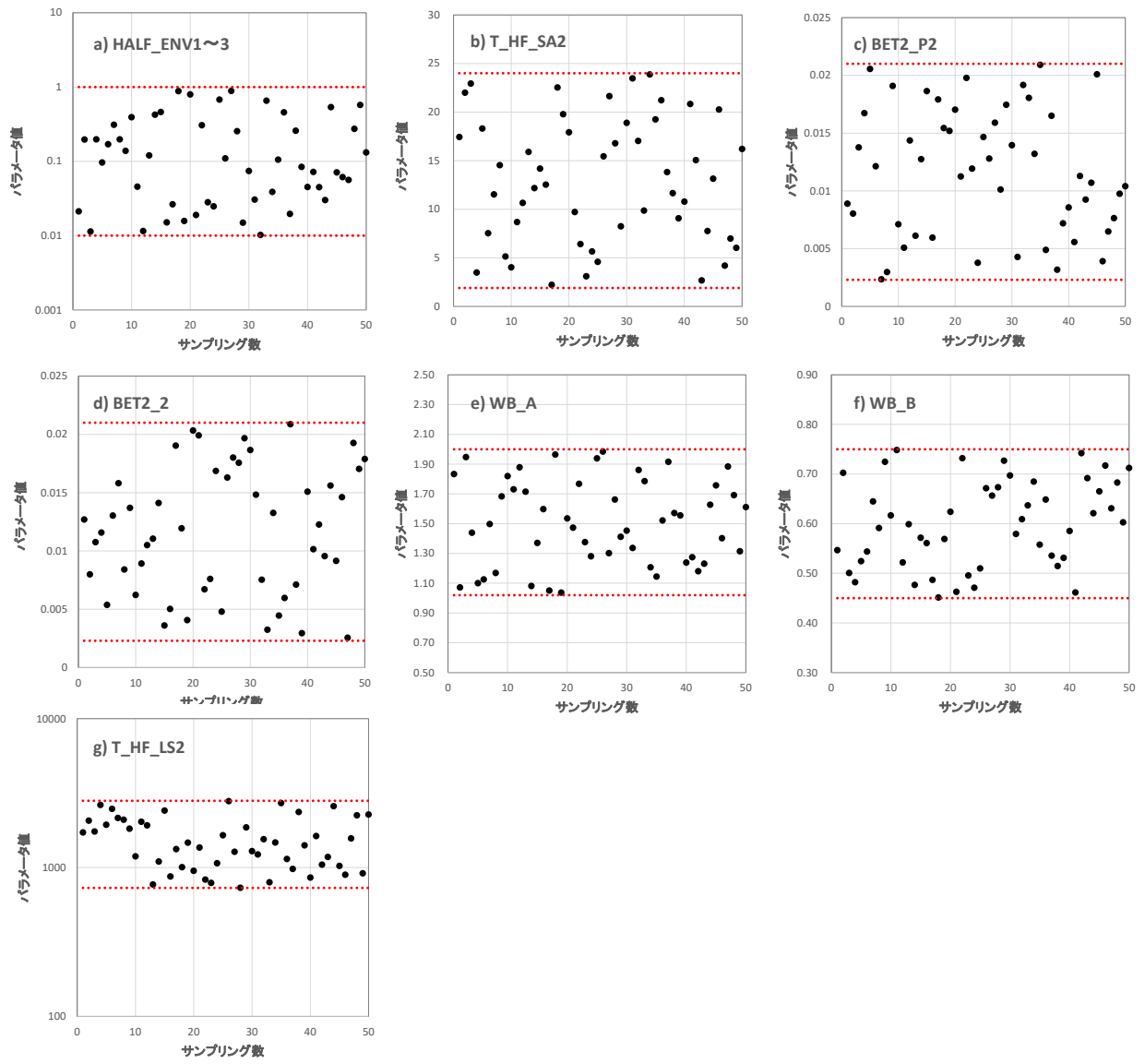


図 3.4-17 水稲全体モデルにおける入力データ
赤点線は不確かさ幅の上下限值

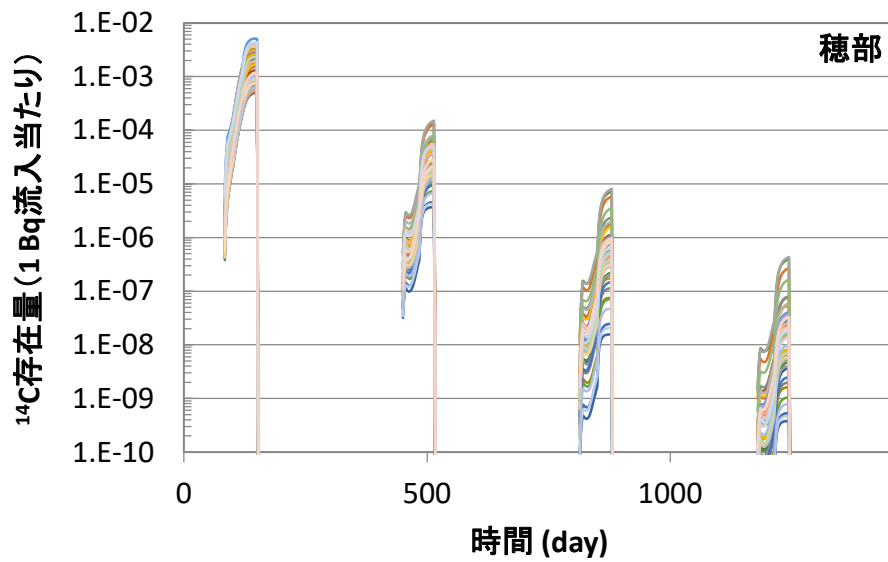


図 3.4-18 水稻全体モデルにおける穂部の ^{14}C 含量の経時変化

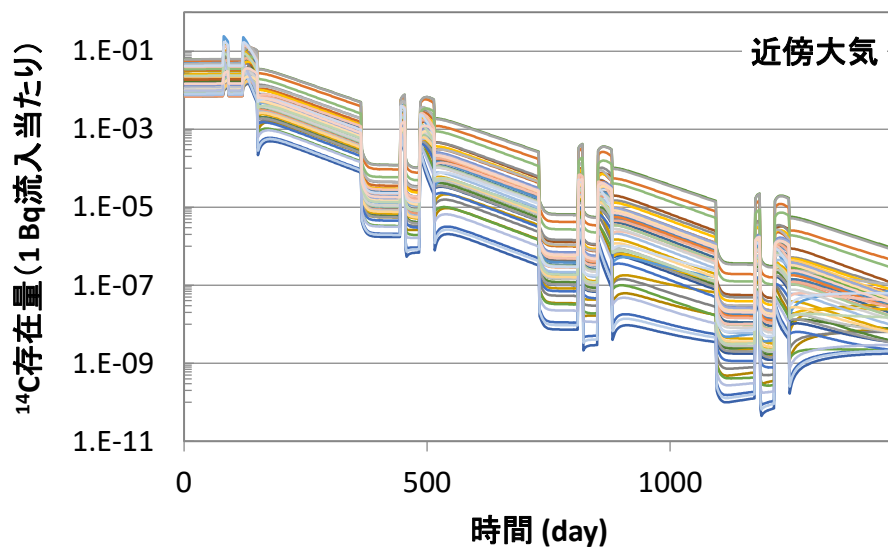


図 3.4-19 水稻全体モデルにおける近傍大気コンパートメントの ^{14}C 含量の経時変化

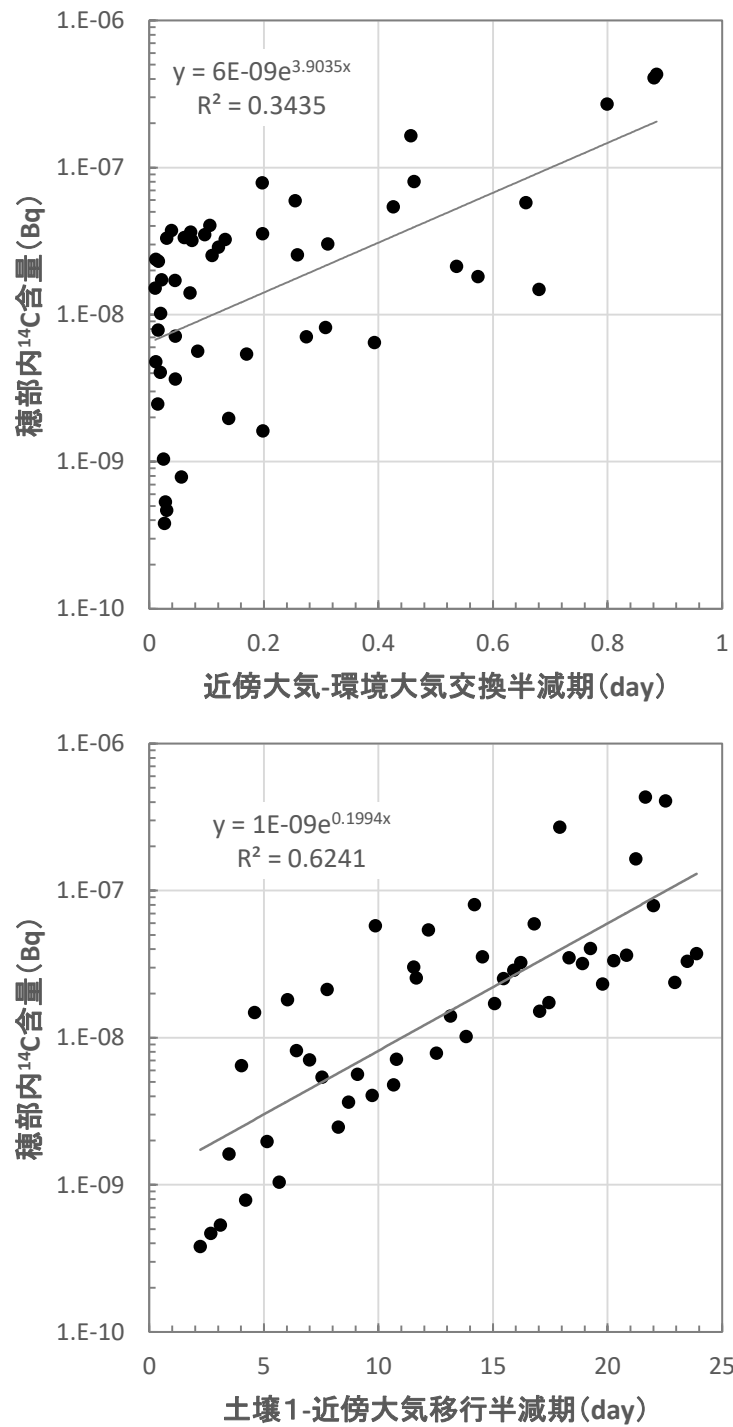


図 3.4-20 水稻全体モデルにおけるモデルパラメータと4年後収穫時の穂部 ^{14}C 含量との関係

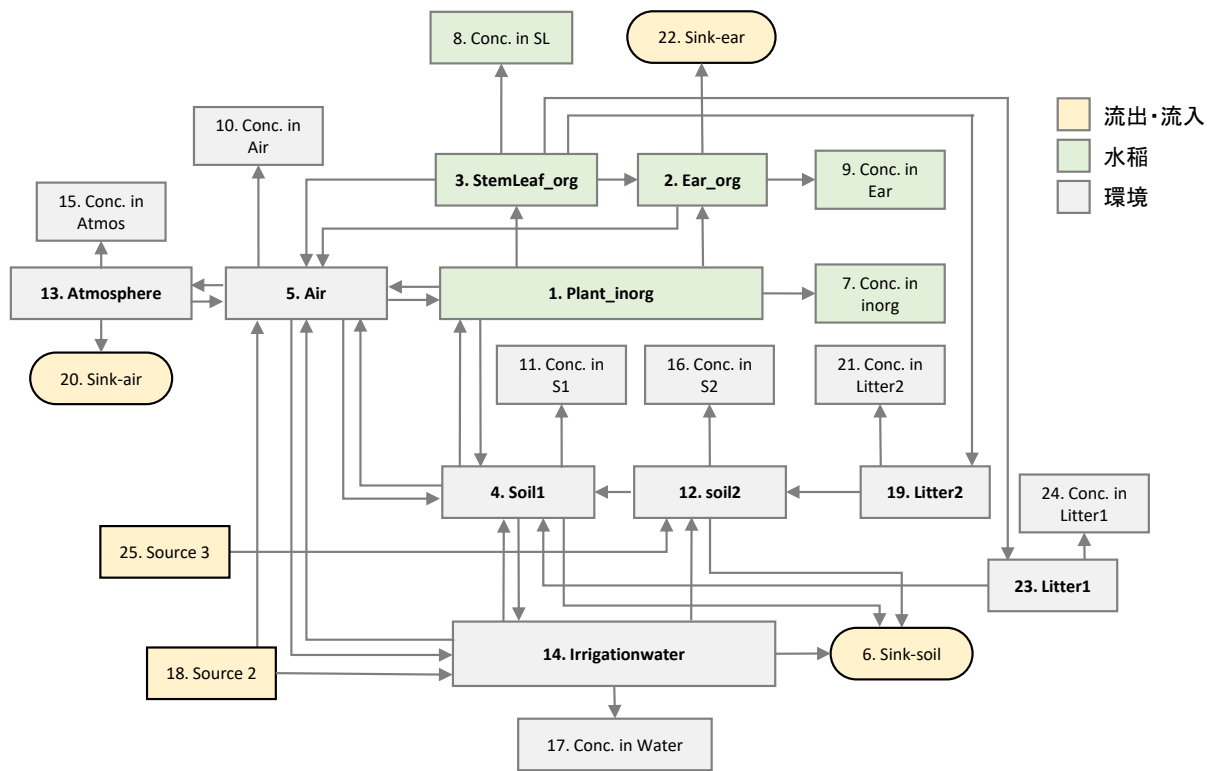


図 3.4-21 水稻全体モデルの構造

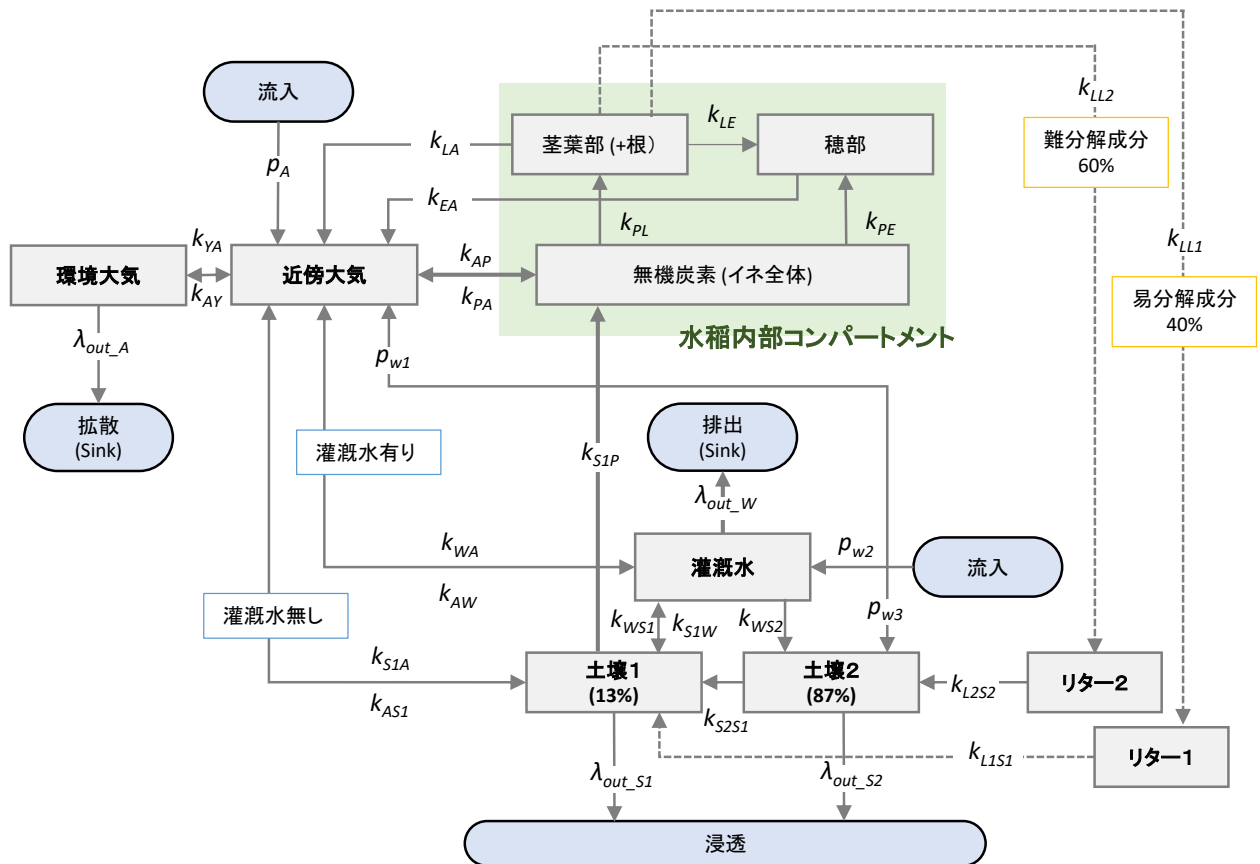


図 3.4-22 水稻全体モデルの移行パラメータ

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

4. 1. はじめに

放射性廃棄物の地層処分場から環境中へ放出された放射性核種は、環境の違いによってその動態が大きく異なると考えられるため、我が国独自の環境移行パラメータを収集・整備する必要がある。平成14年度から24年度までに放射線医学総合研究所では、生物圏における環境試料中元素濃度を蓄積し、安定元素による土壌-植物間移行係数(TF)や放射性核種を使った土壌-土壌溶液間分配係数(K_d)等の環境移行パラメータの導出並びにデータベース構築を行った。しかしながらプルトニウム(Pu)、アメリシウム(Am)、トリウム(Th)および塩素(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。これらの元素には、環境試料中濃度が極低レベルのため、高度の分析技術が要求される場合や、塩素のように濃度がある程度高くても、測定方法の選択肢が極めて限られる場合があり、そのため核種移行モデルに使用される環境移行パラメータが十分蓄積されていないのが現状である。

本事業では、データが少なくかつ重要核種、すなわち、Pu, Am, Th および 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。今年度は平成28年度に確立した土壌中 Am 超高精度分析法を用いて、畑土中の Am 濃度データを追加した。Pu, Th および Cl については、本調査研究期間中に作成した分析法を用い、本事業で収集してきた土壌および農作物試料を対象とした分析を行い、TF データを追加した。

さらに、Pu, Am, Th および Cl の TF について、平成27年から現在までに報告されている国内外の文献調査を行ない、平成28年度のデータベースを更新した。ただし、可食部という観点の TF の報告は少なかったことから、比較のために非可食部のデータも収録している。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の中で、土壌試料中の濃度測定例が少ないために、環境挙動が十分には解明されていない核種でもある。本調査研究で開発した分析法は Am の環境中挙動予測のために役立つと考えられる。

4. 2. Th の土壌から米への移行係数データ収集

地層処分に伴う放射性核種の生物圏における安全評価において、Th は重要核種の 1 つである。Th の土壌-農作物間移行係数 (TF) に関しては、測定法により値が大きく異なる事が報告されている (Wang et al., 2015)。化学分離を行って α 線スペクトロメトリーで測定したり、元素を質量毎に分けて原子数を測定する ICP-MS で測定するのであれば、直接 Th を測っていることになるので正しい定量結果を得られるが、近年では、 γ 線スペクトル分析によるデータも散見される。 γ 線スペクトロメトリーでは Th を直接測定しているわけではなく、試料中に含まれる子孫核種により定量を行うため、試料中においてトリウム系列核種が完全に平衡に達することが条件となっている。しかし、植物は Th よりも Ra の方を根から吸収するため、トリウム系列核種が平衡には達しておらず、過大評価となることが多いと指摘されている (Wang et al., 2015)。また、近年では ICP-MS は α 線スペクトロメトリーよりも感度が良く、多くの試料の分析に向いていることから、本調査においては ICP-MS 測定法により定量分析することにした。

我が国の土壌中 Th 濃度は $<1 - 100 \text{ mg/kg}$ の範囲であることが報告されている (Yamasaki et al., 2001; Yoshida et al., 1998)。特に、我々は農耕地土壌に着目しているが、水田および畑土壌の Th 濃度は、それぞれ 5.4 mg/kg ($2.3 - 11 \text{ mg/kg}$) および 5.0 mg/kg ($1.2 - 12 \text{ mg/kg}$) であることが報告されている (Uchida et al. 2007a; Uchida et al. 2007b)。この濃度範囲であれば、 100 mg 程度の少量の土壌試料に混合酸を加えて、加熱加圧により全分解して溶液化すれば、Th を分離・濃縮しなくても、得られた溶液を希釈するだけで直接 ICP-MS で測定することが可能である。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 で測定する際の妨害となる元素は存在しない (Ostapczuk et al., 2010; Sahoo et al., 2011)。そのため、通常の高感度型 ICP-MS でも 1-3 秒程度の測定で溶液中濃度として検出下限値は数 ng/L を達成できる。すなわち、土壌中濃度に対し 1 万倍希釈しても、十分定量できることになる。したがって、すでに ICP-MS による土壌中の Th 濃度測定は十分に確立されていると言える。

一方、米の Th 濃度は非常に低く、土壌中の濃度と比較すると数オーダー低い ng kg^{-1} レベルとなることもある (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、米の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 (放射線医学総合研究所, 2015) を開発した。今年度は、本事業において開発した硝酸-フッ化水素添加マイクロウェーブ分解法および Th 濃度の高精度分析法を用いて (放射線医学総合研究所, 2015)、玄米試料および白米試料を測定し、Th の土壌-米間の TF データを取得した。

4.2.1. 測定試料

標準試料である灌木試料 (GBW) およびトマトの葉試料 (1573a) を分析法の確認のために用いた。また、米試料として、平成 28 年度採取した白米試料 (10 試料) と玄米試料 (10 試料) を用いて Th 濃度測定を行った。

4.2.2. 実験手順

(1) 試料の前処理

乾燥させた米試料を $30 \sim 50 \text{ g}$ 採取し、ミキサーで粉碎後、粉碎用のメノウ製容器に移し、遊星ボー

ルミルにて粉碎を行った。粉碎した試料は 50 mL のスクリー管に入れ保存した。なお、玄米試料を精米して白米試料を作成しているため、玄米と白米のデータを比較することもできる。

(2) 米試料の全分解法

80°C で 3 時間乾燥させ、放冷後約 500 mg 秤量シ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 0.5 mL 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 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 の母液を作成した。この試料母液の硝酸濃度は 2%、元素濃度は元の米試料の約 1/40 である。また、標準試料として用いた灌木試料 (GBW) およびトマトの葉試料 (1573a) も同様の処理を行った。

(3) 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、平成 27 年度白米試料 (100mg) を 100 mL に、また平成 28 年度白米と玄米試料 (100mg) は 50 mL になるように調整した。Th の定量は外部検量線法によって行った。検量線作成には Th 濃度 0, 0.01, 0.1, および 0.2 ng/mL 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

キャリアーガス: 1.0 L/min

補助ガス: 0.85 L/min

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)

測定元素: ^{232}Th , ^{209}Bi

4.2.3. 結果および考察

4.2.3.1. 米中の Th 濃度

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 およびトマトの葉試料 NIST-1573a) で確認を行った。GBW ($n = 2$) と 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 であり、灌木試料 GBW の保証値 (0.070) やトマトの葉試料 NIST-1573a の information value (0.12) 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。

本調査では、前述したように平成 28 年度に採取した白米試料 10 点と玄米試料 10 点を用いて、Th 濃度測定を行った。分析結果を表 4.2-1 に示す。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 であり、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。玄米試料 10 点については、Th 濃度範囲は 4.1×10^{-5} から 6.1×10^{-4} mg/kg であり、最大/最小濃度比は 14.9 であった。算術平均値および幾何平均値は、それぞれ 1.6×10^{-4} および

9.7×10^{-5} mg/kg であった。

玄米の Th 濃度は白米の Th 濃度より高く、Th 濃度比（白米/玄米）は 0.23-0.73 であった（図 4.2-1）。Uchida ら（2007b）が報告している米中の Th 濃度幾何平均値は、白米が 6.4×10^{-4} mg/kg および玄米が 5.5×10^{-4} mg/kg であり、玄米の方が白米試料より濃度がわずかに低い。Uchida ら（2007b）は四重極の ICP-MS を用いて測定しているため、本調査で開発した分析法-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幾つかある。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、相対的に濃度が高くなったと考えられる。

4.2.3.2. Th の土壌-米の移行係数

表 4.2-2 には、昨年度と今年度測定した玄米試料 20 点、および今年度測定した白米試料 10 点の濃度データから導出した Th の TF データを示す。玄米の TF の範囲は 7.6×10^{-6} から 1.4×10^{-4} 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。白米の 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。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 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）。本研究で取得した TF と IAEA TRS-472 および Uchida ら(2007b)の文献値との比較結果を表 4.2-3 に示す。TRS-472 では、玄米と白米を区別せず、米試料として、の TF 値が示されている。Uchida (2007b)らの報告では、玄米と白米それぞれの TF データが示されている。本報告と比較すると、玄米の TF の幾何平均値は IAEA-TRS-472 および Uchida らの文献値の 1/5 と 1/3 であった。前述したように、Uchida らの分析法は、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、測定可能であった試料だけの平均値であるために高くなったと考えられる。

今回得られた値により、多くの白米の TF を提供することができた。玄米よりも白米が食されることが多いことを考えると、白米のデータが得られたことは重要である。これまで玄米で評価した Th の移行も白米データを用いることで、より適正になると考えられる。

4. 3. Pu の土壌-米間移行係数データの収集

TRS-472 では、Pu に関しては非常に限られた TF データしか報告されておらず、例えば、米や果実等の作物種についてはその TF は掲載されていない (Wang et al., 2015a)。我が国においては、米は主食であり土壌から米への TF データを得ることは重要である。

本年度は、改良した土壌 Pu 分析法と平成 26 年度に確立した米中 Pu 濃度超高精度質量分析法 (放射線医学総合研究所, 2015) を用いて、玄米の TF データを追加した。

4.3.1. 試料の前処理

4.3.1.1. 測定試料

実験に使用した水田土壌と米 (6 点, 試料番号 No.11-No.16) の採取場所を図 4.3-1 に示す。また、Pu 分析のクオリティ・コントロールため、土壌標準物質試料 IAEA Soil-6 と JSAC-0471 を用いた。

4.3.1.2. 試薬

実験に使用したすべての試薬 (HCl, HNO₃, HF, NaNO₂, NH₄I, H₂O₂, HBr, H₃BO₃, NH₄OH, FeCl₃, ascorbic acid, TiCl₃, Ca(NO₃)₂, La(NO₃)₃, NH₂OHHCl, Iron (II) sulfamate) は、分析用レベルである。イオン交換樹脂は Bio-Rad 社製の 2 種類のイオン交換樹脂, AG 1X8 (100-200 mesh, Cl- form) と AG MP-1M (100-200 mesh, Cl- form), を用いた。超高純度 HNO₃ (多摩化学工業, AA-100) を, SF-ICP-MS 測定用の試料溶液調製に使用した。本研究で使用した Eichrom 社製の 3 つの抽出樹脂 (TEVA, UTEVA および DGA (ノーマルタイプ), 粒径 50~100 μm) は 2 mL のカートリッジに充填済みのものである。回収率トレーサーとして ²⁴²Pu (CRM 130, plutonium spike assay and isotopic standard, New Brunswick Laboratory, USA) を適量スパイクして用いた。水はすべて超純水 (Milli-Q 水, >18 MΩ/cm) である。²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 原子比認定値付き (isotopic ratio = 0.242) の混合 Pu 同位体標準溶液 (NBS-947) を用いて, ICP-MS のマスバイアス*1 補正に使用した。

(*1 質量分析装置では質量分別部で選択した質量数のみを検出器に通して原子数をカウントするが、質量分別部では質量数が近い同位体であっても、若干の同位体フラクショネーションを起こす。これをマスバイアスと呼ぶ。このずれを補正するために、原子数比既知の試料を測定してフラクショネーションのファクターを求め、他の測定データに反映させることが必要である。)

4.3.1.3. Pu 化学分離と分析

土壌試料については、平成 28 年度に改良した土壌 Pu 分析法を用いた (平成 28 年度報告書第 4.3.2.3 を参照, 放射線医学総合研究所, 2017)。まず土壌試料 1-2.5 g (土壌標準物質試料では 0.2 g) を秤量し、0.57 pg の ²⁴²Pu を回収率モニターとして各試料に添加した。次に、その後の化学分離において妨害となる有機物を分解するため、磁性ろつぼに移しマッフル炉で灰化最適温度である 450°C (Wang et al., 2015b) で 5 時間灰化した。この灰化試料を用いて硝酸抽出を行うが、その際、一般に用いられるように、ガラスビーカーと時計皿で加熱すると、容器隙間から酸が損失し、抽出効果が低くなってしまふ。そこで、密閉できる 120 mL のテフロン容器 (Saville Corporation, Minnesota, USA) を使用した。このテフロン容器に 10 mL の濃硝酸を加え、ホットプレート上で 160 °C で少なくとも 4 時間以上加熱した。室温まで冷却後、上澄み液をフィルターで濾過して、洗液と合わせて遠沈管 (50 mL) に移した。さらに Milli-Q 水を添加して、試料容量を 35 mL (約 3.8M HNO₃) に調整した。次に 100 mg の Ca および 100 mg の La を添加し、続いて 2 mL の 20% TiCl₃ を添加して Pu(IV) を Pu(III) に還元した。その後 46% HF 7 mL を添加して溶液をよく混合し、15-20 分間静置して沈殿を生成した。3000 rpm で 15

分間遠心分離した後、上澄み液を捨て、 H_3BO_3 0.5 g を添加して生成した沈殿物を 3M HNO_3 20 mL に溶解し、抽出クロマトグラフィー分離に供する試料溶液とした。

得られた溶液中の Pu の原子価を調整するため、0.3 g の NaNO_2 を添加して水浴 (40°C) で 0.5 時間加熱して Pu (IV) に合わせた。次にこの試料溶液を真空ボックスに挿した TEVA 樹脂に通水して Pu (IV) を樹脂上に保持させた。TEVA 樹脂は 10 mL の 3M HNO_3 で前処理済みのものである。試料溶液を通水後、10 mL の 3M HNO_3 を用いて樹脂上に一緒に収着している Ca, Fe および希土類元素 (REEs) を除去し、続いて 40 mL の 1M HNO_3 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。最後に TEVA 樹脂に収着している Pu を溶出する前に、3M HNO_3 10 mL で前処理した UTEVA 樹脂および DGA 樹脂の順で TEVA 樹脂の下に接続した。次いで、TEVA 樹脂から Pu(IV) を Pu(III) に還元してから Pu(III) として溶出させるために、3M HNO_3 -0.1M アスコルビン酸-0.02M Fe^{2+} (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) は、UTEVA 樹脂を通過し (ただし、Pu 測定の妨害元素となる U を保持)、次に DGA 樹脂上に保持される。溶液の通水後に TEVA および UTEVA 樹脂を廃棄し、DGA 樹脂を対象に、30 mL の 0.1M HNO_3 を通水させて U, Tl, Pb, Pt, Hf および Fe を除去した。最後に、DGA 樹脂上の Pu を 20 mL の 0.5M HCl-0.1M $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ 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。溶解した溶液を再度 200°C で加熱して乾固させた後、1 mL の濃 HNO_3 を加え、これを加熱してほぼ乾固させた。この乾固試料を 4% HNO_3 0.7 mL に溶解し、SF-ICPMS 測定の試料溶液とした。

玄米灰試料 (凍結乾燥玄米重換算で約 1 kg) については、平成 26 年度開発した米中の Pu 分析法を用いた。詳細は、平成 26 年度事業報告書第 4.2.3.5 を参照されたい (放射線医学総合研究所, 2015)。

土壌と玄米試料中の Pu 分析は、SF-ICP-MS (Element XR) に試料導入装置 APEX-Q を接続して行った。(Zheng, 2015)。測定においては、自立吸引モード (ペリスタリックポンプを用いず、ネビュライザーの特性により自然に試料溶液を吸引するモード) を用いた。測定対象の ^{238}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu 、及び ^{242}Pu は、測定時間を短縮させるためピークホッピングモードで測定し、それぞれの質量数において、ピーク幅の 10% で測定を行った。なお、装置を立ち上げて測定する前に、濃度が 0.02 ng/mL のウラン標準溶液 (Merck standard) を用いて SF-ICP-MS の感度調整を毎回行った。SF-ICP-MS を用いた Pu 測定条件の詳細は平成 26 年度事業報告書の表 4.2-1 を参照されたい (放射線医学総合研究所, 2015)。

4.3.2. 結果および考察

4.3.2.1. 土壌試料中の Pu 源の判別

土壌試料中の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{239}Pu 濃度および $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の測定結果を表 4.3-1 に示す。表 4.3-1 には比較のため、平成 27 年度に測定した試料 1-6 の結果と平成 28 年度に測定した試料 7-10 の結果も示した。

我が国の陸上環境においては、3 つの Pu 汚染源が報告されている。すなわち、1945 年長崎に降下された原子爆弾に由来する Pu 汚染 (Yamamoto et al., 1983a; Saito-Kokubu et al., 2008)、1960 年代からのグローバルフォールアウトに由来する汚染 (UNSCEAR, 1982; Kelley et al., 1999)、さらに 2011 年に起きた東電福島第一原子力発電所事故による微量 Pu 汚染 (Zheng et al., 2012) である。これら 3 つの Pu の汚染時期が異なるので、それぞれの土壌—玄米試料の採取時までの期間が異なる。Pu についても放射性 Cs と同様にエイジングが生じるとすると Pu の添加から玄米採取までの時間が異なれば、TF が変化してしまう可能性があることから、Pu 源を区別することが重要である。そのために、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の原子数比は非常に重要な指標である。これらの 3 つの Pu の汚染源の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は大きく異なることが知られている。したがって、収集された土壌試料の Pu 汚染源識別は、それらの $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比を調べることによって達成することができる。調査した水田土壌の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、

0.160 から 0.196 の範囲であり (平均値 0.173 ± 0.008), グローバルフォールアウトの比 (Kelley et al., 1999) と同じであった。すなわち, これら土壌試料中の Pu の主なソースはグローバルフォールアウトであることを示唆している。つまり, Pu は土壌に付加されてから約 50 年が経過しており, 環境中において十分平衡に達していると考えられる。

本研究で得られた $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は, 0.073 から 0.919 mBq/g の範囲であり, ^{239}Pu 濃度は, 0.046 から 0.555 mBq/g の範囲であった。これまでの我が国の水田土壌中の Pu 濃度に関する情報は非常に限られている。Yamamoto ら (1983a) は, 主に 1963 年から 1976 年の間に我が国の 15 地点で採取された水田の表層土壌 30 サンプル, およびこの 15 地点の中から 2 地点を選択し, 1957 年から 1980 年にかけて定期的に採取した土壌試料 15 点について $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度を測定した。その結果, 水田土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は 0.078~1.03 mBq/g であった。本研究で得られた $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は Yamamoto らが報告している濃度と同じレベルであり, また, 農耕土や森林土の典型的なグローバルフォールアウトの値 (Muramatsu et al., 2003) の範囲内であることがわかった。

4.3.2.2. 玄米中 Pu 濃度

土壌試料中の Pu の測定に比べて, 玄米試料の Pu 濃度は極めて低いため Pu の測定はより困難であり, 大量の米試料を使用する必要がある。しかし, 試料量が増えるということは, 同時にマトリクス元素量も大量となるため, それらが妨害をして Pu の回収率を低下させると考えられた。土壌試料と同様の方法で玄米試料を分析すると, その Pu 回収率は土壌試料よりはるかに低い約 20-30% であった。回収率が低いと, ICP-MS 測定における ^{239}Pu と ^{240}Pu 信号強度も低くなってしまう。特に ^{240}Pu の信号強度はバックグラウンドに近かったため, 玄米試料中の ^{239}Pu 濃度のみ報告する (表 4.3-2)。平成 27 年度に測定した試料 1-6 の結果と平成 28 年度に測定した試料 7-10 の結果も同表に示した。玄米中の ^{239}Pu 濃度は, $9.0 \times 10^{-7} - 2.5 \times 10^{-5}$ mBq/g の範囲であり, 平均値は 8.3×10^{-6} mBq/g であった。土壌試料の Pu 濃度より約 5 桁低い値であった。

4.3.2.3. Pu の土壌-玄米間移行係数

前述したように, Pu の米の TF のデータはほとんど報告されていない。本研究では, 玄米試料とその土壌試料中の ^{239}Pu 濃度を分析することにより, グローバルフォールアウト起源の Pu の TF データを取得しており, 本年度はさらに 6 のデータを追加することが出来た。表 4.3-2 に示すように, Pu 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} と 4.6×10^{-5} であった。

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, Pu 源やサンプリング環境の違いによるものと思われる。表 4.3-3 に示すように, 以前報告されたデータは, $^{239,240}\text{Pu}$ 汚染サイト (Duffa ら, 2002), 核実験サイト (Zhang ら, 1989) または ^{238}Pu スパイク実験 (Adriano et al., 1981) のいずれかから取得された試料である。また, これらの文献には, 対象が玄米なのか白米なのかも明記されていない。汚染地域で採取された試料から求められた TF には, TF で想定している根からの吸収以外のプロセス, 例えば, Pu を含む汚染土壌の舞い上がり (再浮遊) とその植物表面付着などの経路も考えられ (Wang et al. 2015a), そのため玄米試料中の Pu 濃度が上昇する可能性があり, その場合, TF が過大評価されることになる。一方, 再浮遊-表面汚染以外にも, TF に影響を及ぼす因子として, 前述した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。このように, 可給態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%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)。このようなエイジングの効果を考えた場合、長期間の安全評価のためには室内ポット実験のデータの利用には限界があることも考慮されなければならない。可溶性の形態、例えば、硝酸塩形態 (Guillen et al., 2016) で添加された場合、得られた TF データは野外実験に比べて 1~2 桁程度高い値が得られることが多い。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、その性質上、本研究によって示された実環境試料から得たデータの方が、汚染地域の試料による TF や RI ポット実験から得られた TF 値よりも現実的であるといえる。

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 4.3-2 には比較のため、TRS-472 に記載されている葉菜類 Pu-TF の範囲と本調査で得られた葉菜類 Pu-TF の算術平均値も示した。土壌-穀物 (小麦等、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-米間 TF データの幾何平均値 (3.3×10^{-5}) ($n=16$) は、その値に近いが、やや高い。今回得たような米への TF を使って評価した方が、より正しい Pu の線量評価につなげることができると期待される。ただし、上述したように Pu の土壌中の存在形態が植物移行に効いてくると考えられることから、土壌中の移動性を示す K_d についても今後取得していくことが、Pu の環境挙動理解のために望ましい。

4. 4. 土壌および玄米中の塩素定量と移行係数の導出

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。一般に、塩素は水中においては陰イオンで存在することから、 ^{36}Cl も地質環境中や生活圏において易動性が高く、そのため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。安定 Cl は環境中において陰イオンだけでなく、岩石や土壌鉱物等においてハロゲン化鉱物 (halides) や燐灰石 (-Cl, Chlorapatite) 等としても存在している。

塩素の移行係数 (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), 本研究では土壌および農作物中の Cl の分析を行ってきた。一般に Cl 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。東日本大震災による東電福島第一原子力発電所の事故を受けて、研究用の原子炉は現在でも使用が困難であること、安定的に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ことから、トリプル四重極 ICP-MS (ICP-MS/MS) の適用と、測定のための試料溶液化について検討を行ってきた。なお、上述したような土壌鉱物中に含まれる Cl については、容易に溶出しないため植物にも利用できない。そこで、土壌については水溶性～有機物結合態 Cl までを測定対象とした。

4.4.1. 塩素の分析方法

4.4.1.1. 土壌試料

風乾し粉末にした土壌試料を PFA 製小型分解容器 (Savillex, 6 mL 角形内側丸底容器) に 200 mg 分取し、Milli-Q 水を 0.5 mL 添加して攪拌した後、水酸化テトラメチルアンモニウム (25%TMAH, 多摩化学工業, AA-100) を 2 mL 添加して容器を密閉した。容器を電気炉 (80°C) に入れて 20 時間加熱し、有機物分解を行った。室温まで冷却した後、50 mL 遠沈管に Milli-Q 水を使って移し入れ、さらに Milli-Q 水で 50 mL まで希釈した。容器のフタを閉じ、良く手で攪拌した後、遠心分離 (10 分間 3000rpm) し、上澄みを 0.45 μm のメンブレン・フィルターに通した。ろ液 1 mL に対し 0.1 mL の H_2O_2 (多摩化学工業, AA-100) を添加しながら、2 時間 100°C で加熱した (加熱前後の溶液の重量を記録し、希釈倍率に反映させている。また、一度に 0.1 mL を添加すると発泡により溶液をロスするので要注意)。得られた溶液は ICP-MS/MS (Agilent 8800) によりリアクションガスとして He を導入し、MS/MS モード ($m/z=35$) で測定を行った。

昨年度は上記手法により測定を行っていたが、遠心分離後においても 0.45 μm のフィルターろ過操作に時間がかかっていたため、手順を入れ替えた。すなわち、遠心分離後、上澄みを一定量分取し、 H_2O_2 を加えて加熱分解し、その後 0.45 μm でろ過する方法である。これにより、ろ過に掛かる時間を大幅に短縮することができた。恐らく、TMAH で分解した有機物は分子量サイズが大きく、 H_2O_2 処理をすることで分解が進み、ろ過が容易になったものと考えられる。この加熱操作による Cl, Br, I の揮散は認められないことは昨年度報告した。本年度改訂した分析方法を加えた分析手順を図 4.4-1 に示す。

4.4.1.2. 農作物試料

土壌試料よりも Cl 濃度が高いため、100 mg を使用した。以降の操作は土壌試料と同じである。なお、ICP-MS 定量操作においては、土壌に比べて Br, I 濃度が低いため、それに応じた標準溶液を作成する必要がある。

4.4.2. 水田土壌および玄米試料中の塩素濃度

平成 26-28 年度に採取した 30 セットの水田土壌および玄米試料中の Cl, Br および I 濃度の測定結果を表 4.4-1 (土壌) および表 4.4-2 (玄米) に示す。

昨年度報告した畑土壤中濃度範囲（放医研，2017）を今回得た水田の値と比較して以下に示す。

<水田土: 平成 29> Cl: 4.9 - 53 mg/kg, Br: 1.4 - 63 mg/kg, I: 0.4 - 22 mg/kg

<畑 土: 平成 28> 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、昨年度報告した葉菜類を今回得た玄米の値と比較して以下に示す。

<玄 米: 平成 29> Cl: 120 - 310 mg/kg, Br: 0.37 - 3.3 mg/kg, I: 0.006 - 0.051 mg/kg

<葉菜類: 平成 28> 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。葉菜類の比較のために大豆葉の濃度を文献値より示す。

<結田ら, 1984> Cl: 568 - 2740 mg/kg, Br: 40 - 128 mg/kg, I: 0.36 - 1.3 mg/kg

データは長良川流域の畑から得られたものであるが、本報告の葉菜類と同様の値であった。

4.4.3. 玄米への塩素の移行係数

第 4.4.2 で得られた結果を基に TF を導出した（表 4.4-3）。得られた TF は図 4.4-2 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。

一方、低レベル放射性廃棄物の線量評価においては、Cl の農作物への TF の設定について、日本原燃（2011）は、使用している参考文献に 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、米に対しては Tc の値から 5（kg-dry/kg-fresh）（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 TF 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。なお、I については、IAEA（1982）では 2×10^{-2} （kg-dry/kg-fresh）が使われており、dry 換算では 2.3×10^{-2} となるが、本調査で得た値と同程度であった。

4.4.4. 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

昨年度までに、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。本年度は H₂O₂ 処理操作位置を検討して、分析法の最適化に努めた。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. 5. 土壤中 Am の濃度分布

Am は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価において重要核種の 1 つである。土壤中の Am 濃度を精度良く測定することは、Am の土壤中挙動や土壌-植物移行の研究において必須条件である。過去には大気圏内核実験を通じて Am が環境中に放出され、同時に ^{241}Pu も環境に負荷された。短半減期核種である ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14.4$ 年) は β 崩壊により ^{241}Am ($T_{1/2} = 433$ 年) となることから、放出直後に比べて環境中の ^{241}Am 濃度は徐々に増加する。現在、我が国の土壤中の Pu の分布状況と環境移行についてのデータが報告されているが、Am に関してのデータはほとんどない。したがって、我が国の環境における Am の挙動について、さらなる研究が必要とされていることから、現在のところ最も濃度が高いと考えられる環境媒体である土壌に着目し、その濃度分布について検討を進めた。

4.5.1. 測定試料

日本全域から採取した畑土壌試料を分析に用いた。 ^{241}Am の汚染源特定と Pu との動態比較のため、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比も測定した。平成 28 年度には、16 県から採取した 20 試料を測定した(放射線医学総合研究所, 2017)。今年度は、山形、栃木、群馬、神奈川、山梨、滋賀、富山、愛知、三重、奈良、兵庫、和歌山、広島、岡山、山口、島根、徳島、高知、佐賀、大分、熊本、宮崎および鹿児島 の 23 県から採取した 24 試料を測定した。

4.5.2. 実験手順

粉碎土壌試料 5-10g を秤量し、約 0.5 pg 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、磁性のろつぽに移しマッフル炉で 450°C 、5 時間灰化した。灰化後、平成 28 年度に確立した分析法(平成 28 年度報告書第 4.2.1.6 を参照)を用いて ^{241}Am を分離し、SF-ICP-MS により ^{241}Am 濃度を測定した(放射線医学総合研究所, 2017)。

土壌試料中 Pu 同位体の測定については本報告書第 4.3.2.3 項を参照のこと。

4.5.3. 結果および考察

本年度の調査した土壌試料採取の場所と分析結果を表 4.5-1 に示す。昨年度の 20 件のデータ(放射線医学総合研究所, 2017) に、さらに 24 件のデータを追加して合計 44 件のデータを得た。今年度測定した畑土中の ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度より低く、0.022 から 0.255 mBq/g の範囲であった。 ^{241}Am 濃度の算術平均値は 0.099 ± 0.056 mBq/g であった。平成 28 年度に測定した 20 件の畑土試料は 0.036 から 0.219 mBq/g の範囲であり算術平均値は 0.100 ± 0.047 mBq/g であった。比較的高い ^{241}Am 濃度 (>0.2 mBq/g) が青森、山形と富山の試料から検出されている。日本海側では、大陸からの偏西風により運ばれてきた放射性核種が冬場に降雪・降雨と共に地表に落下する一方、その効果がない太平洋側は降水量が少なくなる。そのため地域的に差が生じることが知られており、グローバルフォールアウト由来の ^{137}Cs や ^{90}Sr で確認されている。同様の現象が Am でも見られたことを示している。

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、我が国の土壤中の ^{241}Am 濃度に関する情報は非常に限られている。Yamamoto ら(1983b) は、主に 1963 年と 1976 年に我が国の 15 地点で採取された水田の表層土壌 30 試料について、さらに、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 点の ^{241}Am 濃度を測定した。1963 年に採取した水田の表層土壌試料中の ^{241}Am 濃度平均値は 0.163 ± 0.085 mBq/g、1976 年は 0.118 ± 0.078 mBq/g であった。本調査で得られた畑土中 ^{241}Am 濃度平均値と比較すると、これらの水田の表層土壌の結果の方がやや高いことが分かった。しかし、畑土壌と水田の表層土壌の ^{241}Am 濃度はいずれも森林土壌

(0.407~2.701 mBq/g) よりも低かった (Yamamoto et al., 1980)。

また 1963 年のデータと 1976 年のデータの比較から、その濃度が減少している点に着目した。上述したように、土壌に沈着した Am と Pu が保持されていれば、 ^{241}Am 濃度が徐々に増加しなければならない。しかし、減っているということは、Am や Pu が土壌から下方に脱離している、もしくは、Am や Pu を保持した土壌粒子や土壌有機物そのものが徐々に移動していることを示している。

$^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比および $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio の測定結果を表 4.5-2 に示す。調査した 23 県の畑土試料の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.152 から 0.1933 の範囲であり、平均値は 0.174 ± 0.010 であった。これはグローバルフォールアウトの比と同じであった (Kelley et al., 1999)。水田土でも同様であったことは上述している。

本調査で分析した 24 畑土試料中の有機物含有量の範囲は 3.8-30.6% であった (表 4.5-1)。 Pu と ^{241}Am は土壌中の有機物に強く吸着するという報告があるが (Ovsianikova et al., 2010)、図 4.5-1A に示したように、畑土中 ^{241}Am 濃度と有機物含有量には相関が認められなかった。 Am や Pu が土壌に降下してから長期間経過しているため、有機物に収着した Am や Pu は有機物分解により別の形態に変化したため、有機物と錯体を作って移動しやすくなり、下方に溶脱するなど移動した可能性も考えられる。

図 4.5-1B に ^{241}Am 濃度と $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の相関を示す。図から分かるように、 ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と非常に高い相関がある ($R^2=0.9638$)。これは、畑土中の ^{241}Am と Pu 同位体は、環境動態が類似し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 であり、非常に狭い範囲であった (表 4.5-2)。この結果は、畑土中 ^{241}Am の起源がグローバルフォールアウトであることを示唆している。

$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能濃度比と ^{241}Am 濃度の相関について、本調査結果を図 4.5-2 に示す。今年度調査した 24 点の畑土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能濃度比の平均値は 0.433 ± 0.058 であった (図 4.5-2A)。図 4.5-2B は、Yamamoto ら (1983b) 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) を示している。図 4.5-2B に見られるように、1957 年と 1958 年の土壌試料の $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能濃度比 (平均 0.44) は、1961 年以降の土壌試料 (各試料についてほぼ同じ値、平均で 0.30) より有意に高い。 Am は核実験で同時に生成された ^{241}Pu の崩壊由来であると考えられる。核実験には大きく 2 つの期間があり、最初は 1952-1958 年、もう一つは 1961-1962 年である。いくつかの研究者によって (Hisamatsu et al., 1978; Koide et al., 1981)、第 1 期の原爆試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が知られている。すなわち、1981-1982 年の測定時期に図 4.5-2B 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、第 1 期の原爆試験に由来すると考えられる。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。図 4.5-2A に示したように、今年度調査した 24 点の畑土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比 (0.433 ± 0.058) は Yamamoto ら (1983b) が報告している 1960-1980 年代土壌試料より有意に高い。これは、土壌試料中 ^{241}Pu の崩壊によって 1980 年代以後さらに ^{241}Am が生成されたと考えられる。ただし、これらの結果からは Am の移動性について言及することができない。すなわち、先にあった ^{241}Am が徐々に土壌から失われていても、 ^{241}Pu の崩壊で追加された ^{241}Am がそれを補う以上で追加され、見かけ上 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ が高くなっているということも考えられる。したがって、土壌中の Am の挙動を正確に把握するためには、我が国の土壌を用いた K_d を測定することが重要であろう。

4. 6. 文献調査による Pu, Am, Th および Cl の土壤-農作物間移行係数

4.6.1. はじめに

IAEA TRS-472 (2010) の TF データは様々なソースから引用されており、最も信頼できるソースとしては査読付き学術誌、次に、科学誌を専門に扱う出版社から出版されている本、さらには学会プロシーディングスや研究所レポートであり、データの重複を避けるために Review paper は含まずにデータ蓄積を行ったものである。データは専門家によって厳密に選択されていることから、TRS-472 は、将来に渡って多くのモデルによる放射線影響評価で使用される重要なデータ集であると言える。

しかしながら、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 については多くの報告値があるが、Th, Pu や Cl 等の元素については、データ登録数は統計処理できるほどではなかった (IAEA, 2009)。本調査研究の目的の一つは、放射性廃棄物処分の生物圏安全評価において重要な放射性核種の環境移行パラメータを求めることであるが、特に国際的にも、国内的にもデータ数が少なかったり、気候により変動が認められるものについてはその原因究明をすることが重要であるとの考えから、データを蓄積し、得られたデータは将来、このような国際データベースに登録できるように準備しておく必要がある。また、実測データだけでなく、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の最終年である 2007 年以降も、TF に関する多くの研究が行われ、新しいデータが報告されている。TRS-472 に引用されている文献の最も新しい引用年は 2007 年であるが、時間的な制約もあり、とりまとめが最終段階に入っていた 2006-2007 年のデータは十分にカバーできていない可能性がある。Wang らは、2007 年から 2014 年の間に、TRS-472 において十分なデータが収集されていない 4 つの核種 (Pu, Am, Th および Cl) について、新しく公開された TF データを収集し、統計解析を試みている (Wang et al., 2015)。本調査では、さらに最新の文献や中国の文献から TF を収集し、データ解析を行った。特に Pu, Cl, Am そして Th について、2015-2017 年までに発表された文献から調査した新しい TF に関する要約と統計的な解析を行なった。

4.6.2. データ収集および統計解析

本研究では、学術誌、会議の Proceedings、機関の報告書、中国のデータベースで有用な情報を検索し、有用な論文を得ることができた。具体的には、Th の TF については、Nie et al. (2010), Tuovinen et al. (2016), Matveyeva et al. (2015), Asaduzzaman et al. (2015), Hossen and Ferdous (2015), Alsaffar et al. (2015), Chauhan and Kumar (2015), Alsaffar et al. (2016), Mostafa et al. (2016), Planinsek et al. (2016), Yan (2016), Skoko et al. (2017), Shayeb et al., (2017) および Amakom et al. (2017) から報告されている。Am の TF については、Todorov and Djingova (2015), Li et al. (1994) および Guillen ら (2016) から報告されている。また、Guillen ら (2016) は Pu の TF データも 2 つ含んでいる。また Pu については Froehlich らが (2016), AMS を用いて草試料と土壌試料中の ^{239}Pu を分析することにより Pu の 2 つの TF データを報告している。

これらの全ての得られたデータを 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 の統計結果を表 4.6-1 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 (すべての土壌タイプ)

を以前に発表されたデータと比較した。

4.6.3. IAEA TRS 472 との比較

表 4.6-1 に示すように、牧草、葉菜類、穀類、塊茎および水稻の植物群に新たなデータが追加されている。多くの報告がある牧草については、データを増やせなかったが、比較のために牧草以外の草本植物のデータも収集した。Nie et al. (2010) は、U 鉱山の鉱さい処分場で集められた草や土壌サンプルの Th および U 同位体を分析した。ICP-MS によって測定された Th の TF は 2.0×10^{-3} - 4.2×10^{-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壌サンプル (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 1×10^{-2} ~ 3.1×10^{-1} であり、GM が 1.1×10^{-1} である。このように高い TF-Th は、植物試料が U 鉱山付近で採取されたことに由来している。通常 U 鉱山付近の土壌 pH は低く、U 鉱山から溶出してきた Th が土壌に収着されにくく、したがって植物に吸収されやすい形で存在している。なお、Yan (2016) によれば、土壌 pH は 3.6-5.3、平均 4.1 と極めて酸性に傾いていた。通常このように酸性に傾いた土地において農業は行われず、また土壌改良を行って中和するため、TF-Th が高くなる状況にはならない。

Tuovinen ら(2016) は別の方法によって TF を求めている。U の含量が高い土地から 0.5 m^3 の土壌を温室に持ってきて、ライシメーターによる栽培実験を行った。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. (2016) 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壌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、 2.0×10^{-3} - 1.9×10^{-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 で決定された 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。ただし著者は論文中においてこの理由について適切な説明をしていない。

Th の土壌から米 (食用部分) への TF について、Asaduzzaman et al. (2015)、Alsaffar et al. (2015) および Alsaffar et al. (2016) が新しいデータを報告している。Alsaffar et al. (2015) は、環境試料を採取し γ 線スペクトロメトリ法により測定しており、得られた TF は 4.0×10^{-3} - 1.4×10^{-2} の範囲であった。また、稲の Th 分布を示し (穀物 (8%)、籾殻 (11%)、わら (24%)、根 (57%))、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 の土壌-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。ポット実験に用いた土壌は天然の放射能含有量が比較的高い (^{232}Th 濃度、188 Bq/kg、 ^{226}Ra 濃度 191.75 Bq/kg)。彼らの結果は、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 値はすべて 1.1×10^{-2} に近いことを報告しているが、同じく γ 線スペクトロメトリで測定しており、 ^{232}Th の測定に ^{228}Ra の影響が多にあると考えられるが議論されていない。Asaduzzaman et al. (2015) は、マレーシア半島の北西部の土壌からの米への ^{232}Th の移行を調べた。Asaduzzaman らの実験では、高い TF 値 (0.18~0.48) が得られているが彼らもまた γ 線スペクトロメトリで定量している。最近、Hossen と Ferdous (2015) とも γ 線スペクトロメトリ法を用いて、10 種の土壌から葉菜類 (アマランス) の TF を求めている。報告された TF (0.14-0.5) は、IAEA の推奨値 (表 4.6-1) より約 2 桁高い。Mostafa et al. (2016) も γ 線スペクトロメトリ法を用いて ^{232}Th の濃度を分析することにより、4 つの異なる土壌タイプ (シルト粘土、砂質粘土、粘土の土壌および砂地) からの小麦の TF を調査した。得られた TF-Th は、IAEA 推奨値よりも高い 0.14 から 1 の範囲であった。Planinsek et al. (2016) は通常の土壌よりも高濃度の U を含む U 鉱山の鉱さい処分場土壌を混合したポット実験により、大根、サボイ、ロケットの TF (^{230}Th) を調査した。TF の範囲は、大根の葉 (5.8×10^{-4} ~ 2.0×10^{-2})、サボイ葉 (6.8×10^{-4} ~ 1.6×10^{-2})、ロケット葉 (1.6×10^{-4} ~ 3 ~ 2.03×10^{-2}) と大根 (1.4×10^{-3} ~ 2.0×10^{-2})

2)であった。これらの大根の葉および塊茎、およびサボイの葉に対して、Th-TFの幾何平均値は 1.5×10^{-2} である。これらのTFは一般に、IAEAの推奨値(1.2×10^{-3})と比較して、約1桁高い。一方、ロケット葉のTFはIAEAの値とほぼ一致していた。彼らもまた γ 線スペクトロメトリーを使用しているが、 ^{230}Th を直接測定しており、測定の問題はないが、U鉱山付近の土壌を利用していることから、Thの可給態量が多いと推定される。

Amakom et al. (2017)は γ 線スペクトロメトリ法を用いて ^{232}Th の濃度を分析することにより、土壌からのキャッサバのTFを調査した。定量には ^{208}Tl を使用しており、上述した資料と同様に、 ^{228}Ra の影響が無視されている。得られたTF-Thは、IAEA推奨値よりも高い0.81から4.84の範囲であった。土壌pHが低い(概ね6以下)ため、Raが積極的に吸収された結果と考えられる。

上述してきたように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。この仮定は土壌サンプルの ^{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 の移行係数は通常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、その結果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 の摂取量を調査した。サンプリングされた植物種は草やハーブ、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 の植物摂取量は、対照拠点(普通土壌)での摂取量と比較して有意に少ないが、 ^{40}K ではその逆であった。処分場とコントロール地点の ^{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、ハーブ、低木および樹木のTh-TF(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(括弧内の値はコントロール地点のデータである)。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。石炭灰はpHを高めることから、ThやRaが不溶化しTFが低くなると考えられる。

AmおよびPuに関しては、平成29年度には、新しいデータの追加はなかった。

塩素のTFについても新しい文献が見つからなかった。塩素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塩素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。植物種の差は塩素の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。

4. 7. まとめ

4.7.1. Thの土壌-米間移行係数データの収集

今年度調査では、平成28年度に採取した白米試料10点と玄米試料10点を用いて、Th濃度測定を行った。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であり、幾何平均値は 4.6×10^{-5} mg/kgであった。玄米試料10点については、 4.1×10^{-5} から 6.1×10^{-4} mg/kgの範囲であり、幾何平均値は、 9.7×10^{-5} mg/kgであった。この結果から玄米のTh濃度は白米のTh濃度より高かったことがわかる。平成28年度測定した玄米試料10点と今年度測定した玄米試料10点、合わせて20点の玄米試料および今年度測定した白米試料10点からThの土壌-米間のTFデータを導出した。その結果、玄米の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。白米のTF(n=9)は 5.1×10^{-6} から 3.5×10^{-5} の範囲であり、幾何平均値 1.3×10^{-5} が得られた。

4.7.2. Puの土壌-玄米間移行係数データの収集

今年度は4県から採取した土壌と米試料をPu分析に供してデータ(n=6)を得ることができた。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おり、環境中において長期間存在していたことから、十分平衡に達している値が得られたといえる。得られたPu濃度から玄米のTFを導出したところ、その範囲は、 4.5×10^{-6} から 1.2×10^{-4} であり、幾何平均値は 3.3×10^{-5} であった。一般に、平衡状態に達した実環境試料から得られるPuのTFの数は極めて少ないことから、本調査で得られたPuのTFは公表されているTFのデータベースをより確からしいものにしていくために重要であろう。他の農作物についても測定を行って存在するデータの代表性を向上させていくことも重要である。このようなデータを収集して我が国独自のデータベース構築を行うとともに、世界的にも数が少ないこれらのデータを今後国際的に提供していくことが重要である。

4.7.3. 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

昨年度までに、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。本年度は H_2O_2 処理操作段階を検討して、分析法の最適化に努めた。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。

4.7.4. 土壌中 ^{241}Am の濃度分布

本年度は平成28年度に確立された超高精度分析法を用いて、畑土試料中の ^{241}Am 濃度測定を行い、昨年度の結果と合わせて44試料のデータを得ることができた。今年度測定した畑土中の ^{241}Am 濃度範囲は0.136から0.255 mBq/gであり、昨年度と同様に $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度より低かった。日本海側でやや高い傾向を示したのは、グローバルフォールアウトでもたらされた ^{137}Cs や ^{90}Sr の結果と一致する。44件の畑土試料の ^{241}Am 濃度平均値は 0.099 ± 0.052 mBq/gであり、 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比は 0.418 ± 0.066 であった。なおこれらの畑土壌の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 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 であり、グローバルフォールアウトの比と同じである。すなわち、これら土壌試料中の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。このように、AmとPuの濃度比が、降下時初期の頃の比を保持しているということは、Amの土壌中における挙動がPu

に類似していることを示唆している。今後はこれらの2核種の土壌中挙動の類似性について情報を得るべく、 K_d 値を得ることが重要であろう。

引用文献

- Adriano, D.C., McLeod, K.W., & Ciravolo, T.G. (1981). Plutonium, curium, and other radionuclide uptake by the rice plant from a naturally weathered, contaminated soil. *Soil. Sci.* 132, 83-88.
- Alharbi, A., & El-Taher, A. (2013). A study on transfer factors of radionuclides from soil to plant. *Life Science Journal* 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., & 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. *Inter. 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.
- 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. Engineer.* 13, 1-9.
- Dragović, S., Mihailović, N., & Gajić, B. (2010). Quantification of transfer of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs in mosses of a semi-natural ecosystem. *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.
- 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.

- IAEA (1994). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial Environments. IAEA-TRS-364, Vienna.
- IAEA (2009). Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA TECDOC-1616, Vienna
- IAEA (2010). Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. IAEA-TRS-472, Vienna
- Kelley, J. M., Bond, L. A., & 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.
- 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.
- 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.
- Mheemeeed, A. K., Najam, L. A., & Hussein, A. K. (2014). Transfer factors of ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th from soil to different types of local vegetables, radiation hazard indices and their annual doses. *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.
- Montelius, M., Thiry, Y., Marang, L., Ranger, J., Cornelis, J. T., Svensson, T., & Bastviken, D. (2015). Experimental evidence of large changes in terrestrial chlorine cycling following altered tree species composition. *Environ. Sci. Technol.* 49, 4921-4928.
- Mostafa, A. M. A. (2016). Transfer factors of radionuclides from soil to wheat grains. *Int. J. Scientific & Engineering Research* 7, 642-644.
- Muramatsu, Y., Yoshida, S., & Tanaka, A. (2003). Determination of Pu concentration and its isotope ratio in Japanese soils by HR-ICP-MS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 255, 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)

- 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 Polesie 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
- 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. Monitor.* 13, 1730-1738.
- Rodríguez, P. B., Tomé, F. V., Lozano, J. C., & Fernández, M. P. (2010). Transfer of ^{238}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , and ^{210}Pb from soils to tree and shrub species in a Mediterranean area. *Appl. Radiat. Isot.* 68, 1154-1159.
- Saeed, M.A., Yusof, S.S., Hossain, I., Ahmed, R., Abdullah, H.Y., Shahid, M., & Ramli, A.T. (2012). Soil to rice transfer factor of the natural radionuclides in Malaysia. *Romanian Journal of Physics* 57, 1417-1424.
- Sahoo, S., Hosoda, M., Kamagata, S., Sorimachi, A., Ishikawa, T., Tokonami, S., Uchida, S. Thorium, uranium and rare earth elements concentration in weathered Japanese soil samples. *Progress Nucl. Sci. Technol.* 2011, 1, 416-419.
- Saito-Kokubu, Y., Yasuda, K., Magara, M., Miyamoto, Y., Sakurai, S., Usuda, S., Yamazaki, H., Yoshikawa, S., Nagaoka, S., Mitamura, M., Inoue, J., & Murakami, A. (2008). Depositional records of plutonium and ^{137}Cs released from Nagasaki atomic bomb in sediment of Nishiyama reservoir at Nagasaki. *J. Environ. Radioact.* 99, 211-217.
- 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. *J. Environ. Radioact.* 167, 75-79.
- 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. Eng. Des.* 261, 279-284.
- 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.
- UNSCEAR, Ionizing Radiation: Sources and biological effects. In United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1982 Report to the General Assembly, New York, 1982
- 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., Yang, G.S. Zheng, J., Cao, L.G., Yu, H.J., Zhu, Y.B., Tagami, K., & Uchida, S. (2015b). Effect of ashing temperature on accurate determination of plutonium in soil samples. *Anal. Chem.* 87, 5511-5515.
- Yan, X. (2016). Uptake of radionuclide thorium by twelve native plants grown in uranium mill tailings soils from south part of China. *Nucl. Eng. Des.* 304, 80-83.
- Yamamoto, M., Yamamori, S., Komura, K., & Sakanoue, M. (1980). Behavior of plutonium and americium in soils. *J. Rad. Res.* 21, 204-212.
- Yamamoto, M., Komura, K., & Sakanoue, M. (1983a). Discrimination of the plutonium due to atomic explosion in 1945 from global fallout plutonium in Nagasaki soil. *J. Rad. Res.* 24, 250–258.
- Yamamoto, M., Komura, K., & Sakanoue, M. (1983b). ²⁴¹Am and plutonium in Japanese rice-field surface soils. *Journal of Radiation Research*, 24(3), 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.* 47, 755-765.
- 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.
- Zhang, J.J., Wei, J.G., Xu, H., & Zhou, W.L. (1989). The plutonium (Pu) radiation level in food in the residential areas around the nuclear testing site in Xinjiang. *Res. Environ. Sci.* 2, 27 – 31. (In Chinese)
- Zhang, Z. Q., Chen, Y.D., Song, G., & Yue, Y.M. (2011) Uptake of radionuclides from soil to plant and the discovery of ²²⁶Ra, ²³²Th hyper-accumulator. *Environmental Science* 32, 1159-1163. (in Chinese)
- Zheng, J., Tagami, K., Watanabe, Y., Uchida, S., Aono, T., Ishii, N., Yoshida, S., Kubota, Y., Fuma, S., & Ihara, S. (2012). Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident. *Sci. Rep.* 2, 304.
- Zheng, J. (2015). Evaluation of a new sector-field ICP-MS with Jet Interface for ultra-trace determination of Pu isotopes: from femtogram to attogram levels. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 15, 7-13.
- 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). *日本土壌肥料科学雑誌* 55, 62-70.
- 放射線医学総合研究所 (2014). 放射性核種生物圏移行評価高度開発 (平成25年度報告書) http://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/library/2013/25-19-1.pdf
- 放射線医学総合研究所 (2015). 放射性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). 放射性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>
- IAEA (1982): Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases. Safety

Series No. 57.

IAEA (2010): Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series No.472.

表 4.2-1 白米と玄米試料中 Th 濃度測定結果

Soil	Soil Th (mg/kg)		Brown Rice Th(mg/kg)	White rice Th (mg/kg)
EPII-SD-21	3.46	EP II-CF-21	3.7E-04	1.2E-04
EPII-SD-22	3.24	EP II-CF-22	5.8E-05	3.4E-05
EPII-SD-23	3.50	EP II-CF-23	5.2E-05	3.7E-05
EPII-SD-24	4.38	EP II-CF-24	6.1E-04	1.4E-04
EPII-SD-25	3.67	EP II-CF-25	4.1E-05	3.0E-05
EPII-SD-26	2.53	EP II-CF-26	7.7E-05	4.4E-05
EPII-SD-27	4.28	EP II-CF-27	7.0E-05	2.2E-05
EPII-SD-28	6.28	EP II-CF-28	4.8E-05	ND
EPII-SD-29	4.11	EP II-CF-29	1.7E-04	5.5E-05
EPII-SD-30	2.26	EP II-CF-30	6.0E-05	2.6E-05
Minimum			4.1E-05	2.2E-05
Maximum			6.1E-04	1.4E-04
Max./Min.			14.9	6.4
Median			6.5E-05	3.7E-05
Arithmetic mean (AM)			1.6E-04	5.6E-05
Geometric mean (GM)			9.7E-05	4.6E-05

表 4.2-2 水田土と米中 Th 測定結果および Th の土壌-米間移行係数

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	6.11	EP II-CF-11	2.9E-04	4.8E-05		
EPII-SD-12	5.71	EP II-CF-12	2.5E-04	4.4E-05		
EPII-SD-13	3.78	EP II-CF-13	4.7E-04	1.2E-04		
EPII-SD-14	10.2	EP II-CF-14	1.4E-04	1.4E-05		
EPII-SD-15	3.18	EP II-CF-15	2.0E-04	6.3E-05		
EPII-SD-16	5.02	EP II-CF-16	7.9E-05	1.6E-05		
EPII-SD-17	3.55	EP II-CF-17	1.7E-04	4.9E-05		
EPII-SD-18	7.14	EP II-CF-18	7.7E-05	1.1E-05		
EPII-SD-19	5.37	EP II-CF-19	2.3E-04	4.3E-05		
EPII-SD-20	6.85	EP II-CF-20	1.5E-04	2.2E-05		
EPII-SD-21	3.46	EP II-CF-21	3.7E-04	1.1E-04	1.2E-04	3.5E-05
EPII-SD-22	3.24	EP II-CF-22	5.8E-05	1.8E-05	3.4E-05	1.0E-05
EPII-SD-23	3.50	EP II-CF-23	5.2E-05	1.5E-05	3.7E-05	1.1E-05
EPII-SD-24	4.38	EP II-CF-24	6.1E-04	1.4E-04	1.4E-04	3.2E-05
EPII-SD-25	3.67	EP II-CF-25	4.1E-05	1.1E-05	3.0E-05	8.2E-06
EPII-SD-26	2.53	EP II-CF-26	7.7E-05	3.0E-05	4.4E-05	1.7E-05
EPII-SD-27	4.28	EP II-CF-27	7.0E-05	1.6E-05	2.2E-05	5.1E-06
EPII-SD-28	6.28	EP II-CF-28	4.8E-05	7.6E-06	ND	ND
EPII-SD-29	4.11	EP II-CF-29	1.7E-04	4.1E-05	5.5E-05	1.3E-05
EPII-SD-30	2.26	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	2.3 to 10.2		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	2.26		4.1E-05	7.6E-06	2.2E-05	5.1E-06
Maximum	10.2		6.1E-04	1.4E-04	1.4E-04	3.5E-05
Max./Min.	4.51		1.5E+01	1.8E+01	6.4E+00	6.7E+00
Median	4.20		1.5E-04	2.9E-05	3.7E-05	1.2E-05
Arithmetic mean (AM)	4.73		1.8E-04	4.2E-05	5.6E-05	1.6E-05
Geometric mean (GM)	4.42		1.3E-04	3.0E-05	4.6E-05	1.3E-05

表 4.2-3 Th の土壌-米間移行係数と他の報告書の値との比較

	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}

表 4.3-1 水田土試料中の Pu 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比 (試料 1-6, 平成 27 年度測定; 試料 7-10, 平成 28 年度測定; 試料 11-16, 平成 29 年度測定)

Sample ID	Prefecture	^{239}Pu activity		$^{239+240}\text{Pu}$ activity		$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio	
		(mBq/g)	STD	(mBq/g)	STD		STD
1	Akita	0.555	0.015	0.885	0.030	0.162	0.008
2	Niigata	0.278	0.009	0.448	0.002	0.166	0.010
3	Toyama	0.220	0.009	0.357	0.010	0.171	0.008
4	Gifu	0.362	0.015	0.604	0.031	0.182	0.013
5	Nagasaki	0.147	0.006	0.234	0.011	0.160	0.011
6	Fukushima	0.236	0.012	0.393	0.030	0.167	0.012
7	Chiba	0.232	0.011	0.387	0.029	0.181	0.013
8	Toyama	0.244	0.008	0.392	0.073	0.165	0.012
9	Gifu	0.552	0.033	0.919	0.007	0.180	0.014
10	Nara	0.123	0.003	0.204	0.023	0.179	0.006
11	Kochi	0.284	0.014	0.477	0.023	0.184	0.019
12	Kagoshima	0.141	0.010	0.231	0.012	0.174	0.018
13	Kagoshima	0.046	0.005	0.073	0.007	0.160	0.038
14	Yamaguchi	0.130	0.011	0.211	0.014	0.172	0.024
15	Miyazaki	0.099	0.009	0.170	0.016	0.196	0.039
16	Kochi	0.098	0.007	0.158	0.016	0.169	0.035

表 4.3-2 玄米中 ^{239}Pu 測定結果および Pu の土壌-玄米間移行係数(試料 11-16, H29 年度データ)

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 EF-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

表 4.3-3 Pu の土壌-米間移行係数の比較

Country	Pu source and sampling environment	TF of Pu	Reference
France	$^{239,240}\text{Pu}$ 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 $^{239,240}\text{Pu}$ in paddy field	$4.5 \times 10^{-6} - 1.2 \times 10^{-4}$	This study

表 4.4-1 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 () 内は範囲	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 4.4-2 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 4.4-3 玄米の塩素、臭素およびヨウ素の TF (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)

表 4.5-1 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-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				3.8%	0.022	
max				30.6%	0.255	
median				8.7%	0.073	
arithmetic mean (AM)				11.6%	0.099	
Geometric mean (GM)				9.6%	0.085	

表 4.5-2 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-40	Fluvisol	広島	0.146	0.001	0.179	0.022	0.500	0.048
EF-SD-41	Fluvisol	島根	0.239	0.002	0.174	0.014	0.413	0.065
EF-SD-45	Andosol	宮崎	0.099	0.000	0.182	0.014	0.480	0.106
EF-SD-51	Gleysol	富山	0.678	0.018	0.168	0.015	0.376	0.025
EF-SD-55	Fluvisol	滋賀	0.187	0.002	0.176	0.016	0.499	0.052
EF-SD-56	Cambisol	奈良	0.116	0.001	0.176	0.015	0.517	0.050
EF-SD-57	Cambisol	岡山	0.130	0.001	0.182	0.017	0.505	0.065
EF-SD-58	Fluvisol	山口	0.306	0.004	0.176	0.014	0.416	0.063
EF-SD-59	Cambisol	徳島	0.281	0.004	0.168	0.019	0.469	0.059
EF-SD-60	Fluvisol	佐賀	0.358	0.006	0.175	0.017	0.447	0.029
EF-SD-61	Cambisol	大分	0.084	0.001	0.171	0.029	0.479	0.092
EF-SD-64	Fluvisol	山形	0.541	0.015	0.166	0.020	0.387	0.041
EF-SD-66	Andosol	栃木	0.233	0.002	0.179	0.014	0.475	0.047
EF-SD-67	Andosol	群馬	0.099	0.001	0.193	0.031	0.473	0.100
EF-SD-68	Andosol	神奈川	0.188	0.002	0.155	0.014	0.373	0.049
EF-SD-69	Fluvisol	山梨	0.053	0.006	0.193	0.024	0.415	0.111
EF-SD-70	Fluvisol	愛知	0.172	0.007	0.189	0.008	0.402	0.088
EF-SD-71	Andosol	三重	0.432	0.018	0.184	0.082	0.347	0.048
EF-SD-72	Fluvisol	滋賀	0.122	0.007	0.177	0.009	0.458	0.066
EF-SD-73	Andosol	兵庫	0.439	0.024	0.166	0.009	0.344	0.063
EF-SD-74	Cambisol	和歌山	0.184	0.016	0.152	0.001	0.368	0.062
EF-SD-76	Fluvisol	高知	0.352	0.019	0.174	0.010	0.353	0.052
EF-SD-77	Andosol	熊本	0.143	0.022	0.173	0.002	0.515	0.129
EF-SD-79	Andosol	鹿児島	0.178	0.014	0.159	0.001	0.384	0.067
min			0.053		0.152		0.344	
max			0.678		0.193		0.517	
median			0.186		0.175		0.431	
arithmetic mean (AM)			0.240		0.174		0.433	
Geometric mean (GM)			0.198		0.174		0.429	

表 4.6-1 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	Ref.	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}	[e]	Natural field ^a
Grass & herbs	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]	U mine tailing ^c 2016: 12 entries Coal ash & slag site (control soil site) 2017: 4 entries
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}	[m]	Natural field ^a Uranium mine ^b 2016: 15 entries
Fruit										
Edible	27	1.9×10^{-1}	2.8×10^{-1}	7.7×10^{-2}	2.7	2.5×10^{-4}	1.3		[f],	Natural field ^a
Inedible	7	1.2×10^{-1}	7.7×10^{-2}	9.2×10^{-2}	6.3	1.0×10^{-3}	0.7		[l]	Natural field ^a 2017: 9 entries
Non-leafy Vegetable										
Edible	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]	Natural field ^a
Inedible	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 ^a
Cereal (excl. rice)	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]	Natural field ^a Uranium mine ^b 2016: 30 entries
Rice										
Edible	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]	Natural field ^a
Inedible	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 ⁱ 2016: 4 entries
Tuber										
Edible	22	7.7×10^{-1}	1.2	8.2×10^{-2}	1.2	1.4×10^{-3}	4.8	2.0×10^{-4}	[o]	Natural field ^a
Inedible	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}		Uranium mine ^b 2016: 5 entries 2017: 8 entries
Root crop	6	5.9×10^{-1}	5.5×10^{-1}	4.6×10^{-1}	2.4	2.8×10^{-1}	1.7	8.0×10^{-4}	[p]	Natural field ^a
Tree	17	1.5×10^{-2}	2.5×10^{-2}	2.8×10^{-3}	12	4.6×10^{-5}	1.0×10^{-1}		[q]	Uranium mine ^b Contaminated area ^d
Tree	4	7×10^{-3} (5×10^{-3})	5×10^{-3} (2×10^{-3})	6×10^{-3} (5×10^{-3})	1.9 (1.7)	N/A	N/A			Coal ash & slag site (control soil site)
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			

a: Under natural field conditions, using ²³²Th concentrations in the plant and corresponding soil samples.

b: In an abandoned uranium mine, using ²³⁰Th (or ²³²Th) concentrations in the plant and corresponding soil samples.

c: In U-mill tailing disposal sites, using ²³⁰Th concentrations in the plant and corresponding soil samples.

d: In a wetland site contaminated by radioactive waste discharged from a nuclear research facility, using ²³²Th.

e: Nie, et al., 2010; Tuovinen, et al., 2016; Matveyeva, et al., 2015; ICRP, 2009; Alharbi and El-Taher., 2013; Kristsanuwat 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: Alharbi and El-Taher, 2013; Kristsanuwat et al., 2014; Kumar et al., 2008; Shanthi et al., 2012

g: Kristsanuwat et al., 2014; Zhang et al., 2011; Shanthi et al., 2012; Aswood et al., 2013; Mheemeed et al., 2014.

h: Asaduzzaman, et al., 2015; Alsaffar, et al., 2015; Kristsanuwat et al., 2014; Shanthi et al., 2012; Saeed et al., 2012. Alsaffar, et al., 2016.

i: In a pot experiment using natural soil, using ²³²Th concentrations in grain and soil samples.

j: Khan 2010; Mihaylova, et al., 2013; Alharbi, et al., 2013; Mostafa, et a., 2016.

k: Skoko et al., 2017.

l: Shayeb et al., 2017 (palm pits)

m: Hossen, 2015, Planinsek, 2016

o: Asaduzzaman, 2014, Khan 2010; Chauhan, 2015; Planinsek, 2016; Amakom et al., 2017

p: Asaduzzaman, 2014 Shanthi, 2012

q: Rodriguez, 2010; Popic, 2011; Zhang, 1989, Skoko et al., 2017

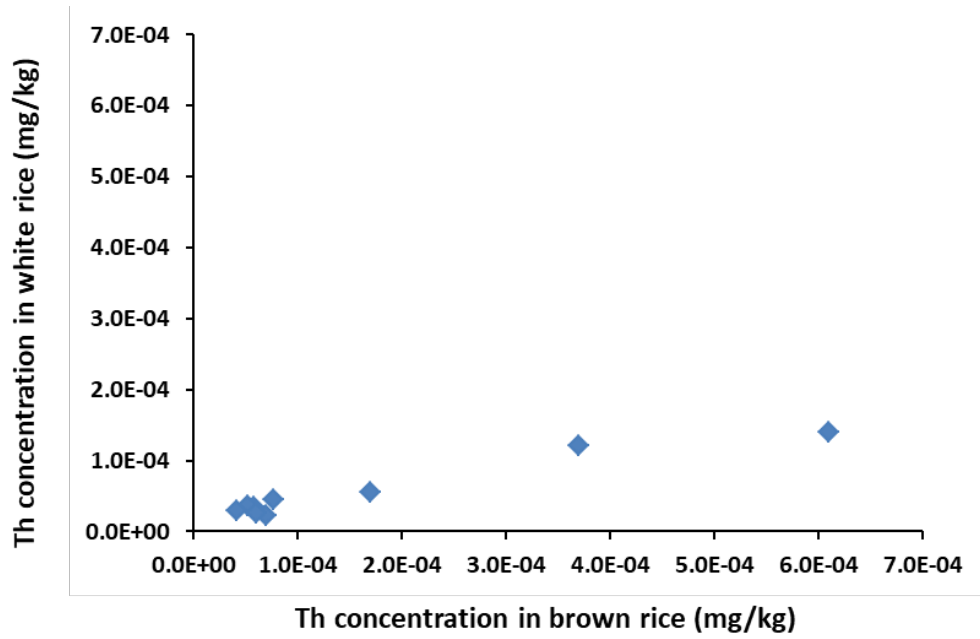


図 4.2-1 白米 Th 濃度と玄米 Th 濃度の比較

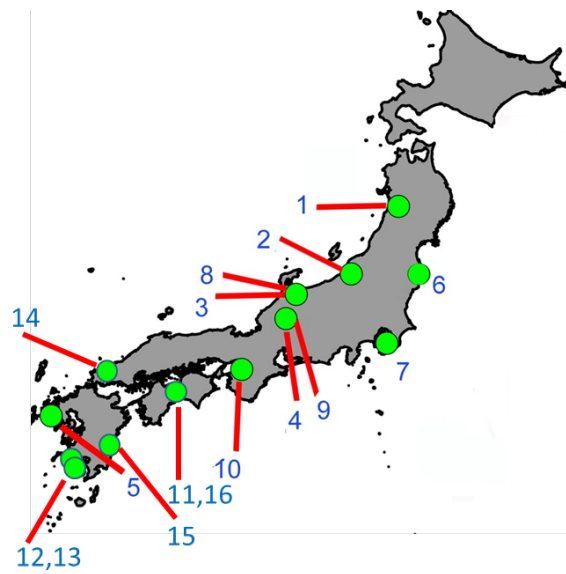


図 4.3-1 本研究における土壌および米試料採取地点
 (1-6 : 平成 27 年度, 7-10 : 平成 28 年度, 11-16 : 本年度にそれぞれ分析を行った)

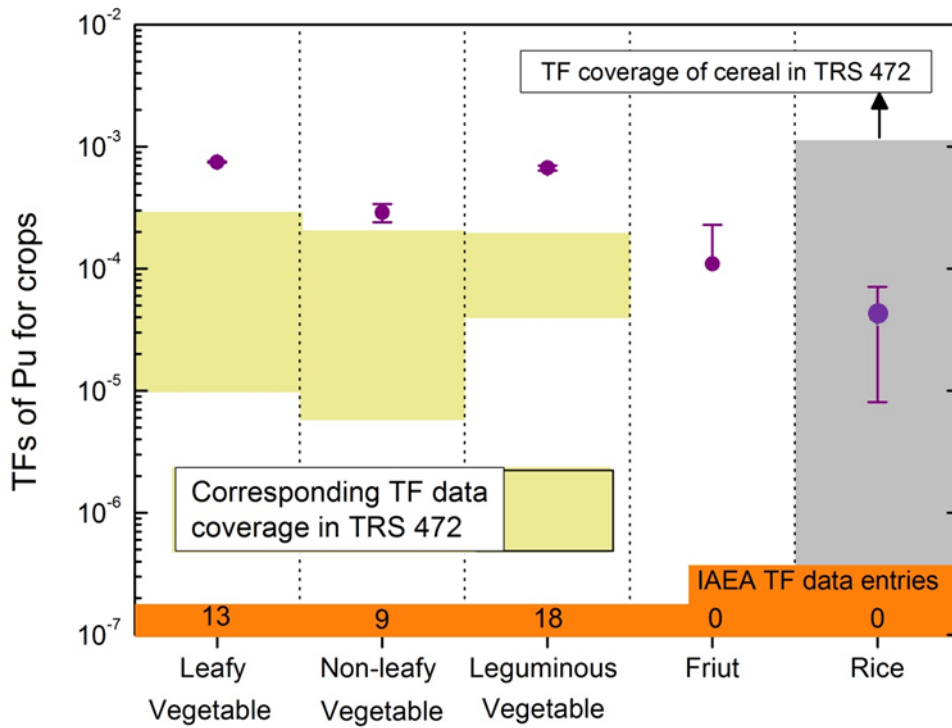


図 4.3-2 本研究で得られた Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較 (紫色ドットは本調査測定結果の算術平均値; 薄い黄色は IAEA TRS-472 TF データ範囲)

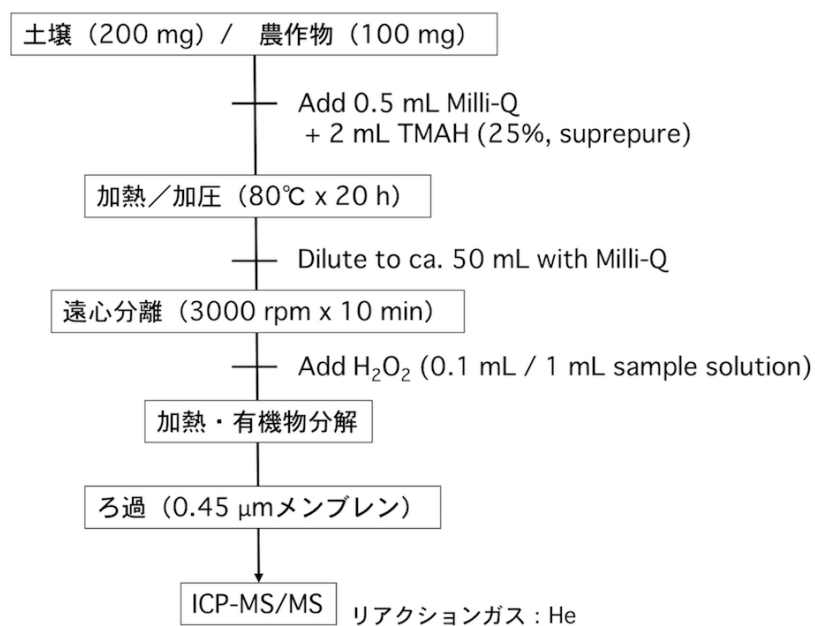


図 4.4-1 TMAH-トリプル四重極 ICPMS による塩素分析手順

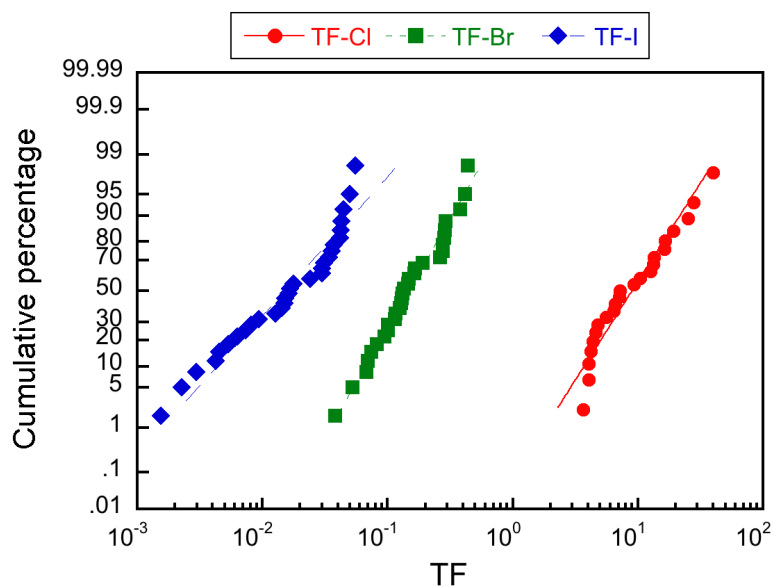


図 4.4-2 玄米の塩素、臭素およびヨウ素 TF の確率度数分布

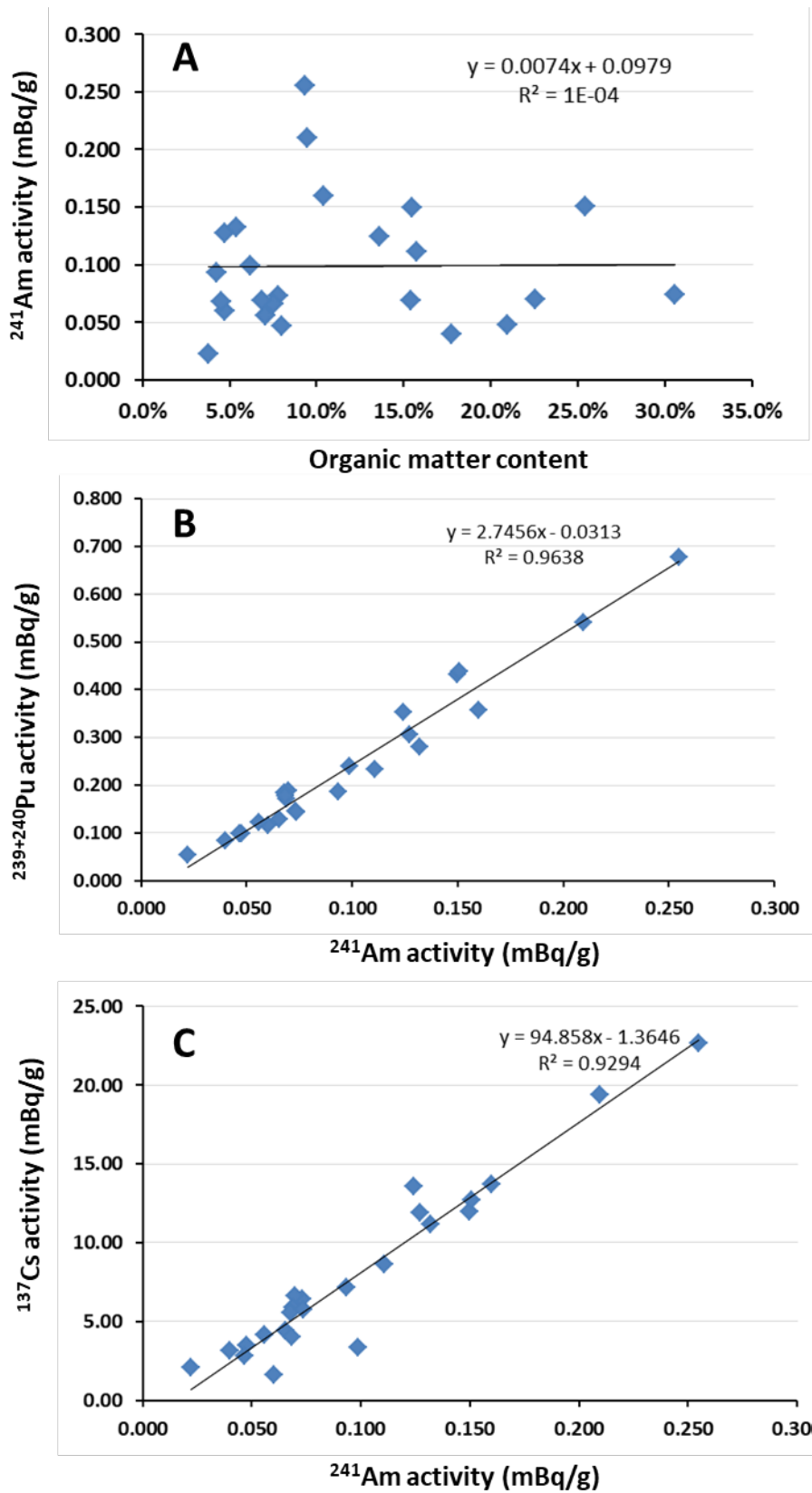


図 4.5-1 畑土中 ^{241}Am 濃度と有機物含有量, $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ^{137}Cs 濃度の相関

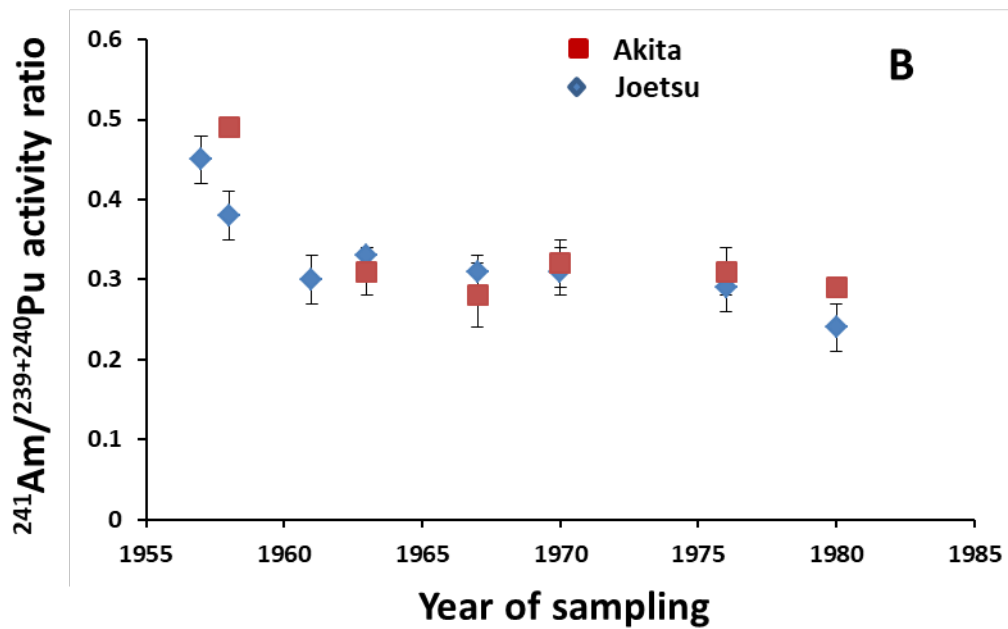
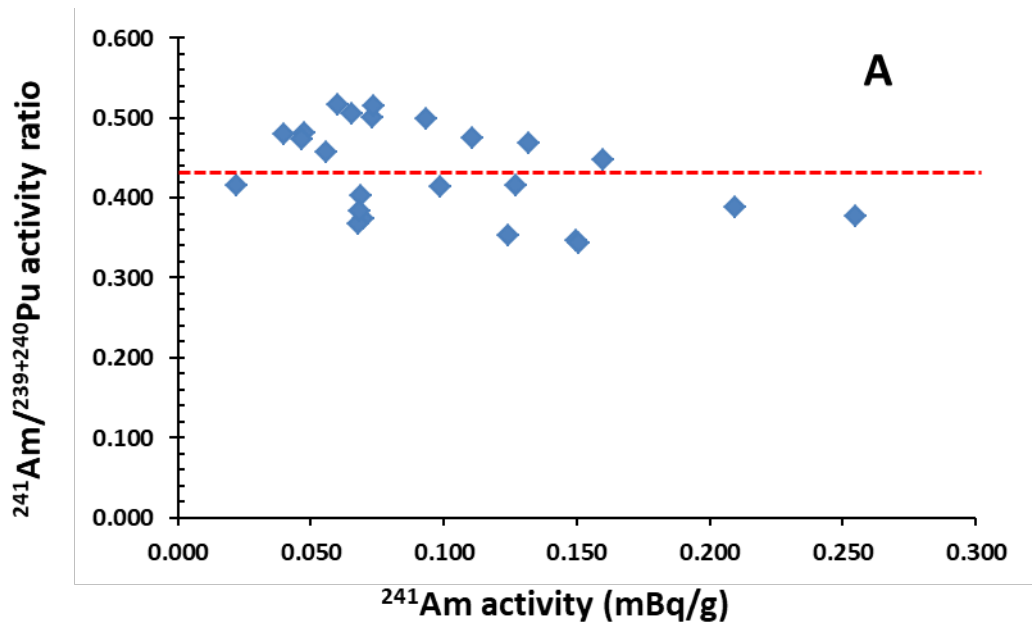


図 4.5-2 畑土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比と ^{241}Am 濃度の相関と日本水田土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比文献値 (Yamamoto et al., 1983b) の比較

第5章 まとめ

5. 1. はじめに

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

本調査では、

- (1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ (TF および 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行ってきた。さらに、東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性核種の様々なデータも収集した。

各課題における本年度の成果についてその概要を以下にまとめる。

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

本課題は、環境移行パラメータ (TF, K_d) に及ぼす気温等の影響評価を行い、気温の影響を受ける場合には気温条件を項目に加えたデータベースを構築することである。そのためには、比較可能となるデータの質の揃ったデータセットを整え (土壌と農作物試料収集および元素分析・定量と、条件を揃えた K_d 実験)、得られたデータを元に TF や K_d データを蓄積し、温度を考慮した検討を行った。さらに、長半減期核種である ^{135}Cs を考慮し、その環境移行パラメータに反映させるために、福島第一原発の事故により環境中に放出された放射性 Cs データに着目してデータを収集した。

5.2.1. 土壌-植物間移行係数 (TF) に対する気温の影響調査

本年度はジャガイモ試料を比較的寒冷地および温暖地において 10 点採取し、これらの収穫期の土壌もサンプリングした。さらに、これらの試料の前処理を行い、土壌特性分析をするとともに、元素濃度定量を農作物および土壌それぞれについて元素分析を行い、濃度データを得るとともに、TF をデータベースに追加した。さらに、平成 28 年度に採取した土壌および作物データセットについて、希土類元素等の定量分析を行い、それらについても TF をデータベースに追加することができた。作成したデータベースを用いて、比較的寒冷地、温暖地について日本全国データを元に t 検定により濃度に有意差が認められるかどうかについても調査を行った。

(1) 土壌試料

$p < 0.01$ の項目は、水田土壌では、pH, CEC, act. Fe, Li, As, Se, Mo, Sn, Cs, La, Ce, Th, C, N であり、畑土壌では、Be, Mn, Sr, Mo, La, Th であった。水田土壌および畑土壌共に $p < 0.01$ であったのは Mo, La, Th であった。それらの平均値の差は水田土壌では、Mo で 2 倍 (寒冷地 > 温暖地), La で 1.5 倍 (寒冷地 < 温暖地), Th で 1.6 倍 (寒冷地 < 温暖地)、畑土壌では、Mo で 1.3 倍 (寒冷地 > 温暖地), La で 1.3 倍 (寒冷地 < 温暖地), Th で 1.4 倍 (寒冷地 < 温暖地) であった。すなわち、有意差は認められるが、平均値に大きな差はなく、むしろそれぞれ地域内における濃度範囲は寒冷地と温暖地の平均値の差よりも大きい。

(2) 玄米及びジャガイモ

$p < 0.01$ の項目は玄米で元素 (Fe, Cu, Zn, Ba)、ジャガイモには該当する項目はなかった。玄米の 4 元素について、平均値の差は Fe で 1.4 倍 (寒冷地 < 温暖地), Cu と Zn で 1.3 倍 (寒冷地 < 温暖地), Ba で 1.7 倍 (寒冷地 < 温暖地) と 2 倍以内であった。これらの結果から、寒冷地と温暖地では玄米もジャガイモも幾何平均値を使えばほぼ同じ成分構成であったと言える。むしろそれぞれの地域内における濃度範囲の方が大きい。

(3) 葉菜類

この項目については、年平均気温を元に、全国データ (温暖地除く) と温暖地間での比較を行った。その結果、K, As, Se, Nb, Sb, Eu および C については $p < 0.01$ となり、いずれも温暖地のデータで高くなったが、その差はわずかであった。

以上の結果から、いずれの項目も寒冷地、温暖地のデータは 2 倍以内程度と小さい幅に留まることがわかった。

5.2.2. 土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) に対する気温の影響調査

本年度、畑土壌について、10, 23, 30°C での K_d を比較したところ、昨年度の水田土壌の結果と異なり、気温が高くなることにより K_d が減少する傾向は明確ではなかったものの、全体としては気温条件が低いほど K_d 値が高くなる傾向を示すことがわかった。なお、23°C における K_d 再取得実験では、畑

土壌での K_d 値の経年変化が有意に認められたことから、畑土壌では温度条件以外の要因が K_d を変動させたと考えられた。

5.2.3. 環境移行パラメータ (TF) の変動要因の解析

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、対象とした 36 元素に対し、玄米、ジャガイモ、葉菜類で有意差が認められたものは少なかった。それぞれの作物について有意差が認められる元素については、その幾何平均値の差は玄米・ジャガイモで 2-3 倍程度、葉菜類ではほとんどが 2 倍以内であり、多くても 5-11 倍程度であった。多くの元素で気候の違いによる TF の差は多くの元素で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（クオリティ・コントロールができない）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、IAEA TRS472 (2010) 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。

5. 3. 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

本事業では、 ^{14}C がヒトに移行する場として生物圏に着目しており、農耕地土壌から農作物への ^{14}C 移行データを収集している。これまでの調査から、生物圏に到達した ^{14}C の大部分は、農耕地においてガスとして大気中に放出されることが明らかにされてきた。さらに、 ^{14}C のガス化は主に微生物活動が原因であることも分かってきた。本事業は、微生物の代謝活性と ^{14}C のガス化との関係を踏まえ、ガス化を考慮した環境移行パラメータについて検討することを目的としている。本年度は、気温の変化が微生物活動に及ぼす影響、その結果が放射性炭素の移行パラメータに与える影響を明らかにするために、次の2点を実施した。

- ・ 水稲への ^{14}C 移行量に対する気温変化の影響

温度変化に伴う微生物活動の変化と ^{14}C の玄米への移行量の関係を統括的に評価するために、異なる温度条件で水稲を栽培し、土壌中の微生物活性、大気中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度、および収穫した玄米中の ^{14}C 量を明らかにする。

- ・ 微生物活動を反映した ^{14}C の水稲移行モデルによる解析

水田における ^{14}C の動態をシミュレートするために、水稲内のモデルパラメータを対象とする不確実さ伝播解析を実施し、収穫した穂部内の ^{14}C 含量に影響を及ぼすモデルパラメータの重要度評価を行う。さらに、全モデルパラメータを対象に、設定根拠、結果への影響度及び不確実さ幅について整理し、温度に影響される微生物活動の重要度を評価する。

5.3.1. 水稲への ^{14}C 移行量に対する気温変化の影響

温度変化に伴う微生物活動の変化と ^{14}C の玄米への移行量の関係を明らかにすために、異なる気温で水稲を栽培し、土壌微生物の活性、周辺環境の CO_2 濃度変化、水稲の茎葉部、籾殻、そして玄米に取り込まれた ^{14}C 量について調査した。

土壌中の ^{14}C は、微生物の作用により $^{14}\text{CO}_2$ ガスとして大気中に放出され、これが光合成を介して作物に取り込まれる。気温は微生物作用による $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度に影響する。気温が低ければ $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生が抑制され、高ければ促進される。しかし、現在、水稲が栽培される温度範囲であれば最終的な $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量は気温に影響されない事が分かった。

高温条件で栽培した水稲の栄養生長期あるいは登熟期において $^{14}\text{CO}_2$ ガスを曝露したが、玄米中の ^{14}C 濃度に差は見られなかった。一方、低温条件で栽培した場合、栄養生長期よりも登熟期に $^{14}\text{CO}_2$ ガスを曝露した水稲で、玄米中の ^{14}C 濃度が高くなった。高温条件の場合、群落内は光不足で光合成による $^{14}\text{CO}_2$ の取り込みは限られており、例え群落外へ移行したとしても拡散により希釈されてしまう。低温条件の場合、高温条件と比較して土壌から放出された $^{14}\text{CO}_2$ ガスが水稲群落頂近傍の大気中に蓄積されやすく、その結果、より多くの ^{14}C が水稲に取り込まれたのではないかと考えている。低温条件で ^{14}C 取り込み量が増大するならば、寒冷化が示唆されている将来において、水稲への ^{14}C の移行量は現在の試算よりも多くなる可能性がある。

5.3.2. ^{14}C のガス化に対する統括的指標

^{14}C のガス化を考慮した移行パラメータを提案するために、微生物活動と ^{14}C ガス化率の関係について検討した。土壌微生物の活動に影響する土壌特性も加味した物理化学生物学的特徴から、 ^{14}C ガス化率の指標を示すことが可能か検討したが、重回帰分析において選定されたパラメータでは ^{14}C ガス

化率の約 30%程度しか説明できないことが分かった。

これまで ^{14}C のガス化は ^{14}C 標識酢酸をトレーサとした試験で得られた値を用い、微生物活動との関係について検討されてきた。一方で、酢酸は水田土壌微生物にとって決して利用しやすい有機物でないことも分かっている。そこで、これら水田土壌微生物が利用しやすい有機物を用い、微生物の呼吸活性と ^{14}C のガス化との関係についても検討したが、この検討においても微生物活動と ^{14}C のガス化との間に明確な関係性は見いだせなかった。

以上の結果は、水田微生物が様々な有機物を利用している可能性を示唆している。 ^{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物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。

5.3.3. 微生物活動を反映した ^{14}C の水稻移行モデルの構築

水稻全体モデルに関しては、モデルパラメータに対する不確かさ伝播解析では、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ので、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。

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

放射性廃棄物の地層処分場から環境中へ放出された放射性核種は環境の違いによってその動態が大きく異なると考えられる。従って、我が国の環境移行パラメータを収集・整備する必要がある。平成14年度から18年度までに放射線医学総合研究所では、生物圏における環境媒体中元素濃度を蓄積し、土壌-植物間移行係数 (TF) や土壌-土壌溶液間分配係数 (K_d) 等の環境移行パラメータの導出並びにデータベース構築を行った。しかし、Pu, Am, Th および塩素 (Cl) は、放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価上重要核種であるがデータが少ない。その重要核種の測定は極めて高度の分析技術が要求されるため、核種移行モデルに使用される環境移行パラメータは十分蓄積されていないのが現状である。

本事業では、データが少なくかつ重要核種、すなわち、Pu, Am, Th および塩素について、超高精度分析を開発し、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。

5.4.1. Th の土壌から米への移行係数データ収集

本調査では、平成28年度に採取した白米試料10点と玄米試料10点を用いて、Th濃度測定を行った。

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であり、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。玄米試料10点については、Th濃度範囲は 4.1×10^{-5} から 6.1×10^{-4} mg/kgであり、最大/最小濃度比は14.9であった。算術平均値および幾何平均値は、それぞれ 1.6×10^{-4} と 9.7×10^{-5} mg/kgであった。

平成28年度測定した玄米試料10点と今年度測定した玄米試料10点、合わせて20点の玄米試料および今年度測定した白米試料10点からThの土壌-米間のTFデータを導出した。その結果、玄米の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。白米のTF (n=9) は 5.1×10^{-6} から 3.5×10^{-5} の範囲であり、幾何平均値 1.3×10^{-5} が得られた。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濃度比は0.23-0.73であった。

本調査で得られたThの米へのTFは、これまでに報告されているものよりも1/5から1/3程度低い値である。これまで用いられていた米のTh分析法は、本調査で開発した分析法-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幾つかある。したがって、これまでに報告されているTF値は測定が可能であった試料だけの平均値であるために高くなったと考えられる。

5.4.2. Pu の土壌-玄米間移行係数データの収集

Puの土壌-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、玄米試料とその土壌試料中の ^{239}Pu 濃度を分析することにより、グローバルフォールアウト起源のPuの土壌-米のTFデータを新たに取得した (n=16)。Puの土壌-米のTFは 4.5×10^{-6} から 1.2×10^{-4} の範囲であり、その幾何平均値は、 3.3×10^{-5} であった。

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、Pu源やサンプリング環境の違いによるものと思われる。

これまでに報告されたデータは、 $^{239,240}\text{Pu}$ 汚染サイト、核実験サイトまたは ^{238}Pu スパイク実験のいずれかから取得された試料である。報告書から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、TFで想定している根からの吸収以外のプロセス、例えば、Puを含む汚染土壌の舞い上がり (再浮遊) とその植物表面付着などの経路も考えられ、その場

合、TF が過大評価されることになる。一方、再浮遊-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、土壤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。このように、可給態は時間とともに減少すると考えられている。このようなエイジングの効果を考えた場合、室内ポット実験のデータの利用には制限があることも考慮されなければならない。つまり、通常は可溶性の形態、例えば、硝酸塩形態で添加された場合、得られた TF データは野外実験に比べて 1~2 桁程度高い値が得られることが多い。放射性廃棄物の地層処分に係る長期間の安全評価においては、その性質上、本研究によって示されたデータの方が、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 値よりも現実的であるといえる。

一般に、平衡状態に達した実環境試料から得られる Pu の TF の数は極めて少ないことから、本調査で得られた Pu の TF は公表されている TF のデータベースをより確からしいものにしていくために重要であろう。ただし、上述したように Pu の土壤中の形態が植物移行に効いてくると考えられることから、土壤中の移動性を示す K_d についても今後取得していくことが、Pu の環境挙動理解のために望ましい。

5.4.3. 土壤および玄米中の塩素定量と移行係数の導出

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。一般に、塩素は水中においては陰イオンで存在することから、 ^{36}Cl も地質環境中や生活圏において易動性が高く、そのため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。安定 Cl は環境中において陰イオンだけでなく、岩石や土壤鉱物等においてハロゲン化鉱物 (halides) や磷灰石 (-Cl, Chlorapatite) 等としても存在している。

塩素の移行係数 (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)、本研究では土壤および農作物中の Cl の分析を行ってきた。上述したような土壤鉱物中に含まれる Cl については、容易に溶出しないため植物にも利用できない。そこで、土壤については水溶性~有機物結合態 Cl までを測定対象とした。

昨年度までに、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。本年度は H_2O_2 処理操作位置を検討して、分析法の最適化に努めた。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、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。

5.4.4. 土壤中 Am の濃度分布

現在、日本の土壤については、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が利用可能であるが、Am に関してのデータはほとんどないのが実情である。したがって、日本の環境における Am の挙動について、さらなる研究が必要とされていることから、現在のところ最も濃度が高いと考えられる環境媒体である土壤に着目し、その濃度分布について検討を進めた。

本年度は、24 件の畑土壤のデータを追加した。今年度測定した畑土中の ^{241}Am 濃度は 0.022 から 0.255 mBq/g の範囲でありその算術平均値は 0.099 ± 0.056 mBq/g であった。昨年度と同様に $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度よりも低い濃度であった。

今年度調査した 24 点の畑土中 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比(0.433±0.058)は 1960-1980 年代土壌試料より有意に高い。これは、土壌試料中 ^{241}Pu の崩壊によって 1980 年代以後さらに ^{241}Am 生成されたと考えられる。ただし、これらの結果からは Am の移動性について言及することができない。すなわち、先にあった ^{241}Am が徐々に土壌から失われていても、 ^{241}Pu の崩壊で追加された ^{241}Am がそれを補う以上で追加され、見かけ上 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ が高くなっているということも考えられる。したがって、土壌中の Am の挙動を正確に把握するためには、我が国の土壌を用いた K_d を測定することが重要であろう。

平成 29 年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会

平成 29 年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会委員

石川 奈緒：岩手大学理工学部 システム創成工学科 助教

小嵐 淳：国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター
環境動態研究グループ 研究主幹

坂口 綾：筑波大学 数理物質系化学域 准教授

颯田 尚哉：岩手大学 農学部 教授

高橋 知之：京都大学原子炉実験所 原子力基礎工学研究部門 准教授

武田 晃：(公財) 環境科学技術研究所 環境影響研究部 主任研究員

塚田 祥文：福島大学 環境放射能研究所 教授

中尾 淳：京都府立大学大学院生命環境科学研究科 准教授

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29年度放射性核種生物圏移行評価高度化開発評価検討委員会 開催日時

第1回：平成29年10月16日

第2回：平成29年10月17日

第3回：平成30年1月29日

第4回：平成30年1月30日

謝 辞

本調査を遂行するにあたり、RIトレーサー実験、試料前処理および試料調製、元素分析、データ整理などの作業において、(株)東京ニュークリアサービスの小磯 寛之氏、菊池 洋好氏および小暮 則和氏の協力を得た。農作物採取および農地採取では(一財)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(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の精緻化においては有限会社ワイファーストの協力を得た。また、中国からの客員協力研究員である門武博士、王海博士と実習生である倪 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。

ここに記して謝意を表する。

調査担当者：

放射線医学総合研究所

廃棄物技術開発研究チーム

内田 滋夫

田上 恵子

石井 伸昌

鄭 建

芦田 能美