

土壌から作物への放射性核種の移行

Transfer of radionuclide from soil to agricultural plants

環境科学技術研究所 塚田 祥文

(Institute for Environmental Sciences, Hirofumi Tsukada)

1. はじめに

環境中に放出された放射性核種は、様々な経路を経て人体中に移行するため、その分布や移行を把握することが重要な課題である。農作物への移行は、大気から作物葉面に直接沈着する葉面吸収と土壌から作物に移行する経根吸収の 2 つの経路がある。大気中濃度の減少に伴い、葉面吸収より経根吸収の寄与が大きくなり、半減期の長い放射性核種は土壌中に存在する間経根吸収によって作物へ移行する。土壌に沈着した放射性核種の移行は、時間の経過に伴って変化する存在形態によって影響を受ける。一般的には沈着後から土壌中での物理的・化学的変化を受け、比較的移動しやすい画分から移動しにくい画分へと次第に変化し、同時に農作物への移行率も減少する。人体における放射性核種の摂取および移行を評価するため、農作物可食部中放射性核種濃度あるいは土壌－農作物（可食部）間の移行パラメータについて多くの研究が行われている。一方、農作物の非可食部は、家畜の飼料等としても利用される他、有機資材として土壌に還元され食物連鎖を通じて人体に移行されると懸念されるが、非可食部中に含まれる放射性核種に関する知見は極めて乏しい。ここでは、土壌－作物系における放射性 ^{137}Cs の挙動を明らかにするため、土壌中の存在形態、土壌から植物へ移行可能な画分（可給態）、可給態の経時的な変化、および土壌から作物への移行について調査した結果を紹介する。

2. 実験

青森県内から採取した土壌や農作物について、大気圏核実験由来のフォールアウト ^{137}Cs の動態調査、または、室内での ^{137}Cs の添加実験を実施した。

土壌は、1991 年～2004 年に青森県内の圃場から採取し、50°C で乾燥後、2 mm の篩を通し、土壌試料とした。土壌中 ^{137}Cs の存在形態は、イオン交換画分（F1）を 1 M 酢酸アンモニウムで抽出（E1）、有機物結合画分（F2）を過酸化水素分解－酢酸アンモニウム抽出（E2、硝酸酸性下）画分から F1 を差し引いた画分とし、抽出残渣を粒子結合画分（F3）とした。更に、粒子結合画分の一部は、篩および沈降法により粗砂（0.2～2 mm）、細砂（0.02～0.2 mm）および粘土鉱物（<0.002 mm）に分別した。シルト（0.002～0.02 mm）から粘土鉱物を完全に除去することができなかったため分析試料から除き、シルト中 ^{137}Cs 濃度は計算によって求めた。

農作物は、1991 年～1997 年に青森県の圃場から採取し、水洗などで土壌粒子を取り除き外皮の除去などを行った後、450°C 以下で灰化し分析試料とした。また、イネの部位別試料は、実験圃場で通常の管理と同様にイネ（*Oryza sativa* cv. Mutsuhomare）を栽培し、5 月上旬に田植え、10 月中旬に稲刈りを行い、同時に土壌も採取した。採取したイネ試料は、白米、ヌカ、モミガラ、ワラおよび根に分別した。それぞれの試料は、前述と同様に処理し分析試料とした。

フォールアウト ^{137}Cs 濃度は、Ge 半導体検出器、または、放射化学分離後、低バックグラウンドガスフローカウンターで測定した。一部の試料については、安定 ^{133}Cs を ICP-MS で分析した。添加実験で用いた ^{137}Cs は、NaI シンチレーション検出器で測定した。

3. 結果および考察

3.1. 土壌中における存在形態

土壌中フォールアウト ^{137}Cs の存在形態を明らかにするため、11 地点から採取した土壌試料について前述した抽出法でイオン交換態画分 (F1)、有機物結合画分 (F2) と粒子結合画分 (F3) に分別した (図 1)。粒子結合画分は、さらに粘土、シルト、細砂および粗砂に分けて測定した。なお、ここで測定したフォールアウト ^{137}Cs とは、主に 1950～1960 年代に行われた大気圏核実験由来により土壌に沈着後約 30 年が経過している。各画分の存在割合の平均値は、それぞれ比較的移動しやすいとされるイオン交換態画分に 12%、および有機物結合画分に 17% が存在し、残渣の粒子結合画分に 70% 以上が存在した。土壌粒子と強固に結合している粒子結合画分のうち特に粘土画分中 ^{137}Cs 濃度は、粗砂や細砂中濃度に比べ、4～25 倍の高い値だった。一般的に ^{137}Cs は土壌粒子、特に粘土鉱物のフレイド・エッジサイトと言われる場所に強く吸着することが知られている。ここで調査した粘土鉱物含量は 6～30% であり、土壌に占める粘土画分中 ^{137}Cs の割合は、約 40% であった。以上から、土壌に沈着してから約 30 年経過した ^{137}Cs は、約 70% が土壌粒子と強く結合した画分に存在し、そのうちの多くが粘土画分に存在することが示された。

3.2. 可態給画分

土壌から植物に移行する ^{137}Cs の存在画分を明らかにするため、青森県内の 26 地点から土壌とバレイショを採取し調査した。土壌は、先に述べた抽出法、即ち、酢酸アンモニウム (E1、イオン交換態画分)、過酸化水素で有機物を分解後硝酸酸性下で酢酸アンモニウム抽出 (E2、イオン交換態画分+有機物結合画分) と全土壌、ならびにバレイショ中 ^{137}Cs と ^{133}Cs を測定した。土壌中各画分の ^{137}Cs と ^{133}Cs の存在割合が異なることから、比放射能 (安定 ^{133}Cs 濃度に対する放射性 ^{137}Cs 濃度の比、Bq/mg) を測定し、バレイショ中比放射能と比較した。その結果、バレイショ中比放射能は E1 と一致したが、E2 や全土壌の比放射能は明らかに低い値を示した。従って、イオン交換態として抽出される画分は、土壌から植物へ移行する主な存在形態であることが明らかになった。

3.3. 可給態画分の経時的な変化

室内実験で土壌に一定量の ^{137}Cs (キャリアフリー) を添加し、チャンバー内で湿潤と乾燥を繰り返すエイジングを行い、経時的なイオン交換態画分 (可給態画分) の抽出率の変化を求めた。同時に、フォールアウト ^{137}Cs のイオン交換態画分の抽出率割合も求めた。添加した ^{137}Cs の抽出率は、時間の経過と共に減少し、添加から 320 日後の抽出率は、536 日後の抽出率と同様であった (図 2)。そこで、添加実験から求めた 320 日後の抽出率とフォールアウト ^{137}Cs の抽出率を比較したところ、両者の値は一致した。従って、土壌に沈着した放射性 Cs のうち植物へ移行すると考えられる存在画分の割合は、約 1 年後には沈着から数十年が経過した ^{137}Cs とおおよそ同程度になることが明らかになった。

3.4. 土壌－作物間の移行

土壌中 ^{137}Cs 濃度が既知の場合、農作物中 ^{137}Cs 濃度を類推するために移行係数 (土壌中濃度に対する農作物中濃度の比) を用いる。移行係数を用いる評価方法は、複雑な環境条件を模擬し、容易に農作物中放射濃度を推測できることから広く採用されている。代表的な移行係数は、これまでに多くのレポート (例えば、IAEA Technical Reports Series No. 472, 2010) にまとめられている。移行係数は、土壌や農作物の種類により異なることが報告されている。これまでに調査を行ってきた青森県内の各種農作物の移

行係数（IAEA の定義と同様に乾物重量を基準）を取りまとめた結果、白米が他の農作物に比べ 1 桁程度低い、0.0016（幾何平均値）であった。

イネは、主な可食部となる白米以外のヌカ、モミガラ、ワラも飼料や有機資材として利用されるため、それらに含まれる ^{137}Cs もやがては食物連鎖を通して人体に移行する。そこで実験圃場で栽培したイネの部位別 ^{137}Cs 濃度を測定した結果を表 1 に示す。実験圃場の土壌中 ^{137}Cs 濃度は、4.4 Bq/kg であり福島原発事故前の日本各地における測定値と同程度の値であった。白米中 ^{137}Cs 濃度は、0.0048 Bq/kg 乾物であり、土壌中濃度の 1/1000 であった。一方、イネ中 ^{137}Cs 濃度は部位によって異なり、白米中で最も低く、ヌカで最も高い値（白米の約 9 倍）にあった。

収穫時におけるイネ全体に対する白米の乾燥重量割合は、32%であった。しかしながら、白米中 ^{137}Cs 濃度が低いため、白米に吸収された ^{137}Cs の存在割合はイネ全体に吸収された 10% に留まっていた。一方、ワラの ^{137}Cs 存在割合は 65% で、白米を除く非可食部に大部分の ^{137}Cs が含まれていることが分かった（図 3）。

表層土壌（ここでは表層の耕作土壌 0~20 cm とする）からイネに吸収される ^{137}Cs の除去率を見積もった結果を表 2 に示す。表層土壌からイネ地上部（根を除く）への ^{137}Cs の除去率は、0.0030% であり、白米では 0.00031% でしかなく、イネを用いた土壌汚染の浄化は極めて難しいことが示唆された。

4. 最後に

土壌に沈着した放射性 Cs は時間の経過とともに土壌により強く吸着し、植物への移行率は急速に減少する。沈着から数年後以降は、概ね一様な移行率（移行係数）になると考えられる。しかしながら、土壌中に放射性 Cs が存在する間は、僅かながら農作物へ移行する。一方、Cs と同族のアルカリ金属に属する K は動植物にとっての必須元素である。K には 0.0117% の放射性 ^{40}K が含まれている。農作物中 ^{40}K 濃度は、土壌中濃度が異なっても農作物で固有の濃度にあることが知られている。土壌中 ^{137}Cs を 5000 Bq/kg（農林水産省で定めた土壌中放射性 Cs 濃度の上限値イネの作付け規制値）として移行係数から求めた各種農作物中 ^{137}Cs と ^{40}K 濃度を比較すると、調査した全ての農作物で ^{40}K 濃度より低い値である。

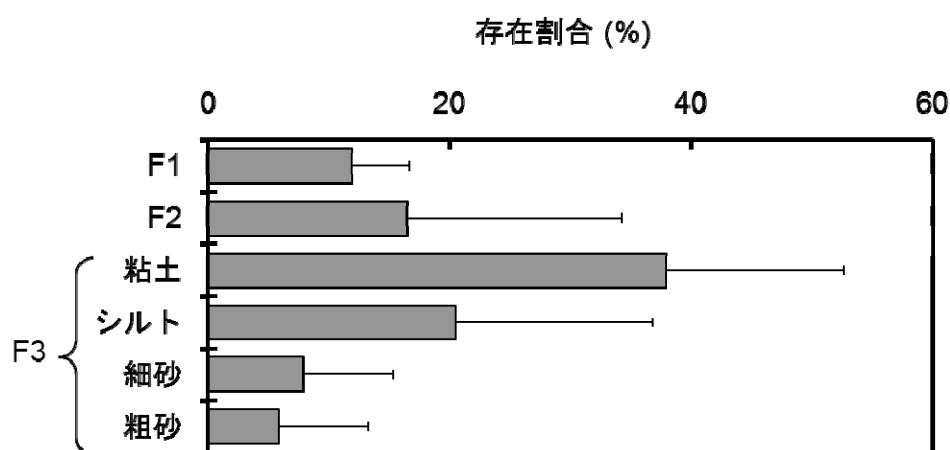


図 1 土壌中 ^{137}Cs の存在形態および粒径分布割合 (n=11)
F1, イオン交換態画分; F2, 有機物結合画分; F3, 粒子結合画分

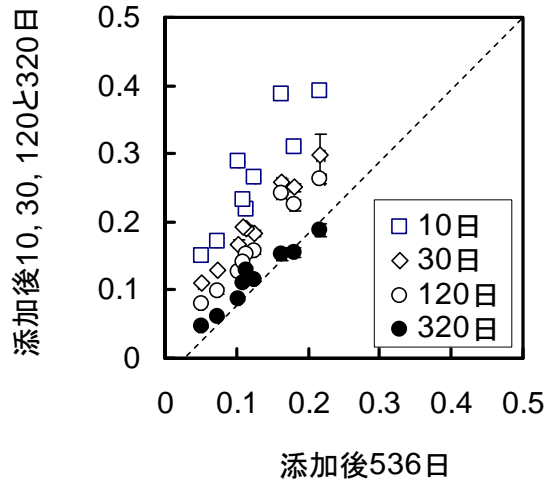


図2 土壤に添加した¹³⁷Csの添加後536日と10～320日におけるイオン交換態抽出率の比較

表1 土壤およびイネ部位別中¹³⁷Cs濃度

試料	¹³⁷ Cs	
	Bq/kg 乾物	
土壤	4.4	± 0.4 ^a
イネ部位別区分		
白米	0.0048	± 0.0011
ヌカ	0.041	± 0.013
モミガラ	0.021	± 0.002
ワラ	0.022	± 0.009
根	0.010 ^b	± 0.003

^a1SDの計数誤差.

^b土壤粒子の寄与を除去した結果.

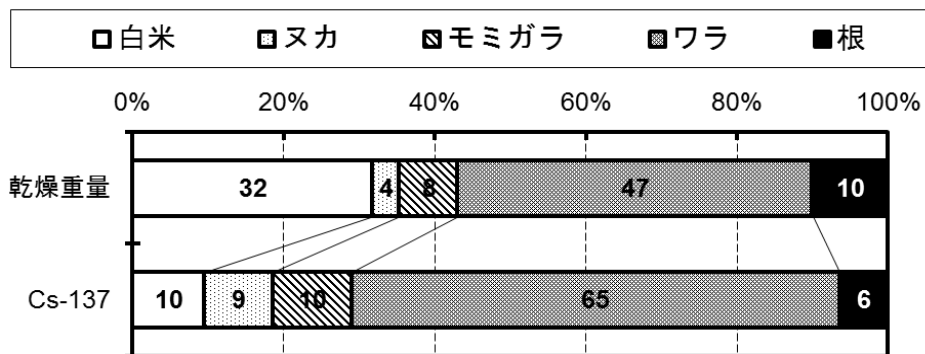


図3 収穫時におけるイネ部位別の乾物重量および¹³⁷Csの存在割合

表2 表層土壌からイネ部位別への¹³⁷Cs除去率

試料	除去率 ^a
	¹³⁷ Cs %
イネ部位別区分	
白米	0.00031
ヌカ	0.00029
モミガラ	0.00033
ワラ	0.0021
地上部	0.0030

^a 表層土壌0～20cmから作物に移行する割合.