鹿児島県内の農耕地土壌におけるウランの蓄積実態

赤木 功, 樗木 直也

鹿児島大学 農学部 (〒890-0065 鹿児島県鹿児島市郡元1-21-24)

[2020年3月30日受付, 2020年8月4日受理]

The Accumulation of Uranium in Agricultural Soils in Kagoshima Prefecture, Japan

Isao AKAGI and Naoya CHISHAKI

Faculty of Agriculture, Kagoshima University
(1-21-24 Korimoto, Kagoshima, Kagoshima 890-0065)

[Received March 30, 2020; Accepted August 4, 2020]

Summary

The uranium (U) concentrations of the agricultural and non-agricultural soils in four areas (Isa, Nagashima, Nansatsu, and Osumi) in Kagoshima Prefecture were determined. The U concentrations of the agricultural soils were higher than those of the non-agricultural soils in all areas. The U concentrations were positively correlated with the P concentrations in the soils, which suggested a link between long-term phosphate fertilizer application and U accumulation in the soils. The amounts of U enriched in the agricultural soil surfaces (0–15 cm depth) in the Isa, Nagashima, Nansatsu, and Osumi areas, as calculated from the comparison with the non-agricultural soils, were estimated to be 47–318, 25–343, 61–226, and 47–185 mg/m², respectively. This demonstrated that the accumulation of U occurred in the agricultural soils in these areas. The commercially available superphosphate, magnesium multi-phosphate, fused magnesium phosphate, animal waste composts, and sewage sludge compost in these areas contained 51.6, 22.2, 10.6, 0.88–1.07, and 1.56 μg/g of U, respectively, which showed that these fertilizer materials could become sources of U in agricultural soils. According to the calculation with reference to the amount of fertilizer applied, it was estimated that the amounts of U added from fertilizers were 2.7–3.0 mg/m² in rice paddy fields and 8.6–9.2 mg/m² in Chinese cabbage fields per cropping system. These results indicated that the amounts of U input derived from fertilizers per cropping system differed greatly depending on the cultivated crop.

Key words: agricultural soils, fertilizers, uranium

1. はじめに

ウラン (U) は化学毒性を有する重金属の一つとして知られており、その摂取により腎障害を引き起こすことが実験動物を用いた毒性試験によって確かめられている¹⁻³⁾。世界保健機構 (WHO) は、1998年に飲料水の U に関して健康に基づく暫定ガイドライン値を設定し、最新の“Guidelines for drinking-water quality 4th ed.”においてその値を 0.03 mg/L と定めている⁴⁾。わが国においても、1998年に水道水質の監視項目として U が追加され、2003年の見直しにより水質管理目標設定項目 (目標値: 0.002 mg/L) に設定されている⁵⁾。また、2004年には、水質汚濁に係る人の健康に関する環境基準等における要監視項目 (指針値: 0.002 mg/L) として U が追加され⁶⁾、水質汚濁の未然防止のためのモニタリングの対象となっている。

一方、我が国の農耕地土壌は、原野、非耕地あるいは森林の土壌

よりも U 濃度が高い傾向にあることが、国内各地から採取した土壌を対象に行われた調査において明らかにされており、その原因として農業生産の場面で広く用いられているリン酸質肥料の施用による影響が指摘されている⁷⁻⁹⁾。リン酸質肥料中には、その原材料であるリン鉱石に由来する U が副次的成分として含まれていることが知られており¹⁰⁻¹⁴⁾、リン酸質肥料の過剰施用による土壌への U 蓄積の可能性について以前より指摘がなされてきた¹⁵⁾。このリン酸質肥料由来 U の土壌蓄積については、61年間、継続的に化学肥料の施用が実施された実験圃場 (長期連用試験圃場) における調査でも、その可能性が認められている¹⁶⁾。日本は世界でも有数のリン酸質肥料の消費国であり、その農地面積当たりの消費量は世界でも突出している¹⁷⁾。かつては、リン酸肥沃度の低い農耕地土壌が広く存在し、リン酸質肥料の施用による積極的な土壌改良が進められてきたが、最近では、その長期にわたる継続的な施用により、作物に吸収されずに残存したリン酸が土壌に過剰蓄積している圃場が多く存在している状況にある¹⁸⁾。例えば、1979年から1997年にかけて実施されてきた土壌環境基礎調査によれば、土壌中の可給態リン酸 (0.001 mol/L 硫酸可溶性リン酸) が、地力増進基本指針に基づく改善目標値を

この記事はクリエイティブ・コモンズ [表示-非営利-改変禁止4.0国際] ライセンスの下に提供されています。

超過している圃場が、普通畑では17%程度、野菜畑では47%を占めるに至っていることが示されている¹⁹⁾。このような状況下において、上述のようなリン酸質肥料に由来する U の土壌蓄積が、わが国の農耕地土壌において広く発生している可能性は十分に考えられる。農耕地から河川等への土壌の流出は頻繁に観察される現象であり、周辺環境への影響を評価する上でも農耕地における U の土壌蓄積の実態を把握することは重要であると考ええる。しかしながら、実際に農業生産活動が行われている地域の農耕地を対象に土壌中 U 濃度を調査した研究報告は少なく、それらに関する知見は限定的である。

土壌中 U の天然賦活量は土壌母材によって異なることが予想される²⁰⁾。したがって、農耕地における土壌蓄積の状況を検証するためには、同一母材から生成したと考えられる土壌、すなわち、同一土壌型の土壌が分布する地域内において調査を行うことが望ましい。本研究では、農耕地土壌として、同一土壌型の土壌が分布する特定の地域内の営利栽培が行われている生産者圃場から採取した土壌について、その土壌中 U 濃度を明らかにするとともに、同地域内の非耕地土壌のそれとを互いに比較することで農耕地における U 蓄積の実態について検証を行った。また、土壌中の U 濃度とリン (P) 濃度との関係からリン酸質肥料の影響について考察を行うとともに、各種の化学肥料や堆肥に含まれる U 濃度の分析を行い、それらの施用量を基に肥料由来 U の土壌負荷量について推定を試みた。

2. 材料および方法

2. 1 土壌試料

鹿児島県内の 4 地域、伊佐地域（伊佐市）、長島地域（出水郡）、南薩地域（南九州市）および大隅地域（鹿屋、志布志市および曾於郡）から採取した耕地土壌83点および非耕地土壌25点を分析に供した（Table 1）。耕地土壌は農作物の営利栽培が行われている生産者圃場から採取した。非耕地土壌は少なくとも現在において、作物栽培が行われておらず、農業生産活動の影響を受けていない土地、すなわち、ススキ、ヨシなどの草本類が群生する荒地、十分な管理がなされていない雑木林、スギが植栽された林地、人の侵入が少ない公園や神社境内の緑地などから採取した。耕地土壌は2012年から2013年にかけて各々の圃場において作物が栽培されていない時期に、非耕地土壌は2014年 4 月にそれぞれ採取した。土壌はステンレス製の移植ごてを用いて、表層から 15 cm の深さまでを採取し、ポリエチレン袋に詰めて運搬した。採取した土壌は室温下で風乾させた後、2 mm のふるいに通したものを分析試料とした。なお、包括的土壌分類（第 1 次試案）²¹⁾ によれば、伊佐地域の試料は低地土大群、長島地域の試料は赤黄色土大群、南薩および大隅地域の試料は黒ボク土大群の土壌型にそれぞれ分類される土壌であった。

2. 2 化学肥料および堆肥試料

化学肥料として、窒素質肥料である硫酸アンモニア（硫安）、リン酸質肥料である過リン酸石灰、苦土重焼リンおよび熔成リン肥（熔リン）、カリ質肥料である塩化カリウム（塩加）、石灰質肥料（石灰質資材）として炭酸苦土石灰を各 1 点ずつ分析に供した。いずれも鹿児島県内に流通し、作物栽培に利用されているものを入手した。一方、堆肥として、家畜排せつ物に副資材としておがくず、パークなどを混合して製造された家畜ふん堆肥 3 点と下水汚泥を主体として製造された下水汚泥堆肥 1 点を分析に供した。いずれも鹿児島県内で市販されていたものである。化学肥料は梱包袋から取り出したそのままの状態のもの、堆肥は80℃の恒温乾燥器内で約24時間乾燥させたものを、めのう乳鉢およびコーヒーミル型粉碎機でそれぞれ粉碎し分析試料とした。

2. 3 分析方法

土壌、化学肥料および堆肥試料からの U および P の抽出は、硝酸・過塩素酸による湿式分解法によって行った。すなわち、試料をトルビーカーに取り、硝酸および過塩素酸を加え、時計皿でふたをして、ホットプレート上で加熱分解した。次いで、時計皿のふたを取り去り、シロップ状になるまで内容物を加熱濃縮させた。冷却後、1 mol/L 塩酸および熱水を加えて内容物を溶解させた後、メスフラスコ中にろ別し、100 mL に定容した。なお、ケイ酸塩鉱物中に含まれる U および P を完全に遊離させるにはフッ化水素酸を併用して分解を行うべきであるが、本研究では実験環境の都合上これを使用していない。したがって、これらの一部は溶出されず残留したままである可能性があり、本法で得られる分析値はケイ酸塩鉱物等を除いた、比較的容易に風化分解されうる画分に含まれる濃度を表しているものといえる。U は、誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）装置（パーキンエルマー社製 ElanDRC）を用いて測定した。白金（Pt）を最終濃度 10 µg/L となるように添加した試料液を ICP-MS 装置により質量数238（U）および195（Pt）の強度を測定し、Pt を内部標準元素とする内部標準法によって U 濃度を求めた。なお、非耕地土壌への 1 µg/g 相当量の U（U 含有硝酸溶液）添加による 5 併行の添加回収試験から得られた、本法の平均 U 回収率は95.9%、その併行精度は相対標準偏差として3.2%であった。また、操作ブランクの 5 回の繰り返し測定によって得られた標準偏差の10倍値（10σ）から算出された U の定量下限は 0.03 µg/kg であった。P はバナドモリブデン酸アンモニウム吸光光度法によって測定した²²⁾。U および P 濃度は、土壌、化学肥料および堆肥試料のいずれも乾燥重量あたりの値で示した。

Table 1 Basic information of soil sampling sites

Study area	Soil type	Number of soil samples and Land use	
		Agricultural soil (AS)	Non-Agricultural soil (NAS)
Isa area	Lowland soils	13	7
		Paddy field (paddy rice)	Waste grassland etc.
Nagashima area	Red yellow soils	15	5
		Upland field (potato, sweet potato etc.)	Waste grassland, Coppice forest etc.
Nansatsu area	Andosols	24	6
		Upland field (sweet potato, leafy vegetable etc.)	Waste grassland, Coppice forest etc.
Osumi area	Andosols	31	7
		Upland field (sweet potato, forage crop etc.)	Coppice forest, Wood land etc.

3. 結果及び考察

3. 1 農耕地土壌の U 濃度とその負荷源

4 地域から採取した土壌試料の U 濃度は、伊佐地域が 0.55~3.01 (1.56) $\mu\text{g/g}$ 、長島地域が 0.40~2.85 (1.56) $\mu\text{g/g}$ 、南薩地域が 0.40~2.70 (1.34) $\mu\text{g/g}$ 、大隅地域が 0.31~2.39 (1.42) $\mu\text{g/g}$ の範囲 (括弧内は中央値) にあった。地域によって土壌型が異なる、すなわち、伊佐地域は低地土、長島地域は赤黄色土、南薩及び大隅地域は黒ボク土であるが、地域間で U 濃度の分布に統計的な有意差は認めなかった (Kruskal-Wallis 検定, $p>0.05$)。

土壌中 U 濃度は、各地域内において、非耕地と農耕地の間で差異が認められた (Fig. 1)。各地域の土壌中 U 濃度を非耕地、農耕地の順に示すと、伊佐地域が 0.55~1.01 (0.65) $\mu\text{g/g}$ 、1.00~3.01 (1.96) $\mu\text{g/g}$ 、長島地域が 0.40~1.04 (0.77) $\mu\text{g/g}$ 、0.48~2.85 (1.93) $\mu\text{g/g}$ 、南薩地域が 0.40~1.24 (0.55) $\mu\text{g/g}$ 、1.13~2.70 (1.63) $\mu\text{g/g}$ 、大隅地域が 0.31~1.01 (0.63) $\mu\text{g/g}$ 、1.08~2.39 (1.52) $\mu\text{g/g}$ の範囲 (括弧内は中央値) にあり、いずれの地域においても農耕地の方が非耕地よりも分布範囲が高い傾向にあった (Mann-Whitney の U 検定, $p<0.05$)。このように、農耕地の土壌中 U 濃度が非耕地のそれよりも高い傾向にあることは、これまでも Yoshida ら⁷⁾ および Takeda ら⁸⁾ によって指摘されてきた。例えば、日本全国から採取された土壌試料について、森林をはじめとする非農耕地 (22試料) の土壌中 U 濃度の平均値は 1.4 $\mu\text{g g}^{-1}$ であったの

に対し、水田および畑地などの農耕地 (33試料) の平均値は 2.7 $\mu\text{g g}^{-1}$ であったことが示されている⁸⁾。本研究の結果は、これらの報告を支持するものであった。なお、土壌中 U の天然賦存量は土壌母材によって差異の生じる可能性が考えられる²⁰⁾。本研究ではそれぞれ特定の地域内において土壌型が同じ土壌、すなわち同一の土壌母材から生成された土壌を試料とし、それぞれの地域毎に比較検証を行ったことから、土壌母材の違いによる影響は無視できるものと考ええる。

一方、U 濃度と同様に、4 地域から採取した土壌の P 濃度も非耕地と農耕地の間で明瞭な差異が認められた (Fig. 2)。各地域の土壌中 P 濃度を非耕地、農耕地の順にそれぞれ示すと、伊佐地域が 0.25~0.60 (0.44) mg/g 、1.00~3.23 (2.10) mg/g 、長島地域が 0.22~0.76 (0.34) mg/g 、0.91~5.03 (2.74) mg/g 、南薩地域が 0.76~1.19 (0.89) mg/g 、1.55~6.15 (2.40) mg/g 、大隅地域が 0.59~1.00 (0.71) mg/g 、0.86~4.95 (2.29) mg/g の範囲 (括弧内は中央値) にあり、いずれの地域でも農耕地の方が非耕地よりも分布範囲が高い傾向にあった (Mann-Whitney の U 検定, $p<0.05$)。農耕地における主要な P 負荷源は、作物生産において利用される化学肥料や堆肥などであり、日本国内では、それらの長年にわたる継続的な土壌施用が残留 P 成分の土壌蓄積を招いていることが報告されている^{18,19)}。本研究で示された農耕地土壌における高い P 濃度は、本調査地域の農耕地においても化学肥料や堆肥の継続的な土壌施用が行われてきたこと、また、それにより P 成分の土壌残留が生じて

Fig. 1 Uranium (U) concentrations of the agricultural soils (AS) and the non-agricultural soils (NAS) sampled from Isa, Nagashima, Nansatsu, and Osumi area in Kagoshima, Japan

The median is shown as solid line, while the box shows the 25-75 percentile range. Whiskers extend to 10-90 percentile. Asterisks (*) indicate significant differences at $P<0.05$ (by Mann-Whitney U-test).

Fig. 2 Phosphorus (P) concentrations of the agricultural soils (AS) and the non-agricultural soils (NAS) sampled from Isa, Nagashima, Nansatsu, and Osumi area in Kagoshima, Japan

The median is shown as solid line, while the box shows the 25-75 percentile range. Whiskers extend to 10-90 percentile. Asterisks (*) indicate significant differences at $P<0.05$ (by Mann-Whitney U-test).

いることを示唆していると考えられる。

ところで、土壌へPを供給する主要な肥料であるリン酸質肥料は、原材料であるリン鉱石に由来するUを副次的成分として含有しており¹⁰⁻¹⁴⁾、農耕地における主要なU負荷源となり得ることが指摘されている¹⁵⁾。Fig. 3は、供試土壌のP濃度とU濃度との関係についてそれぞれ地域別に示したものである。P濃度とU濃度との間には、いずれの地域においても（ただし大隅地域はやや弱い）正の相関（Spearmanの順位相関係数、伊佐地域： $r_s=0.992$ 、長島地域： $r_s=0.818$ 、南薩地域： $r_s=0.611$ 、大隅地域： $r_s=0.321$ ）が認められた。この関係性は、化学肥料や堆肥の継続的な土壌施用によって土壌中P濃度が高まっている圃場ではU濃度も高まっていることを示しており、以前よりその可能性が指摘されてきた、リン酸質肥料に由来するUの土壌蓄積が本調査地域の農耕地において発生していることを裏付ける結果であるといえる。

なお、Fig. 3から見て取れるように、P濃度とU濃度との間の回帰直線の傾きは地域間で違いが認められ、伊佐（ 7.28×10^{-4} ）、長島（ 5.04×10^{-4} ）、南薩（ 3.87×10^{-4} ）、大隅（ 1.26×10^{-4} ）の順に傾きが小さくなる傾向にあった。このような地域間での傾きの違いは、後

述のように、家畜ふん堆肥施用量の差異などが反映されている可能性が考えられる。すなわち、家畜ふん堆肥の施用量が多いほど土壌P-U濃度図における傾きが小さくなることが予想される。現時点において、各地域における農耕地の利用履歴や詳細な肥料資材の施用量等に関する情報は収集できておらず、ここで十分な考察を行うことはできないが、この予想に基づけば、傾きが小さい傾向にあった南薩および大隅地域は、伊佐および長島地域と比較して家畜ふん堆肥の投入量が多い傾向にあると考えられる。伊佐地域は水稻、長島地域はジャガイモが主要な栽培作物であるのに対し、南薩および大隅地域は飼料作物、葉菜類などの露地野菜が特徴的に広く栽培されており、このような栽培作物の違いが家畜ふん堆肥の利用状況に関連しているのかもしれない。

ここで、農耕地と非農耕地のU存在量の差分をもとに、各調査地域におけるUの土壌蓄積量の推定を試みる。非耕地土壌のU濃度の中央値は、伊佐地域が $0.65 \mu\text{g/g}$ 、長島地域が $0.77 \mu\text{g/g}$ 、南薩地域が $0.55 \mu\text{g/g}$ 、大隅地域が $0.63 \mu\text{g/g}$ であった。これらの値をそれぞれの地域の土壌中Uの天然賦存量とみなし、農耕地土壌における存在量との差をU蓄積量として算出した。なお、土壌中のU存在量

Fig.3 Relationship between phosphorus (P) concentrations and uranium (U) concentrations of the agricultural soils and the non-agricultural soils

Open circles and filled circles represent agricultural soils and non-agricultural soils. Single (*) and double asterisks (**) indicate significant correlations at 5% and 1% levels, respectively.

Table 2 Amounts of uranium (U) enriched in the agricultural soils (0-15 cm depth) calculated from comparison with the non-agricultural soils

	U concentration in soil ($\mu\text{g/g}$)		Bulk density (Mg/m^3)	Amount of U in soil (mg/m^2 to a depth of 15 cm)		Amount of U enriched in agricultural soil (mg/m^2 to a depth of 15 cm)
	NAS (median)	AS (range)		NAS	AS	
Isa area	0.65	1.00-3.01	0.9	88	135-406	47-318
Nagashima area	0.77	0.92-2.85*	1.1	127	152-470	25-343
Nansatsu area	0.55	1.13-2.70	0.7	58	119-284	61-226
Osumi area	0.63	1.08-2.39	0.7	66	113-251	47-185

* exclude one site where the U concentration were lower than that of median of non-agricultural soils

を求めるにあたり、低地土（伊佐地域）、赤黄色土（長島地域）、黒ボク土（南薩および大隅地域）の容積重をそれぞれ $0.9 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$, $1.1 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$, $0.7 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ として算出した。その結果、非耕地土壌の中央値よりも濃度が低かった長島地域の1地点を除けば、Table 2 に示すように、土壌（深さ 15 cm）1 m^2 あたり伊佐地域では 47~318 (177) mg, 長島地域では 25~343 (191) mg, 南薩地域では 61~226 (113) mg, 大隅地域では 47~185 (94) mg の U が蓄積しているとそれぞれ見積もられた（括弧内は中央値）。なお、化学肥料に由来する U の土壌蓄積量に関して、1940年から継続的に化学肥料が施用された実験圃場（長期連用試験圃場）を対象に行われた調査事例が Takeda らによって報告されている¹⁶⁾。これによれば、化学肥料、堆肥および石灰質資材を連用した試験区では、61年間で 201 mg/m^2 の U が土壌表層に蓄積されたと推定されている。以上に示した本調査地域の蓄積推定値は、この長期連用試験圃場の調査から得られた推定値と近い値であるといえる。

3. 2 肥料に由来する農耕地土壌への U 負荷量の推定

鹿児島県内で流通している化学肥料および堆肥中の U 濃度の分析結果を Table 3 に示した。化学肥料中の U 濃度はその種類によって大きく異なり、窒素質肥料である硫酸アンモニアおよびカリ質肥料である塩化カリウムの U 濃度は定量下限（0.03 $\mu\text{g/g}$ ）未満であったのに対し、リン酸質肥料である過リン酸石灰、苦土重焼リンおよび熔成リン肥には、それぞれ 51.6 $\mu\text{g/g}$, 22.2 $\mu\text{g/g}$ および 10.6 $\mu\text{g/g}$ の U を含有していた。また、土壌酸性矯正に用いられる石灰質資材である炭酸苦土石灰も 0.45 $\mu\text{g/g}$ の U を含有していた。リン酸質肥料中の U 濃度については、国内外でいくつかの報告がなされている。例えば、米国で流通している過リン酸石灰中には 60.5¹³⁾ $\mu\text{g/g}$, 重過リン酸石灰中には 177¹³⁾ $\mu\text{g/g}$ の U が含まれていたこと、また、日本国内で流通されているリン酸質肥料については、過リン酸石灰中に 31¹⁶⁾, 74¹⁰⁾, 85²³⁾ $\mu\text{g/g}$, 重過リン酸石灰に 268²³⁾ $\mu\text{g/g}$, 熔成リン肥中に 49²³⁾, 106¹⁰⁾ $\mu\text{g/g}$ の U が含まれていたことが報告されている。本研究で得られた過リン酸石灰の U 濃度はこれらの報告値の範囲内、熔成リン肥の U 濃度は報告値よりやや低い値を示したが、リン鉱石を原材料とするリン酸質肥料はいずれも 10 $\mu\text{g/g}$ を超える U を含有しており、農耕地における U の負荷源となり得ることが示された。

一方、堆肥中にもわずかながら U が含まれており、その濃度は家畜ふん堆肥が 0.88~1.07 $\mu\text{g/g}$ 、下水汚泥堆肥が 1.56 $\mu\text{g/g}$ であった。堆肥中の U 濃度に関する報告は限られているが、国内における調査例として、稲わら由来の堆肥に 0.2¹⁶⁾ $\mu\text{g/g}$ の U が、米国における調査例として、家畜ふん由来の堆肥に 0.1~3.5（中央値：1.4）¹³⁾ $\mu\text{g/g}$ の U が含まれていたと報告されている。

なお、リン酸質肥料、家畜ふん堆肥および下水汚泥堆肥に U が含まれることが確認されたが、P に対する U の濃度比（U/P 比）はそれぞれの肥料資材で大きく異なった。例えば、過リン酸石灰の U/P 比は 6.1×10^{-4} であるのに対して家畜ふん堆肥では 0.3×10^{-4} ~ 0.9×10^{-4} 程度であった。このことは、肥料資材による土壌への P 投入量が同程度であっても、U 負荷量は両者で大きく異なることを示唆しており、先に示した土壌中 P 濃度と U 濃度との関係（Fig. 3）において、家畜ふん堆肥の投入量が相対的に多い地域では P 濃度と U 濃度との間の傾きが小さくなることが予想される。例えば、大隅地域は国内有数の畜産集中地域であり、家畜ふん堆肥投入量の多い圃場の存在が想定される。Fig. 3 を見ると、この大隅地域は他地域よりも明瞭に傾きが小さく、土壌中 P 濃度が 4 mg/g を超過していても土壌中 U 濃度は 2 $\mu\text{g/g}$ に達していない圃場も認められる。このことは、上述の予想を支持しているように思われる。

ここで、本研究によって示されたリン酸質肥料および堆肥中の U 濃度を基に、1 作あたりに負荷される肥料由来 U 量について推定を試みた。肥料の施用量は生産者によって異なることが予想されるが、

Table 3 Uranium (U) and phosphorus (P) concentrations of commercially available chemical fertilizers and composts

	Concentration		U/P ($\times 10^{-4}$)
	U ($\mu\text{g/g}$)	P (mg/g)	
Chemical fertilizers			
Nitrogen fertilizer			
ammonium sulfate	< 0.03	< 0.4	—
Phosphate fertilizer			
superphosphate	51.6	85.2	6.1
magnesium multi-phosphate	22.2	149	1.5
fused magnesium phosphate	10.6	74.1	1.4
Potassium fertilizer			
potassium chloride	< 0.03	< 0.4	—
Liming material			
calcium magnesium carbonate	0.45	< 0.4	—
Composts			
animal waste compost A	0.90	9.6	0.9
animal waste compost B	1.07	38.9	0.3
animal waste compost C	0.88	14.7	0.6
sewage sludge compost	1.56	12.5	1.2

Table 4 Estimated amounts of U input per cropping system added from fertilizers

	Standard application rate (g/m^2)	U concentration ($\mu\text{g/g}$)	Amount of U input (mg/m^2)
Rice			
Animal waste compost	1000	0.9	0.9
Superphosphate	34~40	51.6	1.8~2.1
sum			2.7~3.0
Potato			
Animal waste compost	1000~1500	0.9	0.9~1.4
Superphosphate	74	51.6	3.8
sum			4.7~5.2
Sweet potato (for starch and alcohol production)			
Animal waste compost	1000	0.9	0.9
Superphosphate	69	51.6	3.6
sum			4.5
Cabbage			
Animal waste compost	2000	0.9	1.8
Superphosphate	86	51.6	4.4
sum			6.2
Chinese cabbage			
Animal waste compost	2000	0.9	1.8
Superphosphate	131~143	51.6	6.8~7.4
sum			8.6~9.2
Forage crop (gramineous)			
Animal waste compost	2000	0.9	1.8
Superphosphate	86~114	51.6	3.6~5.9
sum			5.4~7.7

個々の生産者の施用実態を把握することは極めて困難である。したがって、ここでは鹿児島県における作物毎の化学肥料および堆肥の適正施用量（標準施肥量）として示されている施肥基準²⁴⁾を参考として推定を試みた。なお、リン酸質肥料は過リン酸石灰（リン酸含有率17.5%、U濃度 51.6 $\mu\text{g/g}$ として算出）を、堆肥は家畜ふん堆肥（U濃度 0.9 $\mu\text{g/g}$ として算出）をそれぞれ施用したものとした。Table 4は、当地域で広く生産されている、水稻（普通期）、ジャガイモ、加工用サツマイモ、キャベツ、ハクサイおよび飼料作物（イネ科牧草等）の1作あたりの肥料由来U負荷量の推定値を表したものである。ここに示されるように、推定されたU負荷量は、最も低く見積もられた水稻栽培で 2.7~3.0 mg/m^2 、最も高く見積もられたハクサイ栽培で 8.6~9.2 mg/m^2 であった。このように、1作あたりの肥料由来U負荷量は栽培作物によって大きく異なり、キャベツ、ハクサイなどの葉菜類や飼料作物の栽培におけるU負荷量は、水稻と比較して大きいことが示された。

注目されるのは、家畜ふん堆肥に由来するU負荷量である。家畜ふん堆肥に含まれるUは 0.9 $\mu\text{g/g}$ 程度と濃度は低いものの、施用量は一般にリン酸質肥料よりもはるかに多いことから、そのU負荷量は総負荷量の17~33%に達することが示された。これまで、農耕地土壌へのU負荷源として、家畜ふん堆肥はほとんど考慮されてこなかったが、その施用量が多い場合においては重要な負荷源となり得ると考えられる。なお、わが国で流通する家畜ふん堆肥のU濃度に関する情報は極めて限られている。家畜ふん堆肥にUが含有する原因は不明であり、そもそも主原料である家畜ふん尿および堆肥化の副資材であるおがくず、パーク等にそれぞれの程度のUが含有しているのかについても明らかではない。今後、これらの調査および解明が必要である。

ところで、水田に負荷されたリン酸質肥料由来Uは、そのほぼ全量が土壌に吸着保持されることが吸着モデル実験および実験圃場における収支調査によって明らかにされている²³⁾。もし仮に、ここで推定された水稻栽培における肥料由来U負荷量のすべてが土壌に吸着保持されたと仮定すれば、60年で 168~186 mg/m^2 のUが土壌へ蓄積されたものと計算される（1年1作の場合）。これは農耕地と非農耕地の差を基に算出された、水稻栽培地域である伊佐地域のU蓄積量の中央値（177 mg/m^2 ）と近い値を示しており、肥料が農耕地における主要なU負荷源となっていることを裏付けるものであると考える。なお、現在（2020年）より60年前にあたる1960年における本地域の水稻栽培での肥料利用実態は明らかではないが、西尾の報告¹⁷⁾によれば、わが国においてこの当時には、少なくとも推定の際に用いたリン酸質肥料の施肥基準（6~7 g/m^2 ）に相当するリン酸質肥料が施用されていたことが示されている。

以上のように、今回調査を行った地域の農耕地では、肥料に由来するものと推察されるUの土壌蓄積が認められることが明らかとなった。現在、我が国において、Uによる一次農産物の汚染は報告されておらず、食品衛生法でもUに関する基準値等は設定されていない。現時点における農耕地土壌のU濃度が経根吸収による農産物のU汚染を引き起こすレベルにまで達しているとは考えられないが、将来におけるさらなるU濃度の増加は食品の安全性の観点からも望ましくない。適正な肥料の利用による肥料由来Uの負荷低減が必要である。現在、国内では農耕地土壌へのリン酸の蓄積を抑制させるための新たな施肥基準の策定が進められ²⁵⁻²⁷⁾、土壌のリン酸濃度レベルに応じてリン酸質肥料の施用量を減じるといった取り組みが農業生産現場へ普及しつつある。このような肥料施用量の適正化は、肥料成分であるリン酸だけでなく副次的成分であるUの負荷低減にも有効な取り組みであると考えられる。

要 約

鹿児島県内の4地域（伊佐、長島、南薩および大隅地域）の農耕地土壌および非耕地の土壌中ウラン（U）濃度を測定した。いずれの地域においても、農耕地土壌のU濃度は、非耕地のそれよりも高い傾向にあった。また、土壌中のP濃度とU濃度との間には正の相関が認められ、リン酸質肥料の継続的な土壌施用とUの土壌蓄積との関連性が示唆された。非農耕地との比較から算出した伊佐、長島、南薩および大隅地域の農耕地土壌（表層0~15 cm）におけるU蓄積量は、それぞれ47~318、25~343、61~226および47~185 mg/m^2 であると推定され、鹿児島県内の農耕地土壌においてUの蓄積が生じていることが明らかとなった。一方、本地域で流通している過リン酸石灰、苦土重焼リン、熔成リン肥、家畜ふん堆肥および下水汚泥堆肥には、それぞれ51.6、22.2、10.6、0.88~1.07および1.56 $\mu\text{g/g}$ のUが含有しており、これらの肥料資材は農耕地におけるU負荷源となり得ることが示された。各作物の肥料施肥量を基にした計算によれば、1作当たり水稻では 2.7~3.0 mg/m^2 、ハクサイでは 8.6~9.2 mg/m^2 のUが肥料から負荷されると推定され、1作あたりの肥料由来U負荷量は栽培作物によって大きく異なることが示された。

文 献

- 1) Taylor, D. and Taylor, S.: Environmental uranium and human health. *Rev. Environ. Health.*, **12**, 147-157 (1997)
- 2) Domingo, J.: Reproductive and developmental toxicity of natural and depleted uranium: A review. *Reprod. Toxicol.*, **15**, 603-609 (2001)
- 3) Patočka, J.: Human health and environmental uranium. *Mil. Med. Sci. Lett.*, **83**, 120-131 (2014)
- 4) World Health Organization: "Guidelines for Drinking-water Quality" 4th Edition, p. 541, Geneva (2011)
- 5) 厚生労働省：水質基準の見直しにおける検討概要 I. 健康に関する項目 1. 無機物質(1)金属類 11102 ウラン, <https://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/kenkou/suido/kijun/dl/moku02.pdf>, 2020年3月12日現在
- 6) 環境省：水質汚濁に係る人の健康の保護に関する環境基準等の施行等について（通知）, <https://www.env.go.jp/hourei/05/000107.html>, 2020年3月12日現在
- 7) Yoshida, S., Muramatsu, Y., Tagami, K. and Uchida, S.: Concentrations of lanthanide elements, Th, and U in 77 Japanese surface soils. *Environ. Int.*, **24**, 275-286 (1998)
- 8) Takeda, A., Kimura, K. and Yamasaki, S.: Analysis of 57 elements in Japanese soils, with special reference to soil group and agricultural use. *Geoderma*, **119**, 291-307 (2004)
- 9) 田上恵子、内田滋夫：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 (2006)
- 10) 小村和久、柳沢美樹男、桜井次郎、阪上正信：リン鉱石およびリン酸肥料中のウラン、トリウム、カリウム含有量とウラン系列、トリウム系列各種の放射平衡, *Radioisotopes*, **34**, 529-536 (1985)
- 11) Hamamo, H., Landsberger, S., Harbottle, G. and Panno, S.: Studies of radioactivity and heavy metals in phosphate fertilizer. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Artic.*, **194**, 331-336 (1995)
- 12) Raven, K. and Loeppert, R.: Trace element composition of fertilizers and Soil Amendments. *J. Environ. Qual.*, **26**, 551-557

- (1997)
- 13) McBride, M. and Spiers, G.: Trace element content of selected fertilizers and dairy manures as determined by ICP-MS. *Commun. Soil Sci. Plant Anal.*, **32**, 139-156 (2001)
  - 14) Yamazaki, I.M. and Geraldo, L.P.: Uranium content in phosphate fertilizers commercially produced in Brazil. *Appl. Radiat. Isot.*, **59**, 133-136 (2003)
  - 15) Rothbaum, H., McGaveston, D., Wall, T., Johnston, A. and Mattingly, G.: Uranium accumulation in soils from long-continued applications of superphosphate. *J. Soil Sci.*, **30**, 147-153 (1979)
  - 16) Takeda, A., Tsukada, H., Takaku, Y., Hisamatsu, S. and Nanzyo, M.: Accumulation of uranium derived from long-term fertilizer applications in a cultivated Andisol. *Sci. Total Environ.*, **367**, 924-931 (2006)
  - 17) 西尾道徳：日本における化学肥料消費の動向と問題点, 日本土壤肥科学雑誌, **73**, 219-225 (2002)
  - 18) 吉池昭夫：農耕地における施用リン酸の蓄積について, 日本土壤肥科学雑誌, **54**, 255-261 (1983)
  - 19) 小原 洋, 中井 信：農耕地土壌の可給態リン酸の全国的変動 農耕地土壌の特性変動 (II), 日本土壤肥科学雑誌, **75**, 59-67 (2004)
  - 20) Kabata-Pendias, A.: Elements of Group 3 IV Actinides, pp. 158-165, "Trace Elements in Soils and Plants" 4th Edition, CRC Press, Boca Raton (2011)
  - 21) 小原 洋, 大倉利明, 高田裕介, 神山和則, 前島勇治, 浜崎忠雄：包括的土壌分類 第1次試案, 農業環境技術研究所報告, **29**, 1-73 (2011)
  - 22) 関谷宏三：リン酸の比色定量法, pp. 225-229, 「土壌養分分析法」, 土壌養分測定法委員会編, 養賢堂, 東京 (1970)
  - 23) 津村昭人, 山崎慎一：水田環境におけるウラン, トリウムおよびランタノイドの動態, *Radioisotopes*, **42**, 265-272 (1993)
  - 24) 鹿児島県農政部：「土壌改良及び施肥改善指針 (5訂版)」, pp. 1-112 (2003)
  - 25) 新良力也, 伊藤豊彰：水稲作におけるリン酸減肥基本指針の策定, 日本土壤肥科学雑誌, **87**, 462-466 (2016)
  - 26) 和田 巽, 棚橋寿彦：葉菜類 (コマツナ・ホウレンソウ) におけるリン酸減肥指針の設定, 日本土壤肥科学雑誌, **88**, 129-133 (2016)
  - 27) 長友 誠, 上蘭一郎, 有村恭平, 森 清文, 古江広治：黒ボク畑における可給態リン酸含量に対応したリン酸施肥, 日本土壤肥科学雑誌, **88**, 48-52 (2017)