研究論文

土壌-バレイショにおける元素の移行について

塚田祥文*¹, 渡部輝久*²

(1995年9月13日受理)

(1996年3月8日再受理)

Soil-to-Potato Transfer Factors of Elements

Hirofumi TSUKADA*¹ and Teruhisa WATABE*²

Transfer factors (TFs) of stable elements from soil to potato were determined for 26 pairs of samples which were collected at different sites in Aomori prefecture, Japan. The concentrations of 31 elements in both soil and potato samples were determined by neutron activation analysis. Several of these elements were divided into two groups, each having different TF characteristics. In the first group of elements, such as Cl, K, Ca, etc., an inverse correlation was seen between the TFs for each element and their concentrations in the soil. The relatively constant concentrations of these elements in potato were independent of the concentrations of the same elements in soil. However, in the second group, the TFs for other elements, such as Sc, Co and so on, in potato were independent of their concentrations in the soil.

The fluctuation of TF observed in this study was smaller than that previously reported. It may be attributed to the fact that the experiment was done in a relatively narrow geographic area. In addition, the TFs for stable elements in this study were generally one to three orders of magnitude lower than those compiled for radioactive isotopes in IAEA publications. These differences should be precisely examined hereafter.

KEY WORDS : transfer factor, potato, soil, field survey, element, site-specific, neutron activation analysis

I はじめに

環境中に放出された放射性核種による人の放射線被曝量を評価するためには、環境中での放射性核種の移行

を適切に評価する必要がある。放射性核種の移行を記述するモデルには、種々のパラメータが用いられている。特に、土壌から農作物への放射性核種の移行を示すパラメータ（移行係数）は、農作物摂取に伴う被曝線量予測を行う際、重要なパラメータの1つである。欧米諸国では、内陸地域に設置されている原子力施設が多く、土壌-農作物間の核種移行パラメータに関する研究が精力的に進められており、報告例も多い^{1,2)}。一方、わが国における移行係数の研究は、比較的限られた核種についてのみ行われており、多くの核種に関する調査は充分とは言えない。特に、フィールドにおける実態調査は、極めて乏しい。土壌-農作物間の移行係数は、対象核種の土壌中濃度に対する農作物中濃度の比として定義される。こ

*¹ 環境科学技術研究所環境動態研究部；青森県上北郡六ヶ所村大字尾敷字家ノ前 1-7 (〒039-32)

Department of Radioecology, Institute for Environmental Sciences; 1-7 Ienomae, Obuchi, Rokkasho-mura, Kamikita-gun, Aomori 039-32, Japan.

*² 放射線医学総合研究所環境放射生態学研究部；茨城県ひたちなか市磯崎 3609 (〒311-12)

Division of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences; 3609 Isozaki, Hitachinaka-shi, Ibaraki 311-12, Japan.

れまでの報告例では、移行係数は必ずしも一定した値でなく、かなり広い変動幅を持つことが示されており^{2,3)}, またその分布は対数正規分布に近いと報告されている^{3,4)}。移行係数は、作物種や作物の植物生理的条件、土壌の性質、気象条件等に影響を受けると予想される。しかし、これまでのところ、それらについて、十分な検討がなされていない。本研究では、土壌-農作物間の元素の移行特性を明らかにするため、局地規模（青森県）においてバレイショを対象として、移行係数の変動範囲、土壌中元素濃度と移行係数の関係、地域的 (site-specific) 特性等について調査を行った。

II 実 験

バレイショは、青森県の主要農作物⁵⁾の一つであり、ほぼ県全域で栽培されている。その収穫量は、全国量の約1.5%を占める⁵⁾。本研究では、青森県内全域から26地点の圃場を選びバレイショと圃場土壌を採取した。試料の採取は、一圃場を8分割し、それぞれの分画から均等に計20 kgのバレイショを採取した。圃場土壌は、金属等の汚染を避けるためアクリル製のコア（直径150 mm、深度50 mm）を用いて各8分画から採取した。

採取した土壌試料は、60°Cで一昼夜乾燥後2 mmのふるいで分画した。一圃場の8地点から採取した2 mm以下の土壌試料の一定量を混合し、メノウ製遊星型ボールミル（Fritsch製、Pulverisette 5）で粉碎・混合した。バレイショは、水洗いし、皮を取り除いた可食部を調理用カッターで切断し、テフロンシート内で70°C約1週間乾燥後、粉碎・混合した。バレイショおよび土壌中の元素分析には、主として非破壊放射化分析法を用いた。本研究で定量した元素は、Na, Cl, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Br, Sr, Zr, Mo, Ag, Cd, Sb, I, Cs, Ba, La, Ce, Au, Th および U の31元素である。これら元素のうち短寿命核種を分析に用いる Cl, Ca, Br 等については約50~500 mg、

その他の元素の定量には約10~500 mgの乾燥試料を照射用試料として用いた。それぞれの試料は、日本原子力研究所（熱中性子束密度： 3.4×10^{13} または 6×10^{13} n/cm²·s）または立教大学（熱中性子束密度： 5.5×10^{11} または 1.5×10^{12} n/cm²·s）の原子炉で照射し、それぞれの半減期に応じて一定期間冷却後、Ge 半導体検出器で γ 線を計測した。ヨウ素は、非破壊法では定量が困難であるため、約200~500 mgの試料を照射後、バレイショ試料は次亜塩素酸ナトリウム、土壌試料はアルカリ溶融で分解し、ヨウ化パラジウムの沈殿を分離し γ 線を計測した^{6,7)}。

III 結 果

本研究では、中性子放射化分析法により多元素の同時定量を行っている。それぞれの元素毎に含有量、分析精度が異なっている。分析精度の目安は、 γ 線計測に伴う計測誤差である。Table 1 に分析対象元素の計測誤差について、その変動係数 (coefficient of variation, C.V.) を<10, 10-50 および >50% の3つに分類して示す。バレイショでは、K, Cl, Ca 等の約半数の元素は、概ね50%以下の変動係数であった。残りの元素は極めて低い濃度であり、計数誤差が大きかった。一方、土壌では、Cu, Sr, Ag および Cd の4元素以外は、概ね50%以下の変動係数であった。土壌中に比べバレイショ中の元素濃度の変動係数は、全般的に大きい傾向にある。従って、本研究で求めた移行係数の精度は、バレイショ中の元素濃度の精度に大きく依存している。

バレイショと土壌試料について、定量を行った全ての元素の平均濃度とその標準偏差を Fig. 1 に示す。全試料中での最小値と最大値の差が1桁以上あった元素は、土壌試料では Cr, I および Cs の3元素のみであったが、バレイショでは Na, V, Cr, Co, Br, Ag, Sb, I, Cs および Th の10元素であった。土壌中の Cr, I および Cs 並びにバレイショ中の Na, Co および Br 濃度は、

Table 1 Coefficient of variation of counting errors for neutron activation analysis.

Sample	Coefficient of variation		
	<10	10-50	>50
	%		
Potato	Br, Cl, Co, K, Mn, Na, Zn	Au, Ca, Cr, Cs, Cu, Fe, I, Mo, Sb, Sc	Ag, As, Ba, Cd, Ce, La, Ni, Se, Sr, Th, Ti, U, V, Zr
Soil	As, Ce, Co, Cr, Cs, Fe, I, La, Mn, Na, Sb, Sc, Th, U, V, Zn	Au, Ba, Br, Ca, Cl, K, Mo, Ni, Se, Ti, Zr	Ag, Cd, Cu, Sr

Fig. 1 Mean concentration and its standard deviation (1σ) of elements in soil ($\mu\text{g/g}$, dry weight) and potato ($\mu\text{g/g}$, fresh weight).

変動係数が 10% 以下の測定精度を有するにもかかわらず、試料間で 1 桁以上の濃度差が認められ、比較的変動の大きな元素であった。バレイショ中と土壌中の平均元素濃度 (Fig. 1) を比較すると、全般的に土壌中濃度の高い元素はバレイショ中でも高く、概ね類似していた。しかしバレイショ中の K と Cl 濃度が顕著に高く、それぞれ 3,800 と 500 $\mu\text{g/g}$ (新鮮重量) であった。K は植物栄養上の必須元素であり、植物体内には N, P に次いで多量に存在する。植物体内においては、細胞活性の維持、酵素の活性化、浸透圧や pH の調節等の生理的役割を担っている⁹⁾。また Cl は、Mn と共に光合成機構への関与、浸透圧や pH の調節機構等を行っている元素であり、多くの植物に多量に吸収される⁹⁾。

本研究で採取した土壌の平均元素濃度を、BOWEN によって報告されている土壌中平均濃度¹⁰⁾と比較した場合、Ag, Cd, Cu, Mo, Sc および Se を除きほとんどの元素濃度は、標準偏差の 2 倍 (2σ) 以内で一致している。また 2σ 以上に食い違う元素も、BOWEN の報告している変動範囲内にある。従って、本研究で用いた土壌試料は特異的なものでなく、ごく平均的な元素組成の土壌と思われる。

全 26 試料のうち、半数以上の試料についてバレイショと土壌中元素濃度の双方とも検出された 14 元素 (Na, Cl, K, Ca, Sc, Cr, Mn, Fe, Co, Zn, Br, Mo, I および Cs) について、バレイショ-土壌間の関係を Fig. 2

に示す。Fig. 2 から、土壌中濃度によらずバレイショ中濃度が比較的一定な元素 (Cl, K, Ca 等) と、土壌中濃度の増加と共にバレイショ中濃度が増加する傾向を示す元素 (Sc, Co 等) の 2 グループに大別されると思われる。

IV 考 察

土壌-農作物間の移行係数は、土壌中と農作物中の元素濃度比で定義される。ここでは、農作物中濃度は新鮮重量あたりで、土壌中濃度は乾燥重量あたりで示している。

$$\text{移行係数} = \frac{\text{農作物中元素濃度 } (\mu\text{g/g, fresh weight})}{\text{土壌中元素濃度 } (\mu\text{g/g, dry weight})} \quad (1)$$

本研究で得られたバレイショにおける元素の移行係数の最小および最大値と平均値並びに標準偏差を Table 2 に示す。バレイショ中で高い濃度を示す Cl と K の移行係数の平均値は、それぞれ 2 および 0.4 と他の元素に比較して極端に高い。他の元素では、概ね $10^{-2} \sim 10^{-5}$ の範囲にあった。これまでに報告されている移行係数の多くは 2 桁以上にわたる変動幅を示している^{2,9)}。しかし、本研究のような局地規模を対象とした場合、作物種が限定されていることを考慮しても、各元素における移行係数の変動は 1 桁程度と小さく、比較的一様であることが明らかになった。

Fig. 2 Comparison of concentration of elements between soil and potato.

Fig. 2 に示したように、一部の元素では、バレイショ中の濃度が土壌中元素濃度に依存せず比較的一定である。従って、これら元素の移行係数は、土壌中元素濃度の増加とともに減少することになる。土壌中元素濃度の変化に伴う移行係数の変動傾向を明確にし、各元素を規格化して比較するため、半数以上の試料で移行係数の得られた 14 元素について、土壌中濃度の相対値（幾何平均濃度で除し規格化した値）の対数値と相対移行係数（幾何平均値で除し規格化した値）の対数値との関係を Fig. 3(a) と (b) に示した。その結果、Fig. 3(a) のように概ね土壌中元素濃度の増加とともに移行係数が減少する

傾向にある元素（土壌中元素濃度に依存せずバレイショ中元素濃度が一定の傾向を示した元素；Cl, K, Ca, Mn, Fe, Zn, I および Cs）と、Fig. 3(b) のように土壌中元素濃度に移行係数が依存する傾向の見られない元素（Na, Sc, Cr, Co, Br および Mo）の 2 グループに分類されることが分かった。これらの傾向は、順位相関係数（ r_0 ）でみてもほぼ同様であった（Fig. 3）。以上のように、移行係数が土壌中濃度の変動に伴って変化する元素については、バレイショ中濃度が比較的一定であるため、土壌中濃度の変動範囲から移行係数の変動幅が推定できる。一方、バレイショ中濃度が土壌中濃度に依存し

Table 2 Soil-to-potato transfer factor^{a)} of elements.

Element	N	Range		Mean	Standard deviation (1 σ)	Geometric mean
		Min.	Max.			
Ag	7	1.1E-3	1.8E-1	2.9E-2	6.8E-2	5.2E-3
As	6	7.7E-5	1.4E-3	3.7E-4	5.0E-4	2.2E-4
Au	11	6.7E-3	5.0E-2	1.6E-2	1.2E-2	1.3E-2
Ba	9	1.0E-3	2.7E-3	1.9E-3	6.1E-4	1.8E-3
Br	20	8.9E-3	6.3E-2	2.9E-2	1.7E-2	2.5E-2
Ca	26	5.7E-4	1.1E-2	3.8E-3	3.0E-3	2.9E-3
Cd	6	8.3E-3	1.3E-1	3.8E-2	4.6E-2	2.4E-2
Ce	2	9.7E-5	5.0E-4	3.0E-4	2.9E-4	2.2E-4
Cl	21	5.3E-1	4.9E+0	2.2E+0	1.3E+0	1.8E+0
Co	26	2.4E-4	2.5E-3	8.2E-4	5.4E-4	6.9E-4
Cr	15	4.5E-5	5.4E-3	1.3E-3	1.3E-3	7.7E-4
Cs	24	1.1E-4	1.6E-2	2.9E-3	3.8E-3	1.5E-3
Cu	7	1.0E-3	7.0E-3	4.4E-3	2.1E-3	3.7E-3
Fe	26	4.6E-5	2.7E-4	9.6E-5	4.8E-5	8.7E-5
I	26	7.2E-5	2.4E-2	2.5E-3	5.4E-3	6.9E-4
K	25	1.8E-1	7.0E-1	3.5E-1	1.3E-1	3.3E-1
La	12	1.8E-5	1.5E-4	5.7E-5	4.1E-5	4.6E-5
Mn	26	5.8E-4	5.3E-3	1.3E-3	9.2E-4	1.1E-3
Mo	16	2.3E-3	2.4E-2	8.3E-3	6.2E-3	6.5E-3
Na	26	1.5E-4	3.8E-3	9.0E-4	7.9E-4	6.9E-4
Ni	12	1.6E-3	6.4E-3	3.4E-3	1.6E-3	3.1E-3
Sb	9	5.2E-4	1.1E-2	2.7E-3	3.5E-3	1.6E-3
Sc	17	3.3E-6	1.7E-5	7.3E-6	3.6E-6	6.6E-6
Se	8	1.1E-3	8.9E-3	3.4E-3	2.9E-3	2.5E-3
Sr	5	1.3E-3	5.6E-3	2.8E-3	1.7E-3	2.5E-3
Th	9	4.4E-5	4.3E-3	7.2E-4	1.4E-3	2.6E-4
Ti	11	1.0E-4	7.1E-4	3.2E-4	2.0E-4	2.6E-4
U	3	4.8E-4	2.4E-3	1.4E-3	9.4E-4	1.2E-3
V	6	2.9E-5	4.2E-4	1.5E-4	1.7E-4	8.8E-5
Zn	22	1.6E-2	5.0E-2	2.9E-2	9.4E-3	2.8E-2
Zr	6	9.4E-4	5.0E-3	2.0E-3	1.6E-3	1.6E-3

a) Concentration of elements in soil and potato were based on dry and fresh weight basis, respectively.

て変動する元素では、移行係数が一定であるとして代表値を用いることが可能である。

土壌中濃度の増加に伴って移行係数が減少する元素では、Fig. 3(a) に示したように土壌中元素濃度と移行係数が概ね -1 の傾き、かつ相関の良い直線関係を示すことから、土壌中元素濃度と移行係数が反比例する傾向を示していると考えられる。KONSHIN¹¹⁾ は、牧草について土壌中 ¹³⁷Cs 濃度と移行係数の関係を解析し、土壌中濃

度が 10,000 Bq/kg 以上では一定の移行係数となるが、10,000 Bq/kg 以下では反比例の関係があり、そこから外挿した移行係数は、土壌中 ¹³⁷Cs 濃度が 10,000 Bq/kg 以上のものと一致しないと報告している。本研究でも Fig. 3(a) に示すように、土壌中の Cs 濃度と移行係数の関係は反比例の傾向を示した。

YASUDA and UCHIDA¹²⁾ は、¹³⁷Cs の移行係数について検討を行い、土壌中元素濃度の増加に伴って移行係数

Fig. 3 Relationship between relative concentration of element in soil and its relative transfer factor in potato. r_o : Rank correlation. (a) The group showing an inverse correlation between transfer factor and its concentration in soil. (b) The group showing a relatively constant transfer factor independent of its concentration in soil.

が減少する要因は、土壌-水間の分配係数 (K_d 値) の相違によるものであると推測している。しかし、本研究で得られたように、土壌中元素濃度の変化に伴い移行係数が変動する傾向を示した元素群と変動しない元素群の2グループに分類され得ること、土壌中での濃度が高く植物にとって必須元素である Cl, K, Ca 等がバレイショ中で一定な濃度を示すことから、 K_d 値のみならず植物生理学的なメカニズムの寄与を考慮する必要があると考えられる。またハロゲンについては、葉面吸収からの転流の可能性も考慮する必要があると思われる。

IAEA の農作物に関する移行係数の報告値¹⁾と本研究

で得られたバレイショの移行係数を比較すると、本研究での値は IAEA の報告値と同じレベルのものから3桁程度低い値のものまでであった。これは本研究が、フィールドにおける安定元素の移行係数についての調査であり、IAEA 等の報告にあるように放射性核種を用いた調査結果と異なること¹³⁾も推測される。そのため土壌中での元素の分配係数や、元素の可溶性等、直接に放射性核種の移行と対比するには今後の検討が必要である。

限られた地域を対象に移行評価を行うためには、より現実的で局地に適した site-specific な移行係数が有用であると考えられる。特に移行係数の変動範囲、土壌中濃度と

移行係数の関係等について地域特性を明らかにすることは極めて重要である。

V ま と め

土壌からバレイシヨへの元素の移行係数について、フィールド調査を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

1) 全般的に土壌中の平均濃度が高い元素ほどバレイシヨ中の平均濃度も高く、両者の元素組成は類似していた。しかし、バレイシヨ中の Cl と K 濃度は顕著に高かった。

2) 個々の試料間での元素濃度の相関から、バレイシヨ中濃度が土壌中元素濃度に依存せず比較的一定である元素群と、土壌中濃度に依存して変動する元素群の2グループに分類される傾向が認められた。

3) バレイシヨ中で概ね一定な濃度を示した Cl, K, Ca 等の移行係数は、土壌中濃度の増加に伴って減少する傾向が見られた。

4) Sc, Co 等の移行係数は、土壌中濃度の変化に依存する傾向は見られなかった。

5) 本研究で得られた移行係数の変動範囲は、1桁程度に収まっていた。その理由は、作物種が限定されていることに加え、限られた地域を対象としているためと思われる。

6) 本研究の移行係数は、これまでの報告値と比較して同レベルのものから3桁ほど低い値のものまでであった。

移行係数のように経験から求められるパラメータの場合、限られた地域を対象とする移行係数等は、その地域で得られた現実に即した値が必要である。

本研究における試料採取に協力していただいた青森県農林部農業技術課および各市町村に対して深く感謝します。また、本研究をまとめるにあたり御助言頂いた東北大学農学部教授山崎慎一博士、放射線医学総合研究所中村裕二博士および環境科学技術研究所所長大桃洋一郎博士、並びに土壌の前処理に協力頂いた東北ニュークリア(株)相馬清孝および野田頭雄時氏に深く感謝します。本研究は、科学技術庁からの受託事業により行われた成果の一部である。

参 考 文 献

- 1) IAEA; Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine release, Safety Series No. 57, pp. 61-65 (1982).
- 2) IAEA; Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments, Technical Report Series No. 364, pp. 14-26 (1994).
- 3) 保田浩志, 内田滋夫; 移行係数(土壌-農作物)の不確実性低減に関する考察—分類情報に基づくセシウム移行係数値の統計解析—, 保健物理, **28**, 413-419 (1993).
- 4) S.C. SHEPPARD and W.G. EVENDEN; Characteristics of plant concentration ratio assessed in 64-site field survey of 23 elements, *J. Environ. Radioactivity*, **11**, 15-36 (1990).
- 5) 農林水産省統計情報部; “平成元年野菜生産出荷統計”, p. 89, 農林統計協会, 東京 (1991).
- 6) 高城裕之, 木村敏正, 岩島 清, 山縣 登; 放射化分析によるコメ中のヨウ素の簡易・迅速定量法, 分析化学, **32**, 512-516 (1983).
- 7) 高城裕之, 木村敏正, 小林宏信, 岩島 清, 山縣 登; アルカリ溶融法を用いる土壌中のヨウ素の迅速放射化分析, 分析化学, **33**, 582-586 (1984).
- 8) 野口弥吉, 川田信一郎(監); “農業大事典”, p. 803, 養賢堂, 東京 (1991).
- 9) 高井康雄(編); “植物栄養土壌肥料大事典”, pp. 125-126, 養賢堂, 東京 (1987).
- 10) H.J.M. BOWEN; “Environmental Chemistry of the Elements,” pp. 60-61, Academic Press, London (1979).
- 11) O.V. KONSHIN; Transfer of ^{137}Cs from soil to grass—analysis of possible source of uncertainty, *Health Phys.*, **63**, 307-315 (1992).
- 12) H. YASUDA and S. UCHIDA; Apparent non-linear relationship of radionuclide concentration between crop and soil, IAEA, IAEA-SM-339/1, 259-267 (1995).
- 13) 駒村美佐子, 津村昭人; 誘導結合プラズマ質量分析法による土壌から白米への放射性核種の移行係数算定, *Radioisotopes*, **43**, 1-8 (1994).