速 報

浄水発生土に含まれる ^{137}Cs のコマツナによる経根吸収

石井伸昌, 田上恵子, 川口勇生, 内田滋夫

独立行政法人放射線医学総合研究所放射線防護研究センター

263-8555 千葉県千葉市稲毛区穴川 4-9-1

2012 年 12 月 27 日 受理

放射性セシウムで汚染された浄水発生土を用い, コマツナによる ^{137}Cs の経根吸収について検討した。赤玉土, 黒土, 腐葉土からなる土壌 (0S 土壌), 0S 土壌 4.5L に対して浄水発生土を 0.5L 混合した土壌 (0.5S 土壌), 及び 0S 土壌 3.5L に浄水発生土 1.5L 混合した土壌 (1.5S 土壌) を調整し, コマツナを栽培した。栽培過程において各土壌で栽培したコマツナの草丈に差はなく, また収穫時の生重量は 0S 土壌よりも浄水発生土を含む土壌で栽培したコマツナで重くなった。これらの結果から, 浄水発生土はコマツナの成長を抑制しなかったことがわかった。0S 土壌, 0.5S 土壌, 1.5S 土壌で栽培したコマツナの収穫時における乾燥重量あたりの ^{137}Cs 濃度は, それぞれ 1.89 Bq/kg, 153 Bq/kg, 400 Bq/kg であった。これらを生重量あたりに換算し ^{134}Cs の濃度との和から放射性セシウムの濃度を求めたが, いずれも新基準値である 100 Bq/kg を超えることはなかった。また, 浄水発生土を含む土壌からコマツナの乾燥重量あたりの ^{137}Cs 移行係数は, 混合した浄水発生土の容積比にかかわらず 0.1 であり, 生重量あたりの移行係数は 0.007 であった。これらの値は, 我が国の農地で栽培した葉菜類の ^{137}Cs 移行係数の範囲内であった。

Key Words : caesium-137, root uptake, sedimentation sludge, Komatsuna

1. はじめに

浄水発生土は, 浄水場において上水を得る過程で生じる。厚生労働省の発表によると, 2002 年から 2006 年の期間, 毎年約 30 万トンの浄水発生土が発生し, そのうち 13 万~16 万トン程度がグランド用土, 園芸用土, コンクリート原料等に有効利用されている¹⁾。しかし, 2011 年 3 月 11 日の福島第一原子力発電所 (FDNPP) の事故により, 浄水発生土が放射性セシウム ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$) で汚染され, 有効利用の目処が立たず, 浄水場での保管量が増大し続けている。例えば 2011 年 7 月 12 日現在, 東北, 関東及びその近県 14 都県 (宮城県, 山形県, 福島県, 新潟県, 茨城県, 栃木県, 群馬県, 埼玉県, 東京都, 神奈川県, 千葉県, 長野県, 山梨県, 及び静岡県) における浄水発生土保管量は 37 286 トンであったが²⁾, 2012 年 1 月 9 日現在では 107 729 トンに増加している³⁾。浄水場にお

ける保管許容量にも限りがあるため, 汚染された浄水発生土の減量は喫緊の課題である。

保管されている浄水発生土の汚染レベルも様々である。厚生労働省は汚染を四つのレベル (100 000 Bq/kg 以上, 8 000 ~ 100 000 Bq/kg, 100 ~ 8 000 Bq/kg, 100 Bq/kg 以下) に分割し, それぞれのレベルの浄水発生土の取り扱いについて各都道府県に通知している。前述の 14 都県の浄水場において最も多い汚染レベルは 100 ~ 8 000 Bq/kg の浄水発生土で, 全体の 69% を占めている³⁾。次に多いのは 100 Bq/kg 以下の浄水発生土で, 全体の 30% を占めている³⁾。100 Bq/kg 以下の浄水発生土だけでも有効利用できれば, 保管量が軽減できる。

浄水発生土の有効利用は保管量の軽減及び資源のリサイクルの点から重要であるが, 有効利用による追加被ばくも考慮しなければならない。特に浄水発生土を園芸用土として有効利用した場合, 野菜を栽培する可能性があり, 浄水発生

Table 1 Elemental composition of the sedimentation sludge

Element	Concentration (mg/g)		Element	Concentration (mg/g)	
	Sludge	Upland soil*		Sludge	Upland soil*
Al	95.24 ± 5.43	83	Mg	4.17 ± 1.38	6.8
Ca	2.67 ± 0.36	11	Mn	7.51 ± 0.59	0.82
Cu	0.09 ± 0.01	0.041	Na	6.58 ± 0.30	8.8
Fe	38.91 ± 0.54	43	Ti	2.41 ± 0.07	4.5
K	6.85 ± 0.32	11	Zn	0.30 ± 0.01	0.12

*Geometric mean data from Uchida et al., 2007⁸⁾.

土から野菜への放射性セシウムの移行を評価することは重要である。本研究では放射性セシウムで汚染した浄水発生土からコマツナへの¹³⁷Csの移行について報告する。

2. 方 法

浄水発生土は埼玉県内の浄水場から譲渡して頂いた。この浄水発生土の乾燥重量 1 kg あたりの¹³⁷Cs 濃度は 4.2 kBq であった。浄水発生土は河川水の成分や、使用した処理薬品により元素組成が異なる。そこで、使用した浄水発生土の元素組成を Table 1 に示す。

コマツナ栽培用土は、赤玉土、腐葉土、黒土を 5 : 3 : 2 の容積比で混合し、この用土 30 L に対し化成肥料 (N : P : K = 8 : 8 : 8) を 200 g 加えて作成した。この栽培用土 4.5 L 及び 3.5 L に対し、浄水発生土をそれぞれ 0.5 L (0.5 S 土壌) 及び 1.5 L (1.5 S 土壌) 添加した。浄水発生土を含まないコマツナ栽培用土 (0 S 土壌) を含め、3 種類の栽培用土を各 5 L 準備した。平成 24 年 4 月 4 日、準備した土壌にコマツナ (タキイ種苗株式会社) を播種し、温室内で自然光の下、散水栽培した。収穫は播種から 33 日後に行った。収穫時の水分含量を求めるために、収穫直後及び乾燥後のコマツナの重量を測定した。乾燥した試料は粉碎後、¹³⁷Cs 分析のために U-8 容器へ移した。栽培用土も同様に、コマツナを収穫後乾燥し、¹³⁷Cs 分析の

ために U-8 容器へ移した。

土壌から葉菜類への¹³⁷Cs 移行パラメーターとして移行係数 (TF) を式 (1) より求めた：

$$\text{移行係数(TF)} = \frac{\text{葉菜類可食部中}^{137}\text{Cs 濃度 (Bq/kg)}}{\text{土壌中}^{137}\text{Cs 濃度 (Bq/kg-乾重)}} \quad (1)$$

なお、一般に農作物の移行係数については、収穫後の水分含量減少の影響が大きいので、乾燥重量で計算されるが、実際に市場に出回るのは新鮮状態であるため、生重が使われることもある。そこで、本報告では両方について示す。

乾燥したコマツナ及び各土壌の¹³⁷Cs は Ge 半導体検出器で分析した。Ge 半導体検出器の効率校正は放射能標準ガンマ体積線源 (MX 033 U 8 PP ; 日本アイソトープ協会) で行い、測定の精度は放射能分析用土壌認証標準物質 (JSAC 0471 ; 日本分析化学会) で確認した。半減期補正は収穫時を基準に行った。

本試験は、汚染土壌を増やすことを避けるために反復試験を行わなかった。

3. 結果と考察

収穫直前のコマツナを Fig.1 に示す。浄水発生土を含まない土壌 (0 S 土壌) と比較して浄水発生土を含む土壌 (0.5 S 土壌及び 1.5 S 土壌) で栽培したコマツナの草丈は高く、浄水発生土がコマツナの成長を阻害しないことがわ

Fig. 1 Komatsuna just before harvest. Left side : the 0.5 S soil sample ; Center : the 0 S soil sample ; Right side : the 1.5 S soil sample.

Table 2 Crop yield and moisture content of Komatsuna (*Brassica rapa* var. *perviridis*) at harvest time

Sample	Crop yield (g wet weight)	Moisture content (%)
0S	163.9	93.0
0.5S	233.6	93.5
1.5S	207.5	92.8

かった。青山らは、浄水発生土がコマツナの生育に及ぼす影響について検討しており、真砂土に対して 25% 容積比で浄水発生土を加えた土壌で栽培したコマツナの草丈は、100% 真砂土で栽培したコマツナの草丈と差がないことを報告している⁴⁾。一方、浄水発生土の容積比が更に増せば、成長阻害によりコマツナの草丈が低くなることも報告している⁴⁾。したがって、本試験での浄水発生土の容積比は、コマツナの成長を抑制するほど高くなかったといえる。また、本試験で用いた浄水発生土は放射性セシウムを含むが、これらから放出される放射線もコマツナの成長に影響しなかったといえる。以上のことから、少なくとも浄水発生土はコマツナの生長を抑制せず、生長抑制が放射性セシウムの取り込み抑制に繋がることはない。

コマツナの収穫重量と含水率を Table 2 に示

す。0.5 S 土壌で栽培したコマツナの収穫重量が最も重く、0 S 土壌で栽培したコマツナの収穫重量が最も軽かった。播種数、発芽率、生長の程度、鉢あたりの収穫本数に違いがあるため、各処理区の収穫重量を単純に比較することはできないが、この結果は浄水発生土がコマツナの成長を促進した可能性を示唆している。作物へ移行することによる内部被ばくの懸念がなければ、単価の安い浄水発生土は家庭菜園等で利用可能な有用な資源であると考えられる。コマツナの含水率は、いずれの土壌で栽培した場合も約 93% であり、ほとんど差はなかった。浄水発生土はコマツナの含水率に影響しないと思われる。

収穫時における乾燥重量あたりのコマツナ及び土壌の ^{137}Cs 放射能を Table 3 に示す。0 S 土壌においても ^{137}Cs が検出されたが、これは赤

Table 3 Radioactivity of ^{137}Cs in Komatsuna and soil

Sample	Komatsuna (Bq/kg-dry)***	Komatsuna (Bq/kg-wet)***	Soil (Bq/kg-dry)***	TF-dry*	TF-wet**
0S	18.9 ± 2.2	1.33 ± 0.16	39.3 ± 2.9	0.48	0.034
0.5S	153 ± 2.6	9.94 ± 0.17	1470 ± 11	0.10	0.007
1.5S	400 ± 3.7	28.7 ± 0.26	4060 ± 18	0.10	0.007

* TF-dry: Transfer factor on a dry weight basis.

** TF-wet: Transfer factor on a wet weight basis.

***±: Counting error (1 sigma).

玉土と黒土に由来する。それぞれ ^{137}Cs 濃度は、23 Bq/kg-dry 及び 8 Bq/kg-dry であった。一方、 ^{134}Cs は赤玉土からのみ検出され、濃度は 16 Bq/kg-dry であった。 ^{134}Cs はチェルノブイリ事故時に我が国でも検出されたが、物理学的半減期が約 2 年であり、既に減衰している。したがって、少なくとも赤玉土は FDNPP 事故由来の放射性セシウムで汚染されていたことがわかった。黒土の ^{134}Cs は検出下限値 (4 Bq/kg-dry) 以下であったので、この土壤の ^{137}Cs は、主に過去の大気圏核実験やチェルノブイリ事故によるものと思われる。

2012 年 4 月 1 日より施行された食品中の放射性物質の新たな基準値は、一般食品の場合、生重量換算で 100 Bq/kg である。そこで、収穫したコマツナの含水率 (Table 2) から生重量あたりの ^{137}Cs 濃度を求めた (Table 3)。FDNPP 事故直後、 ^{134}Cs と ^{137}Cs は 1 対 1 の割合で存在しており⁵⁾、本試験を開始した 2012 年 4 月において ^{134}Cs は事故当初の約 70% 程度に減衰していると考えられる。実際、各土壤で栽培したコマツナの ^{134}Cs は、生重換算で 0.5 Bq/kg (0 S 土壤)、6.8 Bq/kg (0.5 S 土壤)、20.5 Bq/kg (1.5 S 土壤) であり、いずれの土壤で栽培したコマツナも放射性セシウム (^{134}Cs + ^{137}Cs) の濃度は新基準値を超えないことが確認できた。1.5 S 土壤の放射性セシウムは 6 890 Bq/kg であったことから、放射性セシウムの

ソースが浄水発生である土壤に限れば、放射性セシウムが 6 000 Bq/kg の園芸用土でコマツナを栽培しても、収穫したコマツナの放射性セシウムは新基準値を超えないと推測される。

コマツナ中の ^{137}Cs 濃度は、0 S 土壤、0.5 S 土壤、そして 1.5 S 土壤の順で高くなった (Table 3)。栽培に用いた赤玉土や黒土にも ^{137}Cs が含まれていたことから、コマツナの ^{137}Cs はこれらの用土から移行したとも考えられるが、浄水発生土の混合容積比の増加と共にコマツナ中の ^{137}Cs 濃度が上昇したことは、浄水発生土の ^{137}Cs がコマツナに移行したことを意味している。コマツナが ^{137}Cs を取り込むためには、 ^{137}Cs が可給態である必要がある。しかしながら、 ^{137}Cs を浄水発生土から水で抽出することは難しいことが報告されており⁶⁾、このことは給水により浄水発生土から ^{137}Cs が溶出したのではないことを示唆している。一般に、植物は根から分泌物を出し不可給態の栄養塩を可給態に変えて取り込むことが知られているが⁷⁾、浄水発生土の ^{137}Cs も同様のメカニズムでコマツナに取り込まれたと考えられる。

乾燥処理したコマツナ及び各栽培土の ^{137}Cs 濃度から、土壤－農作物移行係数を求めた (Table 3)。浄水発生土を含む土壤で栽培したコマツナの ^{137}Cs 移行係数はいずれも 0.10 であり、この結果はコマツナの ^{137}Cs 濃度は、土壤の ^{137}Cs 濃度に依存していることを意味している。一

方, 0S 土壌で栽培したコマツナの ^{137}Cs の移行係数は 0.48 であり, 浄水発生土を含む土壌で栽培したときの移行係数と比較して高い値となった。つまり, 浄水発生土の ^{137}Cs は 0S 土壌の ^{137}Cs よりもコマツナに移行しにくいことがわかった。

Uchida らは日本の農耕地で栽培した農作物の ^{137}Cs 移行係数を調査し, 葉菜類の移行係数は 0.041 ~ 0.17 の範囲であったと報告している⁸⁾。これらの値は乾燥重量あたりの移行係数であるので, 本試験において乾燥処理したコマツナの ^{137}Cs から求めた移行係数 (TF-dry) と比較した。その結果, 0S 土壌で栽培したコマツナの ^{137}Cs 移行係数のみ Uchida らの報告した移行係数の範囲を超える高い値であった。Uchida らの調査は 2007 年以前に行われており, したがって分析した ^{137}Cs は過去の大気圏核実験に由来する。つまり ^{137}Cs が土壌に混入してからかなりの時間が経過している。一方, 0S 土壌に含まれる赤玉土の ^{137}Cs 汚染は, FDNPP の事故による汚染も含まれる。このような汚染は, 汚染後の経過時間が約 1 年と比較的短期間である。土壌中の Cs は時間と共に水溶性から固定態へと変化することが知られており⁹⁾, さらに ^{133}Cs と ^{137}Cs の移行係数の比較から固定態の Cs は植物に移行しにくいことが示唆されている^{8), 10)}。以上から, 0S の土壌で栽培したコマツナの ^{137}Cs 移行係数が高い値となったのは, ^{137}Cs が土壌に混入してからの経過時間が短く, 固定態の ^{137}Cs の割合が少なかったためと考えられる。さらに, 放射性セシウムは粘土鉱物に固定されやすいことから, 粘土鉱物組成や粘土鉱物含量も影響したかもしれない。逆に, 浄水発生土を含む土壌で栽培したコマツナの ^{137}Cs 移行係数が Uchida らの報告の範囲内であったということは, 浄水発生土の ^{137}Cs の物理化学的形態はコマツナへ移行しにくいことを示唆している。今後, 時間経過と共に ^{137}Cs の移行係数は更に減少すると考えられる。

移行係数を求めるにあたり, 土壌の元素濃度

は一般に乾燥重量あたりの濃度が用いられるが, 農作物の元素濃度は乾燥重量あたりの濃度の場合と生重量あたりの濃度の場合がある。生重量あたりの濃度は同じ作物であっても栽培条件や収穫後の保存条件に影響される一方で, 我が国では生重量で食物摂取量が表記されることが多く, それらを利用した内部被ばく線量の推定等に利用できるなどの利便性もある。そこで, 収穫時に求めた水分含量を基に, コマツナの生重量あたりの ^{137}Cs 移行係数を算出した (Table 3)。いずれの試料においても, この場合の移行係数は乾燥重量あたりで算出した移行係数の 10 分の 1 以下となった。Ban-nai らは $^{137}\text{CsCl}$ を用いたトレーサー実験において, andosol で栽培したコマツナ生重量あたりの ^{137}Cs 移行係数が 0.057 であったと報告している¹¹⁾。この値は 0S 土壌で栽培したコマツナの ^{137}Cs 移行係数, 0.034 と近く, 浄水発生土を含む土壌で栽培したコマツナの ^{137}Cs 移行係数, 0.007 より大きい値であった。浄水発生土は, 河川等から取水した原水にポリ塩化アルミニウムや硫酸アルミニウムなどの凝固剤を添加し, 浮遊物を凝集させ, 脱水, 乾燥させたものである。このような浄水発生土の生成過程において, ^{137}Cs がより強固に浄水発生土と結びついたのかもしれない。

4. 結 論

放射性セシウムで汚染された浄水発生土を含む土壌からコマツナへの ^{137}Cs の移行について検討した。浄水発生土はマンガンやアルミニウムなどを多量に含有する特殊な土であるが, 本試験の条件下ではこの土がコマツナの成長を阻害することはなかった。収穫したコマツナに ^{137}Cs が含まれていたことより, 浄水発生土の ^{137}Cs はコマツナに移行することがわかった。ただし, 浄水発生土を混合した土壌の放射性セシウム ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$) 濃度が 6 890 Bq/kg であった場合でも, 収穫した小松菜の生重量あたりの放射性セシウム ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$) は新基準値であ

る 100 Bq/kg を超えないことがわかった。 ^{137}Cs で汚染された浄水発生土でコマツナを栽培した場合、移行係数は FDNPP 事故以前に調査された我が国の葉菜類への ^{137}Cs 移行係数の範囲内であることがわかった。

謝 辞

本研究を行うにあたり、浄水発生土に関する情報をご提供頂いた厚生労働省の名倉良雄氏、泉知行氏に謝意を表します。また、浄水発生土をご提供頂いた埼玉県浄水場に感謝いたします。本研究は JSPS 科研費 24590775 の助成を受けたものです。

文 献

- 1) 厚生労働省健康局水道課，水道事業における環境対策の手引書(改訂版)，
<http://www.mhlw.go.jp/za/0723/c02/dl/c02-02-03.pdf> (2012.12.3 アクセス) (2009)
- 2) 厚生労働省健康局水道課，放射性物質が検出された浄水発生土の処分状況等について，
<http://www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r9852000001k7fs-att/2r9852000001k7h9.pdf> (2012.12.3 アクセス) (2011)
- 3) 厚生労働省健康局水道課，浄水発生土の保管及び処理状況，
<http://www.mhlw.go.jp/stf/shingi/2r98520000022wul-att/2r98520000022x2p.pdf> (2012.12.3 アクセス) (2012)
- 4) 青山喜典，望月 証，小河 甲，津高寿和，河野 哲，浄水発生土がコマツナの生育・収量に及ぼす影響，土壤肥料学会講演要旨集，**53**，286 (2007)
- 5) Ishii, N., Tagami, K., Takata, H., Fujita, K., Kawaguchi, I., Watanabe, Y. and Uchida, S., Deposition in Chiba Prefecture, Japan, of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant fallout, *Health Phys.*, **104**, 189-194 (2013)
- 6) Ishii, N., Koiso, H., Tagami, K. and Uchida, S., Elution of radiocesium from soil and sludge, Proceedings of International Symposium on Environment monitoring and dose estimation of residents after accident of TEPCO's Fukushima Dai-

ichi Nuclear Power Stations, Kyoto, Japan, 86-90 (2013)

- 7) Dakora, F. D. and Phillips, A. D., Root exudates as mediators of mineral acquisition in low-nutrient environments, *Plant Soil*, **245**, 35-47 (2002)
- 8) Uchida, S. and Tagami, K., Soil-to-plant transfer factors of fallout Cs-137 and native Cs-133 in various crops collected in Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **273**, 205-210 (2007)
- 9) Roig, M., Vidal, M., Rauret, G. and Rigol, A., Prediction of radionuclide aging in soils from the Chernobyl and Mediterranean areas, *J. Environ. Qual.*, **36**, 943-952 (2007)
- 10) Kamei-Ishikawa, N., Tagami, K. and Uchida, S., Estimation of ^{137}Cs plant root uptake using naturally existing ^{133}Cs , *J. Nucl. Sci. Technol., Supplement* **6**, 146-151 (2008)
- 11) Ban-nai, T., Muramatsu, Y. and Yanagisawa, K., Transfer factor of some selected radionuclides (radioactive Cs, Sr, Mn, Co and Zn) from soil to leaf vegetables, *J. Radiat. Res.*, **36**, 143-154 (1995)

Abstract

Root Uptake of ^{137}Cs from Sedimentation Sludge-Amended Soils by Komatsuna (*Brassica rapa* var. *perviridis*)

Nobuyoshi ISHII, Keiko TAGAMI, Isao KAWAGUCHI and Shigeo UCHIDA: Research Center for Radiation Protection, National Institute of Radiological Sciences, 4-9-1 Anagawa, Inage-ku, Chiba Pref. 263-8555, Japan

Root uptake of ^{137}Cs from sedimentation sludge-amended soils by Komatsuna (*Brassica rapa* var. *perviridis*) was studied. The sludge was mixed to an initial soil mixture of Akadamatsuchi, Kurotsuchi and muck to produce three kinds of soils: 0 S soil (sludge : initial soil mixture = 0 L : 5 L), 0.5 S soil (0.5 L : 4.5 L), and 1.5 S soil (1.5 L : 3.5 L). Komatsuna was grown for 33 days on those soil mixtures. Plant height above ground was similar during cultivation period among three kinds of soils. Fresh weights of Komatsuna at harvest increased in order of the

0 S, the 1.5 S, and the 0.5 S soil sample. These results mean no growth suppression effect of the sludge on Komatsuna under our experimental conditions. Activities of ^{137}Cs in Komatsuna at harvest were 1.89 Bq/kg-dry for the 0 S sample, 153 Bq/kg-dry for the 0.5 S sample, and 400 Bq/kg-dry for the 1.5 S sample. The activities of radiocaesium ($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$) per unit wet weight for all the samples were below 100 Bq/kg, which is the new standard limit for general foods by Japanese guidelines. The

soil-plant transfer factor of ^{137}Cs was 0.1 for both the 0.5 S and the 1.5 S soil samples when the transfer parameters were given for dry weight. Similarly, the transfer factor was 0.007 on a wet weight basis. The transfer factor value for the sludge was within the range of the values reported in the previous report for leafy vegetable, which were investigated before the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident.

(Received December 27, 2012)