

放射性ヨウ素(^{129}I)の
農作物への移行に関する研究

内田 滋 夫

放射性ヨウ素(^{129}I)の
農作物への移行に関する研究

内 田 滋 夫

目次

第1章 緒 論	1
1. 1. まえがき	1
1. 2. 本論文の構成	3
第2章 従来の研究と問題点	5
2. 1. 放射性核種の農作物への移行に関する従来の研究	5
2. 1. 1. はじめに	
2. 1. 2. 放射性核種の分布・挙動	
2. 1. 3. 大気から農作物への移行	
2. 1. 4. 土壌から農作物への移行	
2. 2. 放射性ヨウ素の内部被曝線量評価上の問題	16
2. 2. 1. はじめに	
2. 2. 2. 原子力施設におけるヨウ素の生成量 および被曝線量評価方法	
2. 2. 3. ^{131}I と ^{129}I の評価対象農作物と汚染経路の違い	
2. 2. 4. 放射性ヨウ素の被曝線量評価モデル	
2. 2. 5. 被曝線量評価のためのパラメータ	
2. 2. 6. おわりに	
参考文献	24
第3章 放射性核種の土壌から農作物への移行に関する問題	28
3. 1. 緒 論	28
3. 2. 土壌から農作物への放射性核種の移行 に関する計算モデル	28
3. 2. 1. はじめに	
3. 2. 2. 移行係数モデルについて	
3. 2. 3. 修正モデルについて	
3. 2. 4. おわりに	

5. 2. 5. 結 語	
5. 3. 水耕法による放射性核種の移行における	
作物間差と核種間差	98
5. 3. 1. 実験目的	
5. 3. 2. 実験材料および実験方法	
5. 3. 3. 実験結果および考察	
5. 3. 4. 結 語	
5. 4. 土耕法による水稻への放射性ヨウ素の移行	100
5. 4. 1. 実験目的	
5. 4. 2. 実験方法	
5. 4. 3. 実験結果および考察	
5. 4. 4. 結 語	
参考文献	110
第6章 ガス状ヨウ素 (I_2) の大気から水稻への移行	
—— 乾性沈着に関する研究 ——	114
6. 1. 実験目的	114
6. 2. 実験方法	114
6. 3. 実験結果および考察	118
6. 3. 1. チェンバー内ヨウ素濃度の計算方法	
6. 3. 2. 水稻へのヨウ素の移行	
6. 4. 計算モデルについて	129
6. 5. 結語および今後の課題	130
参考文献	132
第7章 結 語	134
謝 辞	139
付録	140
放射線に関する単位表	140

第 1 章 . 緒 言

1. 1. まえがき

昭和32年8月27日、日本で最初の原子炉（JRR-1）が茨城県東海村で臨界に達した。その後、原子力発電所が次々に建設され、昭和63年3月現在、日本で稼働中の電気事業用原子力発電所は、35基、総出力は2788万kwである。これは、水力および火力を合わせた全電源設備量の18%、発電量で見れば31.7%を占める。将来においても電気事業審議会がまとめた長期電力需給の見通しによると、昭和75年度で発電電力量の40%を原子力が占める計画となっている。このように、原子力発電が着実に増加しているにもかかわらず、原子力発電に必要なウラン濃縮や使用済核燃料再処理、さらに、原子力発電から発生する放射性廃棄物処分に関する研究開発は遅れているのが実情である。

原子力委員会がまとめた原子力開発利用長期計画では、上記のような状況を考慮して、原子（核）燃料サイクルの確立を重要課題の1つに上げている。原子燃料サイクルの中で、ウラン燃料加工については、早くから事業化されているが、その他の分野、すなわち、ウラン濃縮、使用済み核燃料再処理および放射性廃棄物処分等に関しても、具体化している事業化計画を推進する必要性が強調されている。

このような原子燃料サイクル諸施設の建設に関しては、これまであまり問題にならなかった長半減期核種（例えば、ヨウ素-129 [^{129}I]、テクネチウム-99 [^{99}Tc]、ニッケル-63 [^{63}Ni]、炭素-14 [^{14}C]、プルトニウム-239 [^{239}Pu]、ネプツニウム-237 [^{237}Np] 等）による被曝線量評価が重要な問題となる。我が国において、環境中における放射性核種（以下、RIと記す）の挙動や生物への移行、すなわち、ラジオエコロジーの研究が推進されたのは、1950年代後半から60年代にかけてである。この時期に、多くの核実験が実施され、大量の放射性降下物（以下、フォールアウトと記す）が地表に降下したため、種々の環境試料中の放射性核種の分析法の確立、水産生物および農作物への移行・濃縮に関する多くの研究が行われた。しかしながら、これらの研究の多くは核分裂生成物のストロンチウム-90 [^{90}Sr] やセシウム-137 [^{137}Cs]、亜鉛-65 [^{65}Zn] 等の誘導放射性核種に関するものであり、長半減期核種に関しては、 ^{14}C を除いてほとんどない。近年、環境中のレベルは低

いけれども、人体への影響が大きい ^{239}Pu に関する研究が行われてきたが、その他の長半減期核種についてはほとんど研究されていない。人体への被曝線量を評価する上で、長半減期核種は、短半減期核種とは異なり、環境中における蓄積や循環を考慮する必要がある。例えば、RIを含んだ地下水や河川水が灌漑水として利用され、RIが畑土および水田土壌に蓄積される。土壌深部へ浸透した一部のRIは、再び地下水に入り、灌漑水として使用される。さらに、地下水や河川水は飲料水としても利用される。このような点から、施設から放出される長半減期核種による人体への被曝線量を評価するためには、施設周辺だけではなく広域における、これまで得られていない種々のパラメータ（個々のパラメータについては、第2章2節で詳しく述べる）が必要となる。我が国においては、原子力発電所がすべて沿岸に建設されていることもあり、海産生物への移行・濃縮に研究の主力が注がれてきたため、農作物に関する研究は少ない。本研究は、原子燃料サイクル諸施設などから環境へ放出が予想される長半減期核種の中で、人体への被曝線量評価上、特に重要と考えられる ^{129}I の農作物への移行に関してまとめたものである。本研究の中で、 ^{129}I を対象とする目的は、次のような理由からである。

- ① 放射性ヨウ素（ ^{129}I や ^{131}I ）は、原子燃料サイクル諸施設から環境中へ放出が予想される核種の一つである。特に、再処理施設からは、種々のフィルターにより極力環境中への放出が押さえられてはいるが、一部は環境中に放出されること
- ② ^{129}I は、半減期が1600万年と非常に長く、環境中、特に施設周辺の土壌に蓄積される可能性があること
- ③ 人体に摂取された放射性ヨウ素は安定ヨウ素とともに人体の甲状腺に蓄積される。放射性ヨウ素による甲状腺被曝は、放射線による被曝の中でも特に大きな割合を占め、重要なものの一つであること
- ④ ヨウ素は、環境中で種々の化学形で存在するため、 ^{129}I の環境中での挙動や農作物への移行を考える場合、その化学形も考慮しなければならないが、十分なデータはほとんどないこと
- ⑤ これまで ^{131}I に関しては、大気→農作物への移行についてある程度、データの蓄積がある。しかし、 ^{131}I と ^{129}I とでは、被曝線量評価上、対象となる移行経路や農作物が異なる。したがって、同じ放射性ヨウ素であっても、 ^{129}I の被曝線量評価上のパラメータは、後述するように、 ^{131}I と同じ値が使えるパラメ

ータと使えないパラメータとがあること

本研究の中では、 ^{129}I ではなく ^{131}I や ^{125}I をトレーサとして用いている。それは、 ^{129}I が放出する放射線のエネルギー〔 β^- 線、X線および γ 線（39.6 keV）〕は低く、測定が困難である上、物理的半減期が長く放射性廃棄物の処理が困難であるためである。 ^{131}I の物理的半減期は8日で、放出する γ 線は346 keVであり、NaIシンチレーションカウンターやGe(Li)半導体検出器により測定が可能である。 ^{125}I の場合は放出放射線のエネルギーは低いが、物理的半減期が60日で取り扱い易い核種である。どの核種を用いて実験を行っても、その化学形や濃度が同じならば同じ結果が得られる。

1. 2. 本論文の構成

本研究では、はじめに第2章1節において、フォールアウト核種の ^{137}Cs と ^{90}Sr 、さらに、 ^{131}I の農作物への移行に関する従来の研究をまとめた。第2節では、 ^{129}I の被曝線量評価上、重要と考えられるパラメータについて検討した。被曝線量評価モデルの中で、農作物への移行に関するパラメータについて ^{129}I と ^{131}I との比較を行い、 ^{131}I の値と同じものが使用できるパラメータであるか、新たに求めなければならないパラメータであるか等を検討した。

第3章では、特に経根吸収による農作物への移行を取り上げた。土壌から農作物への移行に関しては、土壌、気候、さらに、農作物の種類や栽培条件等が諸外国と異なるため、我が国独自のデータの蓄積をはかる必要があるが、前述したように、これまで我が国ではこの種の研究は、 ^{137}Cs と ^{90}Sr 以外ほとんどない。したがって、第2節では、 ^{129}I に限らず、種々のRIの土壌から農作物へのRI移行に関する計算モデルについて詳述した。そして、第3節では、第2節で検討した計算モデルの中で、最も現実的な移行計算モデルである移行係数モデルに着目して、そのキー・パラメータである移行係数の変動に関して、欧米での研究を中心に検討を行った。

第4章では、砂質、水田および畑土壌中におけるヨウ素の挙動に関して、その化学形の違いを中心に述べた。前述したように、長半減期核種の被曝線量評価を行う場合、広域におけるRIの蓄積・移動を把握する必要がある。環境中におけるヨウ素の主要な化学形は、 I^- および IO_3^- であるので、これらの形態別挙動について検討した。すなわち、地下帯水層を対象とした砂質土壌に関しては、カラムおよびバッチ実験を行い、流出パターンやカラム内吸着分布を求めた。また、水田および畑で採

取した土壌（以下、それぞれ水田および畑土壌と記す）に関しては、加熱処理や γ 線を照射した土壌試料を用いて、ヨウ素の吸着に関する土壌水分や土壌微生物の影響をバッチ実験により検討した。

第5章では、経根吸収による農作物への移行に関して、水耕法および土耕法により行った実験について述べた。我が国では、後述するように、RIの農作物への移行に関する報告は多くない。第2節では、7種類の農作物を用いて、水耕法による短期間の吸収実験から、放射性ヨウ素の農作物内での分布を比較検討し、土壌から農作物への放射性ヨウ素の移行に関し、特に重要となる農作物の選定を行った。さらに、第3節においては、ヨウ素だけではなく、 ^{137}Cs や ^{85}Sr 等の農作物可食部への移行に関しても検討を行い、その作物による違い（作物間差）および核種による違い（核種間差）を明らかにした。第4節では、被曝線量評価上、最も重要と考えられる水稻への移行に関して、土耕法により検討した。

第6章では、大気から農作物への直接経路に関してまとめた。すなわち、水稻への移行が重要であるがほとんどデータがないこと、および農作物へのヨウ素の移行については、 I_2 の化学形が最も移行しやすいことを考慮して、ガス状ヨウ素（ I_2 ）の水稻（米）への移行に関して問題点を整理し、実験的に検討を行った。

第2章．従来の研究と問題点

2. 1. 放射性核種の農作物への移行に関する従来の研究

2. 1. 1. はじめに

環境中には、天然放射性核種と人工放射性核種が存在する。天然放射性核種は、地球起源の核種と宇宙線との相互作用や自発核分裂などにより生成される核種とに大別される。人工放射性核種としては、核実験による核分裂生成物がほとんどである。これらの核分裂生成物は、フォールアウトとして長期間にわたり地球上に降下し、環境中に広く分布している。

近年、原子力平和利用に伴う原子力発電所や核燃料再処理工場などの原子燃料サイクル諸施設から人工放射性核種が環境中に放出されている。フォールアウトの量に比べると、これらの施設から放出される人工放射性核種の量は非常に少ないが、将来にわたり増加の傾向にある。RIの人体への被曝線量を予測し、それを低減させるためにも、環境中におけるRIの分布・挙動を明らかにする必要がある。

陸圏に放出されたRIによる人体への被曝線量を評価する上で、農作物経路による被曝は最も重要な経路の1つである。農作物経路には、直接経路と経根吸収経路の2つ¹⁾がある(図 2.1)。前者は、大気中に放出されたRIが農作物の地上部(茎葉部、花部および子実部など)に付着・補捉されて農作物体内に取り込まれる経路であり、後者は、大気中のRIが土壌表層に降下した場合や、RIが混入した地下水を灌漑水として利用した場合等、土壌に存在しているRIが根部を介して作物体内に吸収される場合である。陸圏に放出されたRIの農作物への移行量は、この2つの経路からの和²⁾として与えられる。

本節では、フォールアウト中の ^{90}Sr および ^{137}Cs 等の直接経路と経根吸収経路による農作物への移行、さらに、 ^{131}I の直接経路などの従来の研究について述べる。

2. 1. 2. 放射性核種の分布・挙動

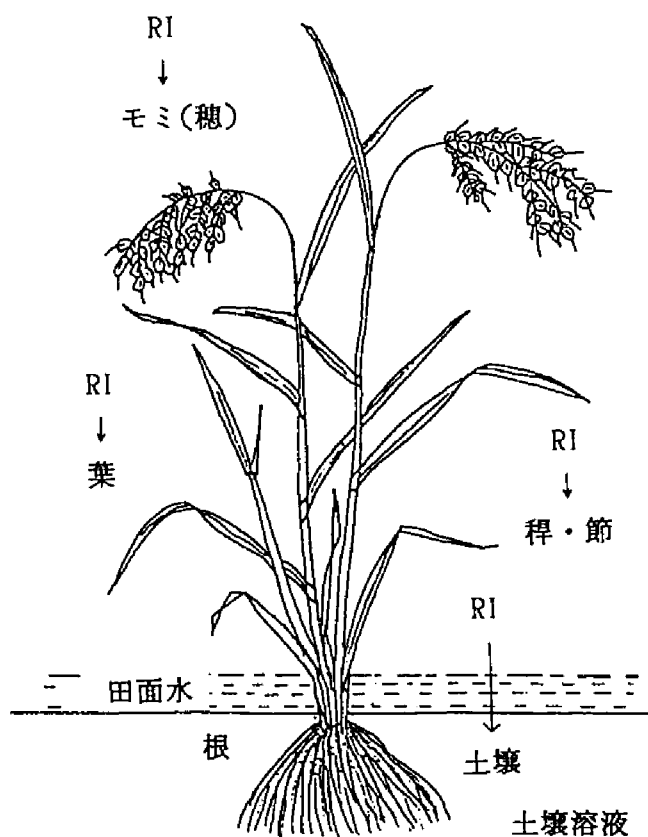
前述したように、人工放射性核種には、大別して核実験と原子燃料サイクルを含む原子力平和利用のための諸施設に由来するものがある。核実験に由来するRIの中で、人体への被曝線量評価上重要な核種は、比較的長半減期の ^{90}Sr と ^{137}Cs であ

1 : 葉茎・モミへの直接沈着

(1) 乾性沈着 [ガス状、粒子状]

(2) 湿性沈着 [雨、霧など]

葉 ┌
モミ├ → 吸収 → 移行 → 子実（玄米・白米）
根 └



2 : 土壌からの経根吸収

図 2.1 RIの農作物（米）への移行経路

る。原子燃料サイクル諸施設などから大気中に放出されるRIは、事故時と平常時とは異なる。平常時の場合、放出量が多いという点からはクリプトン-85 [^{85}Kr] とトリチウム [^3H] が、環境への蓄積という観点からは ^{129}I 、 ^{99}Tc および ^{239}Pu 等が考えられる。一方、事故時の場合、物理的半減期は短い、核分裂生成率が高く、甲状腺に蓄積されやすいことから、 ^{131}I が特に重要視される。さらに、放射性廃棄物の陸地保管や地中処分施設から環境中へ流出すると考えられるRIは、長半減期核種が対象であり、上述の ^{129}I 、 ^{99}Tc および ^{239}Pu 以外に ^{90}Sr や ^{137}Cs 、 ^{63}Ni や他の超ウラン元素が加わる。これらの核種の中で、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の両核種についてはよく調査³⁾されている。したがって、これら両核種の環境中での分布・挙動^{4,5)}について、はじめに概説する。

地球規模での ^{90}Sr の土壌蓄積量をみると、北緯30~60° 地帯が最も蓄積量が多い。これは、核実験が北半球の中緯度地帯に集中して行われたことによる。我が国におけるフォールアウト中の ^{90}Sr や ^{137}Cs の降下量は、日本海側が多く、太平洋側が少ない傾向を示す。図 2.2 と図 2.3 に札幌、秋田、仙台、東京、大阪、福岡の6地点における ^{90}Sr の年間降下量と積算降下量の経年推移⁶⁾を示す。1980年末までの積算降下量は、秋田が最高で、約 $5.6\text{GBq (150mCi)} \cdot \text{km}^{-2}$ 、大阪が最低で約 $2.1\text{GBq (57mCi)} \cdot \text{km}^{-2}$ 、6地点の平均値は約 $3.4\text{GBq (92mCi)} \cdot \text{km}^{-2}$ である。

一方、地表面に降下したフォールアウト核種は、その一部は表面流出や舞上りなどにより除去されるが、大部分は地表面の浅い部分、0~20cm 以内に長期間とどまる。図2.4 は1965年、1969年および1974年における各地域別の水田作土中の置換態 ^{90}Sr 含量を比較したもの⁷⁾である。各年度とも、日本海側が全般に高く、中央部がこれに次ぎ、太平洋側のうち特に西南部が低い傾向を示す。畑作土中の置換態 ^{90}Sr 含量⁷⁾および未耕作地の表層土壌中の ^{90}Sr および ^{137}Cs 含量の全国分布^{8,9)}も、水田作土中の置換態 ^{90}Sr の分布と同じ傾向を示す。これらの分布傾向は、年間降下量全国分布と高い相関のあることが報告⁹⁾されている。また、全国的な調査だけではなく、局地的な調査においても、年間降下量とフォールアウト中の ^{137}Cs の蓄積量との間に高い相関¹⁰⁾ が認められている。日本各地における農作物のフォールアウト中の ^{90}Sr 濃度は、農耕土壌中の置換態 ^{90}Sr の全国分布と類似の傾向⁷⁾を示し、日本海側が高く、中央部がこれに次ぎ、太平洋側で低くなっている。

地表面に保持されたフォールアウト核種は、降水により徐々に深部へと移動する。降水中のフォールアウト核種の濃度が低い現在、地表近傍のフォールアウト核種濃

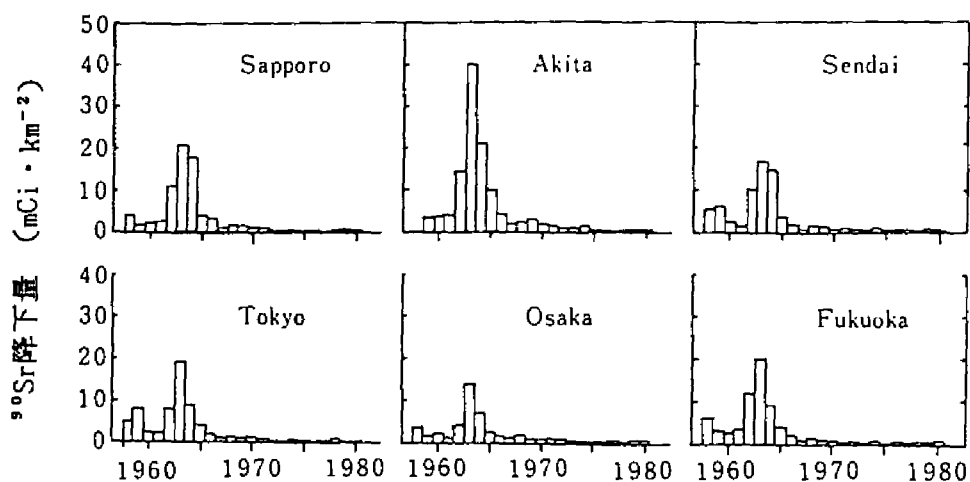


図 2.2 日本各地の ^{90}Sr の年間降下量

($1 \text{ mCi} = 37\text{MBq}$)

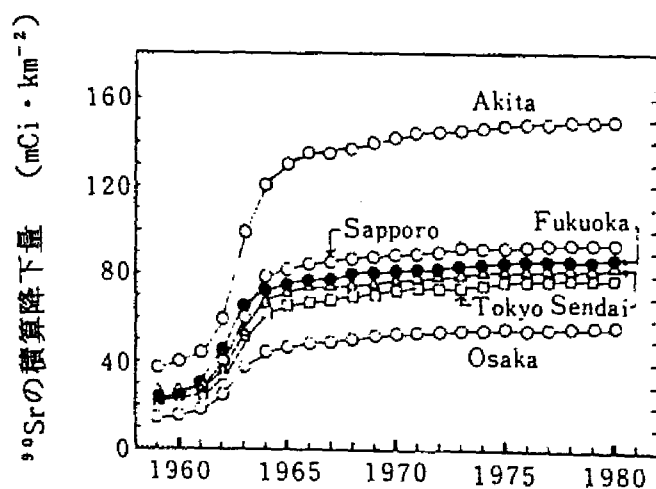


図 2.3 日本における ^{90}Sr の積算降下量

($1 \text{ mCi} = 37\text{MBq}$)

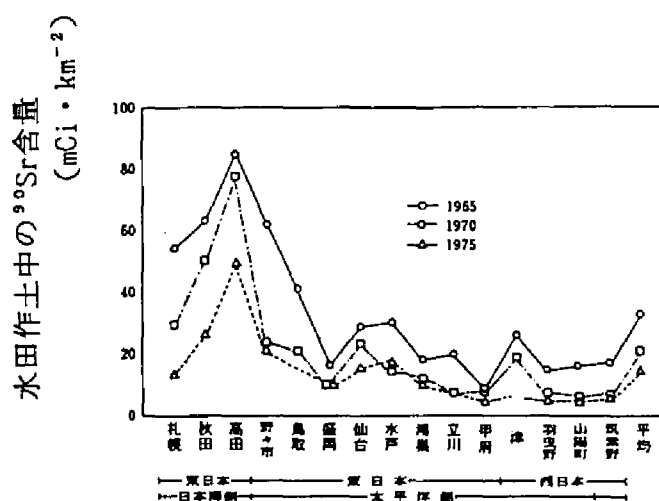


図 2.4 日本の地域別、水田作土中の ^{90}Sr 含量

($1\text{ mCi} = 37\text{ MBq}$)

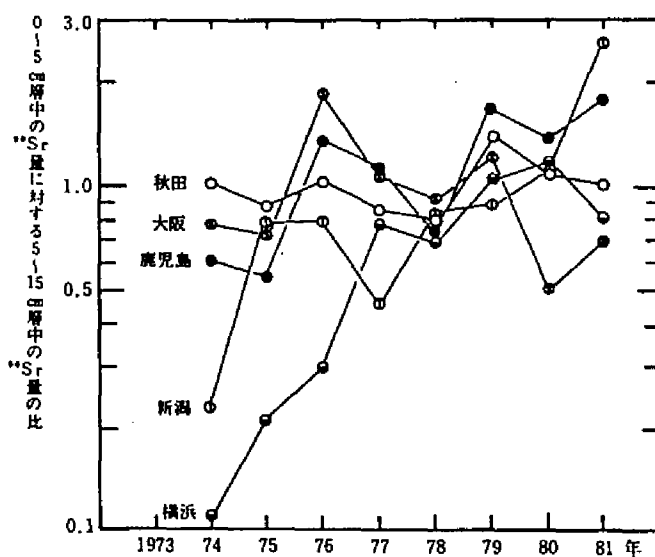


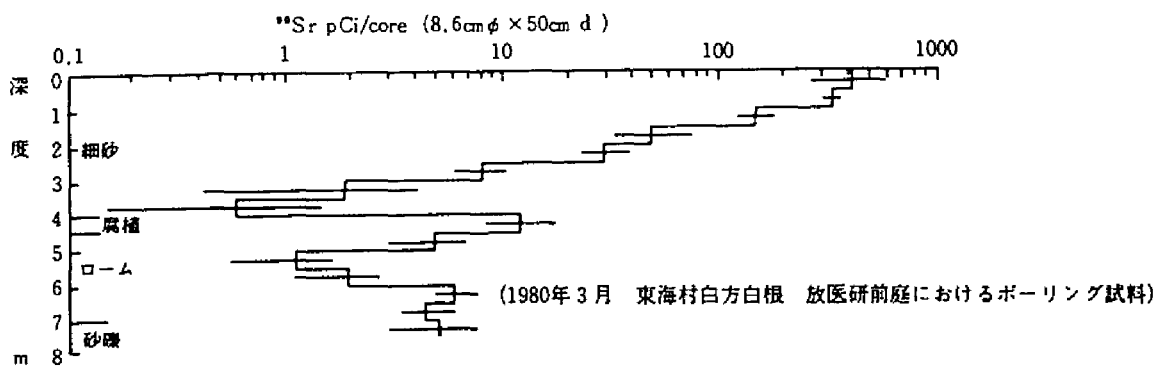
図 2.5 日本各地の土壌中におけるフォールアウト ^{90}Sr の垂直移動の推移

度は減少していく傾向にある。図2.5 は、日本各地における地表0～5cm層中の ^{90}Sr の平均濃度に対する5～15cm 層中の濃度の比の経年変化¹¹⁾を示したもので、最初、0～5cm 層に保持されていた ^{90}Sr が、徐々により下方へ移動していることを示している。農耕土壌については、水田作土中および畑作土中の置換態 ^{90}Sr はそれぞれ約7.5 年および約9 年で半減することが報告⁶⁾されている。

表層からより深部へ移動したフォールアウト核種は、やがて地下水に達し、地下水によって輸送される。したがって、地下水を飲料水あるいは灌漑水として利用することによる被曝の可能性が増大すると思われる。鎌田¹²⁾ は、山形県や茨城県において深度約10m までの土壌を採取し、深度別の ^{90}Sr 濃度を測定した。それによれば、大部分が地表付近に残っているものの、地下数mの腐植やローム層にもピークがみられることを報告(図2.6)している。

フォールアウト中で、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の他に重要な核種の1つにPuがある。日本の主要河川水中のPu濃度¹³⁾を表2.1に示す。8河川の平均Pu濃度は $3.9 \times 10^{-2} \text{ mBq} \cdot \ell^{-1}$ で、このうち約1/3に当たる $1.4 \times 10^{-2} \text{ mBq} \cdot \ell^{-1}$ は懸濁状態で存在していた。

原子力施設由来の人工放射性核種については、我が国においても検出された例がいくつか報告されている。渡部ら¹⁴⁾は、福井県において、降下塵、松葉などの環境試料中の放射能調査を実施し、施設近傍で ^{60}Co 、 ^{54}Mn を検出している。昭和52年度の施設近傍(約1km)における ^{60}Co および ^{54}Mn の年間降下量は、それぞれ $1.6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ および $2.5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ である。松葉中の濃度の最高は、 ^{60}Co について $2.7 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (dry)、 ^{54}Mn では $2.8 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (dry)であった。加藤ら¹⁵⁾は、原子炉冷却水の漏水事故により、環境中に流出した ^{60}Co を利用して、砂質土壌中における移動特性を研究している。また、米国や西独では再処理施設周辺の環境試料中に施設由来の ^{129}I が検出されているが、わが国においても、村松ら^{16), 17)}が東海村周辺および日本各地の土壌や雨水などの環境試料中の ^{129}I の分析を行っている。土壌中における放射性ヨウ素の分布や挙動に関する研究は、第4章において詳述する。



$$1 \text{ pCi} = 37 \text{ mBq}$$

図 2.6 茨城県におけるフォールアウト ^{90}Sr の垂直分布(1981年)

表 2.1 日本の河川水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度 (1966~1967)

河 川 名	$^{239,240}\text{Pu}$	
	溶 液	懸 濁
	($\mu\text{Bq} \cdot \ell^{-1}$)	
北 上 川	25.2 ± 2.6	21.1 ± 2.2
最 上 川	66.6 ± 3.7	21.1 ± 2.2
信 濃 川	8.5 ± 0.7	14.1 ± 1.1
木 曾 川	18.9 ± 1.9	10.7 ± 0.7
利 根 川	153.9 ± 7.4	7.8 ± 0.7
淀 川	2.6 ± 0.4	4.8 ± 0.4
旭 川	9.6 ± 0.7	8.5 ± 0.7
吉 野 川	18.9 ± 1.9	12.2 ± 1.1
加重平均	38.5	13.7

2. 1. 3. 大気から農作物への移行

大気から農作物への移行という点から、フォールアウト核種に関しては、比較的半減期が長い ^{90}Sr および ^{137}Cs が、また、原子力諸施設（原子力発電所、核燃料再処理施設等）に由来する核種に関しては、物理的半減期は短い、核分裂生成率が高く甲状腺に蓄積されやすい ^{131}I が重要視され研究¹⁸⁻²¹⁾が行われてきた。一方、 ^{129}I は量的には少ないが、長半減期核種であるため、 ^{131}I では物理的半減期による減衰効果のため無視できた米・麦への移行が重要となり、同じく量的には少ないが人体に取り込まれた場合の影響が大きいという点から ^{239}Pu などが、注目される核種となる。

大気から農作物へのRIの移行量は、RIの種類や、環境中でのその存在形態によって異なる。一般に、大気中に放出された時の ^{90}Sr や ^{137}Cs は、大部分が微粒子状である²¹⁾と考えられており、放射性ヨウ素の場合は気体状で存在する割合が多いと予想²²⁾されている。以下、現在までに比較的研究報告が多いフォールアウト ^{90}Sr および ^{137}Cs の米・麦への移行およびガス状 ^{131}I の農作物への移行について述べる。

市川ら²³⁾は、小麦及び水稻の出穂直前に袋やビニールカバーをかぶせて、直接RIが穂から吸収されるようにして収穫し、何もカバーしない対照群とともにRI濃度を分析定量し比較した。その結果、次のようなことが分かった。

- ① 小麦の場合、出穂期間中に穂から吸収される ^{90}Sr の寄与は大きい。
- ② 水稻のもみがら、ぬかの部分の ^{90}Sr は大きく直接吸収に由来する。また、白米にも有意な差があり、この時期における直接吸収の寄与は少なくない。
- ③ 白米中の ^{137}Cs 濃度値は変動範囲内であって有意差はない。これは、 ^{137}Cs は ^{90}Sr と違いビニールカバーを設置してもそれ以前に茎葉部に吸収されたものが穂の部分に移動しているためと思われる。

小林ら^{6, 7)}は、フォールアウトの影響を最も受けやすい水稻および小麦の幼穂形成期前後（最高分けつ期から生殖生長に移る前後の時期、7月頃）から登熟中期（穂が形成されるまでの時期、9月頃）までの3ヶ月間における ^{90}Sr 降下量と玄米中の ^{90}Sr 濃度との相関関係について検討し、表2.2に示すような回帰式と相関係数を得ている。また、津村ら²⁴⁾は、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の白米汚染は少量降下期には主に経根吸収経路によるが、多量降下期には経根吸収経路・直接経路の両経路からなることを報告している。

^{131}I については、その物理的半減期が比較的短いために、貯蔵・保存がきく米・

表 2.2 水稻作付期間中の⁹⁰Sr降下量と玄米中の⁹⁰Sr含量の相関性

地 域	試 料 数	回 帰 式	相関係数(r)
札幌	18	$Z = 8.50 X + 8.28$	0.897***
秋田	18	$Z = 10.79 X + 9.24$	0.927***
仙台	18	$Z = 13.82 X + 6.44$	0.869***
東京	16	$Z = 16.12 X + 3.62$	0.986***
大阪	16	$Z = 11.80 X + 3.57$	0.910***
福岡	18	$Z = 24.53 X + 2.00$	0.918***
全 体	104	$Z = 12.00 X + 6.65$	0.888***

注. Z : 玄米中の⁹⁰Sr含量 (pCi/Kg)

X : 水稻作付期間中の⁹⁰Sr降下量 (nCi/m²)

*** : P = 0.001で高度に有意

麦子実への移行は現実問題としてあまり重要ではなく、収穫から摂取までの期間が短い、葉菜への移行が最も重要である。欧米では、大気放出された¹³¹Iの最も重要な汚染経路 (Critical Path) として、この葉菜→人体経路の他に牧草→牛乳→人体経路も考慮されている。しかし、我が国の場合は、牛乳の消費量が欧米に比べて少ない事、市場希釈率が大きいこと、さらに原子力施設周辺には牧草地や酪農地帯が極めて少ない等の理由により、前述の葉菜→人体経路が最も重要である²¹⁾ と考えられる。

¹³¹Iの大気から農作物への移行に関して、葉面への沈着率が基礎的かつ重要なパラメータとなる。沈着率は、大気中の¹³¹Iの平均濃度と沈着速度の積として与えられる。この沈着速度は種々の環境因子 (大気中¹³¹Iの物理的、化学的形態、気象条件、植物の種類) によりおおきく変動する。これらの環境因子の中で、最も大きな変動要因は¹³¹Iの化学形である。

大気中の¹³¹Iの化学形に関する研究²⁶⁻²⁹⁾はいくつかある。前述したように、一般に、大気中に放出された時の⁹⁰Srや¹³⁷Csは、大部分が微粒子状であると考えられるが、¹³¹Iの場合は気体状で存在する割合が多いと予想される。Eggletonら²⁶⁾は、1961年9月に行われたソ連の核爆発実験により生じた¹³¹Iの物理・化学的性状について研究し、¹³¹Iの75%は粒子状であったと報告している。一方、大気中に存在する安定ヨウ素の場合は、大部分がガス状で、粒子状のヨウ素はごくわずかであったことを報告している。Perkins²⁷⁾は1962年に実施された一連の核実験に由来する¹³¹Iの物理・化学形態について研究し、その存在形態がきわめて変動的であることを報告している。すなわち、ガス状ヨウ素の占める割合は、90%から10%の幅があっ

た。粒子状で捕集されたヨウ素 (dustの表面にヨウ素が沈着して粒子を形成しているものと考えられる)の化学形は、 (I_2+I^-) が全体のおよそ60%、 IO_3^- が30~40%、 IO_4^- は5%以下であった。さらに、Perkins は、化学分離工場 (アイソトープ生産工場) のスタックから、 I_2 またはHIのガス体として放出された ^{131}I の物理・化学的形態変化について研究し、スタック放出口では、粒子状ヨウ素の占める割合が0.3%以下であったにもかかわらず、スタックから3マイル地点ではおよそ10%、5マイル地点で20%、10~25マイル地点では30~40%に増加したことを報告している。成富²⁸⁾の報告によると、原子力施設の種類にもよるが、スタック放出時の化学形は、元素状10%、揮発性無機ヨウ素 (HOI と考えられる) 40%、有機ヨウ素 (主としてヨウ化メチル $[CH_3I]$) 50%である。またスタックの高さにもよるが、放出された ^{131}I ガスの最高濃度地点となりやすい、スタックから3kmの地点では元素状ヨウ素と有機ヨウ素が、それぞれ50%ずつを占めると考えてよいとしている。

すなわち、放射性ヨウ素は、核爆発実験に由来する場合は粒子状で存在する割合が多い。スタック放出の場合には逆に、ガス状ヨウ素の占める割合が多くなり、その主な化学形は、原子力施設の種類、放出地点からの距離にもよるが、元素状ヨウ素と有機ヨウ素²²⁾ と考えられる。

中村・大桃^{30), 31)}は、ヨウ素の化学形による植物葉面への沈着速度の相違および葉面沈着のメカニズムについて報告している。ハウレン草への I_2 の沈着速度は、約 $1.5 \times 10^{-1} \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ であり、 CH_3I はこの値よりも2ケタ低いことが報告されている。これらの I_2 および CH_3I の植物への沈着速度は、他の研究者らが報告している値³²⁾とよい一致を示している。ヨウ素の葉面沈着のメカニズムについては、 CH_3I は主として気孔から内部にとり込まれ、表面への付着はほとんど無視できるが、 I_2 は気孔から取り込まれる他、表面付着がかなり大きいこと、また、葉の表面から取り込まれる I_2 の量は、 CH_3I より2ケタ程大きく、その量は、表面積にもよるが、気孔から入る量の2~3倍に達すること等を認めている。

沈着速度の他に、植物体に付着・吸収されたRIの有効除去係数 (λ_e)、植物の葉面に付着したRIが可食部にどれ位移行するかという問題などは被曝評価上重要な問題である。これらについては、長半減期核種で特に重要³³⁾である。しかし、これまであまり研究³⁴⁾されておらず、今後の重要な研究課題である。

2. 1. 4. 土壌から農作物への移行

RIの経根吸収に関する研究については、フォールアウト ^{90}Sr と ^{137}Cs の水稲と小麦への移行に関する調査・研究³⁵⁻³⁷⁾は比較的多いが、他のRIや水稲や小麦以外の農作物に関してはあまりない。小林ら^{6,20)}、駒村ら⁷⁾および津村ら²⁴⁾は、フォールアウト ^{90}Sr と ^{137}Cs の米麦子実への長期汚染調査資料について解析を行い、次のような結果を得ている。

- i) フォールアウトの少量降下期における玄米および玄麦子実中の ^{90}Sr 含量と作土中の置換態 ^{90}Sr 含量との間に、高度に有意な正の相関関係がある。
- ii) 単位面積(1m^2)当たりの作土中置換態 ^{90}Sr 量とそこから収穫された玄米中の ^{90}Sr 含量の比(移行比)は $2\sim 4\times 10^{-4}$ であり、トレーサ法で得られた値と同程度である。 ^{90}Sr の玄麦への移行比は、玄米よりも高い。
- iii) 一方、 ^{137}Cs の玄米への移行比は $2\sim 8\times 10^{-4}$ 程度である。

^{90}Sr と ^{137}Cs 以外にも、ヨウ素³⁸⁾、ウラン³⁹⁾、 ^{239}Pu ⁴⁰⁾およびルビジウム-87 [^{87}Rb]⁴¹⁾などの元素について、土壌から農作物への移行に関するフィールド・データが得られているものの、その数は多くなく、今後、調査・研究を進め、データの蓄積を図る必要がある。

移行量を予測するための計算モデルに関しては、いくつかの報告^{42,43)}があるが、我が国では、あまり論議されていない⁴⁴⁾。その理由の1つは、長半減期核種が対象とはならなかったためである。しかし、前述したように放射性廃棄物の貯蔵施設や処分場などの建設に伴う被曝線量評価では、長半減期核種が重要な対象核種となる。したがって、これらの核種の経根吸収経路からの農作物への移行が重要な被曝経路となる。第3章2節において、これまでに報告されている計算モデルについて詳述し、第3節では、それらの計算モデルの中で最も現実的である移行係数モデルに着目し、そのキー・パラメータである移行係数の変動について検討する。

2. 2. 放射性ヨウ素の内部被曝線量評価上の問題点

2. 2. 1. はじめに

放射性ヨウ素は、体内に取り込まれた場合、甲状腺に蓄積されるため、核実験による環境汚染が問題となった当初から着目されてきた放射性核種のひとつである。また、原子力平和利用の推進に伴い、量的にわずかではあるが放射性ヨウ素の放出源として原子力施設がこれに新たに加わることとなった。

種々の被曝経路の中でわれわれにとって最も主要な経路は農作物経路であるため、本節では、 ^{129}I の農作物経路からの経口摂取量を算定する上での問題点を中心に述べる。これまでに多くの研究報告がある ^{131}I と比較しながら、US-NRC Regulatory Guide²⁾の評価式に用いられているパラメータについて、 ^{131}I と同じ値が使用できるかどうかを検討し、新たに調査・研究が必要なパラメータを明らかにする。

2. 2. 2. 原子力施設におけるヨウ素の生成量および被曝線量評価方法

定常運転されている原子炉では、表2.3 に示す7種類の放射性ヨウ素および安定ヨウ素(^{127}I)が生成⁴⁵⁾される。表2.4 は、電力出力 1,000MWの原子炉を1年間稼働させた時に生成される放射性ヨウ素の全放射能、 ^{131}I と ^{129}I の放射能および安定ヨウ素量を示したものの⁴⁵⁾である。 ^{131}I の生成量は 2.6×10^{10} GBqで放射性ヨウ素の全放射能の1%弱である。長半減期核種の ^{129}I の生成量44 GBqで量的に少なく、安定ヨウ素は約 9kg生成される。表2.4 からわかるように、生成される放射性ヨウ素の99%以上は極めて短半減期のものであり、したがって原子炉の定常運転中に環境に放出され、人体に取り込まれて被曝線量評価上問題になるのは、生成率も高く、相対的に半減期の長い ^{131}I が第一であり、その次がこの表にはあげていないが、半減期20.9h の ^{133}I である。原子力委員会原子炉安全技術専門部会は、昭和51年3月、「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針」⁴⁶⁾(以下、評価指針と記す)を定めているが、そこで取り上げられているのも ^{131}I と ^{133}I である。しかし、使用済核燃料については、再処理プラントに運ばれた使用済核燃料は、通常6ヵ月以上の冷却期間をおいた後に処理されるため、短寿命の放射性ヨウ素は減衰してしまい、燃料体に残るのは ^{131}I と ^{129}I に限定される。すなわち、再処理プラントでは ^{131}I に加えて ^{129}I が問題^{33), 47)}となる。

軽水型原子炉からのスタック放出で問題になる ^{131}I と ^{133}I の経口摂取経路に起因

表 2.3 原子炉内で生成される放射性ヨウ素の物理特性

核種	半減期	崩壊形式	β 線エネルギー (MeV)	γ 線エネルギー(放出割合) (MeV)
^{129}I	$1.57 \times 10^7 \text{ yr}$	β^-	0.150	0.03958(7.52%)
^{131}I	8.04 d	β^-	0.608, 0.81 (平均0.19)	0.0802(2.6%), 0.1772(0.2%), 0.2843(5.4%), 0.3258 (0.2%), 0.3645(8.2%), 0.5030(0.4%), 0.637(0.8%), 0.723(1.6%)
^{132}I	2.28 h	β^-	1.22, 2.92	0.2628(1.3%), 0.5057(4.7%), 0.5226(15.6%), 0.6302 (13.5%), 0.6677(98%), 0.7727(75%), 0.9546(16.7%), 2.0017(1.2%), 他多数
^{133}I	20.3 h	β^-	1.27	0.2663(0.13%), 0.5104(1.5%), 0.5295(8.7%), 0.7074 (1.6%), 0.8561(1.2%), 0.8753(4.5%), 1.2375(1.57%), 1.2989(2.18%), 他多数
^{134}I	53.2 min	β^-	2.43	0.13548(4.35%), 0.4054(7.32%), 0.5409(7.63%), 0.5954(11.12%), 0.6218(10.75%), 0.8471(95.7%), 0.8842(64.9%), 1.07288(14.91%), 他多数
^{135}I	6.7 h	β^-	1.0, 1.4	0.2205(1.8%), 0.2886(3.1%), 0.5285(11.3%), 1.0388 (7.7%), 1.1316(22.1%), 1.2605(29.1%), 1.6785(9.9%), 1.7915(8.3%), 他多数
^{136}I	83 s	β^-	4.3, 7.0	0.3455(2.1%), 0.9762(3.9%), 1.3133(73%), 1.3213 (27%), 2.2897(12%), 2.414(7.3%), 2.635(7.3%), 2.871(4.4%), 他多数

表 2.4 1,000MWeの原子炉が1年間稼働した時のヨウ素の生成量

核種	生成量 (GBqまたはKg)
総量	3.0×10^{10}
^{131}I	2.6×10^8
^{129}I	44.4
^{127}I (安定ヨウ素)	9Kg

する摂取量や、甲状腺被曝線量の計算法およびその計算に用いるパラメータ等については、前述の『評価指針』に詳しく述べられている。しかし、 ^{129}I についてはこのような指針は設定されておらず、例えば、農作物経路からの ^{129}I 摂取量を計算する場合には、後述する U.S. NRC Regulatory Guide²⁾の計算式等を準用して評価を行っているのが現状である。計算法には上述の方法以外にもいくつかの方法があるが、いずれもRegulatory Guideの式が基本になっている。評価指針の計算式にしてもその例外ではない。Regulatory Guide では、大気中に放出されるすべての放射性核種を対象としており、したがって同 Guideには汎用性を考慮した計算式が与えられている。わが国の評価指針では、 ^{131}I だけを取り上げているので、農作物への直接沈着経路だけを取り、あとでやや詳しく触れるが、これに新たにいくつかのパラメータが付加された式となっている。

2. 2. 3. ^{131}I と ^{129}I の評価対象農作物と汚染経路の違い

^{131}I と ^{129}I の基本的な違いは、その物理的半減期にある。この半減期の違いにより、評価対象となる農作物の種類や考慮すべき汚染経路に違いが出てくる。この点に関しては次項でも触れるが、ここで簡単にまとめておく。評価対象農作物については、 ^{131}I の場合は、可食部の直接沈着表面積が大きく、しかも ^{131}I が減衰しないうちに食事に供されるような葉菜類が主な評価対象となるのに対し、この減衰が期待できない ^{129}I では、一応すべての農作物が評価の対象となる。

考慮すべき汚染経路については、 ^{131}I の土壌表層への蓄積は ^{129}I ほど考慮しなくてもよい。えす少なくとも畑水分状態では、ヨウ素は土壌固相に捕捉されて土壌溶液中にほとんど溶出してこない。農作物は、第一義的に土壌溶液中の元素を吸収するので、結局 ^{131}I については葉面への直接沈着経路だけを考慮すればよいことになる。ちなみに、水田状態では土壌固相中のヨウ素が土壌溶液中に溶出してくる。水田状態で栽培される農作物は水稻であるが、米は収穫後食事に供されるまでの期間が葉菜よりも長く、保存のきく食物なので、 ^{131}I については考慮しなくてもよい。これに反し ^{129}I の場合は、半減期が長いので土壌への蓄積を考慮する必要があるため、土壌からの経根吸収を無視する訳にはいかない。また、保存のきく米であっても、保存中の減衰を期待できないので水稻は重要な評価対象となる。

2. 2. 4. 放射性ヨウ素の被曝線量評価モデル

大気中にRI (^3H と ^{14}C を除く粒子状のRIとすべての放射性ヨウ素)が放出された場合、そのRIの農作物中における濃度 C_i ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) を算出する Regulatory Guideの計算式を次に示す。

$$C_i = d_i \cdot \left\{ \frac{r \cdot [1 - \exp(-\lambda_e \cdot t_e)]}{Y_v \cdot \lambda_e} + \frac{B_{iv} \cdot [1 - \exp(-\lambda_i \cdot t_b)]}{P \cdot \lambda_i} \right\} \cdot \exp(-\lambda_i \cdot t_h) \quad (2-1)$$

ここで、 d_i : 沈着率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$)

r : RIが農作物の表面に保持される割合 (—)

Y_v : 栽培密度 ($\text{kg}[\text{wet}] \cdot \text{m}^{-2}$)

B_{iv} : 移行係数 $\{(\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}[\text{wet plant}]) / (\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}[\text{dry soil}])\}$

P : 根圏域内の土壌の量 ($\text{kg}[\text{dry}] \cdot \text{m}^{-2}$)

λ_e : 農作物からのRIの有効除去係数 (h^{-1})

λ_i : 物理的壊変定数 (h^{-1})

t_e : 農作物の栽培期間(h)

t_b : RIの土壌への蓄積期間 (h)

t_h : 収穫から摂取までの期間 (h)

(2-1) 式の第1項は大気からの直接沈着に起因する濃度を、第2項は経根吸収に起因する濃度を示している。ここで、 d_i は沈着率(単位時間における単位面積当りのRIの沈着量: $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$)であり、大気中におけるRIの平均濃度 X ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)と沈着速度 V_g ($\text{m} \cdot \text{h}^{-1}$)の積で表わされる。また、 r は、RIが農作物の表面に保持される割合(interception coefficient, 無次元)であり、ガス状で放出されるヨウ素の場合は、 $r=1$ の値が用いられている。 Y_v は栽培密度($\text{kg}[\text{wet}] \cdot \text{m}^{-2}$)、 λ_e は有効除去係数(h^{-1})、つまり有効半減期の逆数に相当する値で、物理的壊変定数 λ_i と生物学的およびweathering(降雨による洗じょうや風による再浮遊など)による除去係数 λ_w の和として表わされる。また、 t_e は農作物栽培期間(h)、正しくは生育中の汚染を受ける期間に相当する。

第2項の λ_i は物理的壊変定数(h^{-1})であり、 P は農作物の根が張っている範囲、

いわゆる根圏域内の土壌の量 ($\text{kg} [\text{dry}] \cdot \text{m}^{-2}$) である。Regulatory Guideでは、表面積が 1 m^2 、深度 15 cm の土壌の量をとっている。tbはRIの土壌への蓄積期間 (h) であるが、施設の稼働期間を30年と仮定して Guide ではその $1/2$ に相当する期間 (15年) をとっている。Biv は移行係数 (Guide では、bioaccumulation factor と称しているが、本論文では、第3章で述べるように TF: Transfer Factorと呼ぶことにする。) である。Regulatory Guideでは、Bivの値として、ヨウ素の場合すべての農作物について0.02という値を用いている。これについては、後で詳しく検討する。2.2.3.で述べたように、 ^{131}I の場合は物理的半減期が短いので、第1項からの寄与だけを考慮し第2項は省略できる。また保存がきくような農作物は、保存期間中の減衰が期待できるので、収穫後短期間のうちに消費される葉菜が主な評価対象となる。しかし、 ^{129}I の場合は半減期が1,600 万年と長いので、経根吸収の寄与を無視することができないし、保存中の減衰も期待できない。したがって、米などはむしろ重要な評価対象となる。

^{129}I について(2-1) 式を適用する場合、第1項については λ_e 以外のパラメータはすべて ^{131}I と同じパラメータが使える。第2項の λ_i は非常に小さい値となるので、(2-2) 式のように簡略化することができる。前述したように、第1項の λ_e は λ_w にほぼ等しくなるので、

$$C_i = d_i \cdot \left\{ \frac{r}{Y_v \cdot \lambda_w} \cdot [1 - \exp(-\lambda_w \cdot t_e)] + \frac{Biv}{P} \cdot tb \right\} \quad (2-2)$$

と書くことができる。この簡略化された(2-2) 式において、変動の大きいパラメータは d_i を構成する沈着速度 V_d と、第1項に関しては λ_w 、第2項については移行係数 Biv の3つである。さらに付け加えるならば、(2-1) 式では考慮されていないが、わが国の評価指針では考慮している調理加工による除染係数と市場希釈係数がこれに加わる。

2. 2. 5. 被曝線量評価のためのパラメータ

本項では、2.2.4. に述べた評価モデルに用いられている各パラメータについて、 ^{129}I を対象とした場合の問題点を検討する。

(1) 沈着速度

沈着速度 V_d は様々な環境要因によって変動するが、その中でも大気中における

ヨウ素の化学形は大きな変動要因の一つである。 CH_3I の V_g は I_2 の1/100くらいになることはすでに報告されている^{30,31,48)}が、原子力施設から大気中に放出されたヨウ素の化学形については、まだ十分な知見が得られているとはいえない^{28,49)}。また、これまで良く研究されてきたのは、葉菜類や牧草への沈着速度であり、それら以外の農作物についてはデータは、ほとんどない。この ^{129}I の沈着速度に関しては、 ^{131}I と同じ値が利用できる。したがって、葉菜類や牧草については、データは十分あると思われる。しかし、前述したように、 ^{129}I の対象農作物としてすべての農作物が考えられるため、それら以外の農作物への沈着速度を求める必要がある。その中でも米（水稻）は、生育期間が葉菜類よりも長いこと、消費量が多いこと、さらに全国で栽培されていること、等の理由により最も重要な農作物と考えられる。欧米においては、重要な農作物ではないことから、大気から水稻への放射性ヨウ素の移行に関する研究はこれまで行われていない。我が国において、水稻への放射性ヨウ素の沈着速度を求める必要がある。

（2） 生物学のおよびweatheringによる除去係数

λ_w は、生物学のおよびweatheringによる除去係数である。 ^{131}I の場合は物理的壊変定数 λ_i がきいて、 λ_w が多少不正確であってもあまり影響はないが、 ^{129}I の場合は前述したように $\lambda_e \approx \lambda_w$ となるため、これが直接きいてくることになる。Guideでは、 λ_w の値として 0.0021 h^{-1} （14日の半減期に相当）が用いられている。この値は、主として牧草や葉菜類から得られたものであり、他の農作物について、この値が妥当であるかは、検討する必要がある。さらに、この係数は、風土・気象条件により異なることも考えられる。これらの点を考慮すると、我が国の風土、気象条件下で、水稻を用いてデータをとる必要がある。

（3） 調理加工による除染係数

評価指針⁴⁶⁾では、沈着速度(V_g)に関しては、大気中におけるヨウ素の化学形を I_2 と仮定して、 $1 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ という値を用いているが、除染係数に関しては、 I^- の化学形で葉面付着させた場合の除染実験結果をもとに0.5という値を採用している。住谷⁵⁰⁾は、葉菜にヨウ素が取り込まれるときの化学形や取り込まれる経路によって、調理加工したときのヨウ素の除染率が異なるという実験結果を報告している。すなわち、ガス状の I_2 及び CH_3I の化学形でハウレン草の葉面に沈着させて、その除染率を調べた結果、 I_2 で沈着させた場合は除染されにくいことを明らかにした。この事実は、調理による除染率を一律に適用する訳にはいかないことを示唆している。

この問題は、調理方法がいくつもあり、農作物の種類も多く、取り込まれる経路も考慮する必要があり、さらに、野外におけるRIの化学形を同定する必要もあるため複雑である。しかし、被曝線量評価上、重要なパラメータであるので、今後、評価対象となる主要ないくつかの化学形で葉面付着または経根吸収させた場合の除染係数のデータを蓄積してゆく必要がある。

(4) 農作物体内での転流 (translocation)

葉面沈着に関して ^{129}I についてもう一つ重要なことは、農作物体内での転流に関する問題である。これまで、 ^{131}I の大気から農作物への移行に関する研究は、葉菜類や牧草を用いて行われてきた。これらの農作物は、 ^{131}I が沈着する葉が可食部である。したがって、葉に沈着した放射性ヨウ素が、可食部である葉以外の部位にどれほど転流するかという研究は、ほとんど行われていない。しかし、水稻や果菜類などについては、その葉に沈着した ^{129}I がどれくらい可食部である部位に移動するか、その転流量あるいは転流率を定量的に把握することが要求される。このパラメータは、農作物の種類やその生育段階により、さらに、ヨウ素の化学形⁴⁸⁾により異なる。しかし、 ^{129}I の場合は、定常状態の大気放出による被曝線量評価が重要である点を考慮すると、個々の生育段階における転流率はそれほど問題ではなく、すべての生育期間を通じて、最終的に可食部へどれだけ転流するかを求めれば良いと思われる。

(5) 土壌から農作物への移行係数

地表面に沈着した ^{129}I は地表に蓄積する可能性があり、物理的半減期により根圏域中の濃度減少が期待できないため、移行係数は被曝線量評価上重要なものと考えられる。前述したように、このパラメータは、Regulatory Guideでは農作物と土壌の単位重量当りの放射能濃度の比として考えられ、ヨウ素についてはすべての作物に対して0.02という値が採用されている。しかし、このパラメータは第3章3節で詳述するように、環境要因によって大きく変動する。土壌側の変動要因については、ヨウ素と土壌の構成成分との間の吸着・脱離反応に影響を及ぼす要因が重要であり、ヨウ素の化学形、安定ヨウ素濃度の影響、pHおよび酸化還元状態(Eh)、土壌水分量等が考えられる⁵¹⁾。植物側の変動要因としては、化学形の影響、農作物の種類等が考えられる。このような要因の中で

- ① 土壌に吸着したヨウ素は土壌pHが中性や弱アルカリ性になると脱離しやすくなる⁵²⁾ こと、

- ② 土壌水分が飽和容水量の80% 以上になると、土壌中のヨウ素の液相への溶出率が増加^{52), 53)}する、

等のことを考慮すると、その栽培条件がヨウ素が吸収され易い条件であるハウレンソウと水稻に着目してデータを集める必要があろう。

2. 2. 6. おわりに

放射性ヨウ素に関する研究は古くから行われてきたが、研究の対象となってきたのは主に ^{131}I である。 ^{129}I については、最近になって注目されるようになった核種であり、被曝線量評価モデルも十分確立していないのが現状である。本節では、農作物経路からの ^{129}I の移行に関して、農作物中の ^{129}I 濃度を計算するためのモデル式として、US-NRC のRegulatory Guide の式を例にとり、そこに用いられているパラメータの主要なものについて検討した。 ^{129}I は長半減期核種であるため、 ^{131}I とは異なり、葉菜類や牧草以外の農作物（例えば水稻）をも評価対象とする。したがって、葉菜類や牧草以外の農作物、特に水稻への沈着速度を求めなければならない。また、将来の土壌への蓄積を考慮する必要がある、そのため経根吸収経路からの移行量算定のための移行係数を求める必要もある。さらに、水稻について、生物学적およびweatheringによる除去係数や転流に関するデータを、我が国の風土条件下で求めておく必要がある。

- 1) 小林宏信：放射性物質に植物による吸収，「環境放射能」（佐伯誠道編），ソフトサイエンス社，p189（1984）
- 2) US-NRC：NRC Regulatory Guide 1.109, Calculation of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR Part 50, Appendix I, Revision 1（1977）
- 3) 例えば、科学技術庁編：放射能調査研究成果論文抄録集，昭和34年（第1回）－昭和62年（第29回），（1959～1987）
- 4) 内田滋夫：環境中における放射性核種の分布と挙動－陸圏における挙動－，『環境放射線モニタリング』（原子力安全協会），p84-90（1987）
- 5) 内田滋夫：環境中における放射性核種の分布と挙動－陸圏・淡水圏における分布－，同上，p120-124（1987）
- 6) 小林宏信・駒村美佐子・津村昭人：“農業環境における人工放射性核種の挙動に関する解析的研究”，農業技術研究所報告 B，36，p115-170（1984）
- 7) 駒村美佐子・津村昭人・小平潔・小林宏信：“農作物及び農耕地土壌の放射能汚染について”，農業技術研究所報告 B，36，p19-55（1984）
- 8) Yamagata, N. et al.: "Total Ground Deposition of Strontium-90 in Japan(1)", J. Radiat. Res., 10, p62（1969）
- 9) 小林宏信：“土壌・作物体中の放射性物質の汚染とその動き”，「土壌汚染の機構と解析」（渋谷政夫 編），産業図書，p277～279（1979）
- 10) 小森正樹：“環境放射能の挙動に関する調査研究(Ⅳ)”，石川県衛生公害研究所年報，19，p212（1981）
- 11) 森澤眞輔：“通気層と帯水層における放射性核種の移動”，「環境放射能」（佐伯誠道編），ソフトサイエンス社，p152（1984）
- 12) 鎌田 博：“放射性物質の表土から淡水系への移動”，「環境放射能」（佐伯誠道編），ソフトサイエンス社，p182（1984）
- 13) Miyake, Y., et al.: "Content of Plutonium in River Water in Japan", Meteorology and Geophysics, Meteorological Research Institute, Tokyo, 24, p75（1973）

- 14) Watabe,T. and H.Kamada: "Airborne Radionuclides onto Pine Needles Collected in the Vicinity of the Nuclear Power Plant", J.Radiat. Res., 25, p140-149 (1984)
- 15) 加藤正平 他: "漏出した原子炉1次冷却水中放射性物質の砂状土壌による捕集", 日本原子力学会誌, 20, p42 (1978)
- 16) Muramatsu,Y., Ohmomo,Y. and Christoffers,D. : "Neutron Activation Analysis of Iodine-129 and Iodine-127 in Environmental Samples", J.Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, 83 /2, p353-361 (1984)
- 17) Muramatsu,Y. and Ohmomo,Y. : Iodine-129 and Iodine-127 in Environmental Samples Collected from Tokaimura/Ibaraki, Japan., The Sci. of the Total Environ., 48, p33-43 (1986)
- 18) 檜山義夫編: "放射線影響の研究", 東京大学出版会 (1971)
- 19) 川瀬金次郎 他: "環境と放射能——汚染の実態と問題点——", 東海大学出版会 (1971)
- 20) 小林宏信: "放射性物質の植物による吸収", 第6回放医研環境セミナー報文集, p136~153 (1979)
- 21) 大桃洋一郎: 放射性ヨウ素の環境から生物への移行(I), 大気から植物へ, 第7回放医研環境セミナー報文集, NIRS-M-35, p71-81 (1979)
- 22) 大桃洋一郎: 大気から植物への放射性物質の移行(吸着), "環境放射能" 「佐伯誠道編」, ソフトサイエンス社, p113-116 (1984)
- 23) Ichikawa,R., Eto,M. and Abe,M. : Science, 135, p1072 (1962)
- 24) 津村昭人・駒村美佐子・小林宏信: "土壌及び土壌—植物系における放射性ストロンチウムとセシウムの挙動に関する研究", 農業技術研究所報告 B, 36, p57-113 (1984)
- 25) 大桃洋一郎: 放射性物質の農作物への移行、放射線科学、29、p97-102 (1986)
- 26) Eggleton,A.E.J., Atkins,D.H. and Consins,L.B.: Chemical and physical nature of fallout ^{131}I and carrier-free ^{131}I released in air, Health Phys., 9, p1111 (1963).
- 27) Perkins,R.W.: Physical and chemical form of ^{131}I in fallout, Health Phys., 9, p1113-1122 (1963)

- 28) 成富満夫：第7回放医研環境セミナー報文集、p46-67 (1979)
- 29) 野口 宏，村田幹生：チェルノブイリ原子炉事故のフォールアウト(I)，大気中放射性ヨウ素の性状，日本保健物理学会第22回研究発表会要旨集，p53，(1987)
- 30) Nakamura,Y and Ohmomo,Y. : Factors used for the estimation of gaseous radioactive iodine intake through vegetation - I ; uptake of methyl iodide by spinach leaves., Health Phys., 38, p307-314 (1980)
- 31) Nakamura,Y and Ohmomo,Y. : Factors used for the estimation of gaseous radioactive iodine intake through vegetation - II , uptake of elemental iodine by spinach leaves, Health Phys., 38, p315-320 (1980)
- 32) 「環境被曝線量評価」 研究専門委員会編：「環境被曝線量評価」 p136-140, p179-186, 日本原子力学会 (1975)
- 33) 大桃洋一郎・内田滋夫・住谷みさ子：農作物経路からの ^{129}I 摂取による内部被曝線量評価上の問題点，日本原子力学会誌，27, p388-394 (1985)
- 34) 柳沢 啓：放射性核種の葉面吸収と転流，第13回放医研環境セミナー報文集、p14-22 (1987)
- 35) 三井進午・天正清：土肥誌、29, p71-76 (1958)
- 36) 伊東信伍・武長宏・三浦利之・諸岡信一：日作紀、28, p160-163 (1959)
- 37) 天正清・葉可霖・三井進午：土肥誌、30, p83-89 (1959)
- 38) 高城裕之・木村敏正・小林宏信・岩島 清・山県 登：水田土壌から米への安定ヨウ素の移行について，保健物理，20, p251-257 (1985)
- 39) 森嶋彌重 他：“土壌中のウランの野菜への移行に関する実験的研究”，Radioisotopes, 25, p773 (1976)
- 40) 岡島俊三・島崎達也・奥田生世：“長寿命放射性核種の放射生物学的挙動とその被曝線量評価に関する研究(Ⅲ)”，昭和58年度文部省科研費総合研究(A) (研究代表者：滝沢行雄) 研究成果報告書、No. 57380017, p5~14 (1984)
- 41) 鎌田 博：“陸上試料の調査——放射性ルビジウムに関する調査研究——”，第26回環境放射能調査研究成果論文抄録集，p11 (1984)
- 42) Dorp, F. van., et al. : Proc. IAEA Symp. on Biological

Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries,
Vienna, Vol.II, IAEA-SM-237/13, p399-406 (1979)

43) IAEA: Safety Series No. 57 (1982)

44) 大桃洋一郎・田中義一郎 編：「放射性物質の農作物への移行」、放医研環境
セミナーシリーズ No.13 (1987)

45) 村田寿典：第7回放医研 環境セミナー報文集, p4~18 (1979)

46) 原子力委員会：発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針,
(1976).

47) Brauer, F.P. and TENNY, H.: BNWL-SA-5287, (1978).

48) Nakamura, Y. and Ohmomo, Y.: Transfer of Gaseous Iodine to
Tradescantia, J. Radiat. Res., 25, p251~259 (1984)

49) 広瀬勝己・青山道夫・井上久幸・杉村行勇：筑波の大気中で観測されたチェル
ノブイリ原子力発電所由来の人工放射性核種；その物理・化学的性状, 第28
回環境放射能調査研究成果論文抄録集, p314-315 (1986)

50) 住谷みさ子：調理操作による食品中のヨウ素の除染効果について, 放医研環
境セミナー報文集No.12, NIRS-M-57, p141-144 (1986)

51) 内田滋夫・大桃洋一郎・鎌田 博・佐伯誠道：土壌から農作物への放射性核種
の移行に関する計算モデル, 日本原子力学会誌, 26, p935~941 (1984)

52) 結田康一：第7回放医研 環境セミナー報文集, p91~106 (1979)

53) Tensho, K. and Yeh, K.: Radioisotopes, 19, p26~31 (1970)

第3章 放射性核種の土壌から 農作物への移行に関する問題

3.1. 緒 論

欧米諸国の中には、内陸に原子力施設を持つ国が多く、それらの国では、河川からの冷却水の取水や極めて低レベルの放射性廃液の河川への放流を行っている。その河川水は浄水場で処理された後、飲料水として利用されるほか、灌漑水として利用されている。このような事情から、欧米諸国では、RIを含む河川水を散布することによる直接的な農作物の汚染やRIの土壌から農作物への移行に関する研究が古くから行われてきた。経根吸収により農作物へ移行するRIの量を算定するには、前述した移行係数をキーパラメータとする移行係数モデルが広く用いられてきている。（例えば、US-NRC Regulatory Guide には、この方法が採用されている。）

我が国でも、第2章で述べたように、1950年代半ばから1960年代にかけて、フォールアウト起源の ^{137}Cs や ^{90}Sr の水稻への移行に関する研究が行われたが、移行係数を選定するという観点からの研究報告は極めて少ない。

本章では、RIの土壌から農作物への移行について検討する。第2節では、これまでに報告されている計算モデルについて詳述する。第3節では、第2節で検討した計算モデルの中で、最も現実的である移行係数モデルに着目して、そのキー・パラメータである移行係数の種々の環境要因による変動について検討する。

3.2. 土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル

3.2.1. はじめに

農作物がRIにより汚染される経路は、直接経路と経根吸収経路の2つに大別され、前節では、直接経路について、 ^{131}I の葉菜類等への沈着速度に関する研究¹⁻⁴⁾や、フォールアウト ^{90}Sr と ^{137}Cs の農作物への直接汚染に関する調査⁵⁻⁷⁾等を概説した。しかし、後者の経根吸収経路に関する研究は、フォールアウト ^{90}Sr と ^{137}Cs の水稻、小麦への移行に関する調査⁸⁻¹⁰⁾はあるが、他のRIや農作物に関してはあまりない。

環境中に放出が予想される長半減期核種（例えば ^{129}I ）については、環境中での蓄積や生態系に及ぼす影響を、長期的な観点から研究する必要がある、経根吸収による農作物への移行量の算定も重要な研究課題の1つである。我が国においては、経根吸収経路に関する研究は少なく、被曝線量の予測に必要なパラメータは、これまで主として米国のものを使用している。

本節では、放射性ヨウ素に限定せず、土壌から農作物へのRIの移行量を求める計算モデルおよびそのモデルに使用されているパラメータに関する種々の研究を整理し、計算モデルやパラメータを選定する際の問題点について述べる。

3. 2. 2. 移行係数モデルについて

(1) 移行係数モデル

このモデルは次式で示されるように、海水中のRIの海産物への移行と同じ概念から導かれたものである。

$$C_{ve} = TF \cdot C_{soil} \quad (3-1)$$

ここで、 C_{ve} : 農作物（可食部）単位重量当りのRI量($\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}[\text{wet}]$)

C_{soil} : 土壌単位重量当りのRI量($\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}[\text{dry}]$)

TF: 移行係数 (Transfer factor)

最も簡単な式ではあるが、複雑な環境因子や植物の生理的因子を含む現象のモデル化では、ある程度現象を簡略化して捉える必要がある、また被曝線量評価の観点から扱いやすい式が望ましいことを考えると、実用上便利な式であるといえる。

(2) 移行係数の定義および単位について

このモデルではTF、すなわち移行係数の定義が問題となる。本論文においては、「移行係数」と呼んでいるが、英文では、以下のような名称が用いられている。

- (a) Transfer Factor
- (b) Concentration Factor
- (c) Concentration Coefficient
- (d) Concentration Ratio

(a)は、主として、ヨーロッパで用いられており、(b)以下は米国の研究者が用いている。本論文では、「移行係数」の英文として(a)を使用している。その理由は、

(b) の濃縮係数は海産生物でよく使われていて紛らわしいこと、そして、実際測定してみると、部位によっては1.0以下の数値がしばしば得られ、日本人の感覚で濃縮 (concentration) というイメージからかけはなれている場合が多いからである。したがって、特に断らない限り、(a) の Transfer Factor (TF) を (a) - (d) の総称として用いることにする。

移行係数は、次式で定義される。

$$\text{移行係数} = \frac{\text{農作物 (可食部) 中のRI濃度}}{\text{土壌中のRI濃度}} \quad (3-2)$$

ここで、(3-2) 式の分子のRI濃度は、播種から収穫までの期間に蓄積された総量であり、分母のそれは、その生育期間中の土壌中の平均RI濃度である。植物が土壌中に存在する種々の元素を吸収する現象は植物の生育期間を通じて一定ではなく、各生育段階により異なる¹¹⁻¹³⁾ことが知られているので、RIトレーサ実験等により得られた短期間における農作物への移行比、すなわち農作物中のRI濃度と培地 (土壌または水耕液等) 中のRI濃度の比は、移行率としてTFとは区別¹⁴⁾する必要がある。この点については、第5章2節で詳しく検討する。また、移行係数が求められるようになった初期の頃は、特に「可食部中の濃度」との比という定義はなかったが、近年では、被曝線量評価の立場から、明確に「可食部中の濃度」との比と定義されている。

移行係数の単位は、(3-2)式から解るように、

$$TF = \frac{Bq \cdot g^{-1} [\text{dry weight crop}]}{Bq \cdot g^{-1} [\text{dry weight soil}]} \quad (3-3)$$

または、

$$TF = \frac{Bq \cdot g^{-1} [\text{fresh weight crop}]}{Bq \cdot g^{-1} [\text{dry weight soil}]} \quad (3-4)$$

の2つがある。(3-3) と (3-4) の違いは分子のRI濃度を乾燥重当たりで表示するか、新鮮重当たりで表示するかの違いである。前述した名称と同様、主として(3-3) はヨーロッパの研究者により、(3-4) は米国の研究者により用いられている。農作物摂取による被曝線量評価の立場からは、もうひとつのパラメータである食品摂取量

が主に新鮮重で表されているため、新鮮重へ換算する手間が省けるだけ、(3-4)の方が便利であると思われる。いずれにしても、新鮮重と乾燥重との重量比を用いることにより、相互に変換が可能である。

(3) これまでに報告された移行係数

ここで、これまでに報告されている移行係数¹⁵⁻¹⁸⁾について、代表的なものを幾つか紹介し、移行係数に対する考えかたの変遷を考察する。

表 3.1 は、R.G.Menzel により1965年に報告されたもの¹⁵⁾である。これは、被曝線量評価の観点から、多くのデータを整理してまとめられた最も初期の移行係数である。この移行係数はかなりおおざっぱにまとめられており、元素ごとではなく、40個の元素を5つのグループに分け、各グループごとに2ケタの範囲で示されている。また、植物に関しても、あらゆる植物の地上部全体の平均濃度が用いられており、植物間差や植物の器官による違いなどが無視されている。移行係数の数値は、他の報告に比べてかなり大きく、実際の評価モデルに用いるには、現実的ではないと思われる。しかし、この論文の中で、すでに植物の各部位により移行量が異なること、および土壌中でのRIの易動性が移行係数に大きな影響を及ぼすという指摘があり、その後の研究の方向はすでにこの論文に示されていたといえる。

表 3.2 は、日本の評価モデルの基礎となっている US-NRC の Regulatory Guide から引用したもの¹⁶⁾である。表 3.1 の Menzelのものと比べると、

- ① 核種ごとに移行係数の値が定められていること、
- ② すべての農作物 (crops)の可食部の濃度を用いていること、
- ③ 安定元素定量法で求められたものであること、

の3点が大きな特徴である。しかし、作物間差は、無視されている。

表 3.3 は、IAEAの Safety series No.57 に示されている移行係数¹⁷⁾である。可食部ごとに1つの値が決められている点は、前述の Regulatory Guide と同様であるが、すべての農作物をひとまとめにしているのではなく、牧草 (forage plants) と食用作物 (food crops) の2つに分け、それぞれについて、移行係数 (B_{v1} および B_{v2}) を決定している点が異なっている。

このように、移行係数も他のパラメータと同様、より詳細な値を導入しようという方向になってきているが、これは、原子力発電所等からの放出RI量が低減化されてきたため、より正確な被曝線量を把握する必要があることも理由の一つである。正確な被曝線量を把握するためには、被曝線量評価モデルの精度を向上させるとと

表 3.1 移行係数 その1 (Menzel)

移 行 係 数*				
10-1000	1-100	0.1-10	0.01-1	<0.01
K	Mg	Ba	Cs	Sc
Rb	Ca	Ra	Be	Y
N	Sr	Si	Fe	Zr
P	B	F	Ru	Ta
S	Se	I		W
Cl	Te	Co		Ce
Br	Mn	Ni		Pm
Na	Zn	Cu		Pb
Li	Mo			Pu
				Sb

* $\frac{\text{植物中の元素濃度 (ppm) [dry]}}{\text{土壌中の元素濃度 (ppm) [dry]}}$

表 3.2 移行係数 その2 (US-NRC Regulatory Guide)

元素	移行係数*	元素	移行係数*	元素	移行係数*
H	4.8	Rb	1.3×10^{-1}	Te	1.3
C	5.5	Sr	1.7×10^{-2}	I	2.0×10^{-2}
Na	5.2×10^{-2}	Y	2.6×10^{-3}	Cs	1.0×10^{-2}
P	1.1	Zr	1.7×10^{-4}	Ba	5.0×10^{-3}
Cr	2.5×10^{-4}	Nb	9.4×10^{-3}	La	2.5×10^{-3}
Mn	2.9×10^{-2}	Mo	1.2×10^{-1}	Ce	2.5×10^{-3}
Fe	6.6×10^{-4}	Tc	2.5×10^{-1}	Pr	2.5×10^{-3}
Co	9.4×10^{-3}	Ru	5.0×10^{-2}	Nd	2.4×10^{-3}
Ni	1.9×10^{-2}	Ag	1.5×10^{-1}	W	1.8×10^{-2}
Cu	1.2×10^{-1}	Zn	4.0×10^{-1}	Np	2.5×10^{-3}

* $\frac{\text{農作物(可食部)中のRI濃度 (Bq/g·wet)}}{\text{土壌中 RI濃度 (Bq/g·dry)}}$

表 3.3-1 移行係数 その3-1 (IAEA Safety Series No.57)

元素	移行係数 (B_{v1})*	元素	移行係数 (B_{v1})*	元素	移行係数 (B_{v1})*
Na	2×10^{-1}	Tc	2×10^1	Pb	9×10^{-2}
P	3×10^0	Ru	9×10^{-2}	Bi	5×10^{-1}
S	2×10^0	Ag	1×10^0	Po	4×10^{-3}
Cr	3×10^{-3}	Sb	4×10^{-2}	Ra	2×10^{-1}
Mn	3×10^{-1}	Te	2×10^0	Ac	4×10^{-3}
Fe	3×10^{-3}	I	9×10^{-1}	Th	1×10^{-3}
Co	4×10^{-1}	Cs	1×10^{-1}	Pa	1×10^{-1}
Ni	4×10^{-2}	Ba	2×10^{-2}	U	1×10^{-2}
Zn	5×10^{-1}	La	4×10^{-2}	Np	1×10^{-1}
Sr	2×10^0	Ce	4×10^{-2}	Pu	1×10^{-3}
Y	1×10^{-2}	Pm	4×10^{-2}	Am	4×10^{-3}
Zr	2×10^{-2}	Sm	4×10^{-2}	Cm	4×10^{-3}
Nb	4×10^{-2}	Eu	4×10^{-2}		

* $\frac{\text{牧草中の RI 濃度 (Bq/g-dry)}}{\text{土壌中 RI 濃度 (Bq/g-dry)}}$

表 3.3-2 移行係数 その3-2 (IAEA Safety Series No.57)

元素	移行係数 (B_{v2})*	元素	移行係数 (B_{v2})*	元素	移行係数 (B_{v2})*
Na	5×10^{-2}	Tc	5×10^0	Pb	1×10^{-2}
P	1×10^0	R	8×10^{-3}	Bi	1×10^{-1}
S	6×10^{-1}	Ag	2×10^{-1}	Po	2×10^{-4}
Cr	8×10^{-4}	Sb	1×10^{-2}	Ra	4×10^{-2}
Mn	5×10^{-1}	Te	6×10^{-1}	Ac	1×10^{-3}
Fe	7×10^{-4}	I	2×10^{-2}	Th	5×10^{-4}
Co	3×10^{-2}	Cs	3×10^{-2}	Pa	4×10^{-2}
Ni	2×10^{-2}	Ba	5×10^{-3}	U	2×10^{-3}
Zn	4×10^{-1}	La	2×10^{-3}	Np	4×10^{-2}
Sr	3×10^{-1}	Ce	2×10^{-3}	Pu	5×10^{-4}
Y	2×10^{-3}	Pm	2×10^{-3}	Am	1×10^{-3}
Zr	5×10^{-3}	Sm	2×10^{-3}	Cm	1×10^{-3}
Nb	1×10^{-2}	Eu	2×10^{-3}		

* $\frac{\text{農作物 (可食部) 中の RI 濃度 (Bq/g-wet)}}{\text{土壌中 RI 濃度 (Bq/g-dry)}}$

もに、そのモデルに用いられている各パラメータの値を、十分精度の良いものにする必要がある。このため、近年、多くの研究者が、この移行係数の変動幅に関して報告している。また、1982年ヨーロッパにおいて「土壌から植物への放射性核種の移行係数の測定」に関するワークショップ¹⁹⁾が開催された。このワークショップは、原子燃料サイクル施設などから通常または事故時に放出が予想されるRIによる被曝線量評価を行う上で、経根吸収経路による寄与が無視できないこと、RIの土壌から農作物への移行のモデル化に際して十分なデータが蓄積されていないこと、さらに、実験条件の相異、実験条件記載の不備等により、報告されたTF値の相互比較ができない等の問題点を認識し合い、その解決を図ることを目的として開催されたものである。このワークショップの最大のポイントは、TFの相互比較ができるように、実験条件の設定や明記すべき実験条件等を整理したことである。RI使用に関する法的な規制の違いがあるため、必ずしも、ここに示された実験条件のすべてが我が国においても支持されるものではないと思われるが、参考とすべき事柄も多い。

日本においても、フォールアウトデータから水稻や小麦への ^{137}Cs と ^{90}Sr の移行量を求めている報告²⁰⁾がある。また、TFの値は安定元素の濃度測定により求める方法²¹⁾もある。土壌から農作物への元素の移行に関しては、重金属についてはかなり蓄積²²⁻²⁴⁾されているが、移行係数を求めるという観点からの研究は少ない。最近では、高城ら²⁵⁾が安定ヨウ素の分析を行い、土壌から米へのTF値として 10^{-4} ～ 10^{-3} の値を報告している。

これまで述べてきたように、移行係数TFを用いた(3-1)式は実用上有益な式ではあるが、種々のパラメータ、特に土壌パラメータを考慮していないため、農作物へのRIの移行量をあらゆる土壌について精度よく予測するには限界がある。一方、上述したパラメータをすべてモデル中に組み込むことも不可能であり、またモデルの適用の点からも有意義ではない。実際に適用可能と考えられる修正モデルは、比放射能および分配係数をキーパラメータにしたモデルである。前者は植物サイドからの、後者は土壌サイドからの(3-1)式の修正モデルである。以下、2つの修正モデルについて述べる。

3. 2. 3. 修正モデルについて

(1) 比放射能をキーパラメータとする修正モデル

植物は、土壤溶液中のRIだけではなく、土壤に吸着しているRIの一部も積極的に吸収するといわれている。したがって、土壤単位重量当りに存在する全RI量のうち植物が吸収可能なRI量、すなわち可給態フラクションに存在するRI量²⁶⁾(可給態RI量)を求めることができるならば、土壤の種類にかかわらず、より正確に植物へのRI移行量が計算できる。この計算モデルは次式で表わされる。

$$C_{ve} = (TF)' \cdot C'_{soil} \quad (3-5)$$

ここで、 $(TF)'$: (可給態)移行係数

C'_{soil} : 土壤単位重量当りの可給態RI量 ($Bq \cdot g^{-1} [dry]$)

(3-5) 式中の C'_{soil} 、すなわち土壤中の可給態RI量は、抽出液により抽出して求めるのであるが、抽出液の種類や抽出条件等がまだ十分確立されていないのが現状である。重金属の土壤汚染の研究から、一部の重金属Zn、銅 [Cu]、ヒ素 [As] 等は抽出液や抽出条件が詳細に規定されている^{27), 28)} が、われわれの目的とするRIに関しては、 ^{90}Sr 以外はほとんどデータは得られていない¹⁰⁾。この抽出液や抽出条件を決定する有力な手段として比放射能法²⁹⁾がある。これは、RIを添加した土壤で農作物を栽培したのち、種々の抽出液を用いたいくつかの抽出条件で抽出された土壤抽出液中の比放射能を求め、農作物(可食部)中の比放射能と比較して、一致または最も近い比放射能が得られた抽出液と抽出条件が、その農作物にとっての可給態抽出法であるとする方法である。これは次式で表わされる。

$$C_{ve}/S_{ve} = C'_{soil}/S'_{soil} \quad (3-6)$$

S_{ve} : 農作物(可食部)単位重量当りの安定同位元素量 ($mg \cdot g^{-1} [wet]$)

S'_{soil} : 土壤単位重量当りの可給態安定同位元素量 ($mg \cdot g^{-1} [dry]$)

この手法を用いれば、可給態抽出法を明確にするだけでなく、農作物へのRI移行量を $(TF)'$ を用いずに求めることができる。

$$C_{ve} = S_{ve} \cdot (C'_{soil}/S'_{soil}) \quad (3-7)$$

(3-7) 式中の (C'_{soil}/S'_{soil}) は前述したように、一定の抽出条件下で決ま

る可給態フラクシヨンの比放射能であり、それにSveを乗ずることにより、農作物（可食部）中のRI濃度が求められる。

この式は、土壌の種類によるRIの移行量の違いを、可給態量というパラメータで補正し、そのパラメータ決定に比放射能法を用いるというものであり、(3-1)式よりもRIの移行量予測の精度は向上する。しかしながら、(3-7)式を用いるためには、対象RIの安定同位元素が土壌および農作物中に測定可能な量で存在しなければならない。また、安定同位元素が十分存在するRIについても、同じ土壌で栽培した種々の植物中の各種重金属の組成は植物種により異なるため、可給態フラクシヨンは農作物の種類やRIの種類により異なる³⁰⁾と考えられる。したがって、現実はこのモデルを適用するには、まだ検討すべき要素が多い。特に、RIの土壌への添加後の存在形態の変化、すなわち Aging 効果とRIの土壌中での不均一分布の問題が(3-7)式の適用を考える上で重要である。

(2) 分配係数をキーパラメータとするモデル

このモデルはDorpら³¹⁾により提案されたモデルであり、次式で表わされる。

$$C_{ve} = F \cdot S \cdot (P_t / P_{ep}) \cdot TC \cdot C_t / \{ L \cdot (\theta + \rho \cdot K_d) \} \quad (3-8)$$

ここで、F：農作物中におけるRIの可食部への移行率〔転流率〕（－）

S：選択〔吸収〕係数（－）

P_t：年間単位地表面積当りの農作物総生産量（g・cm⁻²・y⁻¹）

P_{ep}：年間単位地表面積当りの農作物の可食部生産量（g・cm⁻²・y⁻¹）

TC：蒸散係数（農作物単位重量当りの蒸散量）（ml・g⁻¹）

C_t：土壌単位地表面積当りのRI量（Bq・cm⁻²）

L：土壌深さ（根圏域深さ）（cm）

θ：土壌水分量（ml・cm⁻³）

ρ：土壌密度（g・cm⁻³）

K_d：分配係数（ml・g⁻¹）

このモデルは、「植物は土壌溶液中に含まれているRIを土壌溶液とともに吸収する」という考えの下に構成されている。すなわち、土壌に吸着しているRIを土壌溶液への供給源とみなし、その反応式を次式で仮定している。

$$Q_{\text{soil}} = K_d \cdot C_{\text{solution}} \quad (3-9)$$

ここで、 Q_{soil} : 土壌(固相)中に存在するRI量($\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$)

C_{solution} : 土壌溶液(液相)中のRI量 ($\text{Bq} \cdot \text{ml}^{-1}$)

土壌溶液中のRIを農作物が吸収する場合、土壌溶液の吸収量、いわゆる蒸散量やRIと水との吸収能力比(選択性)が問題となるが、それらは(3-8)式中にTCおよびSとして導入されている。また、農作物全体の中での可食部へのRIの移行も式に含まれている。このように(3-8)式においては、各パラメータの物理的意味が明白であるため、環境条件が異なっても移行量の予測が可能である。パラメータの数が多いので適用には問題があるが、 P_l 、 P_{ep} 、TCは農学分野ではかなり研究されているパラメータであり、また θ や ρ の測定は比較的簡単である。したがって、さらに精度を高めるべきパラメータは、F、Sおよび K_d であろう。

Fに関しては、トレーサー実験によって得られたデータやフィールドでの安定同位元素の測定により、ある程度求められる^{12,18,32,33)}が、Sの値を求めることは難しい。図3.1は、水耕栽培による24時間吸収実験において、水耕液中のRIの濃度変化(C/C_0)を調べた結果である。

24時間後の C/C_0 値が1.0であれば、そのRIは水と同じように吸収される、すなわち $S=1.0$ である。 C/C_0 が1.0よりも大きい場合は、水よりも吸収されにくいため、見掛け上水耕液中に濃縮されたように見える核種であり、この場合、 $S < 1.0$ となる。逆に、 C/C_0 が1.0よりも小さい核種は水よりも吸収されやすい核種であり、 $S > 1.0$ となる。ただし、Sは播種から収穫までの長期間における選択性を表わす値であるので、生育時期によってSの値が変わる可能性がある場合は、短期間での実験からSの値を求めることには問題がある³⁴⁾。

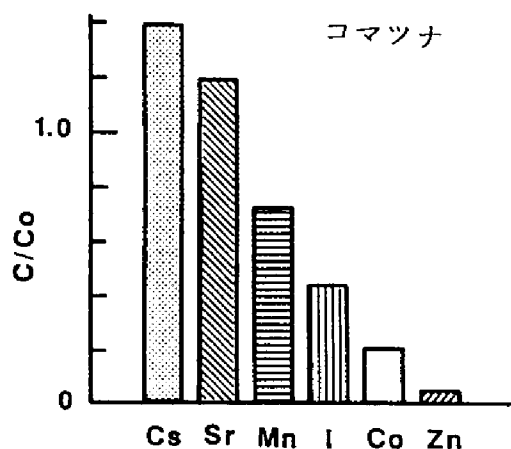


図 3.1 水耕液中のRI濃度変化
(24時間後)

また、(3-8)式では土壌に関するパラメータとして、 K_d が重要なキー・パラメータとなっているが、(3-9)式の吸着・脱離反応があらゆるRIで成立しうるかどうか検討する必要がある³⁵⁾。(3-9)式が近似式として用いられる場合でも、 K_d は測定条件(例えば、液相の共存元素濃度、固・液相比等)により異なると考えられる。 K_d を測定した報告はいくつかある³⁶⁻³⁹⁾が、すべて「土壌中におけるRIの移動」という観点から求められたものであり、「農作物へのRIの移行」という観点から、畑地および水田土壌について K_d を求めた例はない。福井⁴⁰⁾は、「土壌中におけるRIの移動」という観点から K_d の測定条件を明確に述べている。例えば、4日間静置後、溶液の採取に際し上澄液のろ過操作を省略するのは、溶液中に浮遊する微細な粒子に付着したRIは、地中環境においても土壌間隙を地下水とともに流動することが考えられるという理由による。土壌から農作物へのRIの移行という観点から、どのような測定条件下で K_d を求めればよいかを十分検討する必要がある。

このように、(3-8)式についてはいくつかの問題点を含んではいるが、前述したように、①各パラメータの物理的意味が明白であること、②農学分野において利用できるデータの蓄積があること、等により検討すべき価値は高いように思われる。ただし、 K_d に関しては、測定条件の設定から研究を進めてゆかなければならないが、 K_d を他の土壌化学的特性から類推する^{36), 41)}ことが可能であるならば、有効なモデルと考えられる。土壌化学的特性とは、例えばCEC、交換性カリウム、交換性カルシウム、交換性ナトリウム等である。これらの土壌化学的特性は測定条件が厳密に規定されており⁴²⁾、多くの土壌について調査が行われているので、このモデルへの適用に際しては豊富な情報が期待できる。

3. 2. 4. おわりに

土壌から農作物へのRI移行に関する計算モデルについて、3つのモデルの特徴や問題点等について述べてきた。この計算モデルで用いられる種々のパラメータに関しては、最初に述べたように、諸外国との環境条件の違い(気温、湿度、降水量、土壌等)、栽培方法の違い、および農作物の種類が日本は非常に多い等の理由により、諸外国のデータをそのまま適用するには問題があると考えられる。我が国においては、この分野におけるデータが少ないことを考慮すると、最も簡単であり、汎用性のある移行係数モデルを用いて被曝線量評価が行えるように、移行係数の整備をはかる必要がある。次節において、移行係数の変動要因について詳述する。そし

て、その変動要因の中で特に重要なものの一つである核種間差および作物間差について、第5章3節で検討を行う。

3.3. 移行係数（土壌－農作物）の変動要因について

3.3.1. はじめに

前節において、3つの計算モデルの内、移行係数をキー・パラメータとする計算モデル（移行係数モデル）は、土壌から農作物へのRI移行量を算定する最も基本的かつ実用的な計算モデル¹⁶⁾¹⁷⁾であり、我が国において、この移行係数モデルにより被曝線量評価を行うことができるように、移行係数を整備する必要があることを指摘した。しかし、移行係数は種々の環境要因によって変動する。例えば、土壌のpHなどはその大きな変動要因の一つである。欧米ではアルカリ性土壌、日本では酸性土壌が支配的である。したがって、欧米に豊富な移行係数のデータがあっても、それをそのまま日本にあてはめる訳にはいかない。

本節は、このような移行係数の変動について、これまでの研究報告から個々の環境要因の影響を検討した。

3.3.2. 移行係数の変動幅およびその変動要因

表3.4 は、これまでに報告されている移行係数の変動幅について、それぞれの核種ごとにまとめたもの⁴³⁾である。これは、報告された実験条件などを詳細に検討し、妥当でないと思われるような値を取り除いている。それでも、いくつかの核種の移行係数の変動幅は、3桁以上に及ぶ。

このように、移行係数を変動させる要因としては、次のようなもの³⁴⁾がある。

(1) 核種間差

核種

化学形（場合によっては、物理的存在形態）

(2) 土壌間差

土性（粒度分布、特に粘土含量）

土壌pH

共存元素の種類、濃度

表 3.4 移行係数の変動幅

原子番号	元素	移行係数*	報告値の範囲
11	Na	5.2×10^{-2}	$8.2 \times 10^{-4} - 2.6 \times 10^{-2}$
24	Cr	2.5×10^{-4}	$5.4 \times 10^{-3} - 2.2 \times 10^{-2}$
25	Mn	2.9×10^{-2}	$6.9 \times 10^{-3} - 3.4 \times 10^0$
26	Fe	6.6×10^{-4}	$2.4 \times 10^{-4} - 6.8 \times 10^{-4}$
27	Co	9.4×10^{-3}	$2.2 \times 10^{-3} - 2.0 \times 10^{-1}$
28	Ni	1.9×10^{-2}	$7.0 \times 10^{-3} - 1.5 \times 10^{-1}$
29	Cu	1.2×10^{-1}	$3.0 \times 10^{-3} - 8.2 \times 10^{-1}$
30	Zn	4.0×10^{-1}	$7.2 \times 10^{-3} - 1.6 \times 10^0$
38	Sr	1.7×10^{-2}	$1.6 \times 10^{-3} - 1.7 \times 10^0$
40	Zr	1.7×10^{-4}	$3.4 \times 10^{-5} - 1.8 \times 10^{-2}$
44	Ru	5.0×10^{-2}	$4.8 \times 10^{-5} - 1.4 \times 10^{-1}$
53	I	2.0×10^{-2}	$2.0 \times 10^{-4} - 1.2 \times 10^{-1}$
55	Cs	1.0×10^{-2}	$1.5 \times 10^{-5} - 5.9 \times 10^{-2}$
56	Ba	5.0×10^{-3}	$4.9 \times 10^{-5} - 3.7 \times 10^{-2}$
58	Ce	2.5×10^{-3}	$4.6 \times 10^{-6} - 1.8 \times 10^{-2}$
93	Np	2.5×10^{-3}	$2.8 \times 10^{-2} - 1.3 \times 10^{-1}$

* US-NRC Regulatory Guide の値

酸化還元電位 (Eh)

粘土鉱物の種類

土壌有機物含量

水分含量

CEC、置換性 K 量、置換性 Ca 量等

土壌密度

(3) 作物間差とそれぞれの栽培条件

作物種

気象条件

施肥条件

水管理

(4) その他 (実験条件等)

トレーサの起源

[フォールアウト核種、添加 RI、安定元素等]

aging効果

添加RIの混合方法

実験規模（表面積、深度）

[フィールド、ライシメータ、ポット]

サンプリング条件（特に根菜類）

[洗浄の有無]

土壤中RI濃度の測定方法（平均値の求めかた）

これらの要因が、単独で表れることはほとんどなく、現実には幾つかの要因が複雑に絡み合って、移行係数を変動させている。したがって、多くのデータを統計的に処理して、個々の要因の影響の大きさを研究しているのが実情である。

3. 3. 3. 個々の変動要因の影響

(1) 核種間差、特に化学形

表3.5 は、牧草 (perennial ryegrass)によるヨウ素の吸収について、 I^- と IO_3^- との違いを検討したもの⁽⁴⁾ である。これは、化学形を調整したヨウ素を含む水耕液に牧草を移植し、3週間後に各部位中のヨウ素濃度を測定したものである。水耕液中のヨウ素濃度および牧草の部位により多少程度は異なるが、すべて I^- の化学形

表 3.5 ヨウ素の牧草への移行に及ぼす化学形
および濃度の影響

水耕液中ヨウ素濃度 (M)	I^-		IO_3^-	
	(i) 1.0×10^{-7}	(ii) 1.0×10^{-8}	(iii) 1.0×10^{-7}	(iv) 1.0×10^{-8}
吸収量 (μg of I/culture vessel)				
地 上 部	11.5	237.4	2.1	11.9
根	38.9	144.6	4.6	20.4
全 植 物	43.4	382.0	6.7	32.3
ヨウ素濃度 (parts/million in d.m.)				
地 上 部	3.74	90.5	0.60	2.82
根	41.7	224.3	5.93	21.8
地上部/根の比	0.090	0.405	0.101	0.130

の方が牧草に吸収されやすい (10^{-7} Mでは6-7 倍、 10^{-6} Mでは10倍以上)。図3.2 は、同様に、ヨウ素の植物の吸収における化学形の影響をコマツナを用いて検討したもの¹¹⁾である。この実験も水耕栽培であるが、1日間の吸収実験により、地上部と根について生育段階による違いを検討している。図3.2 から、どの実験条件でも I^- の方が IO_3^- よりも吸収されやすいことが分かる。その程度は、生育段階により異なるが、地上部では2-7倍、根では1-20倍となっている。(図3.2 は、 IO_3^- は生育段階によらず、ほぼ一定の吸収を示すが、 I^- では生育段階により、大きく異なることをも示している。しかし、前節で述べたように、移行係数は、播種から収穫までに農作物可食部に蓄積したRI量と土壤中のRI濃度の比として定義されるので、生育段階での吸収量の違いはあまり問題とならない。)

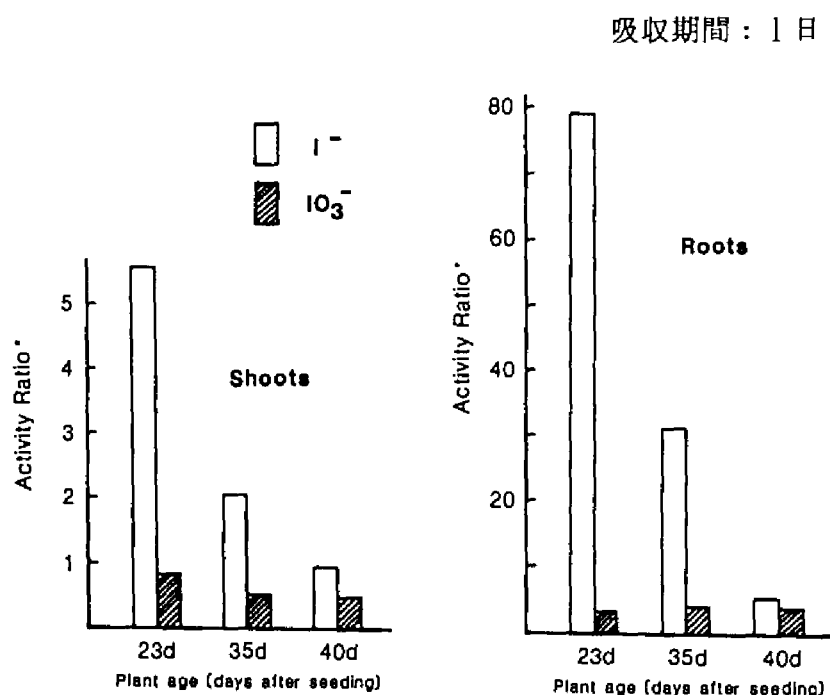


図 3.2 ヨウ素のコマツナへの移行に及ぼす
化学形および生育段階の影響（水耕実験）

*Activity Ratio : 植物中のRI濃度と水耕液中のRI濃度との比
(5-2)式参照

(2) 土壌間差

(a) 土性 (soil texture)

表3.6 は、これまでに報告された種々の農作物への移行係数について、coarse、medium および fineの3種類の土性別にまとめ、土性の違いによる移行係数の違いを、SrおよびCsについてみたもの⁴⁵⁾である。Srでは4桁、Csでは3桁程度の差がある。また、Csでは、土性による差はそれほど認められないが、Srでは土壌粒子が粗くなるに従い、移行係数が大きくなる傾向がある。表3.6 には、広く利用されている Regulatory Guide⁴⁶⁾ の移行係数値も同時に示されている。Srの場合、この値が、土性によっては必ずしも安全側の数値ではないことが指摘されている点は重要である。

(b) 土壌pH

図3.3 は、フォールアウト¹³⁷Cs を用いた移行係数と土壌pHとの相関を検討したもの⁴⁶⁾である。W.Kühnらは、森林開墾地と牧草地の2つの生態系について、フォールアウト¹³⁷Cs の測定から移行係数を求めた。そして、移行係数に及ぼす種々の土壌パラメータ、即ち、土壌pH、置換性K、総K含量および粘土含量等と移行係数との相関を求め、移行係数に及ぼす各土壌パラメータの影響を検討した。フォールアウト核種を利用し、作物種も限定するといったような、限られた条件下でも移行係数がかかなり変動することを報告している。最も高い相関を示したものが土壌pHであり、 $r=0.81$ である。図3.3 から明らかなように、土壌pHが低くなると移行係数は逆に大きくなる。日本では、酸性土壌の占める割合が多く、土壌pHは低いことから、pHが6や7前後で得られた移行係数よりも実際の移行係数は大きくなることが予想される。

IUR (International Union of Radioecologists) のワーキング・グループ⁴⁹⁾は、多くのレポートから、実験条件等が明記されていて、相互に比較できるものだけをピックアップした。A.Keenら⁴⁷⁾は、これを統計的に解析し、ポテトと牧草に対する移行係数のpH依存性を検討した。図3.4 は ¹³⁷Cs の、図3.5 は ⁹⁰Srの結果を示したものである。これには、フォールアウト核種測定による実験結果だけでなく、RI添加による実験結果も含まれている。図中の数字は、同じ位置に2個以上のデータがあることを表している。どちらの核種も、土壌pHが低いほど移行係数は大きくなる傾向がある。

表 3.6 土性による移行係数の違い

土 性	移 行 係 数*	
	Sr	Cs
Coarse	0.02-1.7	9.5×10^{-4} -0.031
Medium	1.6×10^{-3} -0.43	5×10^{-5} - 2.6×10^{-3}
Fine	7.8×10^{-3} -0.38	9×10^{-4} -0.013
移行係数(B_{iv})**	0.017	0.01

* $\frac{\text{農作物中の RI 濃度 (Bq/g·wet)}}{\text{土壌中 RI 濃度 (Bq/g·dry)}}$

** US-NRC Regulatory Guide の値

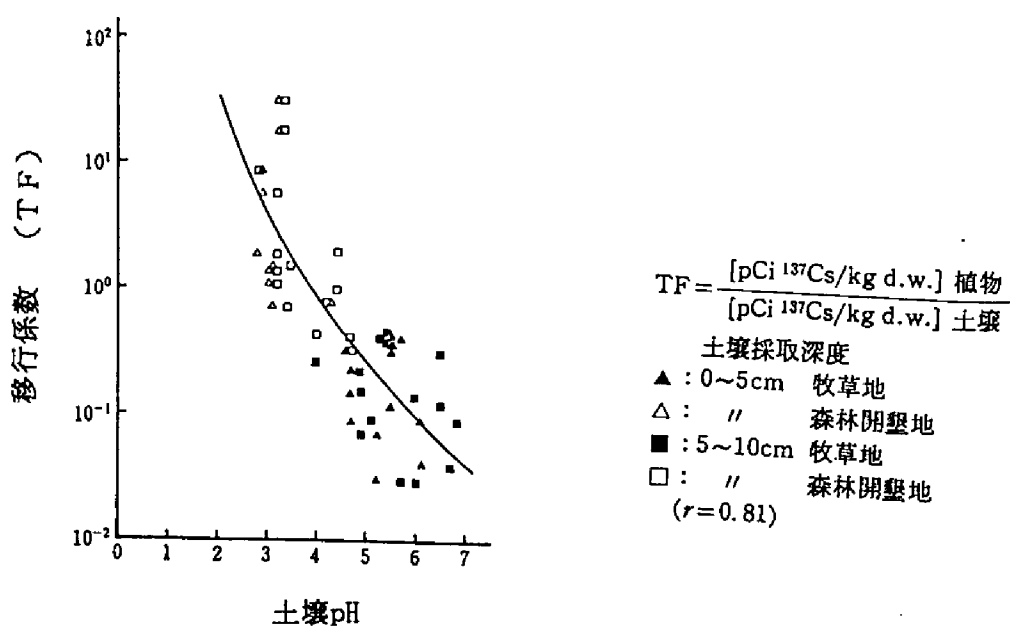


図 3.3 土壌pHと移行係数との相関 (フォールアウト ^{137}Cs)

(c) 共存元素の影響

図3.6 は、W.Kühnら⁴⁶⁾ によるフォールアウト¹³⁷Csの移行係数と土壤中の総K含量との相関を検討したものである。彼らは、前述したように、移行係数と種々の土壤パラメータとの相関を検討しているが、pHの次に高い相関が得られたパラメータが総K含量($r=0.68$)である。交換性K量との相関も求めているが、これは、 $r=0.50$ で総K含量の相関よりもやや低い。一般的に、植物の経根吸収に関して、土壤中に存在する元素の総量よりも、可給態量（または、交換態量）の方が高い相関が得られると考えられるが、それとは反対の結果が得られている。この点に関しては、可給態の抽出剤や抽出方法等にも問題があり、今後、さらに究明する必要がある。また、図3.3 および図3.6 から明らかなように、森林開墾地と牧草地の2つの生態系の間で、データが分かれており、このような2つのグループに分かれているデータを用いて、相関を求めることには問題があると思われる。

しかし、後述するように、トレーサ実験で問題となるRIの添加法や aging、実験規模等の条件の違いによる影響を排除するため、フォールアウト核種に着目し、データ解析を行った意義は大きい。我が国でも、フォールアウトに関する調査・研究は、水稻や小麦について行われている^{5, 48, 49)} が、移行係数の観点から検討されているものではない。

図3.7 および図3.8 は、水稻の⁹⁰Srおよび¹³⁷Cs吸収に及ぼす共存元素の影響を水耕実験により調べたもの⁵⁰⁾ である。これらは、27時間または29時間の短期間での吸収実験であり、移行係数を求たものではない。⁹⁰Srの場合は、MgCl₂ 以外の塩類は、種類により程度は異なるが、0.063-0.25 meq/ 500ml の濃度範囲ではほぼ一定の吸収抑制効果を示す。一方、¹³⁷Csの場合は、水稻の部位によらず、3元素 (NH₄⁺、K⁺お

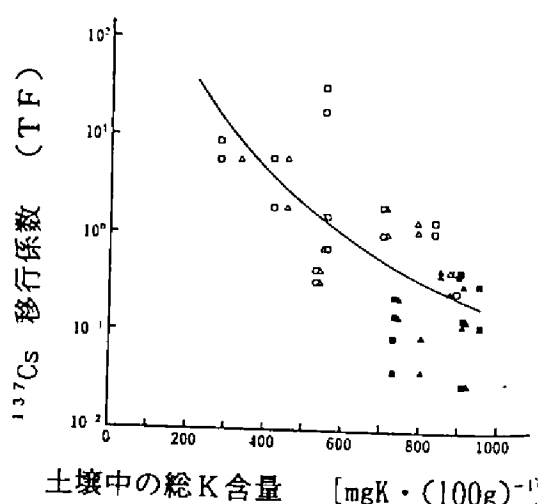


図 3.6 土壤中の総K含量と¹³⁷Cs 移行係数との相関

$$TF = \frac{[\text{pCi } ^{137}\text{Cs/kg d.w.}] \text{ 植物}}{[\text{pCi } ^{137}\text{Cs/kg d.w.}] \text{ 土壤}}$$

土壤採取深度

▲ : 0~5cm 牧草地
 △ : " 森林開墾地
 ■ : 5~10cm 牧草地
 □ : " 森林開墾地
 ($r=0.68$)

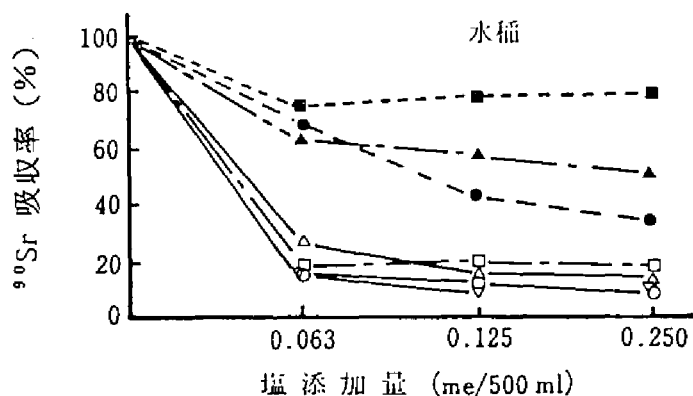


図 3.7 水稻の ^{90}Sr 吸収に及ぼす
各種塩添加の影響 (水稻全体)

■ : NaCl , ▲ : KCl , ● : MgCl_2 , □ : NH_4Cl ,
△ : CaCl_2 , ▽ : SrCl_2 , ○ : BaCl_2

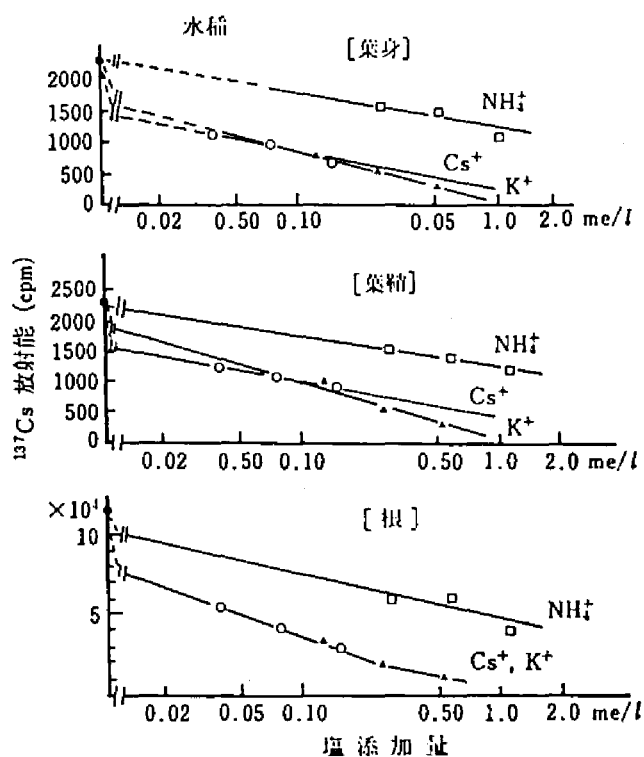


図 3.8 水稻の ^{137}Cs 吸収に及ぼす
各種塩添加の影響

よび Cs^+) とも、ほぼ直線的に吸収量が減少している。これらの図から、 ^{90}Sr の場合は、 NH_4^+ 、 Ca^{2+} 、および Sr^{2+} が、 ^{137}Cs の場合は、 Cs^+ および K^+ の共存が移行係数に大きな影響を与えることが分かる。

(3) 作物間差

A. Keenra⁴⁷⁾ は、前述したように移行係数に及ぼす土壌 pH の影響を検討するとともに、作物間差（牧草とポテト）についても検討した（図3.4 および図3.5 参照）。その結果、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr どちらの核種についても、ポテトより牧草の方が移行係数が高いことが分かった。

短期間の水耕栽培により、作物間差を検討した報告⁵¹⁾ もある。これらは、厳密には移行係数とは異なるが、作物間差の影響をある程度は推察できる。この作物間差については、第5章3節において放射性ヨウ素だけではなく、Sr や Cs 等も含めて検討する。

(4) その他の土壌パラメータ

(a) 土壌 pH-可給態量

土壌中に存在する元素を植物が吸収する際、その元素の全量ではなく、可給態量との相関が高い⁵²⁾ と言われている。しかし、土壌中の元素の可給態量は、土壌 pH の変化により異なる⁵³⁾。例えば、鉄 [Fe]、マンガン [Mn]、Zn、Cu などの金属元素は、酸性側で可溶性となり、アルカリ側になると次第に不可給態になってゆく。一方、モリブデン [Mo] は、pH が 6.0 以下では不可給態になってゆく。このように、元素の種類により、土壌中での可給態に及ぼす pH の影響が異なるため、特に重要と考えられる RI については、バッチ実験等により、土壌中での存在状態、すなわち、可給態や不可給態の割合の基礎的データを蓄積してゆく必要がある。また、植物サイドからみた場合、あらゆる植物について、同一の抽出方法で可給態を定義できるかどうかは問題がある。本間ら⁵⁴⁾ は、土壌に添加した ^{65}Zn を種々の抽出液により抽出して、その違いを検討している。

(b) 酸化還元電位

図3.9 は、土壌に添加した元素の溶出率について、土壌の酸化還元電位との関係を検討したもの⁵⁵⁾ である。Zn や カドミウム [Cd] 等は畑状態（酸化的）から湛水状態（還元的）へと酸化還元電位が低下するにしたがって、土壌溶液中の濃度は徐々に低下する。これに対して、Mn は還元状態になるにしたがい、土壌溶液中の濃度が高くなる。一般的に、金属元素は湛水状態では、不溶性となり、植物の吸収量は

低下する傾向があるが、Mnやヨウ素のように、湛水状態で逆に土壤中に溶出してくるもの⁵⁶⁾もある。我が国では、米の摂取量が多く、それによる被曝線量は無視できないため、酸化還元状態の変化による米へのRI移行量の変化を十分検討する必要がある。また、水稻の栽培では、常に湛水状態を維持するのではなく、収穫までに、1-2回ほど、落水するため、落水による酸化還元電位の変化が、RIの米への移行にどのような影響を及ぼすのかは、不明である。

(c) 実験規模

A. Keenら⁴⁷⁾は、実験規模の影響についても検討している(図3.4 および図3.5 参照)。その結果、 ^{137}Cs ではポットの方が、 ^{90}Sr ではライシメータの方が移行係数が高くなる傾向があることを報告している。しかし、この原因については、 ^{137}Cs と ^{90}Sr で使用した土壌が異なること、および ^{90}Sr の実験において、変動幅が大きいこと等の理由により、さらに究明する必要があると述べている。

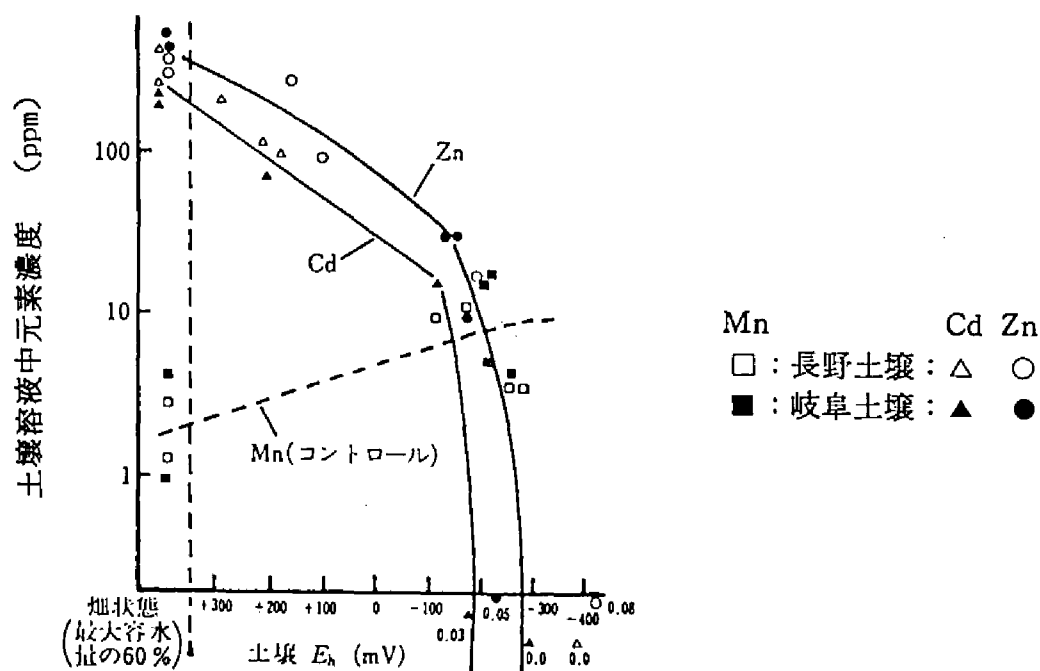


図 3.9 添加元素の酸化還元電位 (Eh) 変化
による土壌溶液への溶出

(d) トレーサの起源

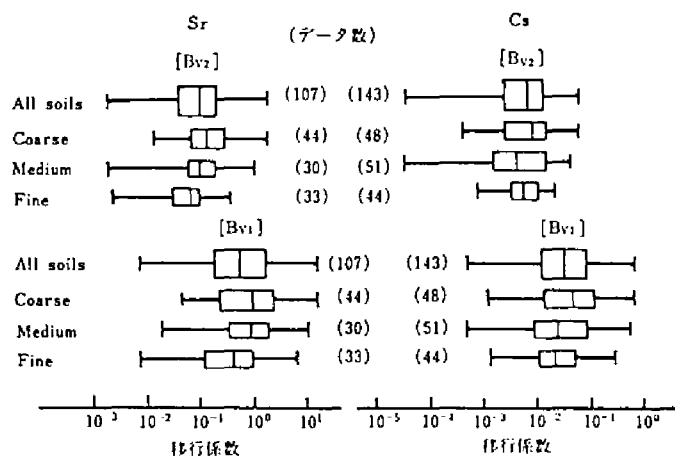
移行係数を求める場合、RI添加実験により求める方法、フォールアウト核種または安定元素ないしは、天然のRIを利用する方法等がある。どのトレーサを用いたかにより、移行係数が異なる。文献によっては、どのトレーサを用いたかを明記していないものがあり、相互比較が出来ない。RI添加法については、添加してからの期間により移行係数が異なることが報告⁵⁷⁾ されている。前述したように、我が国では移行係数のデータが少ないので、RIトレーサ実験に加えて、フォールアウト核種や安定元素を利用して、RIの移行係数を求めてゆく必要がある。したがって、これらのトレーサの間にどのような違いがあるのかを明らかにする研究も重要である。

3. 3. 6. 移行係数の変動幅に関する定量的研究について

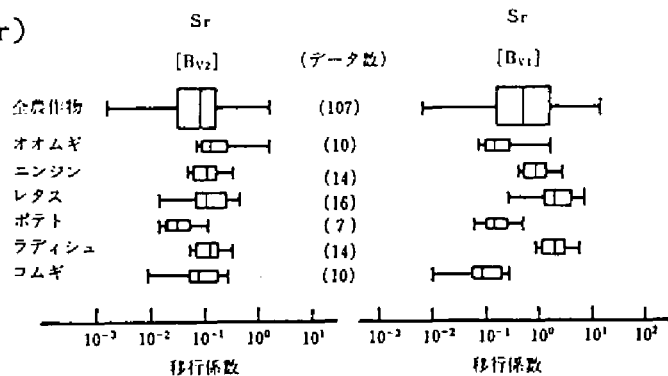
Y.C.Ngら⁵⁸⁾ は、報告されている多くの移行係数について、変動要因ごとに整理しどの程度、移行係数の変動幅を小さくすることができるかを検討した。その結果を図 3.10 に示す。図 3.10-1 は、土性の違い、図 3.10-2 および図 3.10-3 は、作物種の違い、そして、図 3.10-4 は、実験規模の違いにより移行係数の変動幅がどの程度小さくなるかを検討したものである。図 3.10-1 から、土性の違いを考慮しなければ、移行係数は、SrおよびCsのどちらも3-4 桁の変動幅があるが、土性別に整理することによりその変動幅を1-2 桁小さくすることが可能であることを示している。また、図 3.10-2 および図 3.10-3 から明らかなように、すべての農作物を対象とすると、移行係数はSrもCsも3-4 桁の変動幅があるが、作物種ごとに移行係数を求めると、それぞれの作物種について、移行係数の変動幅は2桁以内となる。我が国では、欧米に比べて、摂取する農作物の種類が非常に多く⁵⁹⁾、作物間差を無視して移行係数を求めると、その変動幅は、欧米よりも大きくなると思われる。少なくとも、作物種ごとに移行係数を整理することにより、その変動幅をかなり小さくすることができるであろう。また、地域により摂取する農作物の種類が異なるため、実態調査を通じて、対象地域における主要な農作物を限定すること⁶⁰⁾ も評価の精度を高める観点から必要と考えられる。

図 3.10-4 は、室内ポット実験により得られた移行係数とフィールドでの値とを比較したものである。フィールドにおける移行係数は、3-4 桁の変動があるが、ポット実験では、2-3 桁である。ポット実験で求めた移行係数の方が、フィールドで得

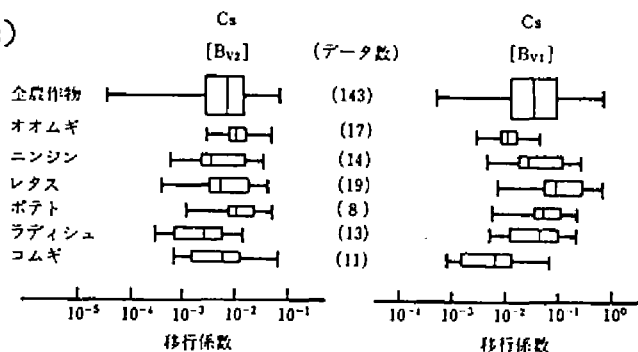
(1): 土性



(2): 作物間差(Sr)



(3): 作物間差(Cs)



(4): 実験規模

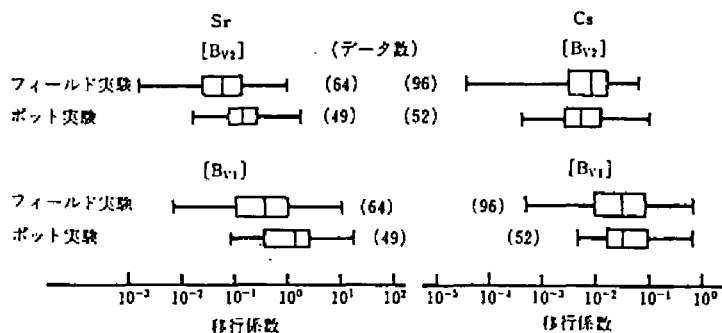


図 3.10-1 ~ 3.10-4 移行係数におよぼす個々の変動要因

られたそれらよりも、高い傾向がある。その理由は、ポット内の根の密度が、フィールドでの密度よりも大きくなるためと考えられる。したがって、変動幅が小さいからといって、必ずしもポット実験が良いとは言えない。

表3.7 は、Csの牧草への移行係数について、実験条件を検討することにより、移行係数の最大値及び変動幅がかなり小さくなることを示したものの⁽⁷⁾である。すべてのデータを採用した場合、移行係数の最大値は 315であるが、連続的な汚染水の灌漑を行った実験を除外することにより約1桁、pHが4.5 以下の実験および土壤中にRIを注入した実験を除外することにより、さらに1桁小さくなる。また、RI添加後30日以内に実験を行ったものを取り除くと、さらにその 1/2まで最大値が下がる。その結果、この表は最大値と最小値との比が、20万から1000にまで小さくすることが可能であることを示している。

評価モデルにより、被曝線量を精度良く算定しようとする場合、評価モデルそのものの精度を上げるとともに、前述したように、移行係数やその他、そのモデルに使用しているパラメータの変動幅をおさえ、その分散を少なくする必要がある。特に、現実的ではない実験条件下で求められた高い値を排除することにより、現実的な被曝線量を求めることができるので、この種の研究は重要である。IUR⁽⁹⁾は、このような実験条件の違いから生じる移行係数の変動を極力抑さえ、合理的なデータが得られるよう、汚染土壌の調整法やポット実験におけるポットサイズ等、推薦できる実験方法を明確にしている。屋外のRIトレーサ実験が困難であり、屋内のポット実験データを欧米よりも利用せざるを得ない我が国では、このような情報を基礎

表 3.7 実験条件によるCsの牧草への移行係数の違い

データの範囲	移行係数の範囲	最高値/最小値
全 デ ー タ	0.0014-315	220,000
汚染水/ガイボの連続供給実験のデータを除外	0.0014- 31	22,000
土壌 pH が 4.5 以下のデータを除外	0.0014- 3.3	2,400
土壌に汚染水を直接注入したデータを除外	0.0014- 3.12	2,200
土壌に RI を混合後30日以内に実験を開始したデータを除外	0.0014- 1.53	1,000

として、なるべく統一した実験条件下で移行係数を求めることが必要である。

3. 3. 7. おわりに

土壌から農作物へのRI移行量を算定するための重要なパラメータである移行係数の変動について述べ、変動の原因となる個々の要因およびその影響について、検討した。

我が国では、評価モデル並びにそのモデルに使用しているパラメータの値は、これまで外国、主として米国のものを採用してきた。しかしながら、土壌から農作物へのRI移行に関するパラメータについては、前述したように我が国の作物種、土壌および気候などが外国と異なるため、外国のデータをそのまま使用するわけにはいかない。我が国において、まず移行係数を整備することが重要である。

- 1) 大桃洋一郎：第7回放医研環境セミナー報文集、p71～81 (1979)
- 2) Nakamura,Y. and Ohmomo,Y.: Factors used for the estimation of gaseous radioactive iodine intake through vegetation-I; uptake of ethyliodide by spinach leaves, Health Phys., 38, p307-314 (1980)
- 3) Nakamura,Y. and Ohmomo,Y.: Factors used for the estimation of gaseous radioactive iodine intake through vegetation-II; uptake of elemental iodine by spinach leaves, Health Phys., 38, p315-320 (1980)
- 4) Nakamura,Y. and Ohmomo,Y.: Transfer of gaseous iodine to Tradescantia, J. Radiat. Res., 25, p251-259 (1984)
- 5) 川瀬金次郎,他：“環境と放射能－汚染の実態と問題点”, 東海大出版会, p193-205 (1971)
- 6) 佐伯誠道編：“環境放射能－挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価”, ソフトサイエンス社, p29-30, p110-116 (1984)
- 7) 津村昭人,他：放射能汚染の解析的研究(その13), 環境放射能調査研究成果論文抄録集, No.25, p25-28 (1983)
- 8) 千葉盛人・大里宏二・河合堯昭： ^{90}Sr の地表蓄積量と水稻への移行について、第13回放射能調査研究成果発表会論文抄録集, p96-100 (1971)
- 9) 文献(5), p.205-215; p.224-231.
- 10) 文献(6), p.189-199.
- 11) Muramatsu,Y., Christoffers,D. and Ohmomo,Y.: Influence of chemical forms on iodine uptake by plant, J. Radiat. Res., 24, p326-338 (1983)
- 12) 柳沢 啓,他：放射線影響学会第26回大会口頭発表 (1983)
- 13) 茅野充男：土壤肥料誌, 44, p204-210 (1973)
- 14) 大桃洋一郎：放射性廃棄物フォーラム'84予稿集, p62 (1984)
- 15) R.G.Menzel: Soil-plant relationships of radioactive elements, Health Physics, 11, p1325-1332 (1965)

- 16) US-NRC: Regulatory guide 1.109, Calculation of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR Part 50, Appendix I, Revision 1 (1977)
- 17) IAEA: Safety series No.57, Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases, p61-65 (1982)
- 18) Stoutjesdijk, J.F., et al.: Proc. CEC Semin. on the Transfer of Radioactive Materials in the Terrestrial Environment Subsequent to an Accidental Release to Atmosphere, Dublin, Vol.I, p329-351 (1983)
- 19) International Union of Radioecologists (IUR): Report on a workshop on the measurement of soil to plant transfer factors for radionuclides, Part I, Association EURATOM-ITAL, Wageningen (1982)
- 20) 文献(6), p193-197.
- 21) 日本化学会編: “放射性物質”, 環境汚染物質シリーズ, 丸善, p116 (1976)
- 22) Yuita, K., et al.: Soil Sci. Plant Nutr., 28, p315-336; p499-515 (1982)
- 23) 渋谷政夫, 他: “環境汚染と農業”, 博友社, p145 (1975)
- 24) 飯村康二: 土壌の物理性, 31号, p2-8 (1975)
- 25) 高城裕之, 他: 保健物理学会第19回研究発表会, (1984).
- 26) 文献(6), p174-176.
- 27) 文献(23), p149-157.
- 28) 渋谷政夫編: “土壌汚染の機構と解析”, 産業図書, p229 (1979)
- 29) 同上, p231.
- 30) 同上, p230-231.
- 31) Dorp, F. van., et al.: Proc. IAEA Symp. on Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries, Vienna, Vol.II, IAEA-SM-237/13, p399-406 (1979)
- 32) 津村昭人, 他: 放射能汚染の解析研究(その5), 文献(7), No.17, p32-35

(1975)

- 33) 小林宏信,他: 放射能汚染機構の解析研究(その2~4), 文献(7),No.14, p117-121 (1972); No.15, p36-44 (1973); No.16, p33-37 (1974)
- 34) 内田滋夫,他: 日本原子力学会誌, 26, p935-941 (1984)
- 35) 福井正美・桂山幸典: 土木学会論文報告集,第254号, p37-48 (1976)
- 36) 井上頼輝, 森澤眞輔: 日本原子力学会誌, 18(8), p524-534 (1976)
- 37) 鎌田 博: 同上, 19(5), p275-283 (1977)
- 38) 森山裕丈, 他: 原子力学会昭58分科会予稿集, K51, (1983)
- 39) 馬原保典: 同上, K52.
- 40) 文献(6), p146~147.
- 41) 西牧研壮: 京都大学学位論文, p25-71 (1977)
- 42) 例えば, 土壤養分測定法委員会編: “土壤養分分析法”, 養賢堂 (1970)
- 43) Ng,Y.C. and Thompson, S.E.: Soil-to-plant concentration factors for radiological assessments, NUREG/CR-2975, p93-101 (1982)
- 44) Whitehead,D.C.: Uptake and distribution of iodine in grss and clover plants grown in solution colture, J. Sci. Fd Agric., 24, p43-50 (1973)
- 45) Ng,Y.C., Colsher,C.S. and Thompson,S.E.: Transfer factors for assessing the dose from radionuclides in agricultural products, IAEA-SM-237/54, 1979. (Proceedings of an international symposium on biological implications of radionuclides released from nuclear industries, p295-318.)
- 46) Kühn,W., Handel,J. and Schuller,P.: The influence of soil parameters on ^{137}Cs -uptake by plants from long-term fallout on forest clearings and grassland, Health Physics, 46, p1083-1093 (1984)
- 47) Keen,A. and Frissel,M.J.: A statistical analysis of soil-to-plant transfer factors, Seminar on the environmental transfer to man of radionuclides released from nuclear installations (CEC), p351-370 (1983)
- 48) 小林宏信・駒村美佐子・津村昭人: 農業環境における人工放射性核種の挙動

- に関する解析的研究、農業技術研究所報告B, 第36号, p115-170 (1984)
- 49) 駒村美佐子・津村昭人・小平 潔・小林宏信: 農作物及び農地土壤の放射能汚染について, 農業技術研究所報告B, 第36号, p19-55 (1984)
 - 50) 津村昭人・駒村美佐子・小林宏信: 土壤及び土壤-植物系における放射性ストロンチウムとセシウムの挙動に関する研究, 農業技術研究所報告B, 第36号, p91 (1984)
 - 51) 内田滋夫, 他: 保健物理, 23, p35-39 (1988)
 - 52) 渋谷政夫・山添文雄・尾形 保・能勢和夫: 『環境汚染と農業』, 博友社, p149-157 (1975)
 - 53) Brady, N.C.: "The Nature and Properties of Soils" (8th Edition), p388 (1974)
 - 54) 本間美文・大桃洋一郎: 可給態 Zn の農作物への移行、放医研環境セミナー報文集 No.13, 『放射性物質の農作物への移行』, p46-53 (1987)
 - 55) 渋谷政夫: 重金属汚染の土壤化学, 化学の領域, 30, p1043-1051 (1976)
 - 56) Tensho, K. and Yeh, K.L.: Radioiodine uptake by plant from soil with special reference to lowland rice, Soil Sci. Plant Nutr., 16, p30-37 (1970)
 - 57) Cline, J.F.: Aging effects of the availability of strontium and cesium to plants, Health Phys., 41, p293-296 (1981)
 - 58) Ng, Y.C. and Hoffman, F.O.: Selection of terrestrial transfer factors for radioecological assessment models and regulatory guides, Seminar on the environmental transfer to man of radionuclides released from nuclear installations, p841-855 (1984)
 - 59) Ohmomo, Y. and Sumiya, M.: Estimation on heavy metal intake from agricultural products, "Heavy metal pollution in soils of Japan" (Ed. K. Kitagishi and I. Yamane), p235-244 (1981)
 - 60) Ohmomo, Y., Sumiya, M., et al.: Factors used for the estimation of radioactive nuclide intake through foodstuffs by inhabitants in coastal area of Ibaraki prefecture, Hoken butsuri, (I): 9, p99-107, (II): 9, p109-115 (1974); (III): 10, p215-219 (1975)

第4章 土壤中における放射性ヨウ素 (I^- および IO_3^-)の形態別挙動 に関する研究

4.1. 緒 論

本章では、土壌－農作物－人体経路による被曝¹⁾を想定し、土壌サイドからこの被曝経路の問題点について述べる。

RIで農地が汚染されるケースとしては、RIが大気から水田又は畑地土壌に沈着した場合やRIが地下水や河川水等に混入し、それを灌漑水として使用する場合などが考えられる。いずれの場合でも、農地表層に添加されたRIは、降水又は灌漑水とともに土壌間隙を鉛直方向に降下してゆく。RIの土壌から農作物への移行という土壌汚染を考える際、重要なパラメータとしては、農作物の根が分布している深さ、いわゆる根圏域内のRI分布や根圏域外への流出率などが考えられる²⁾。ほとんどのRIは土壌と吸着・脱離反応をくり返しながら移動するが、この吸着・脱離反応は、土壌やRIの種類、降水量や気温等の気象条件、さらに、同じRIであっても、その化学形³⁾により異なる。図4.1は、土壌表層におけるRIの移動を模式的に示したものである。 $t=0$ のとき、土壌表層($z=0$)に添加されたRIがT時間後に、どのような分布を示すかを表わしたものである。グラフの横軸は土壌単位体積当りに存在する相対的なRI量($t=0$ のときに、 $z=0$ に存在するRI量を

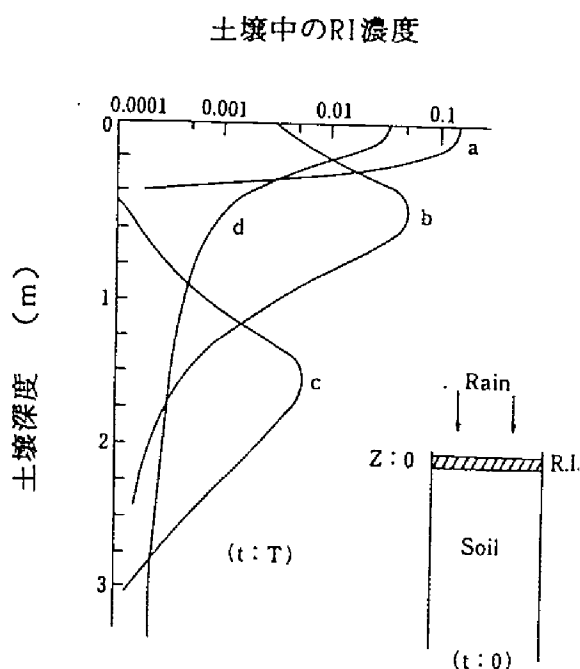


図 4.1 土壌表層にRIを添加してから
T時間後における土壌分布

1.0 とする)、縦軸は土壤表層からの深さである。RIの種類により、その土壤中での分布は異なる。例えば、aのように土壤の吸着力が強く、土壤表層で捕捉され、鉛直方向へあまり移動しないRIや、bやcのように、土壤と吸着・脱離反応をくり返しながら移動してゆくRI等がある。dの場合は、一部は土壤表層に捕捉されるが、残りは土壤にあまり吸着されずに移動してゆくRIである。

また、 ^{129}I は長半減期核種であるため、上述したように灌漑水と共に土壤深部へ浸透した ^{129}I が、地下水へ流入し、再び灌漑水として、また飲料水として利用されることも十分考えられる。したがって、広域における ^{129}I の被曝線量評価を行う場合に、地下帯水層中での放射性ヨウ素の挙動も検討する必要がある。

本章では、放射性ヨウ素の化学形の違いによる土壤中での移動の違い⁴⁾について、第2節では地下帯水層を対象とした砂質土壤を用い、第3節では水田および畑土壤を用いて検討した。

4. 2. 砂質土壤中における挙動

4. 2. 1. 実験目的

砂質土壤中におけるヨウ素の挙動に関しては、いくつかの報告がある。Hamid と Warkentin⁵⁾はヨウ化物イオン(以下、 I^- と記す)の土壤への吸着に及ぼすpHおよび担体濃度(NaI)等の影響を検討し、pHが6.9以下ではほとんど土壤に吸着しないこと、および担体濃度が $10^{-2}\text{mol} \cdot \ell^{-1}$ 以上では流出液中の I^- 濃度は流入液中の濃度に等しいが、 $10^{-3}\text{mol} \cdot \ell^{-1}$ 以下では流出液中の I^- 濃度は減少すること等を報告している。また、福井・桂山⁶⁾は豊浦砂を用いてカラム実験を行い、無担体状(Na^{131}I)では、水と同程度の速度で砂層中を移動する成分と、砂層に吸着・固定される成分があること、および担体濃度(NaI)が $10^{-4}\text{mol} \cdot \ell^{-1}$ では吸着損失が少なく、みかけ上の吸着平衡がほぼ達成されているということを報告している。このように、土壤中における I^- の挙動は土壤の種類により異なるが、 I^- の一部が土壤に不可逆的に吸着され、水溶液中の I^- 濃度が低い場合には、流出液中の I^- 濃度は流入液中の I^- 濃度よりも低くなる傾向がある。しかし、従来の研究では、吸着された I^- の脱離現象および土壤中を通過する際の I^- の化学形の変化等については、ほとんど検討されていない。また、ヨウ素は環境中で種々の化学形で存在することが知られているが、

これまで、化学形の違いによる土壌中のヨウ素の挙動の違いに関する研究は少ない。

本節では、 I^- および IO_3^- の砂質土壌中での挙動やその化学形の変化について検討する。

4. 2. 2. 実験方法

(1) 供試土壌

茨城県の東海村および那珂湊市内より採取した砂質土壌に加え、標準試料として豊浦砂を用いた。土壌試料の採集地点および物理・化学的特性を表4.1に示す。東海土壌は0~30 cmから採取した表層土壌であり、豊浦砂は $D_{60}=0.19$ 、均等係数(D_{60}/D_{10})=1.58で粒径が非常にそろっている石英細砂である。これらの土壌試料は実験室内で風乾した後、フルイで980 μ m以上の砂や植物根を取り除き、供試土壌とした。

(2) カラム実験

砂質土壌中における I^- の流出パターンおよび吸着分布を検討するため、上記の土壌を用いてカラム実験を行った。カラム充填した各供試土壌の空隙率(p :[—])およびみかけの密度(ρ :[$g \cdot cm^{-3}$])は、東海村で採取した土壌(以下、東海土壌と記す)では $p=0.34$ 、 $\rho=1.68$ 那珂湊市内より採取した土壌(以下、那珂湊土壌と

表 4.1 土壌試料の物理・化学的特性

サンプリング地点	土性 (%)						腐植* (%)	CEC**
	>2.0	2.0~0.84	0.84~0.42	0.42~0.25 (mm)	0.25~0.105	0.105>		
Tokai (surface)	0.4	2.8	30.9	49.1	15.0	1.8	0.13	1.9
Nakaminato (about 5 m depth)	8.7	9.5	13.5	38.1	29.1	1.1	0.03	3.33
Toyoura (standard sand)	—	—	—	12.5	87.1	0.4	0.03	1.22

* Tyurin 法で測定

** Schollenferger 法で測定

記す) $p=0.36$ 、 $\rho=1.59$ 、豊浦砂 $p=0.37$ 、 $\rho=1.59$ である。実験は内径2.0cm、土壌柱20cmのカラムで行ったが、土壌柱の長さによる影響を検討するため、10cmおよび30cmの土壌柱のカラムによる実験も行った。

雨水や土壌水中には種々のイオンが共存するが、実験条件を単純化するため、本研究では $5 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ の CaCl_2 溶液を模擬環境水として用いた。カラム流入原液に関しては、雨水中のヨウ素含量が数ppb 程度⁷⁾であることから、上記の CaCl_2 溶液に NaI を添加して、 I^- 濃度を $10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ (約1ppb) に調整した溶液に無担体状の Na^{125}I を添加したものを使用した。さらに、 I^- 濃度の影響を検討するため、 CaCl_2 溶液に無担体状 Na^{125}I のみを添加した溶液、および I^- 濃度を $10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ (約100ppb) に調整した溶液に Na^{125}I を添加したものを用いた。 IO_3^- に関しては、上記の CaCl_2 溶液に Br_2 水を用いて化学形を調整⁸⁾した ^{125}I および NaIO_3 を添加して $10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ (I 濃度で約1ppb) に調整した溶液を用いた。これらの溶液以外に、トリチウム水 (以下、HTOと記す) および雨水に無担体状の Na^{125}I を添加して24時間以上静置した溶液も実験に供した。すなわち、HTO は土壌水のトレーサーとして I^- および IO_3^- の挙動と比較するために、また雨水は CaCl_2 溶液による実験と比較するために用いた。この雨水は、放医研・那珂湊支所内でステンレス製容器に採集して、ミリポアフィルタ (孔径 $0.1 \mu\text{m}$) で濾過したものであり、ヨウ素濃度は5ppb以下である。

また、カラム実験により Na^{125}I または $\text{Na}^{125}\text{IO}_3$ を添加したカラム流入原液 (以下、RI溶液と記す) の流入量や土壌に吸着した I^- または IO_3^- を脱離させるために流入した CaCl_2 溶液の流入量を変化させ、 I^- の土壌カラム内吸着分布変化も検討した。RI溶液をカラム内に通水する前に、 CaCl_2 溶液1~2 L を通水してコンディショニングを行い、充填時の濁りを取り除き、土壌の未飽和イオン吸着座を Ca^{2+} または Cl^- で飽和させた。

カラム実験における流入液の間隙内流速は $2.7 \times 10^{-2} \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ である。

(3) バッチ実験

I^- の土壌への吸着平衡時間を検討するため、バッチ実験を行った。カラム実験に使用した3種類の砂質土壌以外に、陰イオン交換樹脂 (Dowex 2X8, 50-100 Mesh) を用いて土壌との比較をした。50mlのガラス・バイアルに供試土壌4gと NaI および Na^{125}I を添加した CaCl_2 溶液40mlを入れ、振とう機で所定時間振とう後、 I^- の土壌への吸着量を求めた。振とう時間、すなわち水溶液と土壌の接触時間は、1、3、7、

15、および41日間である。陰イオン交換樹脂の場合は、単位重量当りのイオン交換容量が大きいため、ポリエチレン製三角フラスコに NaIおよび Na^{125}I を添加した CaCl_2 溶液300ml と Cl^- 型に調整した陰イオン交換樹脂約 0.4mlを入れて実験を行い、実験終了時に陰イオン交換樹脂量を正確に秤量し、単位重量当りの I^- の吸着量を求めた。振とう時間は、3時間、1および3日間である。

(4) 放射能測定

水溶液および土壌中の ^{125}I の濃度はオートウェル・カウンター（島津 AL-210A）および水のトレーサーとして用いたHTO の濃度は液体シンチレーション・カウンター（Tracor Analytic MARK III Model 6882）を用いて行った。

4. 2. 3. 実験結果および考察

(1) ヨウ化物イオン (I^-) の挙動

図4.2 は、3種類の砂質土壌を充填したそれぞれのカラムに、NaI 濃度が $10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ のRI溶液をカラム内全間隙水量 (V_0) の5倍量 ($5V_0$) 流入後、 CaCl_2 溶液を通水して得られた I^- の流出破過曲線（以下、BTC と記す）である。縦軸は流出液中の ^{125}I 濃度 (C) を流入液中の濃度 (C_0) で除した相対濃度であり、横軸は流出量 (V) を V_0 で除した値である。図4.2 において、3種類の砂質土壌によるBTCの立ち上がり部および脱離部のパターンはほとんど同じであるが、どの土壌の場合でも C/C_0 が1.0 になる前にプラトー状となる⁶⁾ ことがわかる。プラトー部における C/C_0 値は土壌の種類により異なる。このような BTC は I^- 以外に、イットリウムでも報告⁹⁾ されている。図には示していないが、HTO による同様の実験では、立ち上がり点およびその勾配は、 I^- のそれとほとんど同じであるが、立ち上がり後すみやかに C/C_0 が1.0 になる。脱離部でも、HTO は急激に濃度が減少しており、テイリングはほとんど認められない。 I^- の場合は、 C/C_0 が0.1まではHTOと同じように減少するが、それ以降、減少の割合がゆるやかになり、 C/C_0 が0.05~0.02の値が続く。

このカラム実験において、土壌中に存在する粘土粒子や有機物に I^- が吸着し、それらの微粒子が流出している可能性もあるため、BTCの立ち上がり部、プラトー部および脱離部の流出液をミリポアフィルター（孔径 $0.1 \mu\text{m}$ ）で濾過し、各流出液に対する濾液の ^{125}I 濃度比を求めた。その結果、その濃度比は 0.96~1.0で有意な差はみられず、どの流出部位においても、溶液中の ^{125}I は溶存状態にあることがわかった。また、 I^- が土壌カラム内を通過する際、他の化学形に変化することも考え

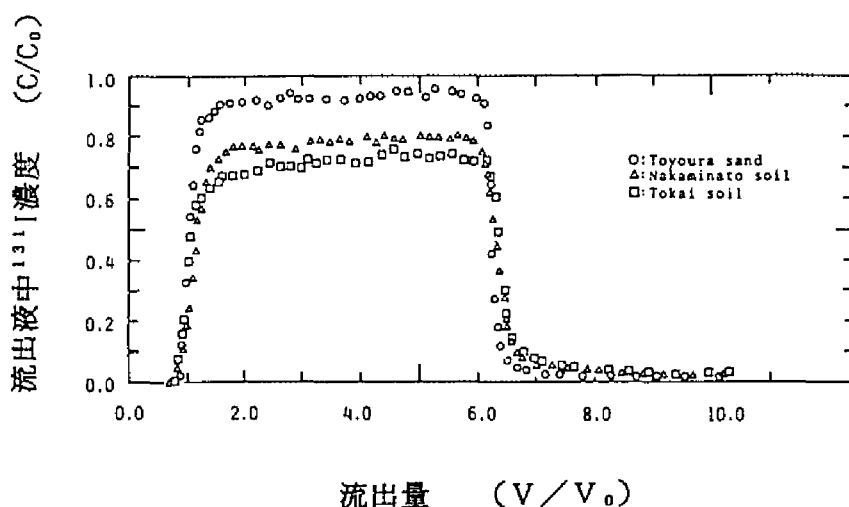


図 4.2 I^- の流出破過曲線（東海土壤、那珂湊土壤、豊浦砂）

実験条件

- (1) RI液流入量：5 V_0
- (2) RI液： $CaCl_2$ $5.0 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$, NaI $10^{-8} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$
- (3) カラム長さ：20 cm

表 4.2 流出破過曲線に及ぼす流入液中の I^- 濃度の影響（豊浦砂）

Soil sample	NaI concentration in original solution	C/C_0 on plateau*1 in BTC
Toyouura	C.F.*2	0.87
	10^{-8} mol/l	0.91
	10^{-6} mol/l	0.94
	C.F. (rain water)*3	0.96
Tokai	C.F.*2	0.72
	10^{-8} mol/l	0.72
	10^{-6} mol/l	0.91
Nakaminato	10^{-8} mol/l	0.78
	10^{-6} mol/l	0.85

*1 BTCのプラトー部分における C/C_0 の平均値

*2 Carrier free（安定ヨウ素を添加していないRI液を使用）

*3 雨水に $Na^{125}I$ を添加

られるため、流出液中のヨウ素の化学形を、流出実験終了後ただちに、四塩化炭素による抽出実験により調べた。この抽出法は、ヨウ素の化学形の違いによる同位体交換反応速度の違いを利用^{8)・10)}したものである。抽出実験の結果、流出液中の全ヨウ素の90%以上が I^- の化学形であった。したがって、少なくとも流出成分については、土壌カラム内を通過する際の化学形の変化は生じないと考えられる。

表 4.2 はBTC のプラトー部での C/C_0 値について、カラムに通水したRI溶液中の I^- 濃度の影響を検討したものである。 I^- 濃度が $10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ のRI溶液を5Vo流入しても、BTC の C/C_0 値はどの土壌も1.0になる前にプラトー状となる。 I^- 濃度が高くなれば、プラトー部の C/C_0 値は高くなる傾向があるが、その割合は土壌の種類により異なり、 I^- 濃度が $10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ では那珂湊土壌のプラトー部の C/C_0 値のほうが東海土壌のそれより小さくなっている。

雨水の場合は、 I^- 濃度が $10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ の実験結果よりもプラトー部の C/C_0 値が大きい。雨水中に含まれるヨウ素は前述したように5ppb以下であり、そのすべてが I^- で存在すると仮定しても、 $10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ の I^- 濃度(約100ppb)の1/20以下である。したがって、この現象を雨水中のヨウ素量のみで説明することはできない。この原因は雨水中に含まれる共存陰イオンの影響、とくに雨水採集地点が海岸近傍であるため、 Cl^- の影響と思われる。

図 4.3 は、土壌柱長さの違いによる I^- のBTC の変化を検討したものである。土壌は豊浦砂を用い、無担体状の $Na^{125}I$ を添加したRI溶液をそれぞれのカラムに流入した。RI溶液の流入量は約 55 mlであり、これは長さ10cmの土壌カラムでは5 Voに相当し、20および30cmの土壌カラムではそれぞれ2.5 および1.7 Voに相当する。グラフの横軸は流出量(ml)である。土壌柱が30cmの場合、Voに対して流入量が少ないため、10cmおよび20cmの場合ほど、はっきりとプラトー状を示してはいない。しかし、どのBTCもプラトー部の C/C_0 値は0.8~0.9となり、土壌柱長さが異なっても流出パターンは大きく変化しないものと考えられる。福井・桂山⁶⁾は、土壌柱長さを長くし、さらに、間隙内流速を約1/10にした場合、プラトー部の C/C_0 値が低くなることを報告している。前述したように、土壌柱長さの変化はプラトー部の C/C_0 値に影響を与えないことから、土壌水の間隙内移動速度によりプラトーに達した際の C/C_0 値が変化するものと考えられる。これらのカラム実験結果から、水溶液中の I^- の一部は土壌に吸着され、流出液中の C/C_0 値は1.0以下でプラトー状を示すことがわかった。この現象をさらに詳しく検討するために、東海土壌を充填した長さ20cm

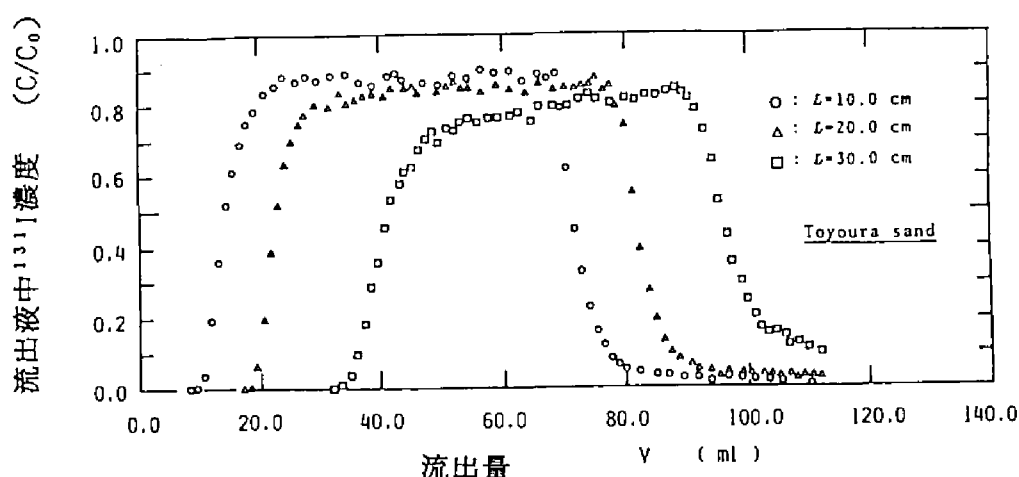
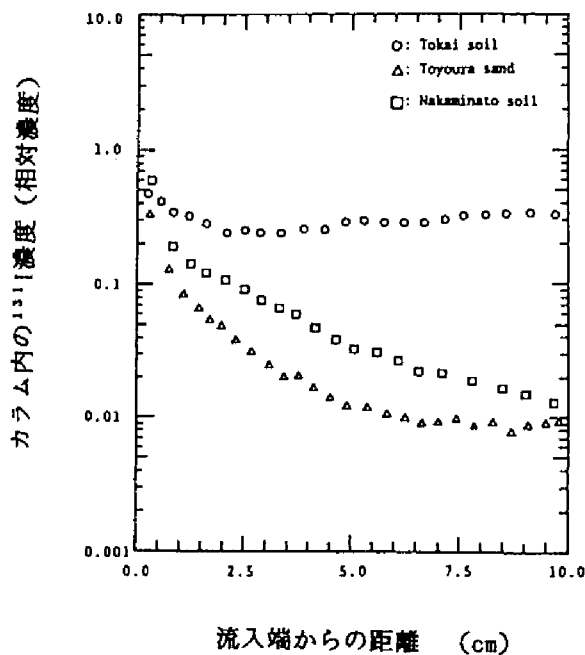


図 4.3 I^- の流出破過曲線に及ぼすカラム長さの影響（豊浦砂）

のカラムに、 NaI 濃度 $10^{-8} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$ の RI 溶液を $77V_0$ ($1,650 \text{ ml}$) 流入後、 $CaCl_2$ 溶液を $84V_0$ ($1,800 \text{ ml}$) 通水して、その BTC を求めた。その結果、この程度の RI 溶液の流入量では、プラトー部の C/C_0 値は約 0.7 とほぼ一定であった。また、脱離～テイリング部における C/C_0 値は、 $80 \sim 100 (V/V_0)$ では $0.1 \sim 0.05$ であるが、 $100 \sim 160 (V/V_0)$ では、ほぼ 0.02 であった。したがって、 I^- に対する東海土壌の吸着飽和量はかなり大きく、約 100 g の東海土壌に $10^{-8} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$ の NaI 溶液 $1,650 \text{ ml}$ を流入しても飽和量に達しないこと、および土壌に吸着した I^- は $5 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$ の $CaCl_2$ 溶液では容易に脱離されないが、長期間テイリングが生じることから、必ずしも不可逆的な吸着反応ではなく、徐々に脱離されることが明らかとなった。

図4.4 は、3種類の砂質土壌によるカラム内吸着分布の違いを検討したものである。 NaI 濃度が $10^{-8} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$ の RI 溶液を $5 V_0$ 流入後、 $CaCl_2$ 溶液を同量通水してからカラムを解体し吸着分布を求めた。グラフの横軸は溶液の流入端からの土壌カラム長さであり、縦軸は土壌カラム内の単位容積当りに存在する全 I^- 量を流入液中の I^- 濃度 (C_0) で除した値で、相対的な吸着量¹⁾を表わす。東海土壌の吸着分布は他の2種類の土壌とは大きく異なっており、流入端での吸着量の増加は少し認められるが、ほぼ一定の吸着分布を示している。那珂湊土壌および豊浦砂の吸着分布は、



実験条件

- (1) RI液流入量: 5 V。
- (2) CaCl_2 液流入量: 5 V。
- (3) RI液: CaCl_2 $5.0 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$,

$$\text{NaI } 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$$

図 4.4 土壌カラム内における I^- の吸着濃度分布

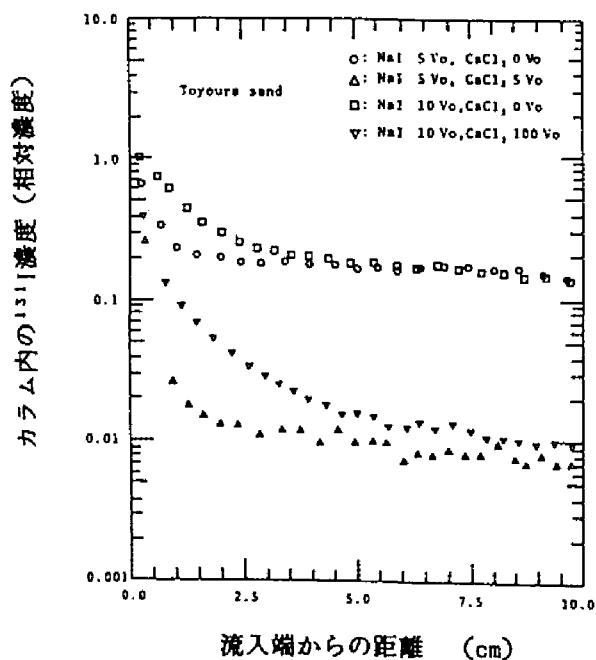


図 4.5 土壌カラム内の I^- 吸着濃度分布に及ぼす
リーチングの影響 (豊浦砂)

流入端から流下方向に向かって吸着量が減少している。とくに、豊浦砂の場合は、流入端から5.0cm までは吸着量が急激に減少しているが、それ以降はほぼ一定となっている。このように、 I^- の土壌カラム内での吸着分布は土壌の種類により異なっているが、どの土壌の場合でも、流入端付近における $CaCl_2$ 溶液による顕著な脱離現象は認められない。

図4.5 は、豊浦砂を充填したカラムを用いて、流入端付近の吸着量の増加および $CaCl_2$ 溶液による脱離現象をくわしく検討したものである。 $CaCl_2$ 溶液に無担体状の $Na^{125}I$ を添加したRI溶液をそれぞれ5Voおよび10Vo流入後の吸着分布を比較すると、流入量を倍にしても流入端から約2.5cm までの吸着量が増加するだけで、2.5～10cm までの吸着量は同じであった。同じRI溶液を5Vo 流入後、 $CaCl_2$ 溶液を5Vo 流入して得られた吸着分布とRI溶液を10Vo 流入後に $CaCl_2$ 溶液を100Vo 流入して得られた吸着分布を比較すると、後者の $CaCl_2$ 溶液を100Vo 流入した場合には、土壌に吸着した I^- の流下方向への移動が認められるが、その移動距離は5cmまでで、5～10cmの吸着量はほぼ一定であり、前者の場合とあまり差はない。

図4.4 および図4.5 の結果から、土壌カラムに流入した I^- の一部は流入端付近で土壌に吸着し、流入量を増加しても流入端付近の吸着量が増加するだけで、それ以降の土壌の吸着量はほぼ一定となること、および流入端付近の土壌に吸着した I^- は $5 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ の $CaCl_2$ 溶液により流下方向へ移動するが、その移動速度は非常にゆるやかであることがわかった。このような吸着・脱離反応がプラトー状のBTC および長期間のテイリングを生じさせると考えられる。吸着濃度分布が土壌により異なるのは、 I^- の土壌への吸着速度が土壌により異なるためと考えられる。すなわち、豊浦砂は吸着速度が速いため大部分が流入端で吸着されるが、東海土壌では他の2種類の土壌よりも吸着速度が遅いため、流入端で大部分が吸着されるのではなく、流入端からかなりカラム深部まで吸着量が多くなっている。

図4.6 は、 I^- の土壌および陰イオン交換樹脂への吸着量の経時変化を検討したものである。水溶液中の NaI 濃度は、土壌では $10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 、陰イオン交換樹脂では $10^{-5} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ である。陰イオン交換樹脂の場合、3時間、1日および3日後の吸着量はほぼ一定であり、3時間以内に水溶液－陰イオン交換樹脂間における I^- の吸着平衡が成立することがわかる。一方、土壌の場合、那珂湊土壌および豊浦砂は約15日程度で吸着平衡が成立しているが、東海土壌は41日が経過しても土壌への吸着量が増加している。なお、四塩化炭素による抽出実験の結果、このように長期

間土壌と接触しても、水溶液中のヨウ素はほとんど I^- のままで存在し、化学形の変化は認められなかった。41日経過後の水溶液中のpHは東海土壌が6.46、那珂湊土壌6.45および豊浦砂7.56であった。

このバッチ実験の結果から、次のことが明らかとなった。陰イオン交換樹脂による吸着平衡実験からわかるように、イオン交換反応による吸着平衡は3時間以内に成立するが、土壌の場合は土壌の種類により異なるが、十数日から数十日要する。したがって、土壌への I^- の吸着反応は土壌粒子表面における単純なイオン交換反応のみとは考えにくい。したがって、土壌と RI の吸着反応が主としてイオン交換反応のみであるとする従来の理論¹²⁾とは異なった新しい理論¹³⁾を検討してゆく必要がある。

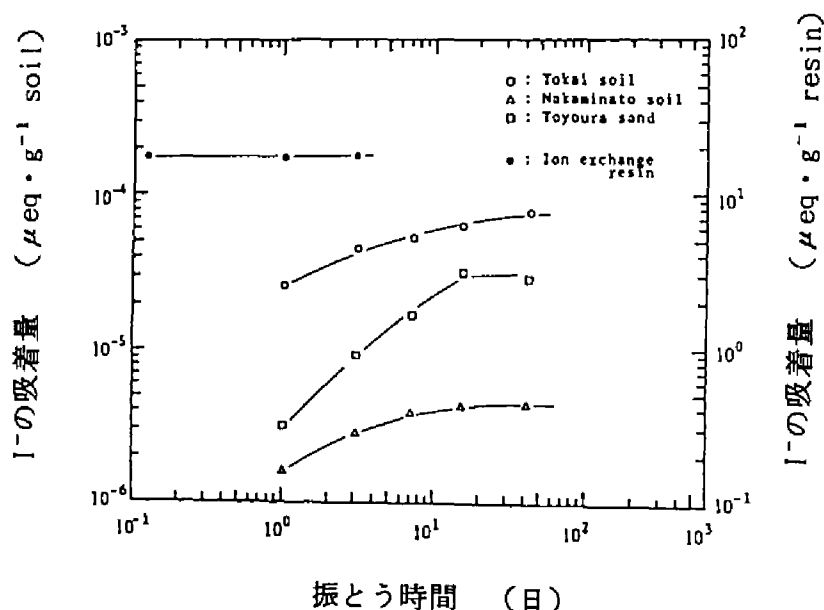


図 4.6 バッチ実験による I^- の吸着平衡時間の検討

(2) ヨウ素酸イオン (IO_3^-) の挙動

図4.7 は、同じ土壌試料を充テンしたカラムに $10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ の $\text{Na}^{125}\text{IO}_3$ 溶液を10Vo流入後、 CaCl_2 溶液を流入して得られたBTC である。

豊浦砂の立ち上がり点は約 1.5 (V/Vo)、東海土壌は約 8 (V/Vo) である。 I^- およびHTOの立ち上がり点を比較すると、 IO_3^- の場合は I^- の1/2~1/10の速度である。立ち上がり後、流出液中の IO_3^- 濃度はゆるやかに上昇しており、特に、東海土壌では17(V/Vo)でピークが現われる。また IO_3^- は I^- の場合と比較して、著しいテイリングがある。図4.8 は、土壌カラムに $^{125}\text{IO}_3^-$ 液を10 Vo 流入後、 CaCl_2 溶液を流入して得られたカラム内の IO_3^- の吸着濃度分布である。 CaCl_2 溶液の流入は、豊浦砂および那珂湊土壌は10 Vo、東海土壌では吸着ピークの移動をみるため10 Vo および30 Vo 流入した。豊浦砂の場合、一部の IO_3^- はカラム流入端に吸着しているが、カラムの流出端にいくにしたがって、吸着量が急激に減少しており、大部分の IO_3^- は10Voの CaCl_2 溶液により流出してしまったことがわかる。一方、那珂湊土壌では、流出端に行くにしたがい、吸着量が増加している。これは、土壌に吸着した IO_3^- が CaCl_2 溶液により脱離し、徐々に移動してゆくためと思われる。この傾向を最も顕著に示すのが東海土壌である。図から、東海土壌の場合は、 CaCl_2 溶液を10Vo流入すると吸着濃度分布のピークは、流入端から2~3 cm 移動しただけであるが、30Vo流入すると、そのピークは20 cm 以上移動し、流出していることが分かる。

これらの結果から、 IO_3^- は土壌との吸着・脱離反応をくり返しながらか、間隙中を移動すると考えられる。図4.8 の吸着濃度分布において、 I^- と同様、一部の IO_3^- がカラム流入端に吸着される傾向を示すが、この現象に関しては、さらに研究を進める必要がある。

流出液中のヨウ素の化学形を、 I^- のカラム実験の場合と同様、3つの部位において調べた。その結果、ピークおよびテイリング・フラクションにおける化学形は90%以上が IO_3^- であった。

4. 2. 4. 結語

砂質土壌中における I^- および IO_3^- の吸着・脱離現象を解明するため、カラム実験およびバッチ実験を行った。その結果、次のようなことが確認もしくは明らかにされた。

1) 土壌カラムに流入した I^- は、大部分は水とほとんど同じ速度で土壌間隙を移

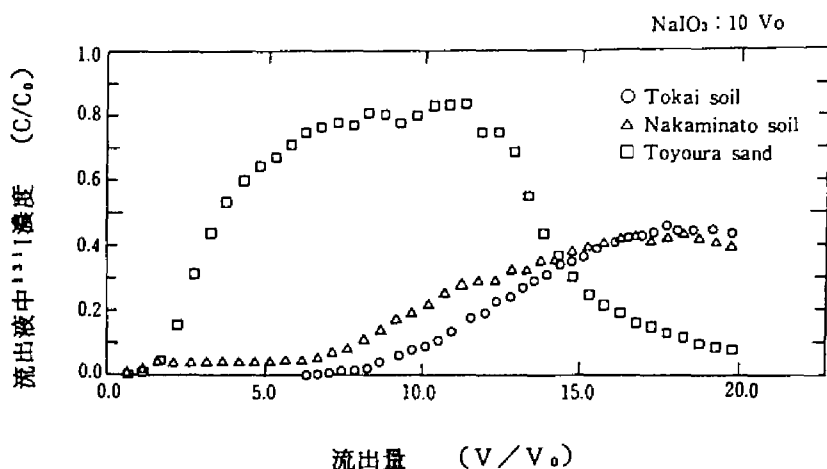
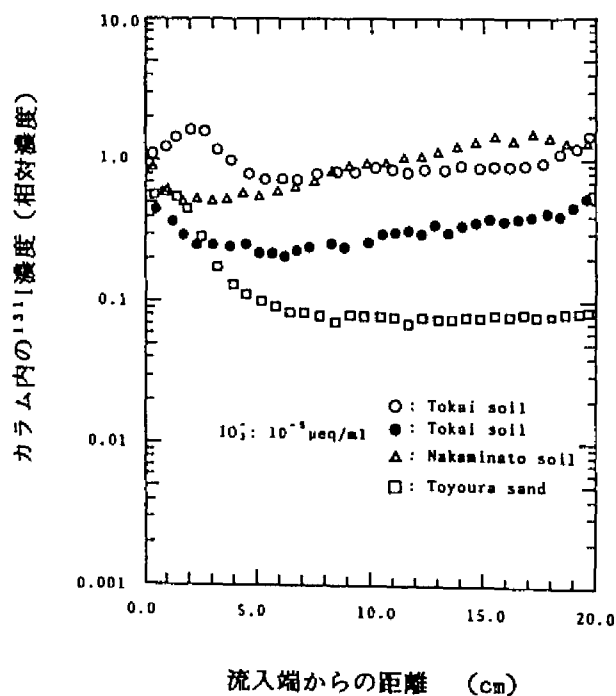


図 4.7 10_3^- の流出破過曲線 (東海土壤、那珂湊土壤、豊浦砂)

実験条件

- (1) カラム長さ : 20 cm
- (2) RI液 ($\text{Na}^{125}\text{IO}_3$) 流入量 : 10 V₀



実験条件

- (1) RI液流入量 : 10 V₀
- (2) RI液 : CaCl_2 $5.0 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$,
 NaIO_3 $10^{-8} \text{ mol} \cdot \ell^{-1}$
- (3) CaCl_2 液流入量
東海土壤 (●) : 30 V₀,
東海土壤 (○) : 10 V₀,
那珂湊土壤 (△) : 10 V₀,
豊浦砂 (□) : 10 V₀

図 4.8 土壤カラム内における 10_3^- の吸着濃度分布
(東海土壤、那珂湊土壤、豊浦砂)

動するが、一部分は土壤に吸着される。この吸着は、流入液中の I^- 濃度が雨水中の数十～百倍の濃度の溶液をカラム内全間隙水量の5倍量流入しても観察される。なお、吸着される割合は土壤の種類および流入液中の I^- 濃度により異なる。

- 2) 土壤に吸着した I^- は、 $5 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ の CaCl_2 溶液では容易に脱離しない。しかし、BTCにおいて長期間テイリングが観察されることから、必ずしも不可逆的な吸着ではない。
- 3) バッチ実験により、土壤ならびに陰イオン交換樹脂による I^- の吸着の様相を調べた結果、イオン交換樹脂と異なり、土壤では吸着平衡に達するまでに15日以上要することが認められた。したがって、土壤への I^- の吸着反応は土壤粒子表面における単純なイオン交換反応のみではないと考えられる。
- 4) 砂質土壤中における I^- の移動予測に関しては、流出および吸着成分の割合を実験により求め、流出成分は水と同速度で、吸着成分は従来理論により移動するという方法を適用することにより安全性評価の精度は改善されと考えられる。しかし、より正確な放射性核種の移動予測には、土壤とイオン状で存在する放射性核種の吸着反応が主としてイオン交換反応のみとする従来理論とは異なった、新しい理論を開発する必要がある。
- 5) IO_3^- の場合は、土壤との収着・脱離反応により、土壤中での移動速度は土壤水よりもかなり遅い。その程度は土壤の種類により異なり、豊浦砂で1/2、東海土壤では約1/10である。(B.T.C.の立ち上がり点で比較)
- 6) 流出液中のヨウ素の化学形は、 I^- および IO_3^- を流入した場合は90%以上が I^- および IO_3^- で存在する。すなわち、流出成分に関しては、カラム内を通過することによる化学形の変化はほとんど生じない。

これらの結果から、灌漑水中の ^{129}I が地下水に混入した場合、その移動速度は I^- の場合は、大部分が地下水と同じ速さであるが、 IO_3^- の場合では、その1/2～1/10倍の速度であると考えられる。前述したように、 ^{129}I は物理的半減期が非常に長いので、その被曝線量評価においては広域を対象としなければならない。地下水中での移動速度がそれほど遅くないことから、一旦地下水中に混入するとその汚染地域はかなり拡大すると思われる。したがって、被曝線量評価においては、その地域における地下水の利用率、水田および畑土壤における ^{129}I の吸着能力や根圏域外への流出速度などを把握する必要がある。

4. 3. 水田および畑土壤中における挙動

4. 3. 1. 実験目的

前節において、砂質土壤中における放射性ヨウ素の挙動、特に、 I^- と IO_3^- との違いをカラム実験により明らかにした。本節では、水田および畑土壌を用いて、放射性ヨウ素の土壌への吸着および脱離現象について、バッチ実験により検討した。

天正ら^{14,18)}は、数種類の土壌に無担体状の ^{131}I (I^-) を添加した水溶液を混ぜ、水分状態が畑と湛水の二つの条件下で振とう後、水を加え、水溶液中への ^{131}I の溶出率の違いを検討した。その結果を図4.9に示す。畑水分状態では、土壌に添加された ^{131}I は大部分土壌に吸着されるが、

湛水状態では、吸着量は畑水分状態のそれと比べて非常に少なく、時間とともに土壌の還元化がすすみ、溶出率が増加する傾向が見られた。結田^{17,18)}も土壌に添加したヨウ素の土壌溶液中への溶出に及ぼす土壌水分の影響を検討した。

図4.10は、土壌の水分状態を風乾状態から湛水状態まで変化させて、3週間放置後の溶出率を示したものである。最も低い溶出率を示すのは、水分飽和度40-60%の畑水分状態であり、これより水分が増加しても、あるいは減少しても溶出率は著しく増大する。特に、湛水状態では、どの土壌においても溶出率は5-50%にも達する。さらに、結田¹³⁾は、福井褐色森林土と栃木黒ボク土を用いて、安定ヨウ素についても同様の実験を行った。すなわち、これらの土壌を用いて、畑水分状態（水分飽和度60%）と湛水状態（同120%）で溶出実験を行い、安定ヨウ素の溶出率を求めた。その結果、湛水状

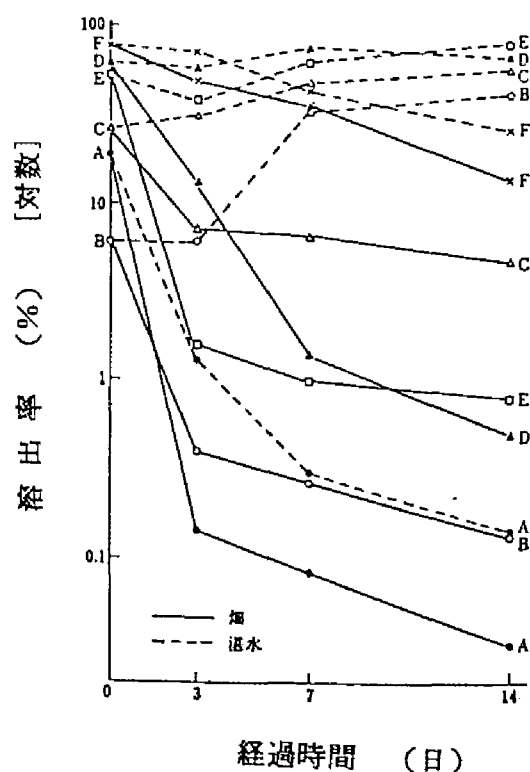


図 4.9 ^{131}I の土壌への吸着に及ぼす土壌条件の影響

A: 田無, B: 八ヶ岳, C: 高師原,
D: 岩沼, E: 長野, F: 富士見

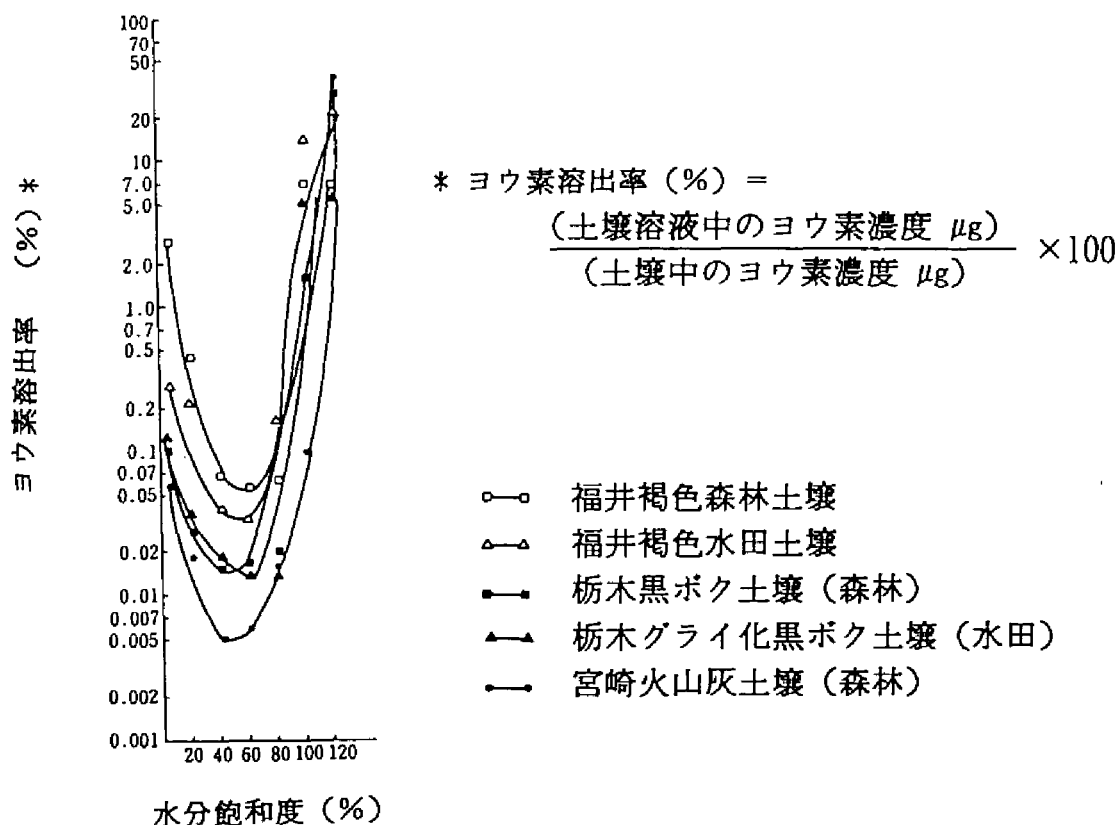


図 4.10 土壌からのヨウ素脱離に及ぼす水分含量の影響

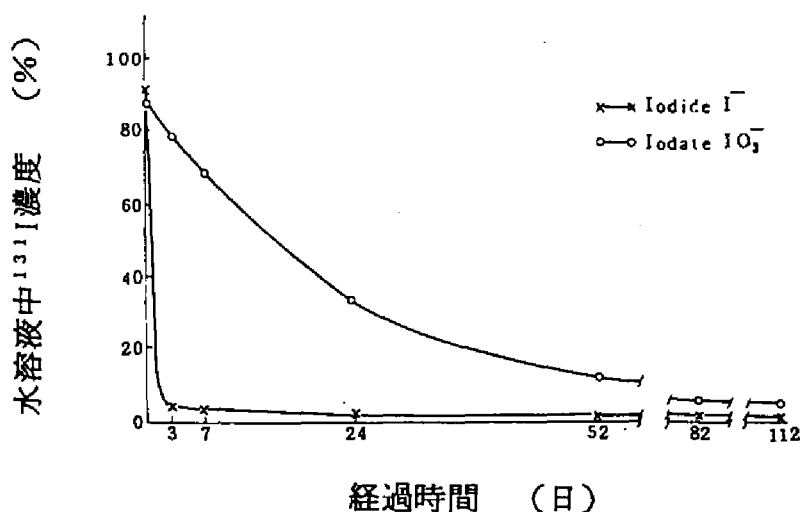


図 4.11 I^- および IO_3^- の土壌 (Sandy loam soil) への吸着の時間変化

態の方が、畑水分状態よりもヨウ素が10-50 倍も溶出しやすいこと、および、湛水状態での土壤溶液中のヨウ素の主な化学形は I^- であるが、畑水分状態でのそれは、 IO_3^- であることを明らかにした。

また、D.C.Whitehead²⁰⁻²³⁾も化学形の違いによるヨウ素の土壤への吸着の違いを検討している。その結果を図 4.11 に示す。これは、 I^- および IO_3^- を含む $CaCl_2$ 溶液に一定量の土壤を加えて振盪した後、溶液中に残るヨウ素の量を表したものである。 I^- は短時間の内に吸着されるが、 IO_3^- は50日を経過しても10% ほど液相に残っていることがわかる。図には示していないが、分子状ヨウ素の場合は I^- とほぼ同様の結果である。

このように、ヨウ素の水田および畑土壤中における吸着および脱離に関しては、いくつかの研究報告^{24, 25)}があるが、その吸着機構に関してはまだ十分に解明されてはいない。天正ら¹⁴⁻¹⁶⁾は、ヨウ素が畑水分状態という酸化的条件下では I_2 の化学形で土壤有機物と結合して不溶性の形態で存在しているが、湛水状態という還元条件下では水溶性の I^- の化学形に還元されて土壤溶液中に溶出してくると推測している。

水田土壤は、非耕作期間中には畑水分状態となり、また、耕作期間中にも落水して畑水分状態とすることもある。このため、 ^{129}I の水田土壤から米への移行に関し、水田土壤の水分含量の変化が ^{129}I の土壤への吸着および土壤からの脱離に及ぼす影響を研究する必要がある。本実験は、ヨウ素(I^- および IO_3^-)の水田および畑土壤への吸着に関して、乾燥条件による違いを検討するため、風乾および加熱処理を行った土壤試料を用いて吸着実験を行ったものである。土壤へのヨウ素の吸着に土壤微生物が関与している可能性もある。それを検討するため、 γ 線照射を行った土壤を用いても同様の吸着実験を行った。 γ 線照射は、加熱することなく殺菌することができ、本実験目的に適する。

4. 3. 2. 実験方法

実験に用いた土壤は、茨城県東海村および勝田市内で採取した畑土壤および水田土壤の計4種類である。表 4.3に、これらの土壤の腐植含量、総C量および CECを示した。これらの土壤は、風乾や加熱処理、 γ 線照射等の前処理を行った後、バッチ実験に供試した。湿潤土壤は、サンプリングした状態のまま実験に用いたものであり、ほとんど処理を行っていない。風乾土壤は、約4週間実験室内で風乾させた

ものである。100℃、150℃、200℃および300℃の土壤は、乾燥器または電気炉において、それぞれの温度で2時間加熱したものである。γ線照射土壤は、 ^{137}Cs により2.7 Mrad の照射を行った試料である。

前述した湿潤土壤、または前処理した土壤3.0gを50mlのポリ容器に入れ、 ^{125}I を添加した水溶液30mlを加え、振とうを行った。振とう時間は、

1時間、1日、3日および8日間である。振とう後、遠心分離を行い上澄液をサンプリングした。水溶液に添加した ^{125}I の化学形は、 I^- または IO_3^- に調整⁸⁾した。そして、振とう後のヨウ素の化学形の変化を検討するため、8日後の上澄液の ^{125}I の化学形を四塩化炭素による溶媒抽出^{8,10)}により求めた。

表 4.3 土壤試料の化学的特性

土壤試料	腐植含量 (%乾土)	総C量 (%)	CEC (me/100g乾土)
勝田(畑)	8.43	4.51	19.9
勝田(水田)	11.72	6.77	23.1
東海(畑)	7.58	4.40	20.0
東海(水田)	13.98	7.62	31.8

4. 3. 3. 実験結果および考察

(1) 畑土壤

勝田畑土壤の実験結果を図 4.12 および図 4.13 に示す。東海畑土壤の実験結果も、勝田畑土壤のそれと同じような傾向であった。図 4.12 は、 I^- の化学形で添加した実験結果であり、図 4.13 は、 IO_3^- の化学形で添加した結果である。図の縦軸は、吸着率（添加した全 ^{125}I 量に対する土壤への吸着量の比）を、横軸は経過時間を表す。図 4.12 から、湿潤土壤の場合は、添加した ^{125}I の80%以上が1時間以内に土壤に吸着することが分かる。1日後では90%以上となり、それ以後、ほぼ一定の値を示す。風乾土壤の場合、1時間後の吸着率は50%であり、湿潤土壤とは異なるが、1日後には90%が吸着され、湿潤土壤とほとんど同じ値となる。一方、加熱処理の土壤については、その温度が150℃を境にして大きく異なる。すなわち、100℃の温度で加熱した場合は、1時間後の吸着率は約35%であるが、その後、時間の経過とともに、吸着率は増加し、8日後には約80%となっている。しかし、150℃以上の温度で加熱した土壤は、あまり吸着せず、10-30%が吸着されるだけであり、この割合は、8日間程度ではほとんど変化していない。このように、風乾土壤では、実験開始から1時間後では、かなり、吸着率が異なるが、1日以後は、両者にほと

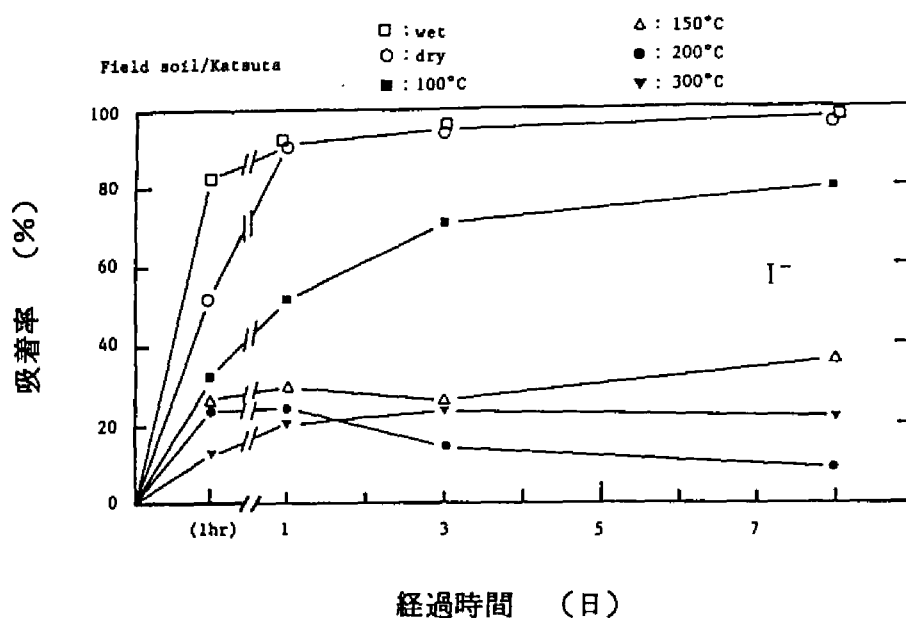


図 4.12 I^- の畑土壌への吸着の時間変化

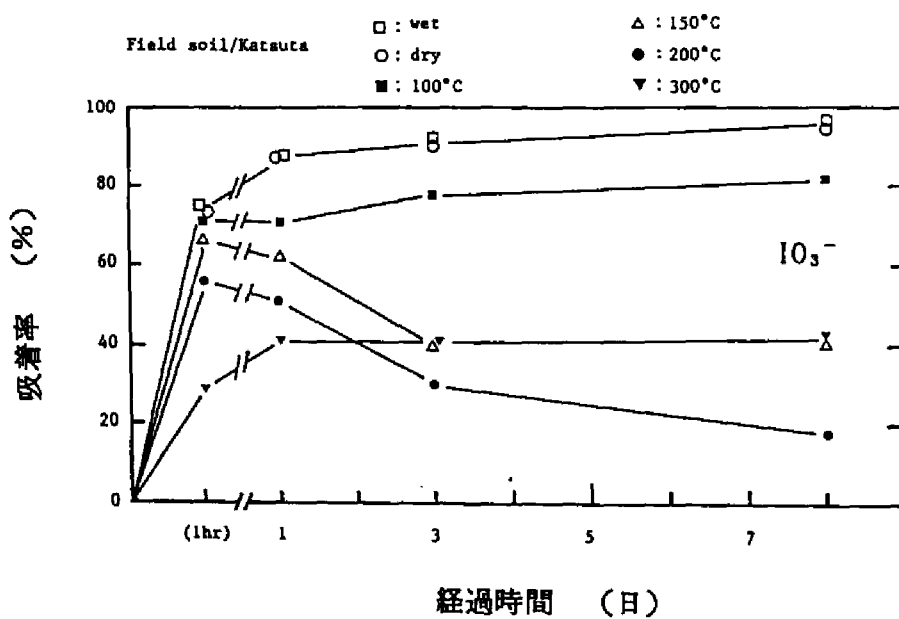


図 4.13 IO_3^- の畑土壌への吸着の時間変化

んど差が認められない。また、100℃で加熱処理をした土壌も、風乾土壌と比べて時間は要するが、湿潤土壌が有する吸着容量に近づいてゆく。

IO_3^- の化学形の場合は、図 4.13 から湿潤土壌および風乾土壌とも同じ吸着傾向を示すことがわかる。両土壌とも、1時間後には、添加した全 $^{125}\text{I}\text{O}_3^-$ 量の75%が吸着し、その後、徐々に吸着率が増加してゆき、8日後には95%となる。100℃に加熱した土壌は、1時間後の吸着率が約75%であり、湿潤および風乾土壌とほとんど同じ吸着率である。時間の経過とともに吸着率は増加するが、その程度は、湿潤および風乾土壌のそれよりも小さい。150℃および200℃の温度で加熱処理した土壌は、時間とともに、吸着率が減少してゆく。これは、後述する水溶液中の化学形の変化によるものと考えられる。すなわち、8日後の水溶液中の ^{125}I の化学形を調べた結果、150℃および200℃の土壌の場合は、 I^- で添加した場合も、 IO_3^- で添加した場合も、ともに90%以上が I^- の化学形で存在していることが分かった。この結果から、 IO_3^- で添加した場合、添加後1時間後には、水溶液中の化学形は IO_3^- であり、60-70%が土壌に吸着される。しかし、時間が経過するにしたがい、 IO_3^- が I^- に変化する。図 4.12 から分かるように、150℃および200℃に加熱した土壌では、 I^- はそれほど土壌に吸着しないため、しだいに脱離してゆく。8日後には、 I^- で添加した実験結果とほとんど同じ吸着率を示す。このことは、 I^- と IO_3^- の土壌への吸着機構が異なることを示している。 I^- の吸着機構は150℃-200℃で土壌を加熱することにより、大きく影響を受けるが、 IO_3^- ではそれほど影響を受けない。しかし、300℃まで加熱すると、 IO_3^- の吸着機構もかなり影響を受けることが分かる。

(2) 水田土壌

勝田水田土壌による I^- および IO_3^- の吸着実験の結果を図 4.14 および図 4.15 に示す。 I^- の化学形で水溶液中に ^{125}I を添加した場合、湿潤土壌では、吸着率は時間とともに増加してゆく。1時間後の吸着率は約65%であるが、1日後では90%、そして、3日後ではほぼ100%となっている。風乾土壌では、1時間後の吸着率が35%と湿潤土壌のそれと比べて非常に低いが、1日以後、湿潤土壌とほとんど同じ吸着率を示す。100℃以上で加熱した土壌では、吸着率は風乾土壌よりもさらに小さくなる。100℃で加熱した土壌は、1時間後および1日後も吸着率が約25%と150℃以上で加熱した土壌のそれと同じである。しかし、3日後には60%となり、しだいに増加してゆく。畑土壌と比較して、100℃に加熱した影響は水田土壌の方が大きい、時間が経過するにしたがい、畑、水田土壌とも湿潤土壌の状態に近づいてゆ

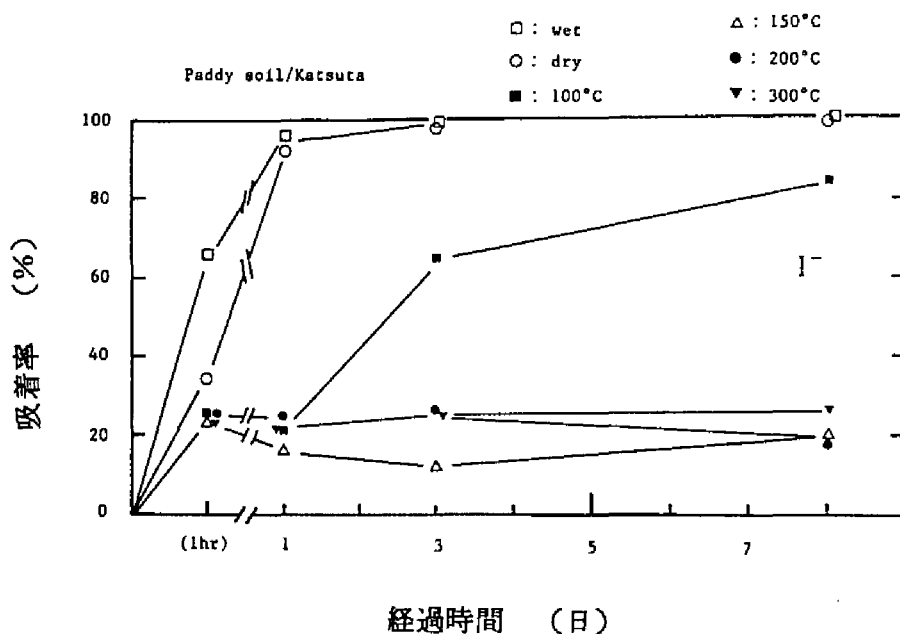


図 4.14 I⁻の水田土壌への吸着の時間変化

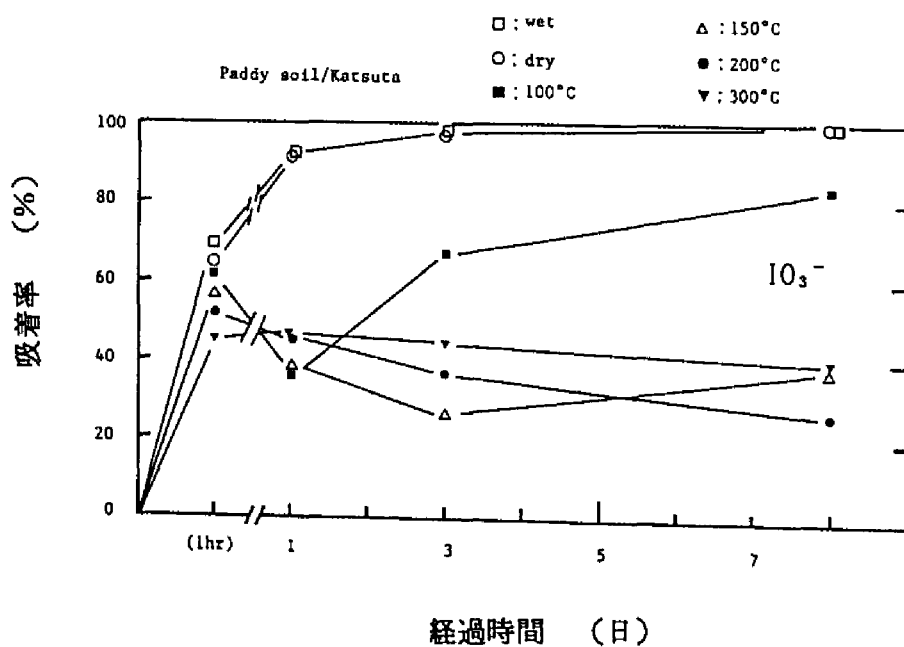


図 4.15 IO₃⁻の水田土壌への吸着の時間変化

くことが分かる。150°C 以上で加熱した土壌は、吸着率が低く、しかも、時間が経過してもその値はほとんど変化しない。

一方、 IO_3^- の場合、湿潤土壌は、 I^- の結果とほとんど同じであり、1時間後の吸着率は70%であるが、時間が経過するにしたがい、吸着率は増加し、3日後には、ほぼ100%となっている。風乾土壌では、 I^- の場合ほど吸着への影響は大きくなく、湿潤土壌とほとんど同じ吸着パターンを示す。100°C 土壌では、1時間後の吸着率は60%であるが、1日後のそれは少し減少し、35%となっている。その後、徐々に増加し、3日および8日後における吸着率は I^- の実験結果のそれとほぼ同じである。150°Cおよび200°C土壌では、水田土壌と同様、吸着率がしだいに減少する傾向が認められる。これは、前述したように、水溶液中のヨウ素の化学形の変化によるものと思われる。300°C土壌は、水溶液中のヨウ素の化学形があまり変化しないため、ほぼ一定の吸着率を示す。

(3) 水溶液中の化学形

実験開始から8日後の水溶液中の ^{125}I の化学形を図 4.16 および図 4.17 に示す。図 4.16 は、 I^- の化学形で添加した実験の変化を、図 4.17 は IO_3^- の化学形で添加した実験の変化を示す。図の縦軸は、水溶液中に存在する全 ^{125}I に対する IO_3^- の存在比であり、横軸は加熱処理の温度である。湿潤土壌および風乾土壌については、吸着率が高く、ほとんど吸着されたため、水溶液中のヨウ素の化学形を同定することはできなかった。100-200°C の土壌の場合、水溶液中のヨウ素の化学形は最初に添加した化学形に関係なく、その5-25%が IO_3^- で、ほとんどは I^- で存在していることが分かる。300°C の土壌では、 I^- の化学形で添加した場合は、程度の差はあるが主として I^- である。また、 IO_3^- の場合は、東海水田土壌では60%が IO_3^- 、勝田畑土壌は40%、東海畑土壌および勝田水田土壌は20-25%が IO_3^- の化学形である。このように、100-200°Cの土壌の場合は、 I^- が80%以上を占めるが、300°Cの土壌では、 I^- だけではなく IO_3^- もかなりの割合で存在している。

以上の結果から、次のようなことが明らかとなった。100°C土壌の場合は、1時間後の吸着率は150および200°C土壌のそれに近いが、時間が経過するにしたがい、湿潤土壌の吸着率に近づいてくる。畑土壌および水田土壌ともに、1時間および1日後の吸着率は、 I^- と IO_3^- とは異なっているが、3日以後、化学形の違いによる吸着率の違いはほとんど認められない。これは、水溶液中のヨウ素の主な化学形が I^- になっていること、さらに、100°C の土壌は加熱の影響は徐々に認められなくな

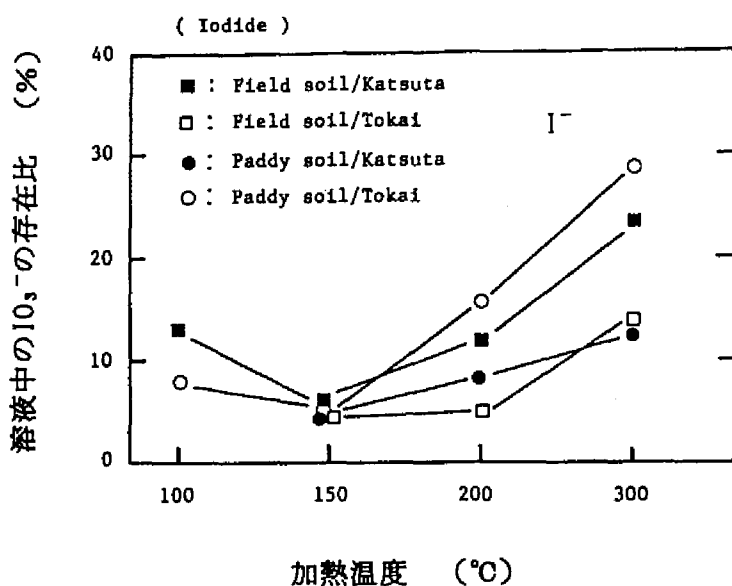


図 4.16 水溶液中のヨウ素の化学形の変化(8日後)
(I^- の化学形で添加)

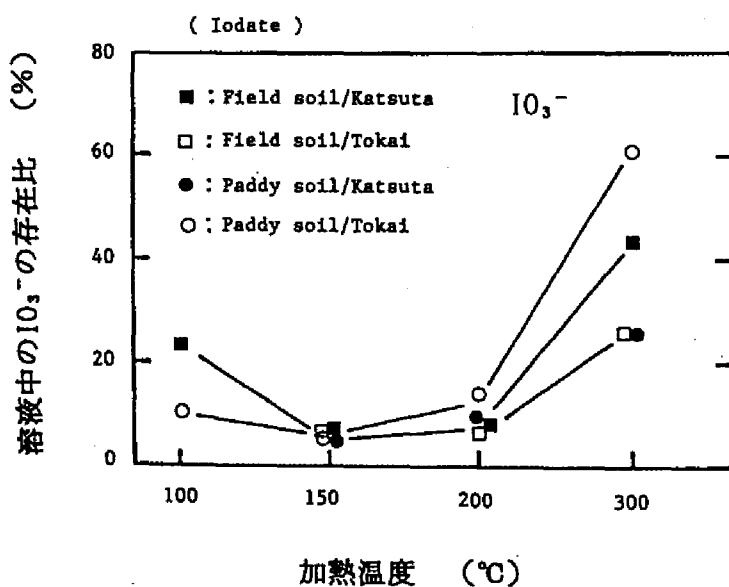


図 4.17 水溶液中のヨウ素の化学形の変化(8日後)
(IO_3^- の化学形で添加)

り、湿潤土壌の吸着パターンに似てくるが、湿潤土壌の吸着パターンは、 I^- と IO_3^- ではほとんど同じであることの2点によるものと思われる。150℃および200℃の土壌では、 IO_3^- で添加した場合は、1時間後は I^- のそれと比べてかなり吸着するが、その後しだいに減少し、8日後は I^- の吸着率とほとんど同じである。この原因は、前述したように、ヨウ素の化学形の変化によるものと思われる。

300℃の土壌では、8日後の水溶液中のヨウ素の化学形は、 I^- と IO_3^- がともに存在するが、それよりも加熱処理による吸着容量の減少が大きいこと、および畑・水田土壌とも I^- よりも IO_3^- で添加した方が良く吸着されることが分かる。

(4) γ 線照射土壌

γ 線照射土壌を用いて、ヨウ素の土壌への吸着に及ぼす土壌微生物の影響を検討した。その結果を図4.18および図4.19に示す。図の縦軸は吸着率を、横軸は経過時間を表す。これらの結果から、どの土壌もその吸着パターンは湿潤土壌のそれとほとんど同じであることが分かる。吸着の程度は、 γ 線照射土壌の方が少し小さいが、その差は数%以下である。この結果から、ヨウ素の土壌への吸着に関して、 I^- および IO_3^- のどちらの化学形でも土壌微生物はあまり関与していないことが分かる。

4. 3. 4. 結 語

水田および畑土壌中の ^{129}I の挙動を明らかにするためバッチ実験を行った。実験は、 I^- および IO_3^- の化学形に調整した ^{125}I を用いて、吸着に及ぼす化学形の影響、乾燥条件による違い、さらに、土壌微生物の影響等を検討した。得られた結果を整理すると、

- ① 湿潤土壌および風乾土壌の場合、 I^- および IO_3^- の化学形とも良く土壌に吸着する。1日後には、添加したヨウ素の90%以上が吸着される。
- ② 100℃の土壌では、吸着容量が小さくなるが、その程度は水田土壌の方が畑土壌よりも大きい。しかし、時間が経過するにしたがい、吸着率が増加し、湿潤土壌または風乾土壌の吸着率に近づく。
- ③ 加熱処理の温度により、水溶液中のヨウ素の化学形の変化が異なる。100～200℃に加熱した土壌では、水田および畑土壌とも、90%以上が I^- の化学形で存在する。300℃の土壌では I^- と IO_3^- が共存している。 I^- の化学形で添加した場合は70～90%が、 IO_3^- の場合は40～80%が I^- である。

Gamma irradiated soils (iodide)

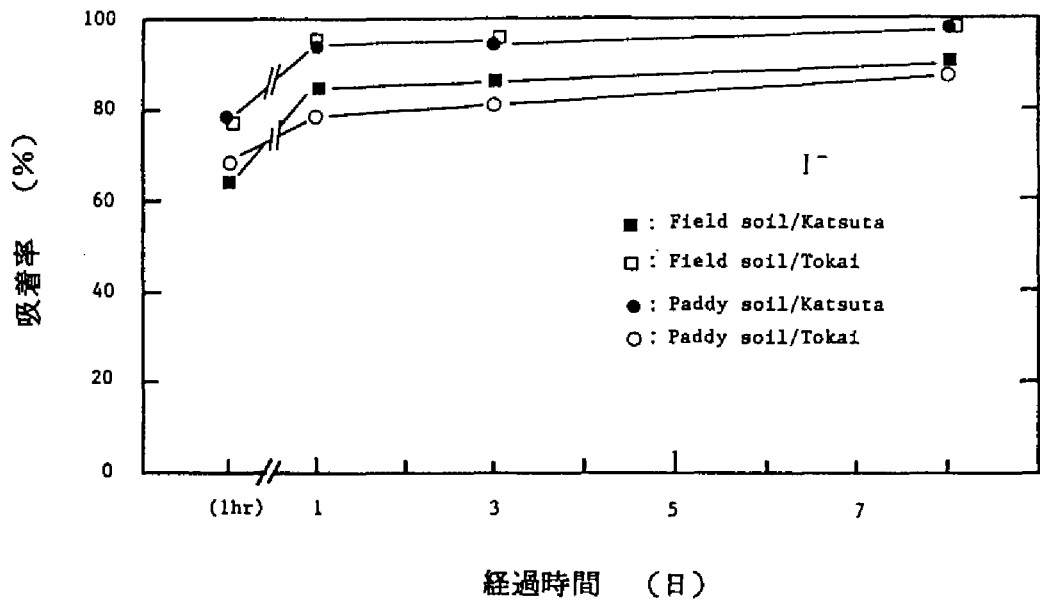


図 4.18 I^- の γ 線照射土壌への吸着

Gamma irradiated soils (iodate)

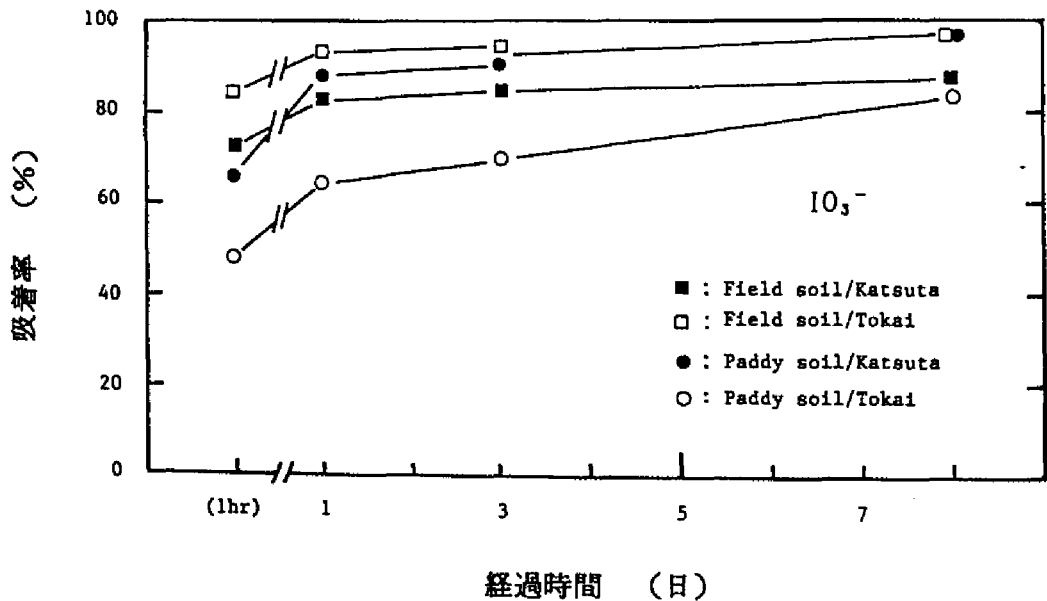


図 4.19 IO_3^- の γ 線照射土壌への吸着

④ I^- の化学形で添加した場合、150～300℃の土壤は、水田および畑土壤ともに、吸着率が20%前後である。一方、 IO_3^- の場合は、1時間後の吸着率は50～70%と高く、湿润土壤と同様の吸着率であるが、その後、吸着率が低下してゆき、8日後には40%になる。

⑤ γ 線照射土壤の吸着パターンは、湿润土壤のそれとほとんど同じである。これらの結果から、次のようなことが明らかとなった。

(i) ヨウ素の水田・畑土壤への吸着に関し、土壤微生物は、それほど関与していない。

(ii) I^- の吸着に関しては、乾燥条件の違いが吸着に大きく影響する。150℃以上に加熱することにより、土壤の有する吸着容量は、40%以下になる。

(iii) IO_3^- の吸着については、 I^- とは異なる。加熱による影響を I^- ほど受けない。しかし、水溶液中のヨウ素の化学形の変化も考慮する必要があり、水溶液中のヨウ素の化学形についてその経時変化を検討する必要がある。

水田および畑土壤は多くの土壤有機物を含むため、加熱による乾燥条件の違いによるヨウ素の吸着に違いは、土壤有機物の熱的变化によるためとも考えられる。しかし、土壤有機物の熱的变化に関する報告は少なく、今後、アルカリや酸により分離した土壤有機物を用いて、実験を進める必要がある。

本節において、 I^- および IO_3^- の化学形とも、水田および畑土壤に対して高い吸着性を示した。これは、灌漑水中の ^{129}I は、これらの土壤表層に蓄積される可能性があることを示すと考えられる。

- 1) 大桃洋一郎・内田滋夫・住谷みさ子：I-129の環境中における挙動と被曝評価上の問題点，日本原子力学会誌，27，p388-394 (1985)
- 2) 内田滋夫・大桃洋一郎・鎌田 博・佐伯誠道：土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル，日本原子力学会誌，26，p935-941 (1984)
- 3) 関 幸紀・高橋俊之・池田長生：土壌中の放射性ヨウ素の形態別吸着挙動，Radiol isotopes, 33, p51-54 (1984)
- 4) 内田滋夫・鎌田 博：土壌中における放射性ヨウ素の移動（I），保健物理，18，p337-343 (1983)
- 5) Hamid, A. and Warkentin, B. P.: Retention of I-131 used as tracer in water movement studies, Soil Sci., 104, p279-282 (1967)
- 6) 福井正美・桂山幸典：飽和砂層内における放射性核種の挙動に関する研究（II）保健物理，11，p193-200 (1976)
- 7) 山県 登：“微量元素－環境科学特論－”，産業図書，p48 (1977)
- 8) Muramatsu, Y., Christoffers, D. and Ohmomo, Y.: Influence of Chemical Forms on Iodine Uptake by Plant. J. Radiat. Res., 24, p326-338 (1983)
- 9) 井上頼輝・森澤真輔・宮武法善：非イオン状Y-90の地中移動，日本原子力学会誌，18，p445-451 (1976)
- 10) 柴田雄次・山崎一雄：“無機化学全書 III ハロゲン”，丸善，p277 (1958)
- 11) 福井正美・桂山幸典：飽和砂層内における放射性核種の挙動に関する研究（I）保健物理，11，p105-113 (1976)
- 12) 井上頼輝・森澤真輔：放射性核種の土壌と水との間の分配係数値，日本原子力学会誌，18，p524-534 (1976)
- 13) 福井正美：飽和土壌水中における放射性核種の非線形吸着モデルに関する研究，保健物理，16，111-121 (1981).
- 14) Tensho, K. and Yeh, K. L.: Radioliodine Uptake by Plant from Soil with Special Reference to Lowland Rice, Soil Sci. and Plant Nutr., 16, p30-37 (1970)
- 15) Tensho, K. and Yeh, K. L.: Study on Iodine and Bromine in Soil-

Plant System in Relation to the "Reclamation-Akagare" Disease of Lowland Rice by Means of Radioisotope-Techniques, RADIOISOTOPES, 19, p26-31 (1970).

- 16) 天正 清：湛水土壌・水稻系における微量無機成分の挙動に関するRI技法による研究，「近代農業における土壌肥料の研究 第4集」（日本土壌肥料学会編），養賢堂，p65-71(1973)
- 17) 結田康一：土壌から植物へ，第7回放医研環境セミナー報文集「最近の環境における放射性ヨウ素の緒問題」（NIRS-M-35），p91-106（1979）
- 18) 結田康一：経根吸収、第13回放医研環境セミナー報文集「放射性物質の農作物への移行」（NIRS-M-65），p97-108（1987）
- 19) 結田康一：土壌中ヨウ素の化学形態、第12回放医研環境セミナー報文集「最近の環境における放射性核種の化学形が被曝線量評価に及ぼす影響」（NIRS-M-57）p46-52（1986）
- 20) Whitehead, D.C. : The Sorption of Iodide by Soils as Influenced by Equilibrium Conditions and Soil Properties, J. Sci. Fd Agric., 24, p547-556 (1973)
- 21) Whitehead,D.C. : The Sorption of Iodide by Soil Components, J. Sci. Fd Agric., 25, p73-79 (1974)
- 22) Whitehead,D.C. : The Influence of Organic Matter, Chalk and Sesquioxides on the Solubility of Iodide, Elemental Iodine and Iodate Incubated with Soil, J. Soil Sci., 25, p461-470 (1974)
- 23) Whitehead,D.C.: Uptake by Perennial Ryegrass of Iodide, Elemental Iodine and Iodate Added to Soil as Influenced by Various Amendments, J. Sci. Fd Agric., 26, p361-367 (1975)
- 24) Zyrin,N.G. and Zborishchuk,Y.N. : Iodine Content in the Plow Layer of Soils in the European USSR, Soviet Soil Sci., 7, p558-563 (1975)
- 25) Saas,A. and Grauby,A. : An Approach to Investigations of the Behaviour of Iodine-129 in the Atmosphere-Soil-Plant System, Health Phy., 31, p21-26 (1976)

第5章 放射性ヨウ素の経根吸収経路による農作物への移行

5.1. 緒論

長半減期核種である ^{129}I の農作物への移行経路は、直接沈着だけではなく、経根吸収経路も考慮^{1),2)}しなければならない。本章では、その経根吸収経路からの農作物への移行を検討する。一般に、土壌中の固相に吸着・保持されたヨウ素は土壌溶液中に溶出し難いと考えられているが、環境中に放出された ^{129}I は、地表面に蓄積する傾向がある^{3),4)}うえに、土壌の環境因子(pH、水分含量、Eh〔酸化還元電位〕等)の変化により、土壌溶液中へ溶出し、農作物に吸収されやすくなる^{5),6)}ので、経根吸収による土壌から農作物への移行も考慮する必要がある。

経根吸収経路による農作物への移行に関する研究が、我が国ではほとんどない。そこで、水耕法による短期間の吸収実験から、RIの経根吸収経路からの被曝線量評価上クリティカルとなる農作物の選定を行う方法について検討し、後述する移行速度を提案した。そして、この移行速度を用いて、葉菜類、果菜類、根菜類、豆類および水稻への移行や作物体内分布を求め、 ^{129}I の被曝評価上クリティカルと考えられる農作物の選定を試みた。また、同様の水耕実験により求めた、 ^{137}Cs や ^{85}Sr 等の農作物(可食部)への移行速度を用いて、移行係数の変動要因である核種間差や作物間差を検討した。さらに、放射性ヨウ素は有機物を多く含む水田や畑土壌に吸着されると考えられるため、土壌表層における ^{129}I の蓄積傾向およびこの不均一分布条件下での水稻への移行を調べる必要がある。ここでは、水田の田面水から ^{129}I が供給された場合の土壌中の分布および水稻各部位への移行量を求めた。

5.2. 水耕法による農作物への移行および作物体内分布

5.2.1. 実験目的

これまでの放射性ヨウ素の放射生態学的研究は、主として、 ^{131}I が対象であったため、葉菜や牧草への沈着経路からの移行に研究の重点がおかれてきた。したがっ

て、放射性ヨウ素の経根吸収経路による移行に関する研究は少ない⁷⁻⁹⁾。本節での研究は、放射性ヨウ素の葉菜類（コマツナとホウレンソウ）、果菜類（ナスとキュウリ）、根菜類（ハツカダイコン）、豆類（大豆）および水稲の可食部への移行速度と作物体内での分布を求め、その作物間差から、¹²⁹Iの被曝評価上クリティカルと考えられる農作物の選定を試みたものである。

被曝線量評価モデルに用いられる¹²⁹Iの農作物（可食部）への移行係数を求めるためには、実態に即した栽培法（たとえば畑作物の場合は土耕法）を用いる必要がある。しかし、作物間差や作物体内での分布を知るためには水耕栽培、土耕栽培いずれの栽培法を用いても良いと考えられる。培地中のヨウ素の化学形態の変化の追跡や根のサンプリングには水耕栽培の方が実験法として有利である。本節では、水耕法による短期間の吸収実験データから、RIの農作物への移行量を評価するための移行速度（TR）〔後述〕を提案し、それを用いて、被曝線量評価上クリティカルと考えられる農作物を選定した。ヨウ素は、水溶液中では主として I^- または IO_3^- の化学形で存在するが、経根吸収によるヨウ素の農作物への移行に関しては、 I^- の化学形の方が IO_3^- の場合よりも吸収されやすい⁵⁻¹⁰⁾。従って、本研究においてはすべて I^- の化学形に調整した水耕液を用いて実験を行った。

実際のフィールドにおいては、土壌中の目的元素の濃度変化は一般に少ないが、ポット栽培の場合はその変化を無視することができない。本節では、ポット栽培試験を実施するに当たっての問題点についても検討を加えた。

5. 2. 2. 移行速度（TR）について

土壌から農作物へのRIの移行量を予測する方法の一つに移行係数モデル¹¹⁾がある。これは、移行係数（transfer factor: TF）をあらかじめ求めておき、土壌のRI負荷量から作物体内のRI濃度を予測するものである。TFの値は、その定義上、播種から収穫期まで農作物を栽培しなければ求めることは出来ないが、RIトレーサ実験に際してはRI汚染土壌（固体特殊不燃物）処理の制約がある。したがって、水耕法による短期間の吸収実験を行い、TFのかわりに、吸収実験期間における平均移行速度（transfer rate: TR）を求めた。TRは次式で定義した。

$$TR = \frac{\text{実験期間中に農作物中に蓄積したRI量} \quad (Bq \cdot g^{-1} \text{ [wet]})}{\text{水耕液中のRI平均濃度} (Bq \cdot g^{-1}) \times \text{吸収実験期間} \quad (\text{days})} \quad (5-1)$$

Muramatsuら¹⁰⁾は同様の水耕実験により、水耕液から農作物への放射性ヨウ素の移行を表わす係数として、移行率 (activity ratio: AR) を導入した。ARは次式で定義される。

$$AR = \frac{\text{実験開始からサンプリングまでに} \\ \text{農作物中に蓄積したRI量 (Bq} \cdot \text{g}^{-1} [\text{wet}])}{\text{水耕液中のRI平均濃度 (Bq} \cdot \text{ml}^{-1})} \quad (5-2)$$

このARは、式(5-2)からわかるように、ある期間における作物と水耕液中のRI濃度比であるため、吸収実験期間を明記する必要がある。なぜならば、吸収期間が異なればARも異なるからである。

同一作物について、吸収に及ぼすRIの化学形の影響や担体濃度の影響等をみる場合には、TRを用いてもARを用いても良いが、作物間差をみる場合には、生育段階をそろえた農作物を用い、1日当たりの移行比であるTRを求める必要がある。異なる作物種において、生育段階をそろえるには、作物生理的観点からほぼ同一の生育段階であることを判定する必要がある。被曝線量評価上は収穫期が最も重要であるが、農作物の中には、開花期以前に収穫するもの（たとえば葉菜）もあれば、開花期以後の結実期に収穫するものもあり、被曝線量評価上重要な意味を持つ収穫期が、作物生理学上必ずしも同じ生育段階ではないことがある。従って、この両者を同時に満足させるように生育段階をそろえることは事実上不可能である。そこで、本研究においては、収穫期に近い時期の農作物を用いて、連続吸収実験から求められた可食部へのTRを求めた。

上述の議論は、式(5-1)の農作物への蓄積に関する問題であるが、分母の「水耕液中RI平均濃度」に関しても考慮すべき問題がある。もし、水耕液量を無限大にとれば、農作物への移行による水耕液中のRI濃度変化が無視でき、分母のRI濃度はほぼ一定となるが、現実的には、ある程度水耕液量を規制せざるを得ない。その上、前述したように、放射性ヨウ素は農作物の根への移行が著しく、水耕液中の放射性ヨウ素濃度を一定に保つのはかなり困難である。このような場合、式(5-1)の「水耕液中のRI平均濃度」として、どのような値をとれば良いのかが問題となる。

根へ移行したRIも、地上部可食部へ転流する可能性があるため、根への移行もある程度地上部可食部への移行と見るならば、初期濃度を「水耕液中のRI平均濃度」

として用いるという考え方も成り立つ。しかし、まず根へRIが移行し、次ぎに、水耕液に残ったRIが水とともに吸収され、地上部へ運ばれる場合、すなわち根に移行したRIの再転流が起こらない場合は、初期濃度を用いることが適当であるとは考え難い。そこで、本研究では、水耕液中の ^{131}I 濃度をできる限り多くの頻度で測定し、時間の重み付けをした平均値を用いた。

このTRを用いることにより、水耕法による短期間の吸収実験から、経根吸収経路による農作物へのRI移行に関し、クリティカルとなる農作物の選定が可能である。

5. 2. 3. 実験材料および実験方法

(1) 供試農作物

実験に用いた農作物は、水稻 (*Oryza sativa* cv. Koshihikari)、葉菜類 (コマツナ、*Brassica campestris* L., ホウレンソウ、*Spinacea oleracea* L.)、果菜類 (キュウリ、*Cucumis sativus* L., ナス、*Solanum melongena* L.,)、根菜類 (ハツカダイコン、*Raphanus sativus* L.) および豆類 (大豆、*Glycine max* Merr.) の7種類である。

これらの農作物のうち、水稻は屋外のビニールハウスで、他の畑作物は人工光の室内予備栽培室において水耕栽培し、一定期間生育させたあと、放射性ヨウ素の吸収実験に供試した。

(2) 水耕液

水稻については、春日井水耕液¹²⁾、その他の畑作物については、園芸試験場の標準培養液¹³⁾の1/2希釈液を用いた。これら2種類の水耕液の成分組織を表 5.1に示す。春日井水耕液は水稻の成長に伴って塩濃度を変えてゆくものであるが、表 5.1には、放射性ヨウ素の経根吸収実験に供試した時期の成分(8月7日-8月15日用)を示した。水耕液のpHは、作物の成育に重要な影響を及ぼす因子の一つであるが、春日井水耕液のpHは 5.8に、標準培養

表 5.1 標準培養液および
春日井水耕液の元素組成

Standard culture solution		Kasugai solution for rice plant	
Element	mg/l	Element	mg/l
KNO ₃	808	N	10
Ca(NO ₃) ₂ ·4H ₂ O	950	P ₂ O ₅	5
NH ₄ H ₂ PO ₄	115	K ₂ O	10
MgSO ₄ ·7H ₂ O	500	CaO	2
FeCl ₃ ·6H ₂ O	15	MgO	3
H ₂ BO ₃	3	FeO ₃	1
MnSO ₄ ·4H ₂ O	2		
ZnSO ₄ ·7H ₂ O	0.22		
CuSO ₄ ·5H ₂ O	0.05		
NaMoO ₄	0.02		

液の1/2希釈液のpHは、ハウレンソウ以外は約pH 7.0に調整した。ハウレンソウの場合は、大理石の小片を水耕液中に入れ、pHを弱アルカリに保つようにした。

(3) 経根吸収実験法

経根吸収実験は、湿度、温度、照明時間などの栽培条件を制御できる植物栽培装置〔SHERER, CEC-36-10型〕（写真 5.1）内で行った。無担体状の Na^{131}I を添加した水耕液（以下、 ^{131}I 水耕液と記す）をいれたポットに農作物を移植し、一定期間育成させた後、農作物の各器官に移行した ^{131}I を求めた。

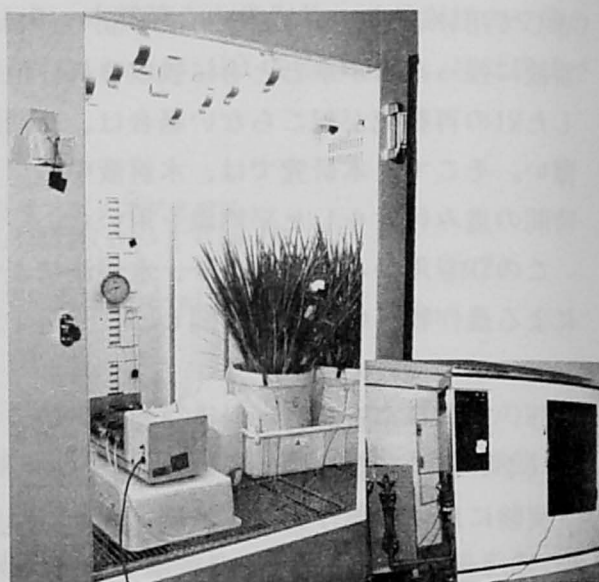


写真 5.1 植物栽培装置

すなわち、葉菜類および根菜類、収穫期のものを用い、24時間の吸収実験を行った。果菜類と豆類については、開花期のものを用い、収穫期まで連続吸収実験を行った。水稻の場合は、開花期のものを用い、湛水状態を継続している乳熟期まで連続吸収実験を行った。連続吸収実験を行った理由は、可食部である子実への放射性核種の移行が、子実の生育段階により異なるため、開花期から、収穫期（水稻の場合は、乳熟期）までの期間をカバーすることにより、子実への放射性ヨウ素の移行に関して、その生育段階による違いを取り除くためである。

ハツカダイコンの可食部である塊茎は、通常の畑栽培では、土と接触しているため、その表面へのRI吸収等による移行が考えられるが、本実験では経根吸収からの移行量のみを求めることを目的とし、塊茎の部分は水耕液に直接ふれないように液面上に保持し、根部だけが水耕液に接するようにした。

水稻については5連で、畑作物のうち、果菜類以外は、3連で実験を行った。果菜類の場合は、植物栽培装置内のスペースの関係で、1ポットでしか実験を行えなかった。本研究で示す移行速度の数値は、果菜類以外はすべて5連または3連の平均値である。

連続吸収実験においては、1-4日ごとに ^{131}I 水耕液を全部更新するか、あるいは

は部分的に追加して液量をできる限り一定に維持するようにした。また、水耕液を定期的に採取し、その ^{131}I 濃度変化を求めた。

水耕液量は、供試作物の大きさや蒸散量などを考慮して、コマツナでは250ml、ホウレンソウおよびハツカダイコンでは、150ml、水稻 1.3l、ナス、キュウリおよび大豆では3lとした。

植物栽培装置内の最高および最低温度は、それぞれ30℃および22℃である。湿度は $85 \pm 5\%$ 、照明時間は12時間に調整した。照度は、光源下30cmで約2万ルクスである。

(4) 放射性ヨウ素の化学形について

水耕液に無担体状の放射性ヨウ素(Na^{131}I)を添加後、同位体交換の反応速度の違い¹⁴⁾を利用して、その化学形を調べた。その結果、95%以上が I^- の化学形で存在していることがわかった。Muramatsuら¹⁰⁾は、植物(コマツナ)生育下の水耕液中の IO_3^- は、次第に I^- へ変化する傾向があるが、 I^- の場合は他の化学形に変化しないことを報告している。この結果から、実験期間中、 ^{131}I 水耕液中の放射性ヨウ素の化学形は I^- であり、他の化学形には変化しないものと考えられる。

5. 2. 4. 実験結果および考察

(1) 水耕液中の放射性ヨウ素の濃度変化について

水耕液中の放射性ヨウ素は、後述するように、根へ移行しやすい。したがって、農作物を ^{131}I 水耕液へ移植後、水耕液中の ^{131}I 濃度は急激に減少する。表 5.2 は、 ^{131}I 水耕液へ農作物を移植してから1日

後の水耕液中 ^{131}I 濃度(相対濃度 C/C_0)を示したものである。移植後の水耕液中の ^{131}I 濃度は、農作物の種類により異なるが、同種の農作物でも、根の表面積、水耕液量、担体濃度、さらに農作物の生育段階等の因子により異なるものである。表5.2 から明らかであるように、ハツカダイコンでは、移植後1日後の水耕液中 ^{131}I 濃度は、すべて50%以下であった。

表 5.2 1日後の水耕液中の

^{131}I の相対濃度

Plant species	C/C_0^*	Plant species	C/C_0^*
Rice plant	0.38	Komatsuna	0.44
Cucumber	0.16	Spinach	0.46
Eggplant	0.33	Radish	0.75
Soybean	0.25		

* C : 1日後の水耕液中の ^{131}I 濃度
 C_0 : 水耕液中の初期濃度

(2) 放射性ヨウ素の作物体内分布について

水稻の各器官、すなわち、穂（モミ、枝梗および穂軸）、葉身、節、茎および根へのTRを図5.1に示す。これは、 ^{131}I 水耕液へ移植後、11日間の連続吸収実験から得られたものである。根へのTRは、他の器官と比べて非常に大きい。茎（culms）や節（nodes）へのTRは0.6-0.7でほぼ等しく、葉身のそれは、約0.4である。穂（ears）へのTRは0.17で葉身や茎、節のTRの1/3-1/5である。

モミにおける放射性ヨウ素の分布について、山口ら¹⁵⁾は、茎葉基部吸収の場合には玄米の方に、経根吸収の場合はモミガラの方に多く分布することを報告している。したがって、玄米へのTRは穂のそれよりも小さくなると考えられるが、この点については、胚の生長段階を考慮して、実験を進める必要があり、本章4節においてくわしく述べる。

キュウリおよびナスの各器官へのTRを図5.2に示す。キュウリは14日の、ナスは19日の連続吸収実験から得られたTRである。図5.2から、水稻の場合と同様、根への放射性ヨウ素の移行が大きいことがわかる。地上部の各器官へのTRについては、子実へのTRが他の器官へのTRよりも小さい。キュウリでは、子実へのTRは葉や茎の1/10-1/15、ナスでは葉の約1/3、茎の約1/10である。

エダマメおよび大豆のTRを図5.3に示す。大豆の実験では、 ^{131}I 水耕液へ移植後、28日間連続吸収実験を続け、エダマメ、葉および茎の一部をサンプリングして、TRを求めた。その後、大豆をサンプリングするため、水耕液中の養分を徐々に少なくしてゆき、最終的には、50日間吸収実験を行った。

28日間の連続吸収実験における葉および茎へのTRは、0.3-0.5である。エダマメとサヤは、どちらも0.06でほぼ等しく、葉や茎のそれの1/5-1/10である。また、50日経過後の大豆とサヤへのTRは、0.3-0.5であり、エダマメのそれと比べると約5倍大きい。この理由の一つとして、大豆は乾燥状態であるため、1g当たりの ^{131}I 量がエダマメよりも多い、すなわち、みかけ上、濃縮されたことが考えられる。しかし、これだけでは5倍も大きくなる理由を説明することはできない。エダマメから大豆になりつつある状態において、水耕液中の養分を減少させても、かなりの量の水分または養分が吸収され、蓄積されると考えられる。

図5.4には、コマツナおよびホウレンソウ、図5.5にはハツカダイコンの各器官へのTRを示した。前述したように、これらは、24時間の吸収実験により得られたものである。これらの農作物においても、根への ^{131}I の移行が大きく、地上部への移

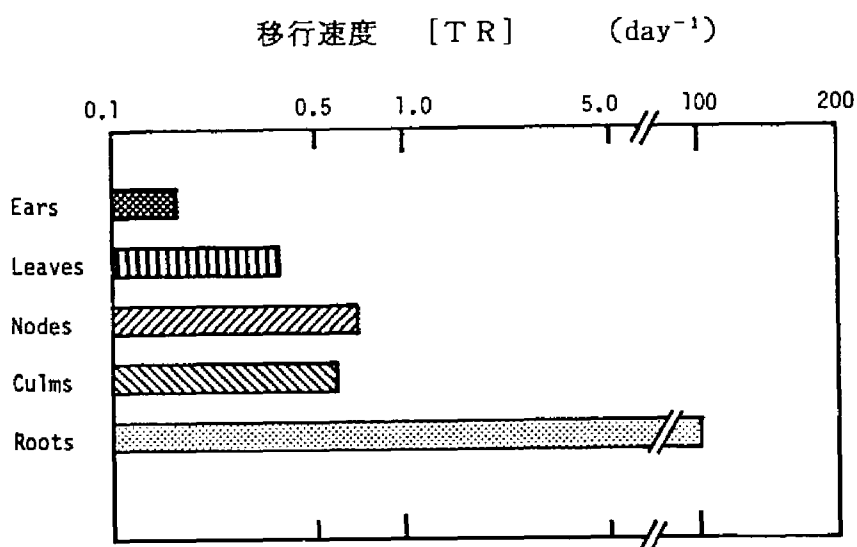


図 5.1 水稻の各器官への¹³¹Iの移行速度

水耕液：春日井水耕液

吸収実験期間：11日間

数値：5連の実験の平均値

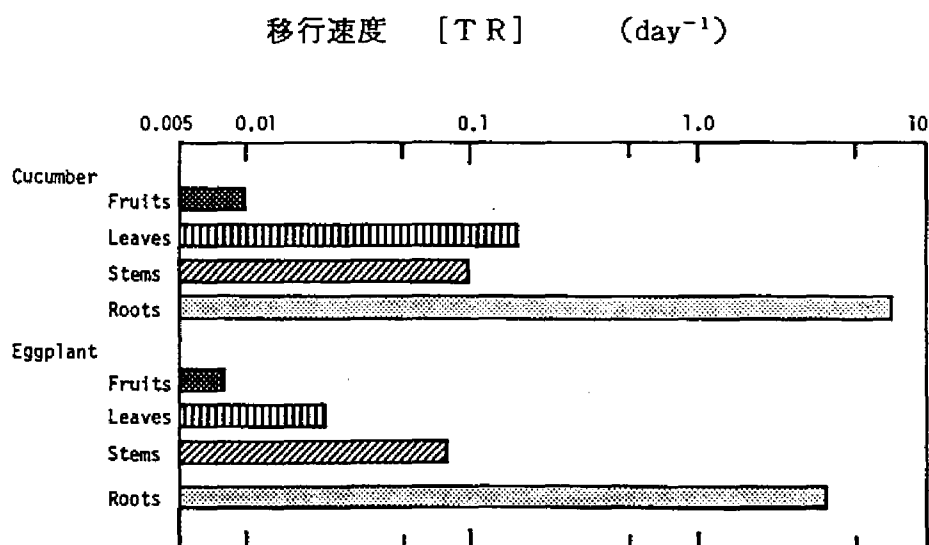


図 5.2 キュウリおよびナスの各器官への¹³¹Iの移行速度

吸収実験期間：14日間（キュウリ）

11日間（ナス）

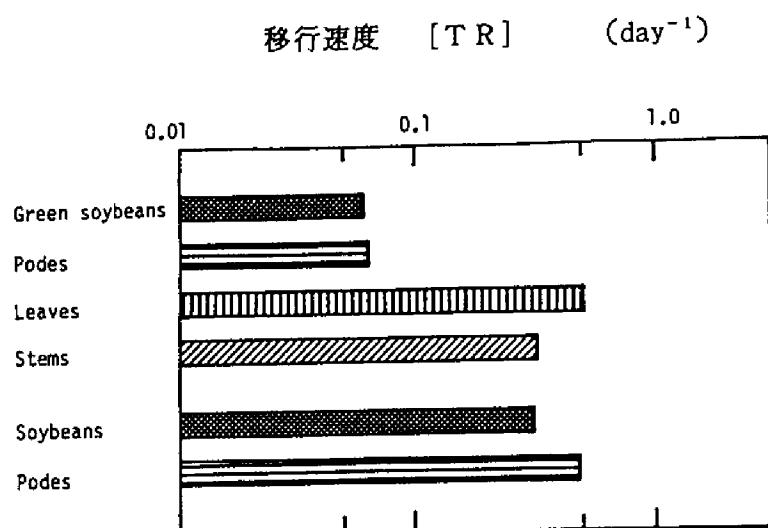


図 5.3 エダマメおよび大豆の各器官への
¹³¹Iの移行速度

吸収実験期間：28日間(枝豆)
50日間(大豆)
数値：3連の実験の平均値

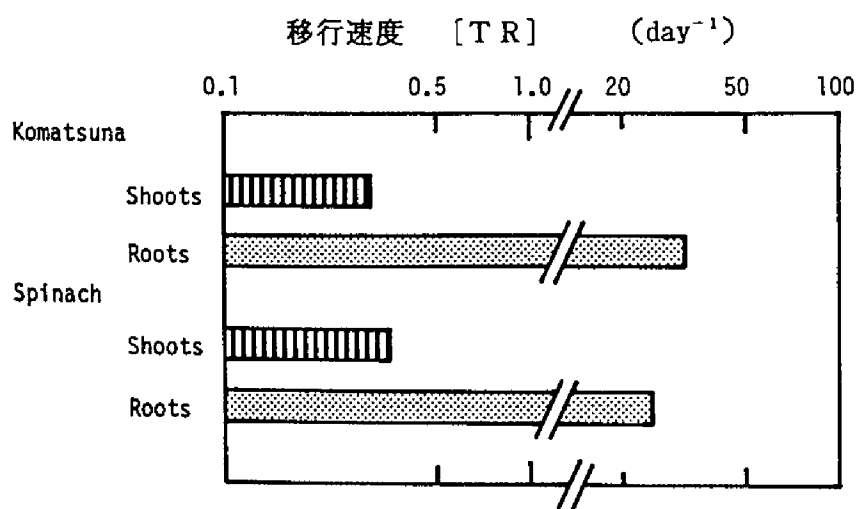


図 5.4 コマツナおよびホウレンソウへの
¹³¹Iの移行速度

吸収実験期間：1日間
数値：3連の実験の平均値

行は小さい。特に、ハツカダイコンの塊茎へのTRは、約0.2で葉のその1/3-1/4である。

この吸収実験において、すべての農作物について、根へのTRは地上部の各器官へのTRよりも、1桁ないし2桁大きい値を示した。Muramatsuら¹⁰⁾は、地上部を切り取ったコマツナを用いて、また、住谷ら¹⁶⁾は、地上部を切り取ったトマトを用いて、吸収実験を行い、地上部がなくても地上部がある場合と同様、根への放射性ヨウ素の蓄積があることを報告している。地上部を切り取った場合、農作物の水分吸収量は極端に少なくなるが、これらの結果は、農作物の根への放射性ヨウ素の移行は、水分吸収によるものではないことを示唆している。しかし、根の表面への単なる付着であるのか、根の生理作用による吸収であるのかは不明である。

我が国では、西欧諸国と比較すると、消費されている農作物の種類が多いので、できるだけ多くの農作物について、実態に即した栽培法でTRやTFを求めるとともに、根に移行した放射性ヨウ素が可食部である器官へ再転流するかどうかについても検討を加える必要がある。

(3) クリティカルな農作物の選定について

水稻および6種類の畑作物の可食部への放射性ヨウ素のTRを抜き出して表5.3に示す。コマツナとハウレンソウは0.3-0.4でこれらの農作物の中で最も大きい。大豆もこれら葉菜類のTRと同程度であるが、エダマメでは、前述したように、大豆の約1/5である。ハツカダイコンと水稻は、0.17-0.18で葉菜類の約1/2である。果菜類は、0.01であり、他の農作物と比べて1桁小さくなっている。被曝評価上、問題となるのは播種から収穫までに可食部に蓄積されたRI量であり、この蓄積量は、TRと生育期間の積で表される。したがって、TRだけではなく、生育期間も考慮して¹²⁹Iの被曝評価上、クリティカルな農作物を選定する必要がある。

葉菜類のTRは大きく、これらの農作物の成育期間が1-1.5か月と比較的短くても、蓄積量は大きくなると予想される。ハウレンソウは、中性や弱アルカリ性土壌で良く生育するが、このような土壌pHでは、土壌に吸着していたヨウ素が液相へ遊離しやすくなる⁶⁾。したがって、葉菜類の中でも、特にハウレンソウは土壌中のヨウ素を吸収し易い農作物である¹⁾と考えられる。

水稻については、TRは葉菜類のその約1/2であるが、生育期間が長く、さらに土壌に吸着したヨウ素は湛水条件下で液相に溶出してくる⁵⁾ため、葉菜類と同程度か、またはそれ以上蓄積される可能性がある。エダマメのTRは、それほど大きく

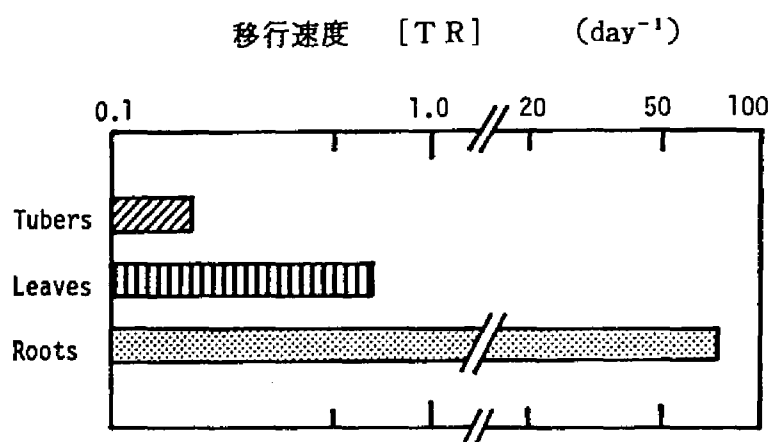


図 5.5 ハツカダイコンの各器官への
¹³¹Iの移行速度

吸収実験期間：1 日間

数値：3 連の実験の平均値

表 5.3 農作物（可食部）へ移行速度の比較（¹³¹I）

Plant species	TR to edible part (day ⁻¹)	Plant species	TR to edible part (day ⁻¹)
Rice plant	0.17	Komatsuna	0.31
Cucumber	0.010	Spinach	0.36
Eggplant	0.0080	Radish	0.18
Green soybean	0.062		
Soybeans	0.32		

ないが、大豆では葉菜類のそれと同程度であり、生育期間も比較的長いため、 ^{129}I の被曝評価上、重要な農作物と考えられる。一方、果菜類については、TRが小さく、成育期間が2ヶ月以上であっても、あまり蓄積しないと考えられる。

以上の結果から、今後、ハウレンソウ、水稻および大豆を重点に、実態に則した方法でTFを求めておく必要があることが判明した。

前述したように、ハツカダイコンの塊茎の部分は、 ^{131}I 水耕液面上に保持して、吸収実験を行ったため、表5.3 には、 ^{131}I の根への蓄積傾向が示されていない。図5.1、図5.2、図5.4 および図5.5 に示したように、すべての農作物において、根への ^{131}I のTRは他の器官へのTRよりも、1-2桁大きくなっている。これらは、根の部分に直接 ^{131}I 水耕液が接していたからである。土耕栽培においても、同様の傾向が観察されると予想されるので、根菜類は実態に則した栽培法によりTFを求めていかなければならない作物種の一つと思われる。

5.2.5. 結 語

種々の農作物を用いて経根吸収による放射性ヨウ素の移行について研究した。収穫直前のコマツナ、ハウレンソウ、およびハツカダイコン、開花期のキュウリ、ナス、大豆および水稻を無担体状の ^{131}I を添加した水耕液へ移植し、一定期間連続吸収実験を行い、各器官へのTRを求めた。その結果、短期間の水耕栽培実験により、RIの農作物への移行を検討する場合、つぎのことが明らかとなった。

- ① TR（単位時間当たりの農作物（可食部）への移行量と水耕液中のRI平均濃度との比）を用いることにより、作物間差が検討できること、
- ② 作物間差については、作物生理学上同じ生育段階の農作物を用いるのが望ましいが、被曝評価上重要である可食部への移行が得られない場合もあり、収穫前の農作物を用い、可食部へのTRを求めるのが現実的である、
- ③ 果実および子実へのTRは、その生育段階により異なるが、連続吸収実験により、生育段階による違いを取り除くことができる。
- ④ 放射性ヨウ素のように、根への移行により水耕液中の濃度が大きく減少する場合は、水耕液中のRI濃度を多くの頻度で測定し、時間の重み付けをした平均RI濃度を用いることにより、より現実的なTRが得られる。

また、農作物各器官へのTRについては、下記のことが明らかとなった。

- (1) すべての農作物において、根への放射性ヨウ素の移行が大きく、根へのTR

は他の器官よりも、1-2桁大きい。

(2) 水稻の穂へのTRは、地上部の他の器官へのその1/3-1/5 である。キュウリ、ナスの子実およびエダマメへのTR は、それぞれの農作物の葉や茎の 1/5-1/10である。また、ハツカダイコンの塊茎へのTRは、葉の1/3-1/4である。

(3) 大豆(実)へのTRは、エダマメのそれよりも約5倍大きい。これは、エダマメから大豆への過程における乾燥状態による「みかけ上の濃縮」だけではなく、この過程において、放射性ヨウ素の蓄積があるものと考えられる。

(4) 作物間差について検討した結果、葉菜類(コマツナとホウレンソウ)へのTRが最も大きく、水稻と根菜類(ハツカダイコン)は、葉菜類の約1/2、果菜類(キュウリとナス)は、1桁以上小さい。また、エダマメへのTRは小さいが、大豆へのそれは葉菜類とほぼ同じ程度であった。

これらの結果から、 ^{129}I の経根吸収についてはホウレンソウ、水稻および大豆が重要な農作物になると予想されるので、今後、実態に則した栽培法により、移行係数(TF)を求める必要がある。

5. 3. 水耕法による放射性核種の移行における作物間差と核種間差

5. 3. 1. 実験目的

RIの土壌から農作物への移行量を算定する基本的なパラメータである移行係数は、環境条件や栽培条件等によって変動する¹⁷⁾ことが知られている。Y.C.Ngら¹⁸⁾は、移行係数の変動幅および変動要因について検討し、作物間差が変動要因の一つであることを報告している。我が国では、食事に供される農作物の種類が多い^{16), 19)}ため、総ての農作物に対して1つの移行係数値を用いると、精度の良い被曝線量評価ができない。本節は6種類のRI(^{137}Cs , ^{85}Sr , ^{131}I , ^{65}Zn , ^{54}Mn および ^{60}Co)を添加した水耕液を用いて、水稻、ホウレンソウ、大豆、その他4種類の農作物の可食部へのRI移行に関する作物間差および核種間差を前節で述べた移行速度(TR)により検討したものである。

5. 3. 2. 実験材料および実験方法

(1) 農作物および水耕液

実験に用いた農作物および水耕液は、前節（第5章2節）で用いてものと同じである。すなわち、農作物は、水稻（*Oryza sativa* cv. Koshihikari）、葉菜類（コマツナ、*Brassica campestris* L.、ホウレンソウ、*Spinacea oleracea* L.）、果菜類（キュウリ、*Cucumis sativus* L.、ナス、*Solanum melongena* L.）、根菜類（ハツカダイコン、*Raphanus sativus* L.）および豆類（大豆、*Glycine max* Merr.）の7種類の農作物（5作物種）である。

水稻については、春日井水耕液¹²⁾、その他の畑作物については、園芸試験場の標準培養液1/2希釈液¹³⁾を用いた。

（2） 放射性核種および放射能濃度測定

実験に使用したRIは、 ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{131}I 、 ^{65}Zn 、 ^{54}Mn および ^{60}Co の6核種である。 ^{131}I を除く5核種はすべて塩化物を、 ^{131}I はNaIの化学形のものを用いた。これら6核種を上記の春日井水耕液または標準培養液(1/2希釈液)中に添加し、経根吸収実験に供した。これら6核種の担体濃度は、できるだけ無担体状のものを使用するようにした(^{137}Cs 、 ^{131}I 、 ^{60}Co など)が、それが購入できないものについては、なるべく担体濃度の低いもの(数ppb以下)を使用した。水耕液中には種々の元素が存在するため、RIに含まれる安定元素の影響は無視できるとと思われる。放射能の濃度測定は、水耕液試料および農作物試料ともGe半導体検出器 [PGT Model IGC 10] および波高分析器 [NORTHERN TN-1750] を使用した。測定試料の容量は、水耕液の場合は20ml、農作物の場合は、試料によってはかなり少ないのもあるため、水耕液試料と同じサンプルビンに数g~20gを入れて測定した。そして、別に計数効率を求めておき、計数値の補正を行った。

（3） 経根吸収実験法

経根吸収実験の実験条件および実験方法も前節と同じである。すなわち、湿度、温度、照明時間などの栽培条件を制御できる植物栽培装置 [SHERER, CEC-36-10型] 内において、RIを添加した水耕液（以下、RI水耕液と記す）を入れたポットに農作物を移植し、一定期間生育させた後、農作物の可食部に移行したRI量を求めた。水稻については5連で、畑作物のうち、果菜類以外は、3連で実験を行った。果菜類の場合は、植物栽培装置内のスペースの関係で、1ポットでしか実験を行えなかった。本節で示す移行速度の数値は、果菜類以外はすべて5連または3連の平均値である。

5. 3. 3. 実験結果および考察

表5.4 に、7種類の農作物の移行速度 (TR) を示す。水稻以外すべて可食部のTR値である。水稻の場合は、穂 (モミ、枝梗および穂軸) における値であり、可食部のTRではない。

(1) 核種間差

表5.4 から、 ^{137}Cs の場合は、穂のTRが 4.1とかなり大きく、次に葉菜類、豆類の順である。 ^{85}Sr の場合は、特に大きいTR値を示す農作物はなく、果菜類を除いて 0.5-1.3の範囲である。果菜類のTR値は 0.06-0.07 であり、他の農作物と比べて約 1桁小さい。 ^{131}I は、供試農作物可食部のすべてについて 1.0以下の値を示した。 ^{65}Zn は、全体的にTR値が大きく、土壌から農作物へ移行しやすい核種の1つである。特に、豆類では、大豆のTR値が70、エダマメのそれは約40と非常に大きくなっている。 ^{54}Mn の場合は、水稻とハウレンソウのTR値が5以上、また、 ^{60}Co ではハウレンソウのTR値が5で他の農作物と比べて大きくなっている。

このように、個々の核種についてもそれぞれの農作物によりTR値が異なるが、水耕液から農作物可食部への移行の難易は、おおよそ次の順である。

[易] $^{65}\text{Zn} > ^{54}\text{Mn} > ^{137}\text{Cs} \sim ^{60}\text{Co} > ^{85}\text{Sr} > ^{131}\text{I}$ [難]

表 5.4 移行速度の核種間差および作物間差

Species	^{137}Cs	^{85}Sr	^{131}I	^{65}Zn	^{54}Mn	^{60}Co
Rice plant	4.1	0.48	0.17	0.6	6.0	0.04
Cucumber	0.18	0.06	0.01	0.9	0.08	0.008
Eggplant	0.23	0.07	0.008	0.2	0.4	0.006
Green soybeans	0.39	0.62	0.06	36	0.9	0.4
Soybeans	0.74	1.1	0.32	69	1.7	0.7
Komatsuna	0.87	0.83	0.31	2.0	1.0	0.5
Spinach	0.96	0.67	0.36	11	5.0	5.0
Radish	0.47	1.3	0.18	3.0	2.0	0.5
Max	4.1	1.3	0.36	69	6.0	5.0
Min	0.18	0.06	0.008	0.2	0.08	0.006
Max/Min	20	20	50	350	80	830

(2) 作物間差

表5.4 の最下段にそれぞれの核種について、TR値の最大および最小値、さらにその比を示したが、この比から同一核種における作物間差を知ることができる。すなわち、 ^{65}Zn および ^{60}Co は7種類の農作物におけるTR値の幅は3桁であり、他のRIは2桁となっている。Y.C.Ngら¹⁸⁾ は、これまでに報告されているCsおよびSrの移行係数を作物種ごとに整理し、移行係数の変動幅を検討した。その結果、すべての農作物を対象とすると、両核種とも移行係数は3-4桁の幅があるが、農作物ごとに整理すると、それぞれの農作物について、その変動幅は2桁以内となることを明らかにした。

本節では、前述したように、一般の環境下におけるよりも制御された同一条件下で実験を行い、RIの水耕液から農作物可食部への移行を比較した。すなわち、温度や湿度、照度、日照時間などの気象条件をなるべく同じように設定し、さらに、水稻以外は同じ元素組成の水耕液を用いた。このような条件下においても、作物種によりTR値は2-3桁の違いがあることがわかる。したがって、野外において、移行係数を求めた場合は、気象条件や土壌の種類が異なることなどの変動要因が加わるので、移行係数の変動幅は更に大きくなると予想される。農作物摂取による内部被曝線量評価を精度良く行うためには、農作物の違いによる移行係数の違いが無視できないと思われる。特に、本研究により大きいTR値が得られた ^{137}Cs および ^{54}Mn の水稻（玄米、更に精白米）への移行、 ^{54}Mn および ^{60}Co のハウレンソウへの移行、さらに、大豆への ^{65}Zn の移行などに着目して移行係数を求め、その変動の幅を押さえておく必要がある。

同一作物種について、それぞれのRIのTR値を比較すると、キュウリとナスの場合は、 ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{131}I および ^{60}Co については、ほとんど同じ値であるのに対し、 ^{54}Mn では、キュウリよりもナスの方が、 ^{65}Zn ではナスよりもキュウリの方がTR値が約5倍程大きい。コマツナとハウレンソウでは、全体的にハウレンソウの方がTR値が大きい。特に、 ^{54}Mn および ^{65}Zn では、約5倍、 ^{60}Co では、10倍程大きい。このように、同一作物種においても、核種によってはTR値が5-10倍程異なることがわかる。ハウレンソウの場合は、他の畑作物と比べ、水耕液中のpHが高いことが大きいTR値となる一因である可能性もあるが、今後に残された研究課題である。

また、前述したように、本節では、根菜類であるハツカダイコンは、可食部である塊茎が直接RI水耕液に接触しないように保持して吸収実験を行っている。水耕法

によるRIの農作物への経根吸収において、根へのRIの蓄積は大きく、RIによっては、他の部位より2-3桁大きいことが報告²⁰⁾されている。しかし、村松ら²¹⁾は、山イモを用いて土耕法による放射性ヨウ素の経根吸収実験を行い、特にひげ根に放射性ヨウ素が蓄積されるという結果を得ている。このことから、可食部が直接RIを含む媒体に接触している根菜類については、土壌あるいは水耕液に直接接触させた実験を行い、ひげ根と可食部とを分けてTR値を求める必要がある。

5. 3. 4. 結 語

水稻、ハウレンソウ、大豆、その他4種類の農作物を用いて水耕法により短期間のRI吸収実験を行い、可食部へのRI移行に関する作物間差および核種間差を検討した。その結果、次のことが明らかとなった。

- 1) 水耕液から農作物可食部への移行の難易は、おおよそ次の順である。

[易] $^{65}\text{Zn} > ^{54}\text{Mn} > ^{137}\text{Cs} \sim ^{60}\text{Co} > ^{85}\text{Sr} > ^{131}\text{I}$ [難]

- 2) 特に大きい移行速度を示したものは、 ^{137}Cs および ^{54}Mn の水稻（穂）への移行、 ^{54}Mn および ^{60}Co のハウレンソウへの移行、さらに、大豆への ^{65}Zn の移行などである。
- 3) 本節で使用した7種類の農作物について、RIの可食部への移行に関する作物間差は、2-3桁であった。
- 4) また、同一作物種についても、 ^{65}Zn や ^{54}Mn などは、5-10倍の移行量の違いが認められた。

今後、環境中においてRIと類似の挙動を示すと考えられる元素（例えば、 ^{90}Sr に対してはCa、 ^{137}Cs に対してKなど）や重金属等の吸収に関する研究等と比較し、更に植物生理学的な面から検討を加えることにより、農作物の中で、特に移行係数の大きい農作物の選定が可能であろう。

5. 4. 土耕法による水稲への放射性ヨウ素の移行

5. 4. 1. 実験目的

水稲への経根吸収経路からの移行は、その栽培方法から、非耕作期間中に水田土壌表面に降下した ^{129}I が湛水することによって土壌溶液中に溶出し、吸収される場合と、湛水中に田面水に混入した ^{129}I が吸収される場合の2つ^{22,23)}が考えられる。前者の場合、非耕作期間中は、畑水分状態であり、この期間に水田に降下した ^{129}I は、土壌深部に浸透することなく、ほとんど表層に吸着される^{6,23)}が、表層に蓄積した ^{129}I は、水稲の栽培前に、耕うんにより作土層中に均一に分布すると考えられる。後者の場合、ガス状又は粒子状の ^{129}I が大気から直接、田面水に降下する場合や雨水とともに田面水に降下してくる場合、さらに、河川水や地下水中に ^{129}I が存在し、それを灌漑水として利用する場合等が考えられる。このように、 ^{129}I が水田に負荷される経路は様々であるが、 ^{129}I の土壌中における分布という観点からみると、前者はほぼ均一分布、後者では土壌表層における濃度が高く、下層では濃度が低いという不均一分布になっている。

このような状況で、湛水し、水稲を栽培した場合、 ^{129}I がどの程度、水稲へ移行してゆくかという事について、前者のヨウ素が均一に分布しているケースに関しては若干の報告^{5,24)}がある。しかし、後者の不均一分布に関しては報告がない。すなわち、田面水に混入した ^{129}I が水田土壌中でどのような挙動をするか、さらに、どの程度水稲へ移行するかという点については、ほとんど情報がない。

本節では、水田に湛水後、田面水に投与された放射性ヨウ素が水田土壌中でどのような分布をするか、そして、水稲諸器官、特に、モミ、玄米および白米ほどの程度移行するかを検討した。本施設のRI使用上の制約から、比較的半減期が長い ^{125}I （半減期：60日）を使用することができず、 ^{131}I （半減期：8日）を使用せざるをえなかった。したがって、実験は、全生育期間をカバーする様な長期間にわたる実験を実施することができないため、生育後期の開花期以後に焦点をしばって行った。

5. 4. 2. 実験方法

(1) 水稲の栽培

水田土壌の入手が困難であったため、水田土壌のかわりに畑土を用いた。茨城県東海村で採取した畑土（黒ボク土）を風乾したあとフルイ（5 mm）で小石や植物根

を取り除いた。a/5000ワグネルポットに、上記の畑土を肥料と一緒に入れ、良く混合した。肥料は、N-P-Kの配合率が12-16-14（くみあい苦土）のものをうい、ポット当たり5gを加えた。さらに、井戸水を加えてから、5月25日に水稻（日本晴れ）を1本、ポットのまん中に移植した。

これらの作業及び栽培は東海村にある放医研・東海圃場で行った。

（2） 経根吸収実験

8月中旬に東海圃場で栽培していたポットを東海施設内の植物栽培装置内に移し、栽培を続け、後述する3つの生育時期に ^{131}I を投与した。植物栽培装置内における栽培条件は、温度 $28 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $60 \pm 10\%$ 、照度30000 Luxである。

^{131}I は、無担体状の Na^{131}I 溶液を用いた。100~200 μCi の ^{131}I （液量3~5ml）を、田面水にピペットで数箇所点滴下した。点滴後、直ちに田面水を静かにかきまぜ、なるべく ^{131}I が田面水中で均一になるようにした。これらの作業は、生育中の水稻に ^{131}I が付着しないように行った。投与時期は、開花期直前、糊熟期および黄熟期の3期である。投与後、収穫期まで栽培を続け、収穫期に水稻の各部位をサンプリングし、 ^{131}I 濃度を測定した。開花期に投与した実験では、糊熟期にもサンプリングした。投与時期および吸収実験期間などを表5.5に示す。9月25日に投与したポットは、収穫後、解体し ^{131}I の土壤中鉛直分布を求めた。

（3） ^{131}I の土壌からの溶出実験

土壌に吸着した ^{131}I の土壌溶液への溶出を検討するため、水稻を収穫後、ポットを解体して得られた土壌試料の中から、表層土壌（0-1 cm）を用いて溶出実験を行った。ポリビンに上記の土壌試料5.0gと純水、または1000ppmのI⁻溶液（KI）50mlを入れ、24時間振とう（23°C）後、水溶液中の ^{131}I 濃度を測定し、分配係数（Kd）や溶出率を求めた。Kdは、吸着平衡後における土壌1g当たりの目的元素濃度と溶液1ml当たりのそれと

表 5.5 土耕実験条件

No.	^{131}I 添加日	吸収実験期間
S-1	8/21	18日間
S-2	8/21	40日間
S-3	9/10	20日間
S-4	9/25	6日間

* 開花日 8/23 → 9/1

の比で定義されており、本研究では、溶出実験開始前に測定した土壌中の ^{131}I 濃度と24時間振とう後に求めた溶液中の ^{131}I 濃度から算出した。また、溶出率は、土壌中に含まれる総 ^{131}I 量に対する水溶液中に溶出してきた ^{131}I の総量として定義²³⁾されている。

5. 4. 3. 実験結果および考察

(1) ^{131}I の土壌鉛直分布および分配係数

ポット内の ^{131}I の分布を図5.6に示す。これは、9月25日に水田面水に ^{131}I を添加し、10月1日に収穫したポット土壌中の鉛直分布である。前述したように、半減期が短い ^{131}I を使用したため、土壌鉛直分布は3回行ったトレーサ実験のうち、収穫期に近い黄熟期に投与した実験しか測定できなかった。鉛直分布は、土壌をポットの中心から3つの扇形に等分してそれぞれ測定した。図は、得られた3つの値の平均値を示した。図から、土壌中に存在する総量の約80%が、表層1cm以内にあることが分かる。この実験結果は、湛水条件下でも、田面水から供給される ^{129}I は、表層土壌に吸着される可能性を示唆している。

この実験は、生育後期のものであり、水稻の水分吸収量が少なく、水分吸収に伴う水の移動があまりない時期である。また、本研究は、すべてポット下部からの水の流出がないという条件で実験を行った。実際の栽培と同じように、灌漑水の流入・流出のある条件下で、実験を行う必要がある。また、ヨウ素の土壌への吸着の程度は、土壌の種類により異なる²⁵⁾ため、多くの種類の土壌を用いて、さらに実験を進めなければならない。

この表層0-1cmの土壌を用いて、 ^{131}I の溶出実験を行った。その結果を表5.6に示す。測定は、上澄み液だけではなくその濾液についても行ったが、違いは認められなかった。溶出率は、純水の場合は約6%、1000ppmの I^- 溶液(KI)を用いた場合は15%である。この実験結果から求めた分配係数も、あわせて表5.6に示した。純水の場合は約180である。この溶出実験結果から、土壌に吸着した ^{131}I は、脱離されがたいことが分かる。しかし、一旦土壌に吸着したヨウ素も植物の根の生理作用などにより脱離され、吸着されやすくなる^{26), 27)}という報告がある。そのため、田面水により水田土壌表層に供給された ^{129}I は、土壌に保持され、その後、根の生理作用などにより脱離し、一部は水稻に吸収され、残りは灌漑水と共に下方へ移動することも考えられる。いずれにしても、水田土壌中の安定ヨウ素濃度は、畑土壌

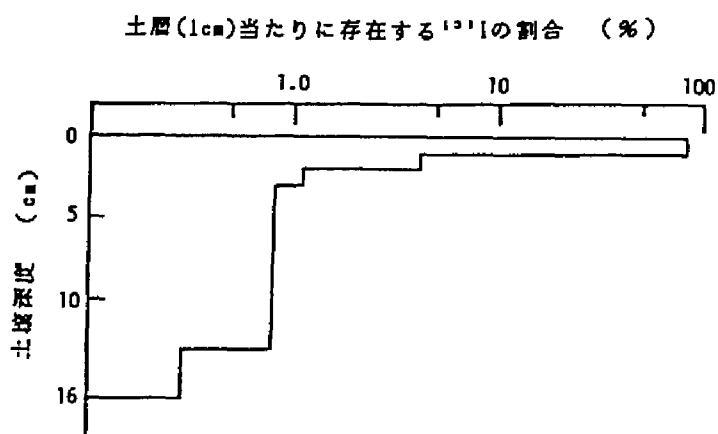


図 5.6 ^{131}I の土壌深度分布

表 5.6 土壌から水溶液への ^{131}I の溶出率および分配係数

No. 溶液の種類			溶出率 (%)	分配係数 (Kd)
1	純水	上澄み液	5.7	183
2	純水	濾液	5.7	185
3	$10^3\text{ppm } (\text{I}^-)$	上澄み液	15.5	68
4	$10^3\text{ppm } (\text{I}^-)$	濾液	15.3	69

*:数値はすべて2連の平均値

中のそれよりも低い²³⁾ ため、一旦土壤に吸着したヨウ素がどのように溶出してゆくのかを究明する必要がある。

高城ら⁹⁾は水田土壤の安定ヨウ素を用いて純水による抽出実験を行い、土壤中の水溶性ヨウ素を定量している。彼らの結果から分配係数を求めると、数百～千の範囲となり、本研究で得られた値よりも数倍大きい。この違いについては、前述したように土壤の種類によるほか、安定ヨウ素と新たに添加した¹³¹Iとの挙動の違いや抽出実験条件等の違いなどが考えられる。今後の検討課題の1つである。

(2) 水稻への移行

水稻の各部位への¹³¹Iの移行を表5.7 に、また、サンプリングを行った各部位を図5.7 に示した。表には、湿重量1g当たりの¹³¹I濃度を記載した。¹³¹Iの添加時期や吸収期間が異なるので、すべて、各実験におけるN葉身（止め葉：最上部に位置し、穂のつけねの葉身）の濃度を1.0とした場合の相対値で示した。表から、実験

表 5.7 水稻のN葉身に対する各器官の¹³¹I濃度比

器官名	S-1	S-2	S-3	S-4
N 葉身	1.0	1.0	1.0	1.0
(N-1) "	2.3	1.9	2.4	0.43
(N-2) "	-	1.3	1.4	5.3
N 葉鞘	-	0.47	0.73	1.2
(N-1) "	-	0.87	1.4	2.4
(N-2) "	-	0.76	2.4	4.5
枝 梗	1.2	0.70	0.88	0.52
モ ミ	-	0.019	0.022	0.008
玄 米	0.024	0.005	0.003	0.001
モミガラ	0.14	0.074	0.10	0.028

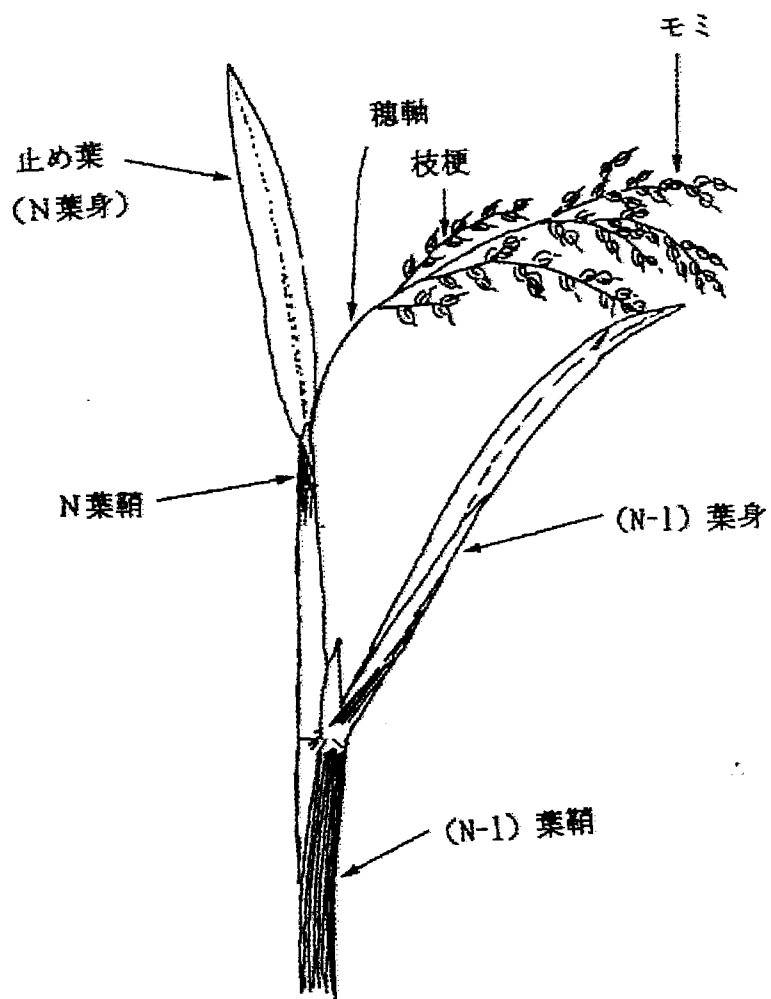


図 5.7 サンプリングした水稻各器官の
位置および名称

{S-4}の結果を除き、N葉身よりもN-1葉身（止め葉より1つ下の葉身）の方が、 ^{131}I がより多く移行していることが分かる。また、葉鞘についても、 ^{131}I 濃度は下位になる程高い傾向がある。ZnやPなどは、活動が盛んな部位へ移動^{28), 29)}してゆくが、 ^{131}I ではそれが観察されていない。これは、ZnやPが植物の生命活動に必須の元素であるために活動の盛んな部位へ積極的に取り込まれるのに対し、ヨウ素は必須元素ではないのでその挙動が異なり、水稻内で再転流しがたいのではないと思われる。また、枝梗（穂軸も含む）の ^{131}I 濃度はN葉身と同程度ないしはその半分であるが、モミガラ³⁰⁾の ^{131}I 濃度は、枝梗よりも約1桁低い。これは、枝梗からモミへのヨウ素の移行過程において何らかの選択または、モミガラから大気中への蒸散を示唆するものと思われる。玄米とN葉身との ^{131}I 濃度比は、 ^{131}I の投与時期が若い程高い傾向を示すが、その値は実験{S-1}を除いてあまり差がなく約 10^{-3} のオーダーである。結田²⁶⁾は、白米と茎葉部との比が約 3×10^{-4} と報告している。その報告の中で、玄米/白米比が約3であることを考慮すると、本実験で得られた玄米/N葉身の 10^{-3} という値は、結田の結果とほぼ同じである。投与時期が若い程高いのは、後述するように、開花期直後に水分・養分が根から玄米へ移行するに伴い ^{131}I も移行するためと考えられる。

表5.8には、それぞれの実験で得られた玄米とモミガラとの ^{131}I の分配比を示した。これは、モミ100粒当たりの、玄米中の ^{131}I 濃度を1.0とした場合の、モミガラ中の ^{131}I の相対濃度である。収穫期に近づくにつれて、モミガラへの分配が次第に多くなる傾向にある。この点については、玄米の成長に関して、初期は根から養

表 5.8 玄米に対するモミガラの ^{131}I 濃度 (100粒当たり)

	S-1	S-2	S-3	S-4
玄 米	1.0	1.0	1.0	1.0
モミガラ	1.3 ± 0.23	3.4 ± 0.73	7.9 ± 1.8	4.8 ± 1.9

分が水と共に供給され、その後、次第に葉から、そして、モミ自身により養分が供給されるためと考えられる。すなわち、根から養分や水分と共に供給される ^{131}I は、玄米が葉から、またはモミ自身により養分を供給する段階になると、玄米の方へはあまり移行せず、水分と共にモミガラの方に多く移行してゆくと思われる。

結田²⁶⁾は、糊熟期後期（出穂開花期より23日）に添加した場合でも、白米中にかなりの ^{129}I が移行しており、この時期でも経根吸収の寄与が少なくないことを報告している。本研究においても、出穂開花期より約30日後（黄熟期に相当）でも、玄米中に ^{131}I が移行していることが確認された。

本実験において、土壌中の ^{131}I 濃度を求めたのは実験 {S-4} だけである。前述したように、田面水に添加した ^{131}I は、土壌の鉛直分布において、土壌表層（0-1 cm）に多く、下層では少ないという不均一分布をしている。また、短期間の吸収実験であるため、米への移行量を定量的に求めることは難しい。しかし、土壌中の ^{131}I 濃度として、その平均濃度を用い、さらに、Muramatsuら¹⁰⁾が提案した移行率（AR: Activity Ratio）〔本研究の場合、6日間の吸収実験における玄米中の ^{131}I 濃度と土壌中の ^{131}I 平均濃度との比〕を用いれば、

$$\text{AR} = 4 \sim 5 \times 10^{-4}$$

程度である。水田土壌と白米中の安定ヨウ素の濃度測定から求められた、フィールドにおけるヨウ素の白米への移行係数（TF）^{9, 30)}は、

$$\text{TF} = 1 \sim 2 \times 10^{-3}$$

である。本研究で得られたAR値は、出穂開花期の約30日後から6日間の吸収実験である。 ^{131}I の米への移行が出穂開花期以後に行われると仮定し、さらに土壌から米への移行速度（1日あたりの移行量）がほぼ一定であると仮定すれば、出穂開花期から収穫期までの36日間のAR値は、

$$\begin{aligned} \text{AR} &= 4 \sim 5 \times 10^{-4} \times (36/6) \\ &\approx 2.4 \sim 3 \times 10^{-3} \end{aligned}$$

となり、上述のTF値と比較的似た値を示す。

5. 4. 4. 結 語

水稻への ^{129}I の経根吸収による移行を考えた場合、非耕作期間中に水田土壌に蓄積された ^{129}I が移行する場合と、生育期間中に、大気、降水、さらに灌漑水等に含まれる ^{129}I が田面水に混入し、それが水稻に移行する場合とが考えられる。本研究

は、後者の問題に関して、ポット実験により基礎的な検討を行ったものである。

結田^{6,23)}は、灌漑期に田面水中に流入した ^{129}I は、あまり土壤に吸着されず、灌漑水と共に浸透してゆき、その一部は水稻にも吸収されるが、大半は根圏外へ流亡すると予想している。しかし、本実験で示したように、予想外に表層土壤に吸着されることから、灌漑期に田面水から流入した ^{129}I の水稻への経根吸収量を予測するためには、土壤中での不均一分布を考慮する必要があるだろう。さらに、生育後期に添加しても、かなりの ^{131}I が玄米中に移行したことから、野外での栽培条件下で長期間の栽培実験を行い、田面水から流入した ^{129}I の米への移行係数を得る必要がある。

- 1) 大桃洋一郎・内田滋夫・住谷みさ子：日本原子力学会誌、27, p388-394 (1985)
- 2) 大桃洋一郎：第7回放医研環境セミナー報文集「最近の環境における放射性ヨウ素の緒問題」、NIRS-M-35, p71-81 (1979)
- 3) Boone,F.W.,Kantelo,M.V., Mayer,P.G. and Plams,J.M.: Health Phys., 48 p401-413 (1985)
- 4) Muramatsu,Y. and Ohmomo,Y.: Sci.Total Environ., 48, p33-43 (1986)
- 5) Tensho,K.and Yeh,K.L.: Soil Sci. Plant Nutr., 16, p30-37 (1970)
- 6) 結田康一：第7回放医研環境セミナー報文集「最近の環境における放射性ヨウ素の緒問題」、NIRS-M-31, p91-106 (1976)
- 7) Saas,A. and Grauby,A.: Health Phys., 31, p21-26 (1976)
- 8) Yuita,K.,Nobusawa,Y., Shibuya,M. and Aso,S.: Soil Sci. Plant Nutr., 28, p315-336 (1982)
- 9) 高城裕之・木村敏正・小林宏信、他：保健物理、20, p251-257 (1985)
- 10) Muramatsu,Y., Christoffers,D.and Ohmomo Y. : J. Radiat. Res., 24, p326-338 (1983)
- 11) 内田滋夫・大桃洋一郎・鎌田 博・佐伯誠道 日本原子力学会誌、26, p935-941 (1984)
- 12) 東京大学農学部農芸化学教室編：「実験農芸化学上巻」, 朝倉書店, p102 (1975)
- 13) 山崎肯哉：「養液栽培全編」, 博友社, p107 (1982)
- 14) 柴田雄二・山崎一雄共編：「無機化学全書Ⅲ ハロゲン」, 丸善, p278 (1958)
- 15) 山口秀甫・大田忠親・麻生末雄、他：Radioisotopes, 35, p311-317 (1986)
- 16) 住谷みさ子・内田滋夫・柳沢啓：日本放射線影響学会第27回大会公演要旨集, p189 (1984)
- 17) 内田滋夫・鎌田 博・横須賀節子・大桃洋一郎：保健物理、22, p511-522 (1987)
- 18) Ng,Y.C. and Hoffman,F.O.: Proc. Seminar on the Environmental

Transfer to Man of Radionuclides Released from Nuclear Installations, p841-855, Brussels (1983)

- 19) Ohmomo, Y. and Sumiya, M.: "Heavy metal pollution in soils of Japan" (Ed. Kitagishi, K and Yamane, I.), Japan Scientific Societies Press, p235-244 (1981).
- 20) 内田滋夫・住谷みさ子・大桃洋一郎: RADIOISOTOPES, 36, p332-339 (1987)
- 21) 村松康行・住谷みさ子・山口秀甫・内田滋夫・大桃洋一郎: 未発表データ
- 22) 飯嶋敏哲: 移行モデル、第13回放医研環境セミナー「放射性物質の農作物への移行」(NIRS-M-65)、p71-82 (1987).
- 23) 結田康一: 経根吸収、第13回放医研環境セミナー「放射性物質の農作物への移行」(NIRS-M-65)、p97-108 (1987)
- 24) Tensho, K. and Yeh, L.K.: Study on Iodine and Bromine in Soil-Plant System in Relation to the "Reclamation-Akagare" Disease of Lowland Rice by Means of Radioisotope-Techniques, RADIOISOTOPES, 19, p26-31 (1970)
- 25) 村松康行・内田滋夫・P. Sriyotha: 第25回理工学における同位元素研究発表会口頭発表、1988.7月 (東京) .
- 26) 結田康一: 放射性ヨウ素の水稻への移行 ―土壌中のおよび雨水中の移行―、第18回「原子力施設と沿岸海洋シンポジウム」要旨集, p49-57 (1987)
- 27) 村松康行・内田滋夫・住谷みさ子・大桃洋一郎・小畑 仁: 日本放射線影響学会第31回大会口頭発表、1988.10月 (広島)
- 28) 小畑 仁: 水稻体内における亜鉛の挙動, 「植物と金属元素」(日本土壤肥料学会編), 博友社, p123-166 (1982)
- 29) 小林宏信、他: 農業技術研究所化学部 昭和38年度成績の概要、p138-147 (1964)
- 30) 並木 篤・片桐裕美・成田 脩: 日本保健物理学会第23回研究発表会要旨集、p43 (1988)

第6章 ガス状ヨウ素 (I_2) の大気から 水稻への移行 — 乾性沈着に関する研究 —

6. 1. 実験目的

乾性沈着による米への ^{129}I の移行に関して、被曝線量評価に必要なデータとして、次の4つを第2章2節で指摘した。

- ①：転流の有無
- ②：沈着速度
- ③：生物学的半減期
- ④：モミ、玄米、白米間の分配比 [モミ→玄米・白米への移行比]

①の転流の有無では、モミ以外の部位に沈着したヨウ素が、米へ移行するかどうかを検討する必要がある。②の沈着速度に関しては、モミへの沈着速度だけではなく、もし、①の転流実験の結果、モミ以外の部位からヨウ素の転流があるとするならば、その部位への沈着速度も求める必要がある。さらに、前述したように、水稻の生育期間が長く、いくつかの異なった生育段階を得るため、生育段階ごとの沈着速度の違いも、検討する必要がある。

③の生物学的半減期については、 ^{129}I の物理学的半減期が非常に長いため、この生物学的半減期が評価上、重要なパラメータの1つ¹⁾となる。

④の分配比については、モミ中のヨウ素濃度を求めるだけでは不十分であり、実際の可食部である玄米や白米中のヨウ素濃度を求めることにより、現実的な評価が可能となる。

本章では、これまで求められていない上記パラメータを実験的に求め、さらに、得られたパラメータを用いて、大気から米へのヨウ素の移行量を計算した。大気から農作物への直接沈着は、乾性沈着と湿性沈着²⁾に分けられるが、被曝線量評価上、前者がより重要である。したがって、この乾性沈着に着目して、ガス状ヨウ素 (I_2) について、水稻・米への移行を検討する。

6. 2. 実験方法

水稻は、放医研・東海圃場にあるビニールハウス内（写真 6.1）でポット（5 千分の 1 アールワグネル・ポット）栽培を行い、ある生育段階の水稻に安定ヨウ素を曝射した。曝射は、放医研那珂湊支所にあるヨウ素曝射チェンバー（写真 6.2）で行った。曝射後、水稻を再びビニールハウスへ運び収穫まで栽培を続け、曝射後から収穫時まで、定期的に試料を採取した。すなわち、モミ、葉身および葉鞘の各部位を 0.5～1.0 g サンプリングし、秤量後ビニール袋に入れ密封した。モミは、糊熟期以後モミガラと玄米に分けた。この作業は、モミすり器では、モミガラに沈着したヨウ素が玄米へ付着することが予想されるため、ピンセットを用いてモミ 1 粒づつをモミガラと玄米に分離した。さらに、収穫期には精白米もサンプリングした。これらの試料は、武蔵工業大学原子力研究所において放射化分析を行い、そのヨウ素濃度を測定した。

放医研の東海圃場では、3 つ設置してあるビニールハウスのうち、2 つを用いて、この沈着実験を行った。すなわち、1 つは、安定ヨウ素を曝射するまでの水稻の栽培に、もう 1 つは、曝射後の水稻を収穫期まで栽培するために用いた。本実験では、このように田植えから収穫まで、雨が全くかからないようにして実験を行った。

水稻は、大気中に穂がでるとすぐに開花する。穂は、上部から大気中に出てくるので、出穂期では、大気中に穂が全部露出しているものもあれば、半分しか露出していないものもあり、データがバラつく原因となる。したがって、さまざまな色の糸をマーカーとして穂が大気中に露出する日を克明に記録するという方法を用いて、バラつきをおさえるようにした。また、穂のサンプリングについても、上部と下部の 2 つに分けて行った。

図 6.1 に、安定ヨウ素の曝射に使用したヨウ素曝射チェンバーの概念図^{3),4)}を示す。チェンバーは、ステンレス製の密閉容器であり、いろいろな気象・生育条件を設定できるようになっている。例えば、光は天井の上部に設置した陽光ランプにより、供給され、温度・湿度や日照時間がコントロールできる。また、左および右側の壁面に設けられた穴は、チェンバー内の空気が床の下部を循環通過して、ヨウ素が均一に保たれるように設計されている。このチェンバーの中に、圃場のビニールハウス内でポット栽培した水稻を運び込み、安定ヨウ素を曝射した。水稻のポット表面は、アルミホイル等でカバーをして、土壌表面への安定ヨウ素の移行を防いだ。また、後で述べる転流の実験に関しては、1 部の穂にビニールカバーをかけて安定ヨウ素の曝射を行った。



写真 6.1 放医研・東海圃場



写真 6.2 ヨウ素曝射チェンバー

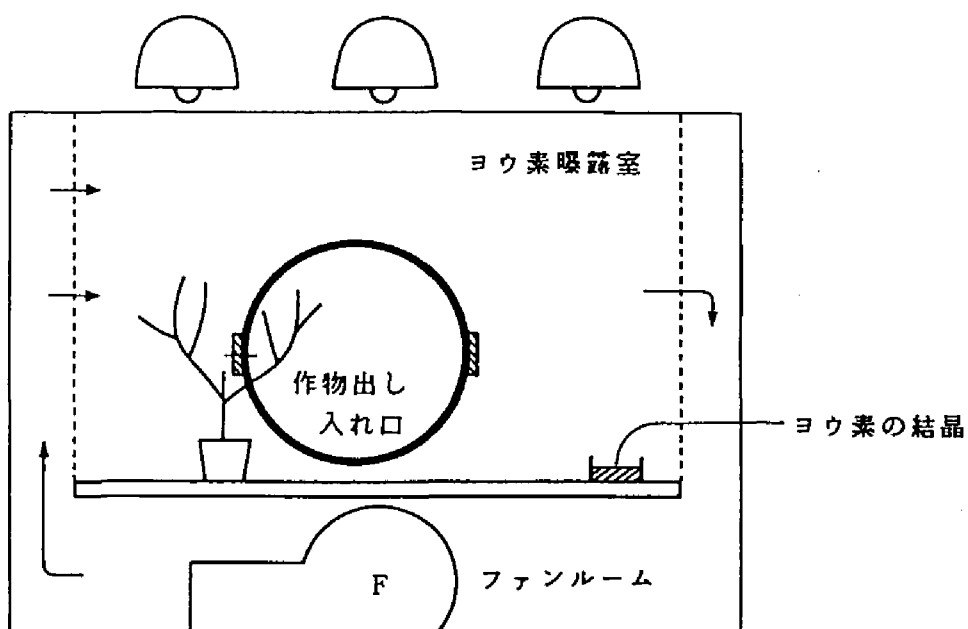


図 6.1 ヨウ素チェンバーの模式図

表 6.1 ヨウ素の化学形による沈着速度の違い

I_2 :	1.5×10^{-1}	$cm \cdot s^{-1}$
CH_3I :	1.7×10^{-3}	$cm \cdot s^{-1}$

[ホウレンソウ]

ヨウ素は、その化学形により、沈着速度が異なる。中村と大桃^{3),4)}は、前述したヨウ素曝射チェンバーを使って、ホウレンソウへの I_2 と CH_3I の沈着速度を求めている。その結果、表6.1に示すように、 I_2 は CH_3I よりも2ケタ高い沈着速度が得られている。最近、チェルノブイリ原子炉事故により放出された放射性ヨウ素の大気中における化学形について、ガス状ヨウ素の割合が大きいこと⁵⁻⁸⁾、さらに、ガス状ヨウ素の中でも、有機ヨウ素の存在比が大きいこと^{9),10)}が報告されている。しかし、沈着速度の違いを考慮すると、大気から農作物へのガス状ヨウ素の移行という観点からは、 I_2 が最も重要であると考えられる。したがって、本実験においては、すべて I_2 の化学形の安定ヨウ素を用いて沈着実験を行った。曝射時間は、2～4時間、風速は $0.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、安定ヨウ素濃度は $1 \sim 2 \times 10^{-2} \mu\text{gI} \cdot \text{cm}^{-3}$ である。その他の実験条件を含めて表6.2に示す。

6.3. 実験結果および考察

6.3.1. チェンバー内ヨウ素濃度の計算方法

チェンバー内のヨウ素濃度は、以下の仮定を用いて計算^{3),4)}により求めた。

- ①昇華したヨウ素のチェンバー内壁への沈着は、一次反応で表せる。
- ②昇華したヨウ素は短時間のうちにチェンバー内で均一分布する。

表 6.2 ヨウ素チェンバーにおける
 I_2 曝射実験条件

曝射時間	2～4時間
照 度	15000ルクス (光源下15cm)
温 度	$28 \pm 2^\circ\text{C}$
湿 度	$60 \pm 20\%$
風 速	$0.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$
I_2 濃度	$1 \sim 2 \times 10^{-2} \mu\text{gI} \cdot \text{cm}^{-3}$

③一旦チェンバー内壁に沈着したヨウ素の脱着速度は、沈着速度に比して極めて小さい。

この時、チェンバー内雰囲気中のヨウ素濃度 (C_a) は次式で表わされる。

$$\frac{dC_a(t)}{dt} = - \frac{1}{V} (U_w \cdot S_w + P_s \cdot W_s) \cdot C_a(t) + \frac{E(t)}{V} \quad (6-1)$$

ここで、 V : チェンバーの有効体積 (cm^3)

U_w : チェンバー内壁への沈着速度 ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$)

S_w : チェンバー内壁の有効表面積 (cm^2)

P_s : 作物への沈着率 ($\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$)

W_s : チェンバーに入れる作物の総重量 (g)

$E(t)$: ヨウ素の単位時間当たりの昇華量 ($\text{g} \cdot \text{s}^{-1}$)

チェンバー内に入れる作物の量をできる限り少なくすると、

$$P_s \cdot W_s \ll U_w \cdot S_w$$

とみなせるので、(6-1)式は、

$$\frac{dC_a(t)}{dt} = - \frac{U_w \cdot S_w}{V} \cdot C_a(t) + \frac{E(t)}{V} \quad (6-2)$$

のように変形できる。

さらに、チェンバー内の温度を一定に維持しておくと、単位時間当たりのヨウ素昇華量は一定となるので、上式の $E(t)$ は定数 (E_i) で表すことができる。したがって、(6-1)式は、

$$\frac{dC_a(t)}{dt} = - \frac{U_w \cdot S_w}{V} \cdot C_a(t) + \frac{E_i}{V} \quad (6-3)$$

となる。ここで、

$$(U_w \cdot S_w) / V = \alpha \quad (6-4)$$

とおいて、(6-3)式を解くと、(6-5)式が得られる。

$$C_a(t) = \frac{E_i}{\alpha \cdot V} \cdot [1 - \exp(-\alpha \cdot t)] \quad (6-5)$$

チェンバー内壁と同質の金属片に対する沈着速度を求めておくと、(6-4)式の α の値が決まるので、時間(t)におけるチェンバー内のヨウ素濃度を計算することができる。

6. 3. 2. 水稻へのヨウ素の移行

(1) . 転流について

転流は、次のように2つのケースが考えられる。

① 出穂期以前、すなわち、穂が大気中に露出する以前に地上部に沈着したヨウ素が米へ転流するケース

② 出穂期以後に、穂以外の部位に沈着したヨウ素が米へ転流するケース

①の出穂期以前に沈着したヨウ素が転流するかどうかを確かめるため、5つの生育段階別に、すなわち、出穂期前の3段階、出穂期以後の2段階の水稻にヨウ素を曝射した。

②の出穂期以後の転流に関しては、前述したように、一部の穂にビニールカバーをしてヨウ素を曝射する実験、さらに、出穂期にヨウ素を曝射し、開花日を記録しておくという実験を行った。

これらの実験は、すべて収穫期まで栽培を続け、収穫時におけるモミ中のヨウ素濃度（一部玄米のデータも含む）を比較検討した。表6.3 は、出穂期以前に水稻に沈着したヨウ素の転流を検討したものである。5つの生育段階のうち、最初の3つ、活着期、分けつ期、穂バラミ期は、まだ穂が大気中に露出していない生育段階である。この時期にヨウ素を曝射しても、収穫時のモミ中の濃度は、検出限界以下であった。出穂期および黄熟期は、穂がすでに大気中に露出しているので、当然、この時期に曝射した水稻に関しては、収穫時のモミにヨウ素が検出されている。

出穂期に曝射した場合、モミ中のヨウ素濃度にバラつきがみられ、平均値も黄熟期の値よりも小さくなっている。この原因は、開花日を記録しなかったため、収穫時にサンプリングしたモミの中で、曝射時に一部しか大気中に露出していないものも含まれているためである。この実験以降、出穂期の曝射において、前述したように開花日を記録するようにした。

表6.4 は、出穂期以後の転流に関する実験結果を示したものである。出穂期のほぼ終わり頃、その一部の穂をビニールカバーをして、他の穂はそのままの状態でヨウ素を曝射し、収穫時の100粒当たりのモミおよび玄米のヨウ素含量¹¹⁾をカバー

表 6.3 収穫時のモミ中のヨウ素濃度における
曝射時期（生育段階）の違い

収穫時におけるモミのヨウ素濃度 ($\mu\text{g l} \cdot \text{g}^{-1}$)					
No.	活着期	分けつ期	穂バラミ期	出穂期	黄熟期
1	< 1	< 1	< 1	11.0 ± 0.3	29.7 ± 0.7
2	< 1	< 1	< 1	12.0 ± 0.5	35.0 ± 0.9
3	< 1	< 1	< 1	4.0 ± 0.4	27.9 ± 0.6
4	< 1	< 1	< 1	7.0 ± 0.6	24.0 ± 0.7
5	< 1	< 1	< 1	8.1 ± 0.4	29.0 ± 0.7
6	< 1	< 1	< 1	10.4 ± 0.7	31.3 ± 0.8
7				1.8 ± 0.3	20.2 ± 0.6
8				7.9 ± 0.5	24.4 ± 0.6
9				2.2 ± 0.5	26.6 ± 0.6
平均値	< 1	< 1	< 1	7.2	27.6

表 6.4 ヨウ素の茎葉部からモミへの転流の検討

収穫時のヨウ素濃度 [含量]		[$\mu\text{g l} \cdot (100\text{粒})^{-1}$]	
モミ		玄米	
カバー	オープン	カバー	オープン
0.7 ± 0.8 (<3.0)	76 ± 3.0	0.1 ± 0.2 (<1.0)	3.4 ± 0.4
0.5 ± 1.0 (<3.4)	68 ± 2.1	0.07 ± 0.2 (<1.2)	
0.9 ± 0.9 (<2.7)			

注:()内の数値は、検出限界

したものとオープンのものとは比較した。モミの場合、カバーしたものは、すべて検出限界以下であるが、オープンのもは、高濃度のヨウ素が検出されている。また、玄米についても、サンプル数は少ないがカバーしたものは、検出限界以下であるが、オープンのもは、有意なヨウ素が検出されている。

しかし、ビニールで穂をカバーすると、モミ表面からの水分の蒸散をおさえるため、自然の生育条件下での実験とは異なる恐れがある。したがって、ビニールカバーをしないで、転流の問題を確認するため、出穂期に曝射（8月19日）し、それぞれの穂の開花日、すなわち、穂が大気中に露出してきた日を記録するとともに、穂の上下に分けてサンプリングを行った。その結果を表6.5に示す。

表6.5 から、8月18日以前、すなわち、曝射時点で大気中にすでに穂が露出しているものは、すべてのサンプルについて、高濃度のヨウ素が検出されていることがわかる。曝射当日（8月19日）に開花したモミについては、バラつきがあり、一部ヨウ素が検出されていないものもある。このサンプルは穂の下部であり、曝射時には露出していなかったものと思われる。8月20日以降に開花したものについては、1サンプルを除き、すべて検出限界以下である。8月20～21日の開花日で、 $9.2\mu\text{g/l}$ が検出されているサンプルについては、穂の上部であり、8月19日の曝射時に、ほんの一部露出していたものと思われる。

以上の実験結果から、出穂期以前および以後、ともに、ガス状ヨウ素（ I_2 ）のモミ以外の部位からの転流はほとんどないという結論が得られた。

（2） 沈着速度について

表6.6 に、ガス状ヨウ素（ I_2 ）の水稻各部位への沈着速度を示す。これらは、すべてg当たりで表示した、いわゆる Normalized Deposition Velocity（Vd）である。すべて、湿重量での値である。葉身では $1 \sim 4 \times 10^{-1}$ でそれほど変動がないが、葉鞘では $3 \times 10^{-2} \sim 2 \times 10^{-1}$ モミでは $7 \times 10^{-2} \sim 1.0$ （ $\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ）で、10倍ないしそれ以上の変動があることが分かる。

（1）の転流に関する実験結果から、ほとんど転流はないという結果が得られいるので、被曝線量の評価上、モミへの沈着が特に重要になる。モミの沈着速度、単位重量当たりの沈着速度は、それぞれの生育段階により異なり、10倍以上の変動がある。これは、生育段階により、モミの重量変化が大きい¹²⁾ ためであると思われる。したがって、もみの全生育期間について、モミガラが大きさが出穂期以後、それほど変化しないことに着目して、粒当たりの沈着速度¹³⁾ を求めた。

表 6.5 曝射時期と開花日との関係（出穂開花期に曝射）

収穫時のモミのヨウ素濃度 [含量] $[\mu\text{g l} \cdot (100\text{粒})^{-1}]$			
開花日			
8/18以前	8/19	8/20-21	8/22-23
↑ 46.3 ± 4.3	↑ 8.5 ± 1.3	↑ ND	↑ ND
↓ 26.5 ± 3.1	↓ 38.4 ± 0.3	↓ ND	↓ ND
↑ 35.8 ± 3.2	↑ 19.1 ± 2.8	↑ 9.2 ± 1.2	↑ ND
↓ 16.8 ± 3.0	↓ 8.4 ± 1.7	↓ ND	↓ ND
↑ 8.7 ± 3.7	↑ 8.5 ± 1.3	↑ ND	↑ ND
↓ 14.3 ± 1.6	↓ ND	↓ ND	↓ ND

↑：穂の上部のモミ

↓： “下部”

表 6.6 水稻の各部位の沈着速度

葉 身	: $1 \sim 4 \times 10^{-1}$
葉鞘 (カン)	: $3 \times 10^{-2} \sim 2 \times 10^{-1}$
モ ミ	: $7 \times 10^{-2} \sim 1 \times 10^0$

(V_d : $\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) [g 当たり]

表 6.7 モミの沈着速度

		出穂期	乳熟期	糊熟期
[重量]	$\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	1.0 ± 0.06	0.07 ± 0.02	0.1 ± 0.03
[粒]	$\text{cm}^3 \cdot (100\text{粒})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	0.6 ± 0.1	0.2 ± 0.05	0.4 ± 0.07

表6.7 は、3つの生育段階におけるモミへの沈着速度について、単位重量当たりおよび粒当たり（ここでは、100 粒当たり）の2つについてまとめたものである。単位重量当たりで求めた沈着速度は、表6.6 で示したように、0.07～1.0までの範囲であるが、100 粒当たりで求めた場合は、0.2～0.6 の範囲となる。

これらの結果を要約すると、もみでは、出穂期以後の全生育期間を通じて、重量当たりの沈着速度は、1ヶタ以上の変動幅があるが、粒当たりでは、その3分の1以内、約3倍程度の変動幅となる。これは、前述したように、もみの重量変化は大きいけれども、その表面積は、出穂期に大気中に露出してから収穫まで、ほとんど変化しないためと思われる。したがって、沈着速度に関して、もみへのガス状ヨウ素(I_2)の沈着速度は100 粒当たりの表示で、全生育期間を通じて、

$$2 \sim 6 \times 10^{-1} \text{ cm}^3 \cdot (100\text{粒})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

であるという結果が得られた。

(3) 生物学的半減期について

図6.2 は、モミおよび葉身のヨウ素濃度の時間的变化を示したものの¹⁴⁾である。グラフのたて軸は曝射直後のヨウ素濃度を1.0とした場合の相対濃度を、横軸は曝射直後からの経過日数を示す。この実験では、G-IとG-IIの2つの生育段階（G-Iは出穂期、G-IIは乳熟期）で曝射を行った。

図 6.2-1 は、葉身のデータである。葉身では、G-IとG-IIの2つの生育段階での差はなく、どちらも、破線で示した崩壊定数が0.05、すなわち生物学的半減期が14日の減衰曲線と良く一致している。それに対して、図 6.2-2 および図6.2-3のグラフに示したモミは、破線で示した半減期が14日の減衰曲線には、一致せず、実線で描かれた曲線にどちらも良く一致している。この実線は、崩壊定数が0の曲線

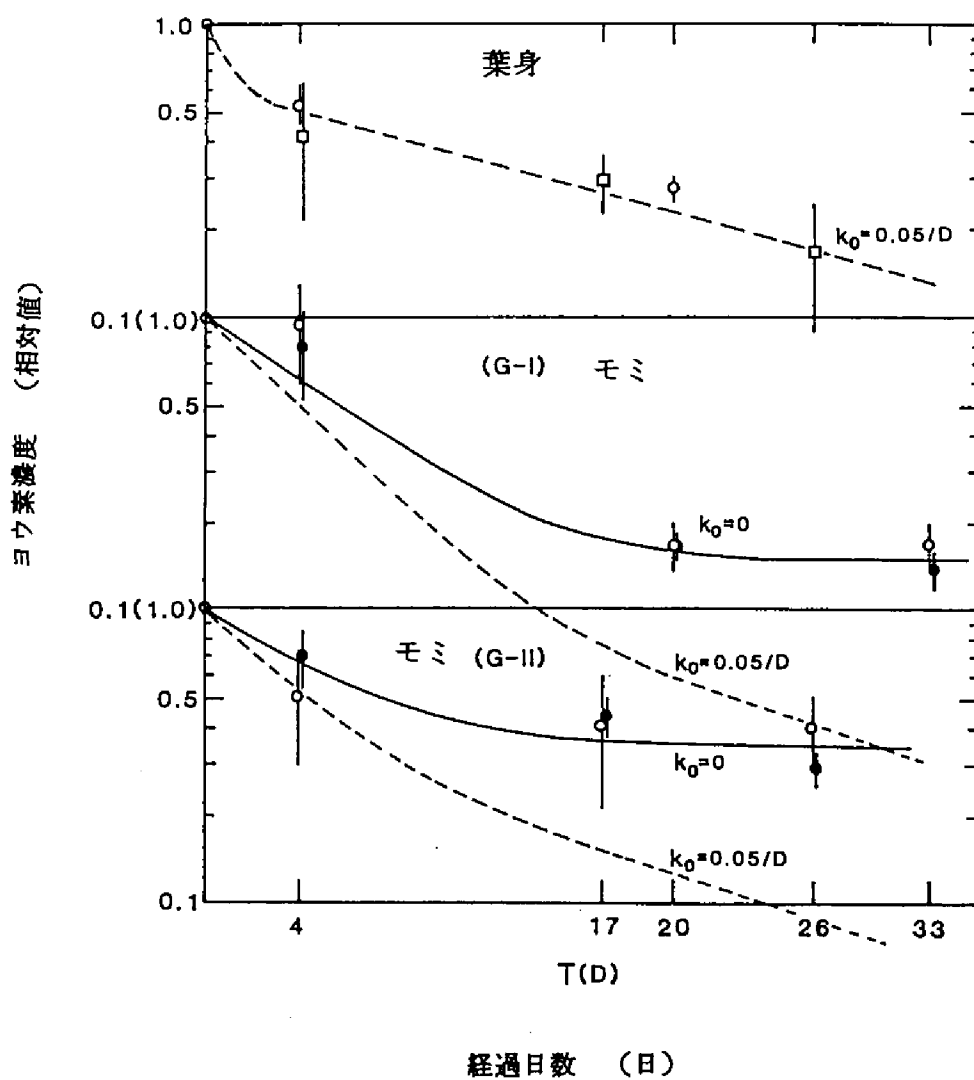


図 6.2 ヨウ素の生物学的半減期 その1 (モミおよび葉身)

K_0 : 崩壊定数 (day^{-1})

$K_0 = 0.05 \rightarrow T = 14\text{日}$

である。この実験から、生物学的半減期について、葉身では、約14日、モミでは、無限大、すなわち、崩壊定数が0という結果が得られた。しかし、この実験ではモミの重量変化の補正を行っているが、この補正值は、直接、実験で得られたものではなく、文献値を引用¹³⁾したものである。すなわち、得られた結果、崩壊定数が0という結果は、間接的に得られたものである。

モミの生物学的半減期を直接的に得るため、(2)の沈着速度で述べたように、粒当たりのヨウ素含量を求めて検討した。その結果を図6.3 および図6.4 に示す。図6.3 は、図6.2 のグラフと同様、安定ヨウ素を曝射してからのモミのヨウ素含量の経目変化を示したものである。横軸は、同じように曝射直後からの経過日数を、たて軸は、100粒当たりのモミのヨウ素濃度を示す。この結果から、モミに沈着したヨウ素は、ほとんど減少しないことがわかる。この実験は、糊熟期のモミに曝射し、やや長期間、栽培を続けた結果であり、他の、もっと若い生育段階について検

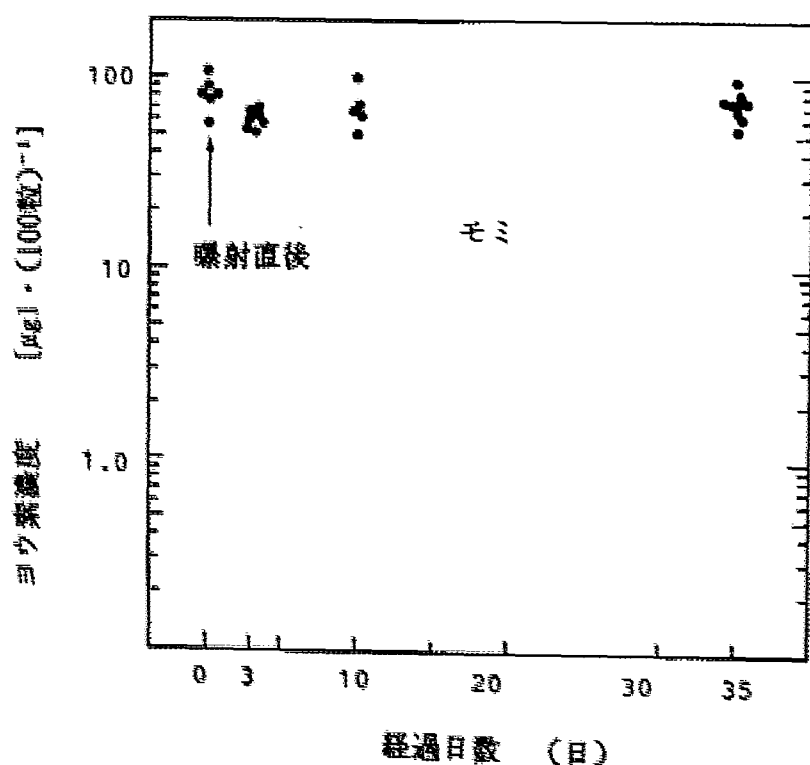


図 6.3 ヨウ素の生物学的半減期 その2 (モミ)

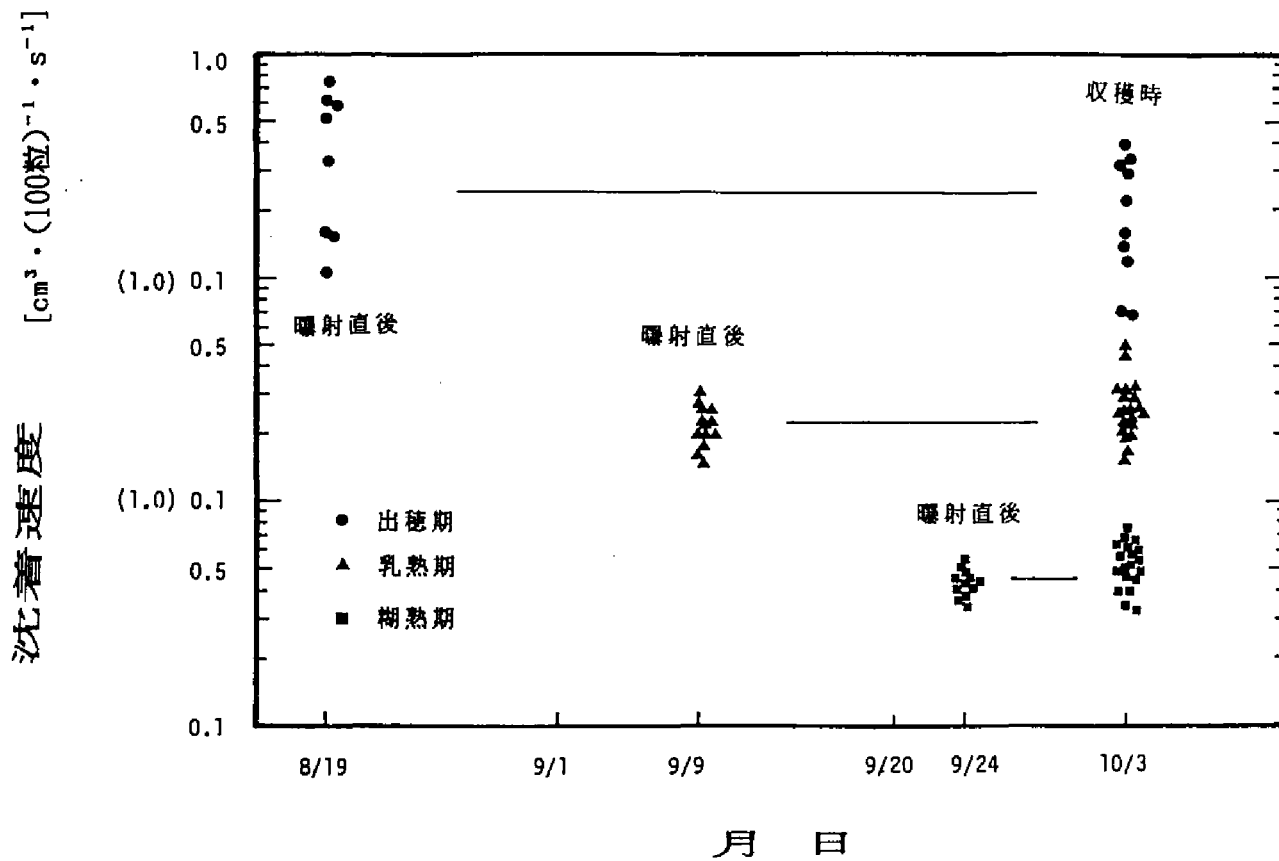


図 6.4 ヨウ素の生物学的半減期 その3 (モミ)

討した結果を図6.4 に示す。図6.4 は、出穂期、乳熟期および糊熟期のモミにヨウ素を曝射して、曝射直後および収穫時のモミのヨウ素含量を調べた結果である。個々の実験において、曝射時間およびチェンバー内のヨウ素濃度が少し異なるので、相互に比較ができるように、図6.4 のたて軸は100 粒当たりの沈着速度で表示した。また、収穫日が、すべて同じであるから、このデータが重なるため、それぞれのグラフを1 ケタずつずらして表示した。すなわち、すべて1.0~0.1のオーダーで表示されている。図6.4 において、出穂期の実験では、収穫時において、ヨウ素量が、やや減少しているように思われるが、乳熟期および糊熟期については、全く減少していないことがわかる。

これらの実験結果から、モミに沈着したガス状ヨウ素 (I_2) は、モミからほとんど脱離しないことがわかる。モミに沈着したガス状ヨウ素 (I_2) の生物学的半減期は、先ほど、間接的な結果から推測したものと同様、無限大である、すなわち、モミからのヨウ素の減少は、評価上 0 であると考えられる。

(4) 分配比—移行比—について

これまでの結果から、モミ、玄米および白米のヨウ素含量の比 (100粒当たり) を表6.8 に示す。モミのヨウ素量を100とすると、玄米は、3~7、白米は1~3である。玄米と白米間の分配比は、玄米を100 とすると白米は40~50という値が得られている。

表 6.8 ヨウ素のモミ、玄米および白米の分配比

モミ	玄米	白米
100	3~7	1~3
	(100)	(40~50)

[粒当たり]

6. 4. 計算モデルについて

これまで、米による ^{129}I の（内部）被曝線量の計算に必要なデータについて、種々の曝射実験およびその結果について、述べてきた。本項では、これまでに得られたデータを用いて、1つの例として、大気から米へ移行したガス状ヨウ素が米の中の全ヨウ素濃度のどの程度を占めるのかを求めた。

空気中のヨウ素濃度、ガス状ヨウ素濃度を C_i 、出穂期から収穫期まで、すなわち、穂が大気中にさらされている時間を T 、モミへの沈着速度を V_s （100粒当たり）、白米への移行比、すなわち、モミと白米のヨウ素の分配比を D_r 、そして100粒当たりの表示を g 数に変換するための重量比を W_p 、とすると、ヨウ素の大気から白米への移行係数 TF_p は、(6-6)式で表わされる。

$$TF_p = D_r \times V_s \times T \quad (6-6) \text{ 式}$$

また、白米100粒当たりのヨウ素含量、 $[I_p]$ は、(6-7)式で示されるように、移行係数 TF_p に大気中ヨウ素濃度 C_i をかけたものになる。

$$[I_p] = TF_p \times C_i \quad (6-7) \text{ 式}$$

そして、これを g あたりに換算するには、重量比 W_p で割れば求まる。

$$[I_p]_g = [I_p] / W_p \quad (6-8) \text{ 式}$$

本報告に用いた計算の条件を表6.9に示す。空気中のガス状ヨウ素濃度 $^{15)}$ は、 $2 \times 10^{-8} \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 、時間(T)は、 4×10^6 秒（45日間）、沈着速度(V_s)は、 $0.5 \text{cm}^3 \cdot (100\text{粒})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 、移行比(D_r)は、0.03および重量比(W_p)は、 $2.0 \text{g} \cdot (100\text{粒})^{-1}$ である。

これらの値を、(6-6)～(6-8)式に代入して計算すると、白米中の大気から米に移行したヨウ素は、 $0.6 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ となる。

高城ら $^{16)}$ は、全国各地の白米中のヨウ素濃度を報告しており、その平均値は、約 $3 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ である。この値を用いると、本研究により得られた $0.6 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ という値は、総ヨウ素量の約20%となる。ただし、これは、次のような仮定があり、かなり高い評価であると思われる。その仮定の1つは、大気中のガス状ヨウ素濃度である。ここでは、Whitehead $^{15)}$ の値の中でも大きい値を用い、さらに、すべてが I_2 の化学形とみなしている。また、雨による洗じょうは、全く考慮しておらず、モミ

表 6.9 計算条件

C_1 : 空气中ヨウ素濃度 :	$2 \times 10^{-8} \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$	($20 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ [D.C.Whitehead])
T : 時間 [出穂期→収穫期] :	$4 \times 10^8 \text{ sec}$	(45日)
V_s : 沈着速度 :	$0.5 \text{ cm}^3 \cdot (100\text{粒})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	
D_r : 移行比(もみ→白米) :	0.03	
W_p : 白米重量比 :	$2.0 \text{ g} \cdot (100\text{粒})^{-1}$	

から白米への移行比も、我々のデータの中で最も大きい値を用いている。

これまで、モミの沈着速度について、粒当たり、すなわち、100粒当たりの沈着速度を求めてきたが、被曝評価で用いられる沈着速度(V_g)、[単位は $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$] への換算を試みた。モミ100粒当たりの沈着速度は、 $0.5 \text{ cm}^3 \cdot (100\text{粒})^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 、モミの収量は、 $0.58 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$ 、そしてモミの重量は、1粒当たり0.026gとすると、沈着速度(V_g)は、約 $1 \times 10^{-2} \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ になる。

6. 5. 結語および今後の課題

これまで、いくつかの研究成果を報告してきたが、最後に、問題点並びに今後の研究計画について述べる。

まず最初に、曝射時のチェンバー内のヨウ素濃度は環境レベルに比べて、かなり高くなっており、環境レベルのヨウ素濃度に対しても、これまでに得られたのと同じような沈着速度が得られるかどうかという問題、すなわち、沈着速度の濃度依存性があるかどうかという問題がある。今後、RIをトレーサーとした環境レベルでの実験を行う必要がある。

次に、放射化分析の検出限界をさらに下げるという点である。前述したように、転流の有無は主としてモミで検討しており、玄米や白米ではサンプル数が少ない。ところが、モミに沈着したヨウ素の白米への移行が非常に少なく、約3%以下という結果が得られている。この点を考慮すると、モミに転流したヨウ素のすべてが白米に存在すると仮定すると、この転流の寄与は相対的に大きくなると考えられるため、さらに検討する必要がある。その際、十分なデータを得るためには、放射化分

析の検出限界を下げる必要がある。最後に、化学形の問題であるが、我々は、最初に述べたように、これまで報告されている沈着速度から、 I_2 の化学形が最も重要であると考え、 I_2 を用いて実験を行ってきた。しかし、有機ヨウ素の存在割合が以外に大きいという報告^{9,10)}、さらに、 I_2 に比べて、有機ヨウ素の場合は、転流する可能性がある¹⁷⁾ という事などを考えると、有機ヨウ素のデータも重要であると思われる。

第6章

参考文献

- 1) 大桃洋一郎・内田滋夫・住谷みさ子：農作物経路からの ^{129}I 摂取による内部被曝線量評価上の問題点，日本原子力学会誌，27，p388-394（1985）
- 2) 飯嶋敏哲：移行モデル，放医研環境セミナー第13回報文集，p71-82（1987）
- 3) Nakamura,Y. and Ohmomo,Y. : Factors used for the estimation of gaseous radioactive iodine intake through vegetation - I ; uptake of methyl iodide by spinach leaves, Health Phys., 38, p307-314 (1980)
- 4) Nakamura,Y. and Ohmomo,Y. : Factors used for the estimation of gaseous radioactive iodine intake through vegetation - II , uptake of elemental iodine by spinach leaves, Health Phys., 38, p315-320 (1980)
- 5) Imanaka,T. and Koide,H. : Fallout in Japan from Chernobyl, J. Environ. Radioactivity, 4, p149-153 (1986)
- 6) 広瀬勝己・青山道夫・井上久幸・杉村行勇：筑波の大気中で観測されたチェルノブイリ原子力発電所由来の人工放射性核種；その物理・化学的性状，第28回環境放射能調査研究成果論文抄録集，p314-315（1986）
- 7) 石田順一郎・進藤勝利・山崎活一・津浦伸次・篠原邦彦：動燃におけるチェルノブイリ原子力発電所事故に伴う環境放射能特別モニタリングの実施について，同上，p328-331（1986）
- 8) 吉岡満夫・五十嵐修一・松浦広幸・高山裕美・坪川博之・徳山秀樹・北島耕作：福井県におけるチェルノビル事故の影響，同上，p389-392（1986）
- 9) 高城裕之・杉山英男・飯島育代・小山包博：ソ連チェルノブイリ原発事故由来のヨウ素-131の濃度と化学形－粒子状および無機ガス状ヨウ素について－，同上，p380-382（1986）
- 10) 野口 宏・村田幹生：チェルノブイリ原子炉事故のフォールアウト(I)，大気中放射性ヨウ素の性状，日本保健物理学会第22回研究発表会要旨集，p53（1987）
- 11) Sumiya,M., Uchida,S., Muramatsu,Y., Ohmomo,Y., Yamaguchi,S. and Obata,H. : Transfer of Gaseous Iodine from Atmosphere to Rough Rice, Brown Rice and Polished Rice, Hoken Butsuri, 22, p265-268

(1987)

- 12) 星川清親：「イネの生長（第15刷）」，農山漁村文化協会，p264（1974）
- 13) Uchida,S., Sumiya,M., Muramatsu,Y., et al : Health Physic. (in press)
- 14) Nakamura,Y., Sumiya,M., Uchida,S. and Ohmomo,Y. : Transfer of Gaseous Iodine to Rice Plants., J. Radiat. Res., 27, p171-182 (1986)
- 15) Whitehead,D.C. : The Distribution and Transforrmations of Iodine in the Environment, Environment International, 10, p321-339 (1984)
- 16) 高城裕之・木村敏正・小林宏信・岩島 清・山県 登：水田土壤から米への安定ヨウ素の移行について，保健物理，20，p251-257（1985）
- 17) 大桃洋一郎：放射性ヨウ素の環境から生物への移行（I），大気から植物へ，第7回放医研環境セミナー報文集，NIRS-M-35，p71-81（1979）

第7章 結 語

我が国の原子力発電は、現在総発電量の約30%を占めるようになり、昭和75年度には40%まで占めると予測されている。しかし、ウラン資源を有効に利用し、原子力発電の供給安定性を高めるためには、原子燃料サイクルの確立が必要であり、ウラン濃縮、使用済燃料再処理および低レベル放射性廃棄物処分の分野について、事業化の計画が具体化している。また、高レベル放射性廃棄物については、地層処分をするという考えの下に、必要な処理・処分技術の確立に向けて、研究・開発を推進するという方向が打ち出されている。

このような原子燃料サイクル諸施設、例えば、再処理工場や放射性廃棄物処分・貯蔵施設等の安全評価に関しては、長半減期核種 (^{129}I , ^{99}Tc , ^{63}Ni , ^{14}C , ^{239}Pu , ^{237}Np 等) が重要な対象核種となり、これら核種の環境中における挙動や生物への移行にかんするパラメータが必要となる。しかしながら、我が国においては、このようなパラメータの蓄積は乏しく、特に農作物への移行に関しては、ほとんどないのが実情である。そこで、本研究では、長半減期核種の中でも特に重要と考えられる ^{129}I を取り上げ、農作物への移行に関して検討を加えた。すなわち、第2章では、我が国において、最もデータの蓄積があるフォールアウト核種の ^{137}Cs および ^{90}Sr について、環境中での分布や農作物への移行についてまとめた。また、 ^{131}I に関しても、大気から農作物への移行、すなわち、直接沈着について、これまでの実験結果を整理した。そして、 ^{129}I の内部被曝線量の評価モデルについて、 ^{131}I との比較を行った。すなわち、評価モデルのパラメータに関し、 ^{131}I と同じ値を用いることができるものと、新たに調査・研究を行う必要があるものとを明確にし、 ^{129}I の被曝線量評価に関する研究の問題点を指摘した。第3章では、我が国ではほとんどデータが得られていない、土壌から農作物への移行に関して、その計算モデルについて概説し、それらのモデルの中で用いられているパラメータおよびその変動要因について整理した。さらに、計算モデルの中で最も現実的である移行係数モデルを取り上げ、そのキー・パラメータである移行係数の変動幅およびその要因についてまとめた。第4章では、砂質土壌および耕作土壌中における ^{129}I の挙動について、 I^- と IO_3^- の2つの化学形による違いを実験的に検討した。第5章では、経根吸収による ^{129}I の農作物への移行について、水耕実験および土耕実験を行い、農作物の種

類や可食部の部位による移行量の違いを検討した。第6章では、大気から農作物地上部への移行、すなわち直接経路に関して、特に葉面への沈着量が多いガス状ヨウ素(I_2)の水稻(米)への移行について、実験的に検討を加えた。

各章の概要および成果は以下に示すとおりである。

第2章：

フォールアウト核種の中の、 ^{137}Cs および ^{90}Sr について、環境中での挙動、大気および土壌から農作物への移行について概説した。これら両核種の降下量は、日本海側が多く、太平洋側が少ない傾向を示し、両核種の表層土壌中の分布も同様の傾向を示す。地表面に保持された核種は、降水や灌がい水等により、徐々に深部へ移動していく。農耕土壌については、水田作土中および畑作土中の置換態 ^{90}Sr は、それぞれ約7.5年および9年で半減する。大気から農作物への移行に関しては、フォールアウト核種の ^{137}Cs と ^{90}Sr の他に、物理的半減期は短い核分裂生成率が高く、甲状腺に蓄積されやすい ^{131}I が重要視され、研究が行われてきた。

小麦や水稻の子実への移行に関して、 ^{90}Sr は穂から直接吸収される割合が大きく、 ^{137}Cs は茎葉部に吸収されたものの転流の割合が大きい。 ^{131}I については、物理的半減期が比較的短いために、貯蔵・保存がきく米・麦子実への移行はあまり重要とはならない。収穫から摂取までの期間が短い、葉菜類への移行が最も重要であり、多くの研究報告がある。大気から農作物への移行量を評価する上で、葉面への ^{131}I の沈着速度が重要なパラメータであるが、これは大気中ヨウ素の化学形により大きく異なるため、大気中におけるヨウ素の化学形に関する調査が重要な研究課題である。土壌から農作物への移行に関しては、 ^{137}Cs と ^{90}Sr の米・麦子実への長期汚染調査資料の解析により、フォールアウトの降下量が少ない時期では、経根吸収経路からの寄与が大きいこと、単位面積($1m^2$)当たりの作土中置換態 ^{90}Sr および ^{137}Cs とそこから収穫された玄米中のそれらとの比(移行比)は $2-4 \times 10^{-4}$ および $2-8 \times 10^{-4}$ 程度である等の結果が得られている。第3節では、 ^{129}I の農作物摂取による内部被曝線量評価上の問題点について、 ^{131}I と比較しながら検討した。 ^{131}I は、物理的半減期が8日であるため、土壌への蓄積はそれほど考慮しなくても良いが、 ^{129}I の場合、物理的半減期が期待できないので、長期間にわたる土壌への蓄積を考慮する必要がある、土壌からの経根吸収を無視する訳にはいかない。さらに、 ^{129}I の場合は、すべての農作物が評価の対象となるが、消費量が多く、栽培期間も長い水稻が最も重要な評価対象農作物であることを指摘した。そして、評価モデルに用いら

れている各パラメータについて、沈着速度は最も重要なパラメータの一つであるが、葉菜類・牧草以外ではほとんど得られていないため、特に水稻の各部位への沈着速度を求める必要があること、茎葉部に沈着したヨウ素が可食部である米に移動する割合（転流率）や土壌からの移行量を求める必要があること、生物学的半減期および weathringによる除去係数や調理加工による除染係数も評価上の重要なパラメータであり、データの蓄積をはかる必要があること、等を述べた。

第3章：

第3章では、RIの土壌から農作物への移行に関して、種々の問題を検討した。第2節では、RIの土壌から農作物への移行量を予測する従来の計算モデルについて述べた。移行係数をキー・パラメータとする移行係数モデルとその修正モデル2つを検討し、それらの長所や短所、さらに、各モデルを実際に適用する場合の問題、特にパラメータに関するデータの蓄積についてまとめた。そして、我が国では独自のデータがほとんどないことから、当面最も簡単で、かつ汎用性がある移行係数モデルを用いて、被曝線量評価が行えるように、移行係数を整備する必要があることを指摘した。

第3節では、第2節において述べた、土壌から農作物へのRIの移行に関する3つの計算モデルの中で、最も簡単で、現実的であると考えられる移行係数モデルのキー・パラメータである移行係数の変動幅およびその要因について検討した。土壌pH、土性、放射性核種の化学形等、種々の環境因子の中で、土壌pHが最も大きな変動要因の1つであること、作物種ごとに移行係数をまとめれば、その変動幅がかなり小さくできること、さらに、実験条件を十分考慮することにより、現実的でない移行係数を除去できること、等についてまとめた。

第4章：

ここでは、土壌中における放射性ヨウ素の挙動、特に、その化学形の違いによる挙動の違いについて、検討した。はじめに、砂質土壌中での挙動をカラム法により検討した。 I^- の場合、70-90%は水と同じ移動速度でカラム内を移動する。残りのヨウ素は、カラム流入端の土壌に吸着し、容易に脱離しない。しかし、 IO_3^- の場合は、カラム内において、土壌と可逆的な吸着反応を繰り返しながら移動してゆく。カラム内の移動速度は水の数分の1から十分の1程度であることを明らかにした。水田および畑土壌への吸着現象はバッチ実験により検討した。 γ 線照射試料や100-300℃に加熱した土壌を用いて、吸着実験を行った結果、 I^- および IO_3^- とも両土壌への

吸着に土壤微生物はあまり関与していないこと、 I^- の吸着に関しては、加熱による乾燥状態の変化の影響を受けやすく、 150°C 以上の加熱で吸着量は40%以下になること、 IO_3^- の場合は、 I^- とは吸着機構が異なり、 I^- ほど加熱の影響を受けないこと、等を明らかにした。

第5章：

この章では、経根吸収経路による農作物への移行を実験的に検討した。はじめに、7種類の農作物への移行を水耕実験により求めた。水耕による短期間の吸収実験では、移行係数は求めることはできない。しかし、これらの実験から得られる移行速度により、クリティカルとなる農作物の選定が可能であること、そして、ハウレンソウ、水稻および大豆が、 ^{129}I の経根吸収経路からの被曝線量評価上特に重要な農作物であることを明らかにした。さらに、同様の水耕実験により ^{137}Cs や ^{85}Sr 等の農作物可食部への移行速度を用いて、RIの農作物可食部への移行における作物間差および核種間差を検討した。そして、水耕液から農作物可食部への移行の程度は、おおよそ

$$^{65}\text{Zn} > ^{54}\text{Mn} > ^{137}\text{Cs} \sim ^{60}\text{Co} > ^{85}\text{Sr} > ^{131}\text{I}$$

の順であること、それぞれの核種について、その作物間差は2-3 桁であること、等を明らかにした。

土耕実験により、田面水から供給された ^{129}I の水稻への移行について検討した。添加量の80%以上が表層から1 cm以内にあり、湛水条件下でも田面水から供給された ^{129}I は表層土壌に吸着される可能性があることを示した。バッチ実験により求めた分配係数は約180であった。水稻各部位への移行に関しては、玄米/N葉（止め葉）の比は約 10^{-3} であり、これは生育時期によりそれほど変化しない。さらに、玄米とモミガラとの比は、出穂開花期から収穫期まで、モミガラへの分配が次第に多くなること、および生育後期においても、玄米への ^{131}I の移行がかなりあること、等を明らかにした。

第6章：

本章では、ガス状ヨウ素(I_2)の大気から水稻への移行に着いて検討した。特に、モミへの沈着速度、モミの生物学的半減期、茎葉部からモミへの転流、およびモミ、玄米、白米間の分配比を実験的に求めた。はじめに、モミの沈着速度は、重量当たりで表示すると、生育期間により1 桁以上異なるが、粒当たりで表示することにより、3 倍以内に押さえられることを明らかにした。さらに、モミに沈着したヨウ素

はほとんど減少しないため、その生物学的半減期は、評価上無限大であること、茎葉部からのヨウ素のモミへの転流はほとんどないこと、玄米中のヨウ素はモミのその3-7%、また、玄米と白米は100:40-50という分配比であること、等を明らかにした。さらに、本研究で得られたデータから、野外における大気から白米へのヨウ素の移行量を計算すると、約 $0.6\mu\text{g} \cdot \text{Kg}^{-1}$ となり、これは、白米中の総ヨウ素量の約20%であることを明らかにした。

以上のように、農作物への ^{129}I の移行に関して、これまでの種々の研究成果を整理するとともに、実験的に多くの知見を得た。今後、経根吸収に関しては、土耕法により種々の農作物（特に、水稻、ハウレンソウおよび根菜類）の移行係数を整備する必要があり、大気からの直接経路に関しても、大気中のヨウ素の化学形の主要なもの1つである有機ヨウ素について、同様のパラメータを得る必要がある。

謝 辞

本研究は筆者が主として放射線医学総合研究所那珂湊支所において行った研究のうち、本論文の表題に関する研究成果を京都大学農学部丸山利輔教授および高橋英一教授、久馬一剛教授の御指導のもとに取りまとめたものであり、ここに記して感謝の意を表します。また、筆者が本研究に取り組み始めた頃から一貫して、御指導、御助言をいただいた京都大学原子炉実験所の桂山幸典教授（現：近畿大学理工学部教授）および福井正美博士、懇切な指導と研究環境を提供して頂いた放射線医学総合研究所環境放射生態学研究部の大桃洋一郎部長、良好な研究環境を創出して支援いただいた放射線医学総合研究所環境放射生態学研究部の諸氏に深く感謝いたします。

放射線（能）に関する単位 [新・旧]

新 し い 単 位	従 来 か ら の 単 位
放 射 能	
Bq (ベクレル)	Ci (キュリー)
放射性核種の崩壊数が1秒につき1個であるときの放射能が1 Bq	1秒当たり 3.7×10^{10} 個の原子核崩壊数
1 Bq = 27.0×10^{-12} Ci = 27.0 pCi (ピコキュリー)	1 Ci = 3.7×10^{10} Bq = 37 GBq (ギガベクレル) 1 μ Ci = 37 kBq (キロベクレル)

キュリー [Ci : curie] 放射能の単位の1つで、1キュリーは
毎秒 3.7×10^{10} 個の原子核の壊変に相当する放射能。
1 Ci = 3.7×10^{10} dps = 3.7×10^{10} Bq = 37 GBq
また、その放射能に相当する放射性核種の量を表すのにも
用いられる。