

## 福島市内山間部の水田の田水、用水およびイネの微量元素の分析（第2報）

矢永誠人<sup>1</sup>、三好弘一<sup>2</sup>、桧垣正吾<sup>3</sup>、森 一幸<sup>4</sup>、

西澤邦秀<sup>5</sup>、後藤祥子<sup>6</sup>、世良耕一郎<sup>7</sup>

<sup>1</sup> 静岡大学理学部放射科学研究施設  
422-8529 静岡市駿河区大谷 836

<sup>2</sup> 徳島大学放射線総合センター  
770-8503 徳島市蔵本町 3-18-15

<sup>3</sup> 東京大学アイソトープ総合センター  
113-0032 文京区弥生 2-11-16

<sup>4</sup> 株式会社イング  
120-0043 足立区千住宮元町 14-1 ING ビル

<sup>5</sup> 名古屋大学名誉教授  
464-8602 名古屋市千種区不老町

<sup>6</sup> 日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター  
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

<sup>7</sup> 岩手医科大学サイクロトロンセンター  
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

### 1 はじめに

2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故以降、土壌から農作物への放射性セシウムの移行が懸念されている。土壌から作物への放射性物質の吸収されやすさは、土壌の土質、用水及び肥料中に含まれる主要元素及び微量元素の影響を受けることが考えられる。したがって、土壌から作物へのセシウムの移行を検討するには、対象とする田畑の土壌や用水に含まれる主要元素や微量元素の濃度を知ることは不可欠となる。そこで我々は、福島市内の山間部の水田の田水および用水のサンプリングを継続的に行い、それらに含まれる主要元素や微量元素濃度の定量を行うとともに、出穂後の葉に含まれる種々の元素や土壌および刈り取り後の玄米中に含まれる微量元素濃度の定量を行った。また、福島市内の別の地域でゼオライト処理をしていない田の土壌を採取し、その土壌を用いて実験室内においてイネの試験栽培も行った。本報では、土壌および玄米についての分析ならびに実験室内におけるイネの

試験栽培の結果を中心に報告する。

## 2 実験

### 2.1 サンプルング

2014年5月～10月及び2015年5月～8月にかけて、福島市内山間部Y地区の田の用水（ため池水および沢水）並びに田水を採取し、(1:1)硝酸を加えてpH 2程度になるようにし、分析に供するまで保存した。また、田の土壌、8月下旬の出穂後のイネ及び9月中旬の収穫期のイネを採取した。なお、本研究で対象とした田は4枚で、それらをWA-1、WB-9、K-1およびK-6と名づけている。また、それらの田の用水としては、WA-1およびWB-9については二つのため池の水が用いられており、K-1およびK-6については湧水（沢水）が用いられている。

### 2.2 イネの栽培試験

福島市内W地区の田の土壌を用いたイネの栽培を、静岡大学理学部の実験室内において行った。10個のアズワン社製ニューワグネルポット（NF-2型）に福島市W地区の田より採取した土壌を、それぞれ、4 kg入れた。そのうちの4個のポットについては、特段の処理をすることなく、静岡市内の農業用水を用いてイネの栽培を行った。また、3個については、ゼオライト 30 gを土壌に混ぜ込んだ後、栽培を行った。残り3個のポットについては、苗を植え付けてから4週間後にRbおよびCsをRbClおよびCsCl水溶液として、それぞれ、 $4.28 \times 10^{-3}$  mol添加し、その後は他のポットのイネと同様に栽培した。

### 2.3 PIXE分析

水試料については、試料水 1 mLをマイクロチューブに分取し、In内部標準溶液を加えて攪拌均一化後、プロレン膜上に滴下・乾燥したものを分析に供した。出穂後のイネの葉については、各茎の穂に近いなるべく緑色の葉、数枚ずつとり、数時間 105°Cで乾燥させた。その数十 mgを精秤し、In内部標準溶液を加え、硝酸灰化したものをバックリングフィルムに滴下・乾燥し、ターゲットとした。コメについては籾摺りのみ行った玄米を粉碎したもの、また、土壌については粉碎後にPd-C粉末を内部標準として加えたものをターゲットとした。それぞれ、(公社)日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター(NMCC)の小型サイクロトロンにより加速した 2.9 MeV陽子ビームを照射し、2台のSi(Li)半導体検出器を用いて試料から発生したX線を測定し、得られたスペクトルを解析プログラム SAPIXにより解析した。

### 2.4 放射能測定

籾および玄米ならびに土壌中のセシウムの放射能の測定は、それぞれの試料をU8容器に入れ、高純度Ge半導体検出器を用いて行った。γ線スペクトルの解析は、SEIKO EG&G社製の解析ソフトウェア Gamma Studioにより行った。なお、検出効率曲線は、(公社)日本アイソトープ協会製の9核種混合の放射能標準ガンマ体積線源(MX033U8PP)を用い、試料の高さ補正も含めて作成した。

## 3 結果および考察

### 3.1 土壌および玄米の分析結果と移行係数

表1に、WA-1の田の土壌および玄米中の元素濃度のPIXE分析による結果の一部とそれらから算出した移行係数の値を示した。なお、 $^{137}\text{Cs}$ の移行係数は土壌中および玄米中の $^{137}\text{Cs}$ の放射能値から算定したものである。

表 1 田(WA-1)の土壌および玄米中の各元素濃度と移行係数

| 土壌中濃度(mg / kg) |                | 玄米中濃度(mg / kg) |            | 移行係数                       |
|----------------|----------------|----------------|------------|----------------------------|
| Mg             | 5920 ± 580     | Mg             | 395 ± 49   | Mg 0.0668                  |
| Si             | 367000 ± 15000 | Si             | 108 ± 34   | Si 0.000294                |
| K              | 25900 ± 1700   | K              | 1780 ± 60  | K 0.0687                   |
| Ca             | 12100 ± 700    | Ca             | 110 ± 6    | Ca 0.00908                 |
| Mn             | 413 ± 32       | Mn             | 19.2 ± 1.0 | Mn 0.0466                  |
| Fe             | 34500 ± 1800   | Fe             | 8.6 ± 0.9  | Fe 0.000472                |
| Cu             | 30.7 ± 12.2    | Cu             | 2.5 ± 0.4  | Cu 0.0882                  |
| Zn             | 112 ± 14       | Zn             | 19.1 ± 1.0 | Zn 0.170                   |
| Rb             | 86.4 ± 13.4    | Rb             | 1.1 ± 0.4  | Rb 0.0128                  |
| Sr             | 114 ± 15       | Sr             | 0.5 ± 0.3  | Sr 0.00437                 |
|                |                |                |            | <sup>137</sup> Cs 0.000878 |

移行係数は、着目している成分についての土壌中における濃度に対する、あくまで可食部のみ、すなわち、イネであれば米の中のみの濃度の割合である。したがって、移行係数が小さいからといって、イネ全体として見た場合、イネがその成分を吸収していないとは言えない。例えば、ケイ素について見てみると、図 1 のようにイネ葉中のケイ素濃度は玄米中濃度よりもはるかに高い。実際、イネはケイ素を積極的に吸収し、蓄積することが一般に知られている。このケイ素の由来について考えてみる。図 2 は、2014 年および 2015 年に採取した田水および用水中のケイ素濃度である。両年に共通することとして、

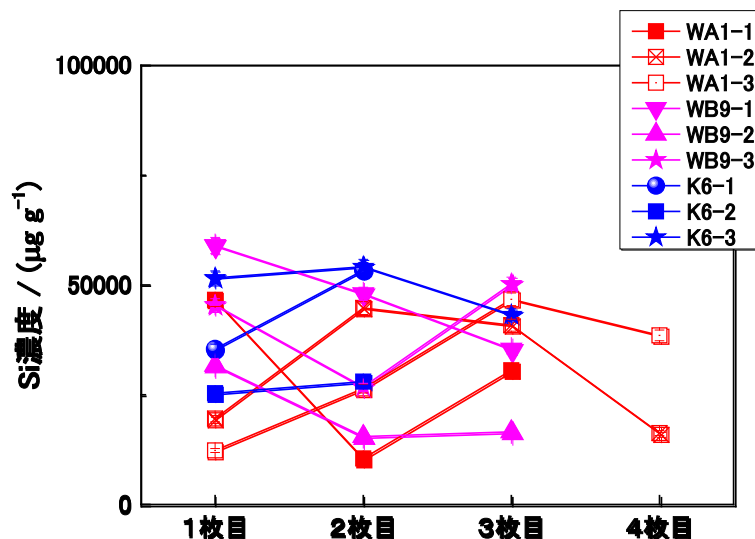


図 1 イネの葉中の Si 濃度

(ここで、例えば、WA1-1、WA1-2、WA1-3 とあるのは、WA-1 の田で採取した一株のイネから選んだ 3 本の茎に付した記号であり、横軸の 1 枚目、2 枚目・・・というのは各茎について稲穂に近い方から数えた葉の位置を意味する。)

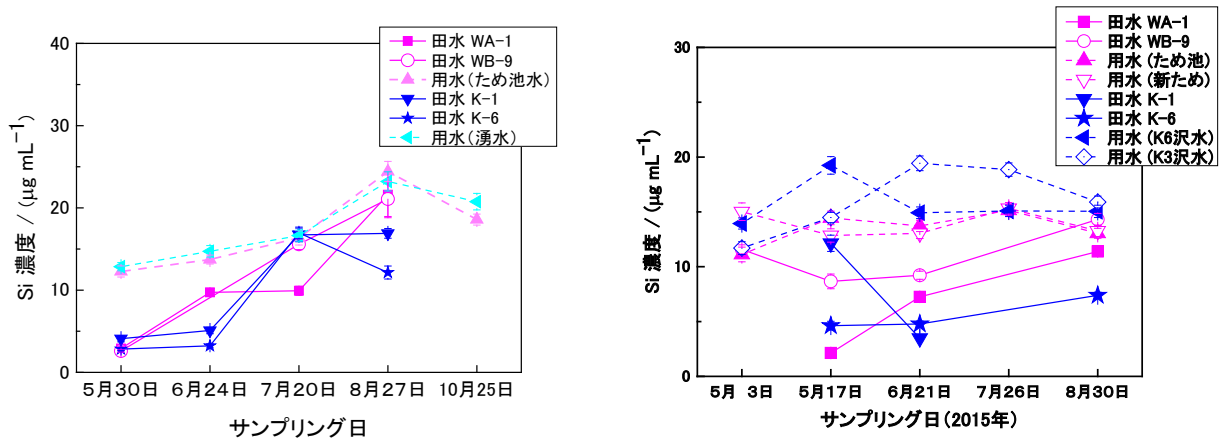


図2 田水および用水中の Si 濃度 (左: 2014 年、右: 2015 年)

用水中の Si 濃度は季節による変動が見られるが、いずれにおいても田水中の濃度は用水中よりも低値を示していた。これは、先にも記したように、イネは Si を多く蓄積することがよく知られており、用水中の可溶性のケイ酸がイネに取り込まれたためと考えられる。このことは、移行係数という指標が必ずしも土壤中の元素の可食部への取り込みの割合を示すわけではなく、また、植物全体としての種々の元素の取り込みを反映するものでもないことを意味している。すなわち、田畑として利用する土壤の除染を行う場合には、農作物の正常な生育や可食部への影響を、土壤中の放射性セシウムのみではなく、土壤および用水の両者に含まれる他の元素の挙動を追跡しつつ検討していく必要があることを示している。

### 3.2 イネ栽培試験

図3に、実験室内で栽培したイネの葉中の K、Rb、Cs の PIXE 分析の結果を示した。

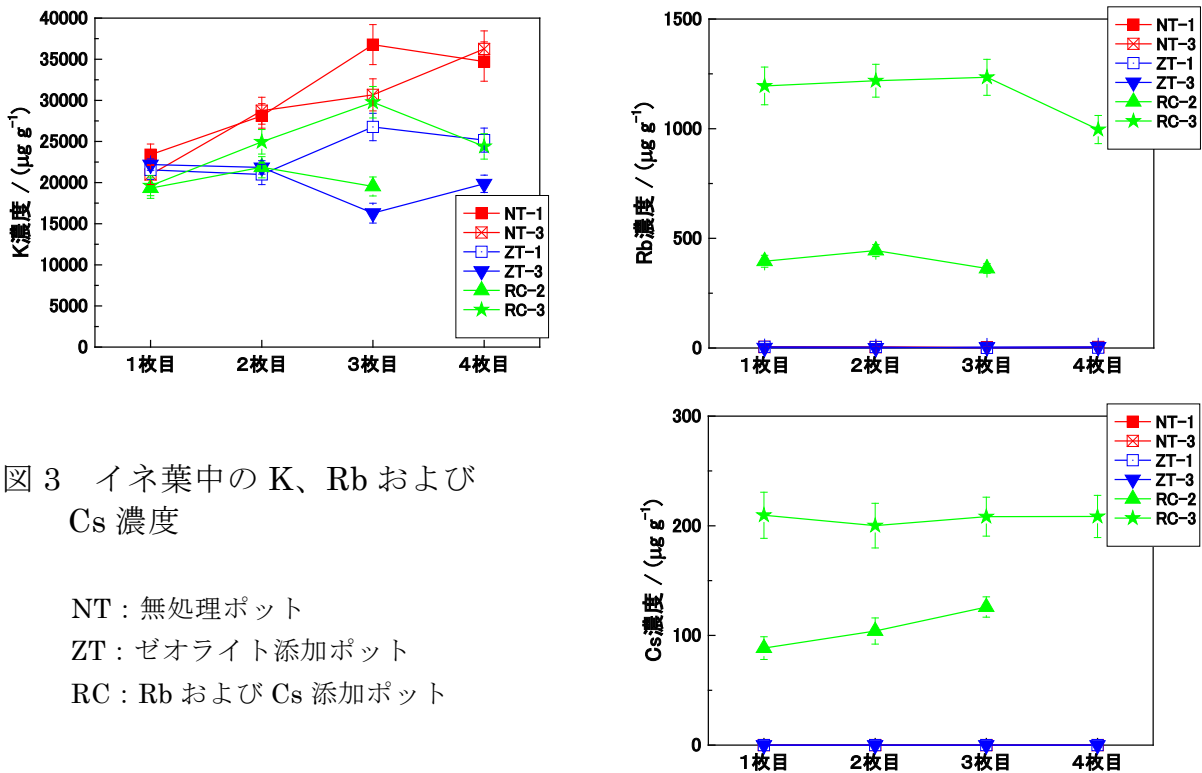


図3 イネ葉中の K、Rb および Cs 濃度

NT : 無処理ポット  
 ZT : ゼオライト添加ポット  
 RC : Rb および Cs 添加ポット

ルビジウムおよびセシウムについては、それらを添加したポットの葉のみで検出された。カリウム濃度は、分析に供した各 2 ポットのイネの葉の間では顕著な差があるようには見えないが、ルビジウムおよびセシウム濃度が高い葉では、カリウム濃度も高いという傾向が認められた。このことは、これらの 3 種のアルカリ金属間では、イネによる吸収の傾向という意味では差がないことを示している。また、ルビジウムおよびセシウムを添加し、分析を行った二つのポットの葉における両元素間の濃度の mol 比は、 $Rb/Cs \approx 8$ であった。このことは、もともとセシウムがルビジウムよりも吸収されにくい、または、セシウムが土壌に吸着するためと考えられる。これまでの知見を考慮すれば、添加したセシウムイオンが土壌に吸着し、イネによる吸収が行われにくくなったと考えるのが自然であろう。

各ポットから採取した籾の重量と  $^{134}Cs$  および  $^{137}Cs$  の放射能および移行係数を表 2 にまとめた。この表に見られるように、安定同位体のセシウムを添加した場合にのみ  $^{134}Cs$  が有意に検出されるなど、放射性セシウムが籾中、すなわち、イネに取り込まれる傾向が認められた。このことは、上記の PIXE 分析の結果とあわせ考えると、添加された安定同位体のセシウムは土壌に吸着するが、その際、すでに土壌鉱物のあるサイトに入っていた放射性のセシウムをはじき出す効果があることを示している。すなわち、原発事故から 4 年以上経過した後であってもイオン交換可能な放射性セシウムが存在していることを示していた。放射性セシウムの除去や農作物への取り込みの防止のために、セシウムの同族のカリウムが用いる例が多数報告されているが、本研究の結果は、安定同位体のセシウムをもって放射性のセシウムを除去する方法を提案できるものとする。

表 2 籾中 Cs の放射能と籾付の状態 で算定した  $^{137}Cs$  の移行係数

|                  | 試料重量 / g | $^{134}Cs$ / Bq kg <sup>-1</sup> | $^{137}Cs$ / Bq kg <sup>-1</sup> | 移行係数*  |
|------------------|----------|----------------------------------|----------------------------------|--------|
| 無処理              | 29.95    | ND (< 4.6)                       | 5.8 ± 1.3                        | 0.0019 |
|                  | 21.65    | ND (< 3.0)                       | ND (< 2.4)                       | 0.0008 |
|                  | 27.14    | ND (< 4.9)                       | 4.9 ± 1.3                        | 0.0016 |
|                  | 21.97    | ND (< 3.8)                       | ND (< 2.7)                       | 0.0009 |
| ゼオライト処理          | 20.26    | ND (< 5.3)                       | 6.9 ± 1.3                        | 0.0023 |
|                  | 20.79    | ND (< 5.2)                       | ND (< 4.0)                       | 0.0013 |
|                  | 24.90    | ND (< 4.9)                       | 4.1 ± 1.1                        | 0.0013 |
| RbおよびCs<br>水溶液添加 | 21.35    | 5.5 ± 1.1                        | 21.9 ± 1.0                       | 0.0072 |
|                  | 18.49    | 6.7 ± 1.7                        | 19.9 ± 1.5                       | 0.0065 |
|                  | 26.40    | 12.2 ± 1.9                       | 42.7 ± 2.0                       | 0.014  |

\* 土壌中の  $^{137}Cs$  を 3050 Bq kg<sup>-1</sup> (3 フラクシヨンの平均値) として算出した。

#### 4 まとめ

本研究では、2014 年 5 月～10 月および 2015 年 5 月～8 月にかけて、福島市内山間部の田園地域において田水および用水（ため池水および沢水）並びに出穂後のイネを採取し、水や土壌およびイネの葉に含まれる微量元素の分析および放射能測定を行った。その結果、田畑の土壌の放射能汚染の除去を計画する際には、用水中の成分を考慮しつつ、土壌中の放射性以外の成分への影響を検討することが必要であることがわかった。また、福島市内で採取した土壌を用いたイネの栽培実験を行ったところ、原発事故から 4 年以上経過した後であってもイオン交換可能な放射性セシウムが存在していることの知見が得られるとともに、安定同位体のセシウムを用いた除染が検討対象になり得ることが示された。

## Analysis of the trace elements in paddy water, irrigation water and rice plants of mountainous region in Fukushima-city (II)

M. Yanaga<sup>1</sup>, H. Miyoshi<sup>2</sup>, S. Higaki<sup>3</sup>, K. Mori<sup>4</sup>, K. Nishizawa<sup>5</sup>, S. Goto<sup>6</sup> and K. Sera<sup>7</sup>

<sup>1</sup>Radioscience Research Laboratory, Faculty of Science, Shizuoka University  
836 Ohya, Suruga-ku, Shizuoka 422-8529, Japan

<sup>2</sup>Advance Radiation Research, Education, and Management Center, Tokushima University  
3-18-15 Kuramoto-cho, Tokushima 770-8503, Japan

<sup>3</sup>Radioisotope Center, The University of Tokyo  
2-11-16 Yayoi, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0032, Japan

<sup>4</sup>ING Co., Ltd.  
14-1 Senjumiyamotouchou, Adachi-ku, Tokyo 120-0043, Japan

<sup>5</sup>Radioisotope Research Center, Nagoya University  
(Emeritus Professor of Nagoya University)  
Furocyo, Chikusa-ku, Nagoya 464-8602, Japan

<sup>6</sup>Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association  
348-58 Tomegamori, Takizawa 020-0603, Japan

<sup>7</sup>Cyclotron Research Center, Iwate Medical University  
348-58 Tomegamori, Takizawa 020-0603, Japan

### Abstract

PIXE analytical technique was applied to determine concentration of trace elements in paddy water, irrigation water (pond water and spring water) and leaves of rice plants, collected from May, 2014 to October and from May, 2015 to August, in mountainous region in Fukushima-city. It was also examined that the effects of adding stable isotopes of cesium and rubidium into paddy water on concentrations of trace elements in leaves of rice plants and the transfer factors from paddy soil to rice of radioactive cesium derived from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accidents in March, 2011. PIXE analytical data for the leaves of rice plants indicated that a major portion of added stable isotope of cesium adsorbed into soil. On the other hand, the transfer factors of radioactive cesium for the unhulled rice cultivated with the water which stable cesium had been added in were much larger than those for cultivated with water in which nothing had been added. This implies that the cesium atoms added were replaced with radioactive cesium atoms in soil.