

放射性セシウム含有土壌を用いたイネの栽培と分析

矢永誠人¹、三好弘一²、桧垣正吾³、森 一幸⁴、西澤邦秀⁵、
後藤祥子⁶、世良耕一郎⁷、谷口大悟⁸、出沢良樹⁸

¹ 静岡大学理学部放射科学教育研究推進センター
422-8529 静岡市駿河区大谷 836

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

³ 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

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

⁵ 名古屋大学名誉教授
464-8602 名古屋市千種区不老町

⁶ 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

⁷ 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

⁸ 静岡大学大学院総合科学技術研究科理学専攻
422-8529 静岡市駿河区大谷 836

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により、多量の放射性物質が環境中に放出された。特に、比較的長い半減期をもつ放射性セシウムによる問題が、今なお強く残っている状況にある。福島産のコメの全袋検査では、土壌に何らの措置もせずに自家消費用に生産されたものを除けば、2014年度以降では基準値を超えたという報告はない。それにもかかわらず、風評被害により、せっかくのコメが正当な価格で取引されていなかったり、他県産とブレンドされたりしている現状がある。

この問題を解決するための一つの方法は、放射性セシウムを確実に土壤に固着させ、コメに限らず、すべての農作物や天然に存在する山菜等への吸収を抑制することである。しかしながら、現実に放射性セシウムが存在している限り、全袋検査で放射性セシウムが基準値以下どころか検出限界以下という結果をもってしても風評被害を免れていないことを考えれば、何らかの方法で田畑の除染をすることを考えざるを得ない。

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壤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い、土壤や用水から農作物であるイネへの放射性セシウムの吸収の様子を調べるとともに、他の元素の挙動も追跡することにより、放射性セシウムの挙動に影響を与える因子について検討している。その一方で、福島市内で採取した田の土壤を用い、実験室内においてコントロールされた条件下でのイネの試験栽培も行うとともに、静岡市内で採取した放射性セシウムによる汚染がほとんどない土壤を人工的にセシウム汚染させ、それを用いたイネ栽培試験も行い、放射性セシウムの挙動および土壤の除染のための予備的実験を行っている。本報では、これらのうちイネ栽培試験の結果を中心に報告する。

2 実験

2. 1 イネの栽培試験(1)

本試験については、昨年、その結果の主要な部分を報告しているが、新たに土壤から玄米への移行係数の算定を行ったので、改めて記述することにする。

福島市内において採取したゼオライト処理をしていない田の土壤を用いたイネ栽培試験を、静岡大学理学部の実験室内において行った。10個のワグネルポットに、それぞれ、採取した土壤を4kg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、本学近隣の農業用水として利用されている地下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30gを土壤に混ぜ込んだ後に栽培した。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、 4.3×10^{-3} mol 添加し、その後は他のポットと同様の条件で栽培した。

2. 2 イネの栽培試験(2) — ホット実験 —

静岡市内の田(耕作放棄地)の土壤を採取し、15個のワグネルポットに3kgずつ入れた。まず、各ポット内の土壤に ^{137}Cs 30 kBqを添加して、模擬汚染土壤を作成した。これらをI~Vの5群に分け、それぞれ、次のような処置を行った。なお、 ^{134}Cs (30 kBq)は、時期を変えながらポット内の用水に加えることにより、イネに取り込まれた放射性セシウムが土壤由来のものか用水由来のものを区別するためのものである。また、担体としてのCsおよびRbは、それぞれ、CsClおよびRbClの水溶液として、それぞれ、 4.3×10^{-3} mol 添加した。

I	^{137}Cs 添加	(灌水)	(苗植え付け)	^{134}Cs のみ添加	(中干)	(刈取)
II	^{137}Cs 添加	(灌水)	(苗植え付け)	(中干)	^{134}Cs のみ添加	(刈取)
III	^{137}Cs 添加	(灌水)	(苗植え付け)	^{134}Cs および担体(Cs)添加	(中干)	(刈取)
IV	^{137}Cs 添加	(灌水)	(苗植え付け)	^{134}Cs および担体(Rb)添加	(中干)	(刈取)
V	^{137}Cs および担体(Cs)添加	(灌水)	(苗植え付け)	^{134}Cs のみ添加	(中干)	(刈取)

2. 3 イネの栽培試験(3) — コールド実験 —

上記のホット実験と同じ静岡市内の田の土壤3kgずつを9個のワグネルポットに入れ、各3ポットずつI~IIIの3群に分け、Iには非放射性的のセシウムを、IIには非放射性的のセシウムおよびルビジウムを

添加した。添加の方法およびその量は、上記の二つの実験と同様とした。Ⅲについては、そのままとした。2 日後に灌水し、その 2 日後に苗の植え付けを行い、上記 2. 2 の実験と時期を合わせて中干しや刈り取りを行った。

2. 4 PIXE 分析

出穂後のイネの葉について、各茎の穂に近いなるべく緑色の葉、数枚ずつをとり、数時間 105℃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。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. 5 放射能測定

籾および玄米の放射能の測定は、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 実際の汚染土壌から玄米への放射性セシウムの移行 (実験 2. 1)

本実験におけるイネ葉中のカリウム、ルビジウムおよびセシウム濃度の分析結果および考察は、すでに報告しているので、ここでは、新たに算定した土壌から玄米への移行係数についてのみ記すこととする。表 1 に、玄米中の放射性セシウムの放射能の定量値と土壌中の ¹³⁷Cs 濃度に対する玄米中の ¹³⁷Cs 濃度の比 (移行係数) を示した。

表 1 玄米中 Cs の放射能と ¹³⁷Cs の移行係数

	試料重量 / g	¹³⁴ Cs / Bq kg ⁻¹	¹³⁷ Cs / Bq kg ⁻¹	移行係数*
無処理	24.34	ND (< 2.1)	3.0 ± 0.3	0.00098
	12.63	ND (< 3.3)	2.6 ± 0.5	0.00085
	22.18	ND (< 2.1)	4.0 ± 0.3	0.00131
	17.56	ND (< 1.4)	2.0 ± 0.3	0.00066
ゼオライト処理	16.59	ND (< 2.4)	5.2 ± 0.4	0.00170
	16.32	ND (< 2.8)	1.6 ± 0.4	0.00052
	19.55	ND (< 2.3)	1.5 ± 0.3	0.00049
RbおよびCs 水溶液添加	16.20	4.5 ± 0.7	15.5 ± 0.6	0.00508
	14.71	5.4 ± 1.0	14.1 ± 0.6	0.00462
	21.66	9.4 ± 0.7	34.3 ± 0.7	0.01125

*土壌中の ¹³⁷Cs を 3050 Bq kg⁻¹ (3 フラクシヨンの平均値) として算出した。

表1にまとめた結果のように、土壌中の原発事故由来の放射性セシウムの玄米への移行は、無処理の場合と土壌にゼオライトを添加した場合とでは変わらず、移行係数として0.00049~0.00170であった。しかしながら、安定同位体のセシウムを添加した場合の移行係数は0.00462~0.01125と、玄米への移行が平均で7.5倍となった。これは、添加された安定同位体と原発由来の放射性セシウムとの同位体交換が起きていることを示しており、この結果は、安定同位体のセシウムを土壌に加えることによって、稲作を行いつつ、原発由来の放射性セシウムが除去できることを示しているものと考えられる。

3. 2 模擬汚染土壌から籾への放射性セシウムの移行 (実験2. 2)

図1に、実験室内で模擬汚染土壌を用いて栽培したイネの籾中放射エネルギーを示した。

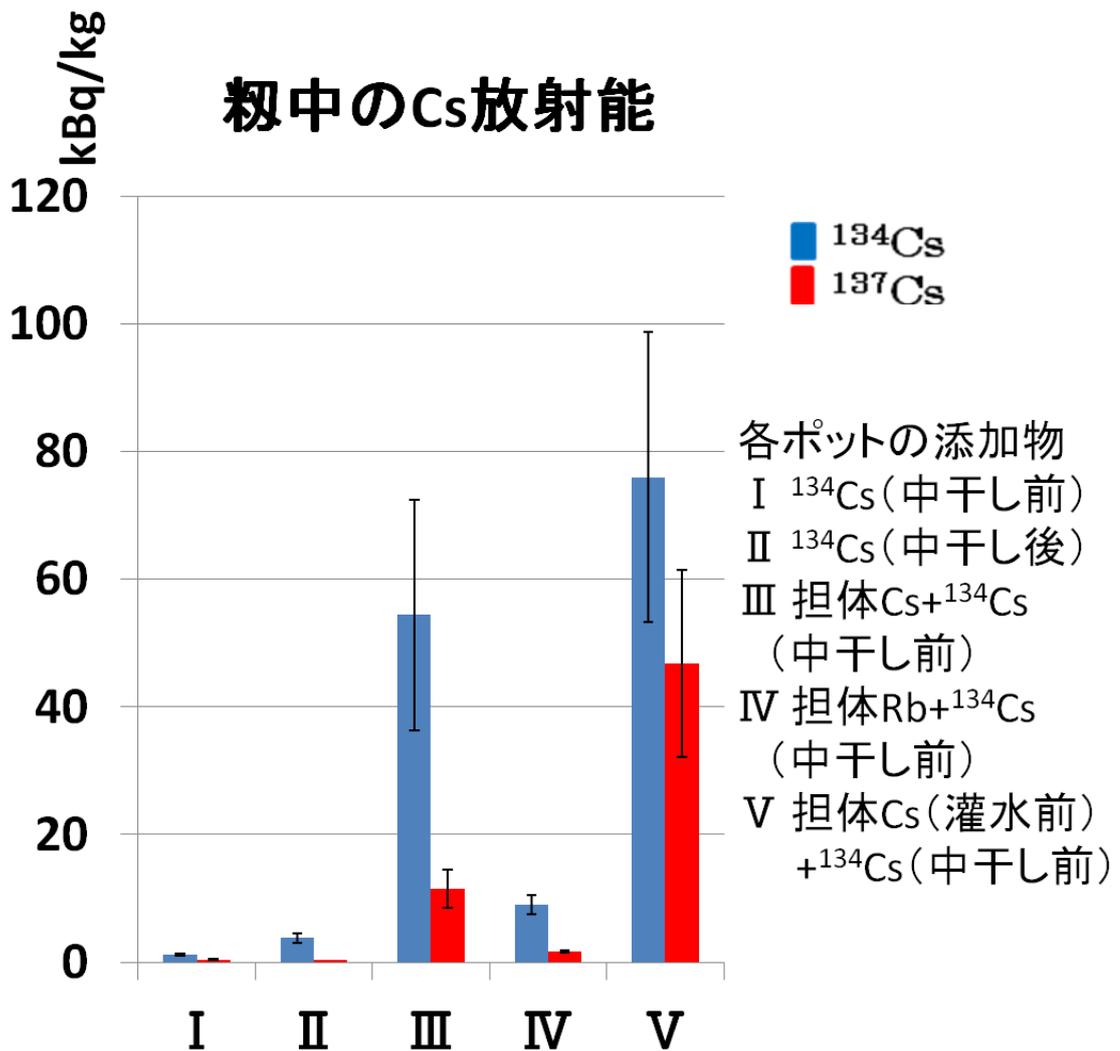


図1 模擬汚染土壌で栽培し、収穫した籾中の放射能 (各グループのポットの平均値)

図1に見られるように、全てのグループのイネ籾中の放射エネルギーは、 ^{134}Cs の方が ^{137}Cs よりも多く、土壌中の放射性セシウムよりも用水中の放射性セシウムの方がイネに吸収されやすいことを示していた。また、セシウム担体を加えていないグループIおよびグループIIと比較してグループIIIの籾中に含まれ

た放射エネルギーが圧倒的に多いことは、グループⅢでは、土壌に吸着した ^{137}Cs が安定同位体と交換されるとともに、 ^{134}Cs の土壌への吸着が圧倒的多数の安定セシウムとの競合によって妨げられたことを示していると考えられる。グループⅤでは、籾中の ^{134}Cs および ^{137}Cs のいずれもが最高値を示していたが、これは、灌水前に加えた安定セシウムが、土壌中のセシウムの吸着サイトをほぼ占領してしまったためと考えている。グループⅣの放射エネルギーは必ずしも高値を示してはいないが、グループⅠやグループⅡに比べると高い値を示していた。このことは、ルビジウムも、ある程度、土壌中で放射性セシウムと交換することを意味しており、セシウムと競合することを示していた。

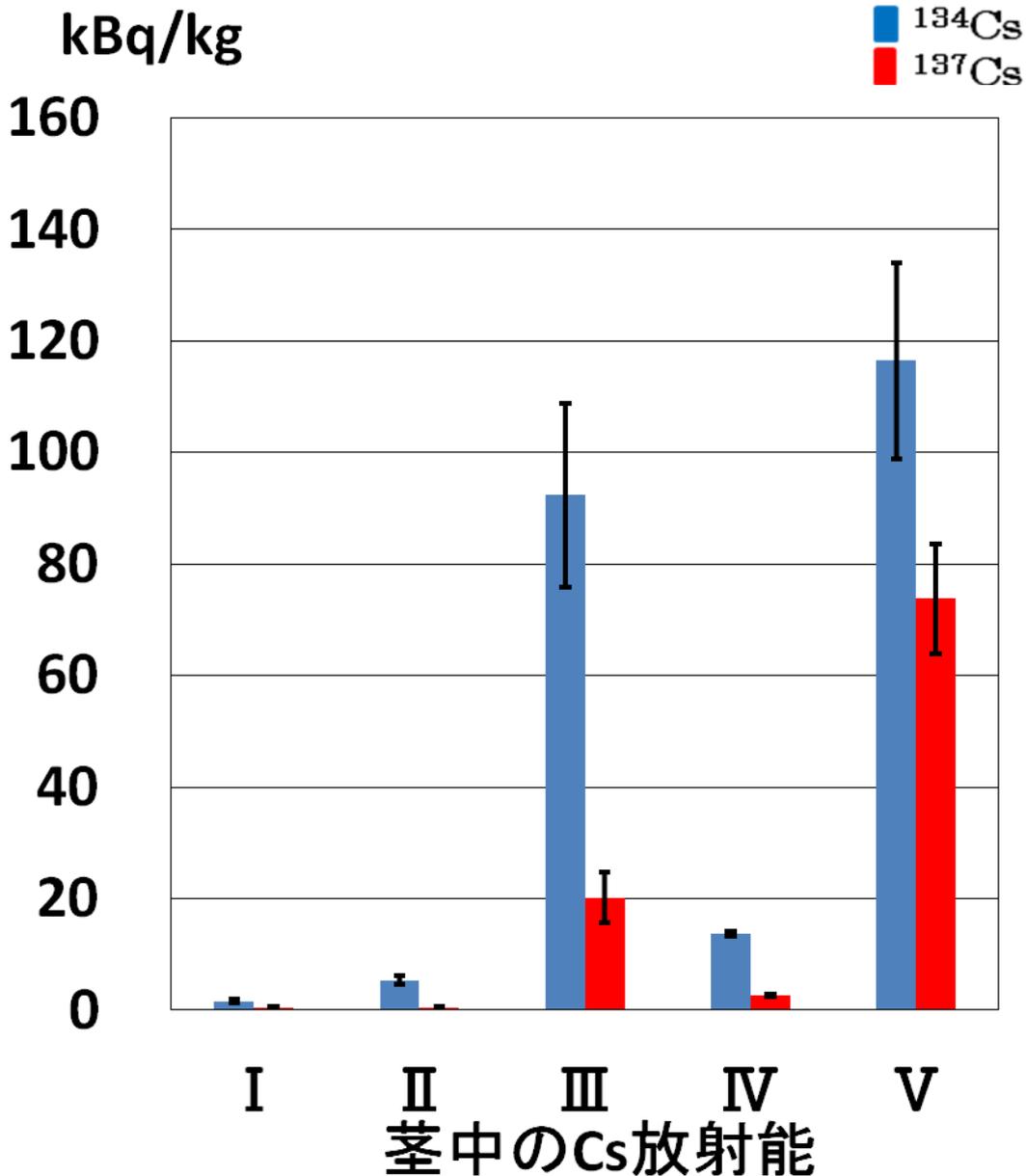


図2 模擬汚染土壌で栽培したイネ茎中の放射能
(各グループのポットの平均値)

図 2 は、茎の放射能測定の結果である。茎および葉に含まれる放射能についても、その傾向は籾の場合と同様であったが、その濃度についてはいずれも籾を上回っていた。このことは、3. 1でも述べたように、稲作を行い、可食部は食用にしつつ土壌除染を行うとともに、茎や葉については焼却し、その灰より放射性セシウムを抽出することにより廃棄物量を減容化するという除染方法が可能であることを示している。なお、本実験では、添加した放射性セシウムの相当量がイネに吸収されているが、この原因としては、福島市内および静岡市内で採取した、それぞれの土壌に含まれる粘土質の量の違いといった土質の違いも考えられるが、放射性セシウムが添加されてからの時間が短く、土壌中でより強固に固着される吸着サイトに入り込んだ放射性セシウムの割合が少なかったためではないかと考えている。実際の汚染土壌についても、原発事故が発生した 2011 年の段階では、汚染土壌から高い抽出率で放射性セシウムを分離できたが、その後は抽出が困難になっていったことも、様々なタイプの吸着サイトが存在することを示しているのではないかと考えている。

3. 3 コールド栽培試験と PIXE 分析の結果 (実験 2. 3)

図 3 に、コールド栽培を行ったグループ I ~ III のすべてのポットから、それぞれ任意に 1 本ずつ選んだ茎の葉について、PIXE 分析を行った結果を示した。

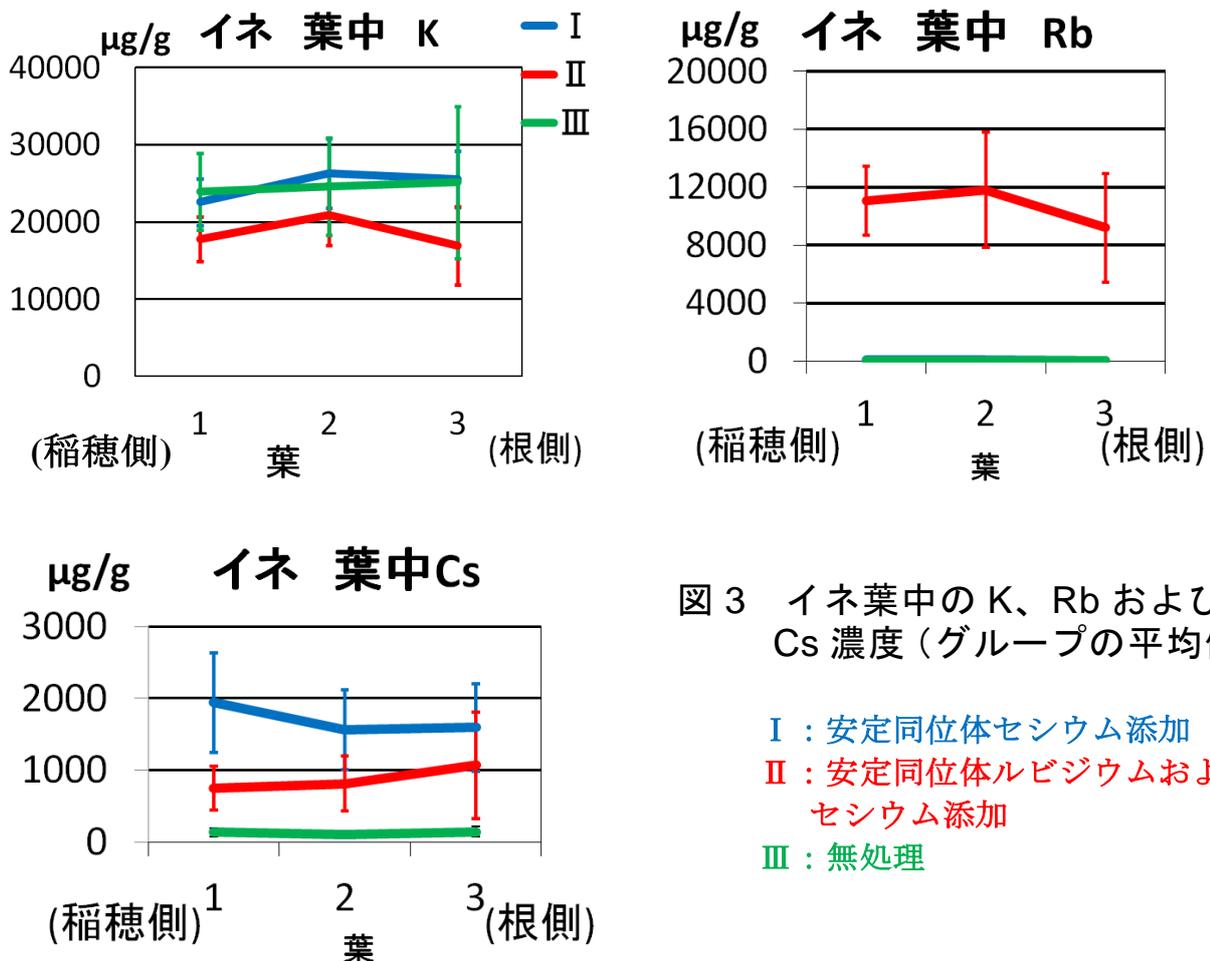


図 3 イネ葉中の K、Rb および Cs 濃度 (グループの平均値)

カリウム濃度について見てみると、ルビジウムおよびセシウムを添加したグループ II では、カリウム濃度が大きく低下している。これに対して、ルビジウムはグループ II でのみ検出されるとともに、この

図の標記はモル濃度ではないために単純な比較はできないが、濃度の低下量から考えると、カリウムとルビジウムが、同程度にイネに吸収されるほどの拮抗関係にあることを示している。セシウム濃度については、イネへの吸収量はカリウムやルビジウムに比べれば著しく少ないが、セシウムのみを添加したグループⅠとルビジウムとセシウムを添加したグループⅡの傾向から、ルビジウムとセシウムも拮抗関係にあると言え、このことは、ホット実験において、ルビジウムが土壌中のセシウムと交換したことを示す結果が得られたことと矛盾していない。

4 まとめ

本研究では、福島市内で採取した土壌、静岡市内で採取した土壌およびそれを人工的に放射性セシウムで汚染させた土壌を用いたイネの栽培実験を行った。その結果、土壌に強く吸着してイネに吸収されにくい状態の放射性セシウムであっても、安定同位体を添加することにより、同位体交換によって遊離し、イネに吸収されるようになることがわかった。実際の汚染土壌で収穫された玄米中の放射性セシウム濃度が基準値以下であったことから、この原理を利用すれば、稲作を行いつつ田の土壌の除染が可能であることがわかった。

Cultivation and analysis of rice plant using the soil contaminated with radioactive cesium

M. Yanaga¹, H. Miyoshi², S. Higaki³, K. Mori⁴, K. Nishizawa⁵, S. Goto⁶, K. Sera⁷,
D. Taniguchi⁸ and Y. Dezawa⁸

¹ Center for Radioscience Education and Research, Faculty of Science, Shizuoka University
836 Ohya, Suruga-ku, Shizuoka 422-8529, Japan

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

³ Radioisotope Center, The University of Tokyo
2-11-16 Yayoi, Bukyo-ku, Tokyo 113-0032, Japan

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

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

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

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

⁸ Department of Science, Graduate school of Integrated Science and Technology
Shizuoka University
836 Ohya, Suruga-ku, Shizuoka 422-8529, Japan

Abstract

It was examined that the effect of addition of stable cesium on the transfer of radioactive cesium from paddy soil to rice. The transfer factors of radioactive cesium for the brown rice cultivated with water including stable cesium 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.