

## 放射性セシウム含有土壌を用いたイネの栽培と分析（Ⅱ）

矢永誠人<sup>1</sup>、出沢良樹<sup>2</sup>、三好弘一<sup>3</sup>、桧垣正吾<sup>4</sup>、森 一幸<sup>5</sup>、

西澤邦秀<sup>6</sup>、後藤祥子<sup>7</sup>、世良耕一郎<sup>8</sup>

<sup>1</sup> 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

<sup>2</sup> 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

<sup>3</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>4</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>5</sup> 株式会社イング  
120-0043 足立区千住宮元町 14-1 ING ビル

<sup>6</sup> 名古屋大学名誉教授  
464-8602 名古屋市千種区不老町

<sup>7</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>8</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で放出された多量の放射性物質は、広範囲にわたる汚染を引き起こした。田畑もその例外ではなく、農作物への放射性物質の移行、特に、比較的長い半減期をもつ放射性セシウムの取り込みが懸念された。このため、福島県やその周辺地域の農産物などは、市場に流通する前には放射能測定を行うことが余儀なくされた。しかし、幸いなことに福島産のコメにおいても、その全袋検査では2014年度以降はいわゆる基準値を超えたという報告はないどころ

か、検出限界以下であることがほとんどのものである。それにもかかわらず、風評被害によって福島産のコメは正当な価格で取引されていなかったり、他県産のコメとブレンドされたりしているとの報道を見る現状がある。

この問題解決のもっとも有効な方法は、田畑土壌の除染である。土壌除染については、原発事故が発生した 2011 年には様々な除染方法が提案されるとともに、それぞれの有効性が示されていた。ところが、2012 年以降になると 2011 年には有効な方法であったにもかかわらず、それらの除染法には有効性が認められなくなってきた。これは、放射性セシウムが徐々に粘土鉱物に吸着固定されていき、さらにその固着したセシウムは容易には他のイオンと置き換わることができず、土壌に含まれている水の中に溶け出してこないためと考えられている。したがって、放射性セシウムを含む田で稲作を行っても、コメにはほとんど放射性セシウムは含まれないことになり、実際、収穫されたコメの放射能は検出限界以下であって安全性に全く問題ないといえるのだが、実状は上述のとおりである。

そこで我々は、粘土鉱物に吸着固定された放射性セシウムを安定同位体のセシウムと交換させることにより放射性セシウムを遊離させ、土壌除染を行うことができないかと考えた。さらに、土壌からイネへ放射性セシウムが吸収された場合にも、イネ全体の中では葉や茎に比べてコメに含まれるセシウム量が最も少ないことから、稲作を行いつつ田の土壌の除染をすることができるのではないかと考え、福島市内の二つの地域で採取した田の土壌を用いて実験室内においてイネのポット栽培を行い、セシウム添加による土壌除染方法の有効性について検討した。

## 2 実験

### 2.1 イネの栽培

福島市内の O 地区および Y 地区の二つの地域の田（耕作放棄地）の土壌を採取し、その土壌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。19 個のワグネルポットを用意し、そのうちの 9 個のワグネルポットには O 地区の田で採取した土壌を、残りの 10 個には Y 地区の土壌を 2.7 kg ずつ入れた。各地区のポットを、それぞれ、I～III の 3 群に分けてイネの栽培を行った。用水には、静岡市駿河区大谷の本学近辺の農業用地下水を利用した。なお、各群のポット数は、Y 地区の III 群のみ 4 ポットとし、他の群は 3 ポットとした。中干し後の灌水時に、それぞれの I 群のポットには、CsCl 水溶液として  $2.00 \times 10^{-3}$  mol、II 群のポットには  $6.00 \times 10^{-3}$  mol の非放射性のセシウムを添加した。どちらの地域の土壌についても、III 群のポットは無添加の対照群とした。

### 2.2 PIXE 分析

本研究で使用した O 地区および Y 地区の土壌、イネ栽培中のポット内の水ならびに出穂後のイネの葉および茎について PIXE 分析を行った。葉の分析では、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  $105^\circ\text{C}$  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。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。

### 2.3 放射能測定

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 Y地区およびO地区の土壌中元素濃度の比較

本実験で用いた二つの地区の田の土壌についての PIXE 分析結果の一部を表 1 にまとめた。

それぞれの土壌中の元素濃度を比べてみると、顕著な差が認められる元素はカリウムであり、O 地区土壌中のカリウム濃度は低く、Y 地区土壌中のその約 3 分の 1 であった。また、カリウムと同じアルカリ金属であるルビジウムの含有量の割合も同程度であった。その他の元素では、微量元素である銅の濃度は Y 地区土壌の方が O 地区の約 2 分の 1 であった。

表 1 Y 地区土壌と O 地区土壌中の元素濃度の比較

	Y地区土壌中濃度 (mg / kg)		O地区土壌中濃度 (mg / kg)	
Na	980.1	± 186.8	712.0	± 200.6
K	5792.0	± 984.1	1980.4	± 756.3
Mg	2436.2	± 607.0	2399.3	± 741.0
Ca	4527.8	± 806.7	5730.3	± 1376.2
Si	56013.6	± 12645.2	72643.4	± 24791.0
Mn	475.2	± 70.4	519.9	± 117.3
Fe	70228.2	± 5480.7	68331.4	± 5568.9
Cu	20.82	± 7.65	39.87	± 6.81
Zn	170.0	± 36.4	115.1	± 23.3
Rb	120.0	± 26.7	39.0	± 9.4

#### 3. 2 Y地区およびO地区のイネ葉中元素濃度の比較

セシウムを添加せずに栽培したイネの葉に含まれていた主な元素の濃度を表 2 にまとめた。

土壌中濃度に大きな差が見られたカリウムについては、同じイネの茎の葉であってもそれぞれの葉の含有量が大きく異なるため、ばらつき（標準偏差）は大きくなっており、それを考慮すると両者の間には有意な差はなく、O 地区土壌のイネが肥料中のカリウムや土壌中のカリウムを積極的に吸収したものと推定される。

表 2 各 III 群 (Cs 無添加群) のイネ葉中の元素濃度の比較

	Y地区イネ葉 (mg / kg)		O地区イネ葉 (mg / kg)	
Na	768.2	± 530.9	555.3	± 421.3
K	36835.1	± 27798.2	26950.8	± 15393.0
Mg	3044.4	± 903.0	3354.8	± 976.5
Ca	6253.6	± 3819.5	5489.9	± 3275.2
Si	8559.2	± 5297.6	26824.1	± 11858.9
Mn	700.9	± 643.3	2109.3	± 1373.5
Fe	173.7	± 65.8	151.2	± 54.6
Cu	8.60	± 4.37	7.47	± 1.72
Zn	36.04	± 16.27	30.23	± 16.02
Rb	53.16	± 55.70	13.31	± 14.42

他方、土壌中濃度では両地区の間で差が見られなかったケイ素とマンガンについては、O 地区のイネでは積極的に取り込まれる傾向が認められた。なお、土壌中含有量で差が認められた銅についてのイネ葉中の濃度には有意な差は見られなかった。

### 3. 3 田水中（ポット水中）のカリウムおよびセシウム濃度

イネ栽培の期間中に、適宜、ポット内の水を採取して PIXE 分析を行って定量したカリウム濃度およびセシウム濃度を、図 1 にイネの栽培過程とともに示した。

施肥および灌水後の苗植え付け時のポット内のカリウム濃度は、Y 地区土壌を用いたポット水の方が有意に高く、これは土壌中のカリウム濃度の差を反映したものと考えられる。なお、本研究で用いた静岡市駿河区大谷の地下水中のカリウム濃度は、図中にカッコ書きで示したように極めて低濃度であり、両群のポット水中のカリウムの大部分が土壌から溶け出したもの、または肥料から溶け出したものであることを示している。

中干後の灌水直後のポット水中のカリウム濃度は両群とも低値を示していたが、追肥後の水中濃度は高まる傾向にあった。セシウムを添加した Y-I 群、Y-II 群、O-I 群および O-II 群のそれぞれを比較すると、セシウムを Y-I 群および O-II 群の三倍量を添加した Y-II 群および O-II 群のカリウムのポット水中における濃度の上昇はより高まる傾向にあり、収穫前のそれらの濃度は、単に土壌から溶け出した、または肥料からのカリウムの供給では説明がつかないほど著しく高いものであった。他方、セシウム添加後のそのポット水中のセシウム濃度を見てみると、セシウム添加から約 3 週間後では高濃度を示していたにもかかわらず、収穫前では水中の含有量は激減していた。この理由としては二通りの原因が考えられる。一つはイネによる吸収であり、もう一つは土壌への吸着である。

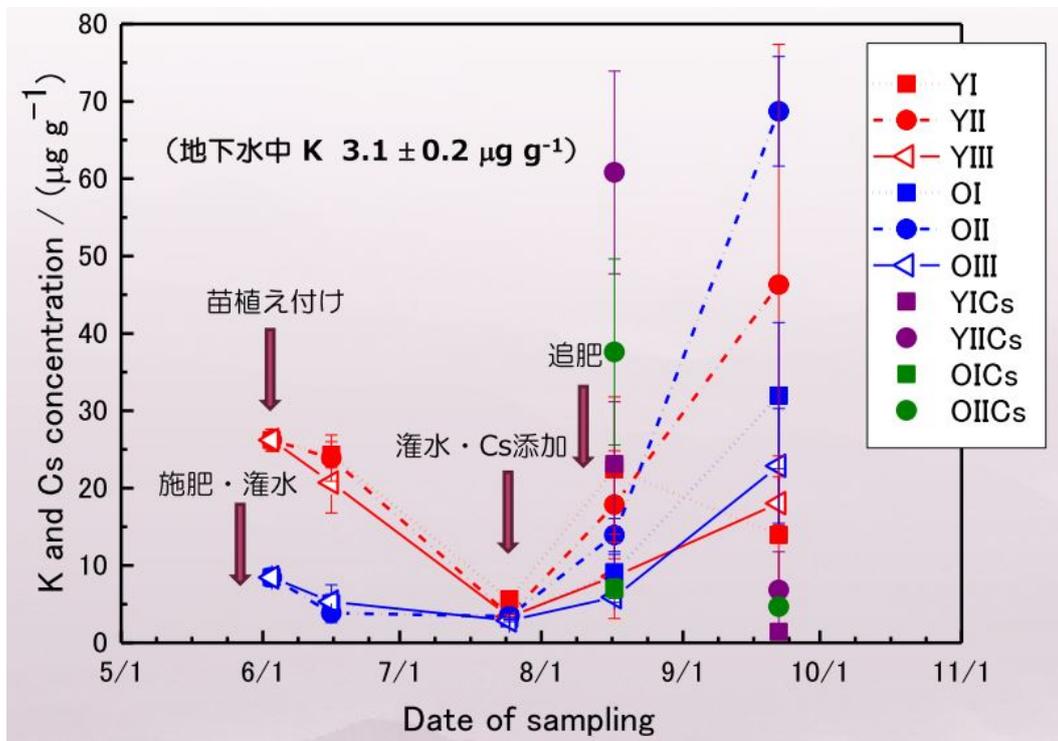


図 1 ポット水中のカリウム濃度およびセシウム濃度（各グループのポットの平均値）

土壌への吸着を考えた場合、特に、Y-II 群に比べて O-II 群での水中セシウム濃度が低値を示したこと (Y-I 群と O-I 群との比較でも同様) は、O 地区土壌中にはセシウムイオンが速やかに吸着できるサイトが多いことを意味しているものと考えられる。また、このセシウムの吸着サイトに、もともと、通常は水中に溶け出してこないカリウムイオンが多数存在し、そのカリウムイオンとセシウムイオンが交換するということが起こったと仮定すれば、土壌中のカリウム含有量が少ない O 地区土壌のポット水中のカリウム濃度が著しく上昇することの説明がつくかもしれない。さらには、中干し後のイネは積極的に水および必要なイオンを吸収するであろうし、特に、カリウムイオンが少ない O 地区土壌のポットではより積極的にアルカリ金属イオンを吸収することも考えられる。

ここで、イネの生長について触れると、Y 地区土壌のポットおよび O 地区土壌のポットのいずれにおいても、特に、セシウム添加量の多い II 群のポットにおけるイネの成長障害は著しいものであった。これは、明らかにセシウムイオンによるものと考えられる。セシウム添加には塩化セシウム水溶液を用いたので、塩化物イオンによる成長抑制も否定はできないが、現時点では、セシウムを原因物質と考えている。そうすると、セシウムイオンとイオン交換可能なカリウムイオンが土壌中に多数存在していることと、イネによる積極的なセシウムイオンの吸収によるカリウムイオンを吸収することの妨害 (競合関係)、さらにセシウムを多量に吸収したことにより生じた成長障害によるカリウムの吸収抑制といったことが、ポット水中のカリウム濃度やセシウム濃度の特異的な変化の原因となったといえよう。

### 3. 4 土壌およびイネ中の $^{137}\text{Cs}$ 放射能

図 2 に本研究で用いた二つの地区の土壌中の  $^{137}\text{Cs}$  の放射能を示すとともに、両地区の各群のイネの玄米、葉および茎中に取り込まれた  $^{137}\text{Cs}$  の放射能を比較した。

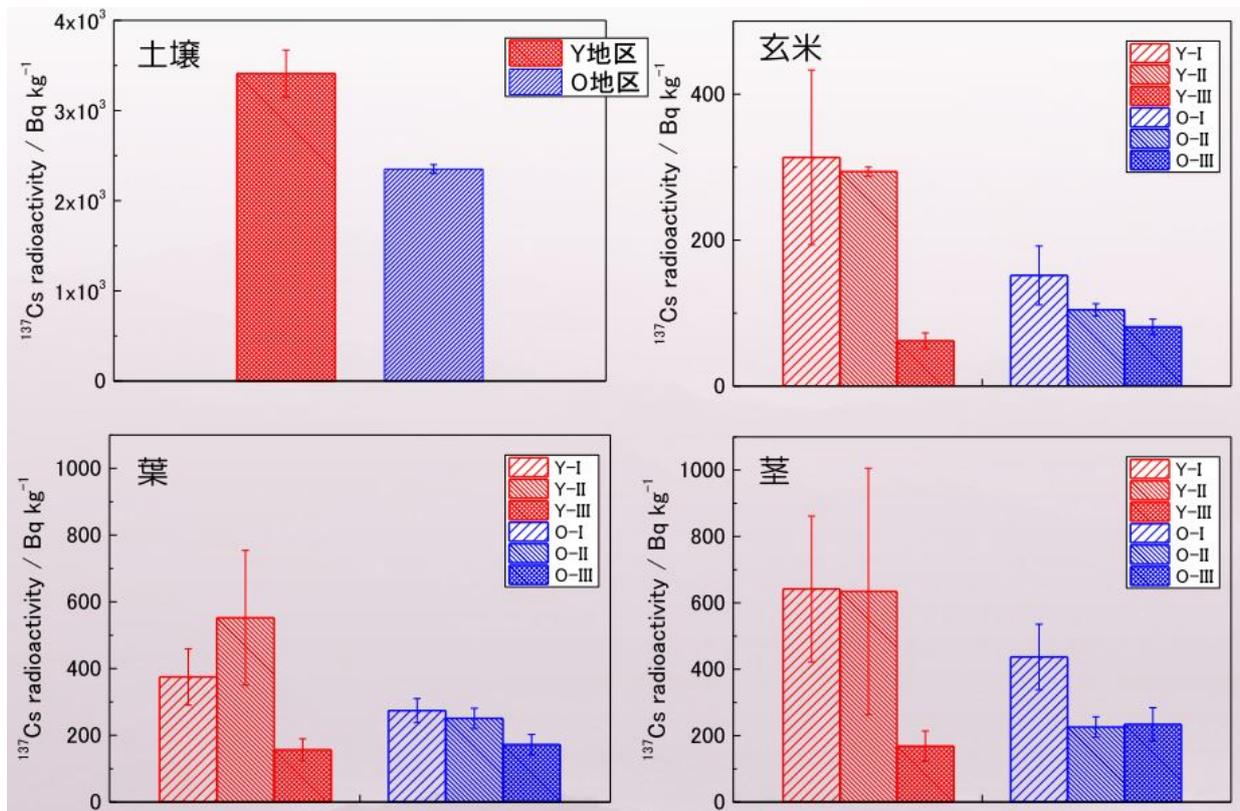


図 2 土壌およびイネ (玄米・葉・茎) 中の  $^{137}\text{Cs}$  放射能の比較 (2017 年 4 月 1 日基準)

土壌中の<sup>137</sup>Csの放射能は、Y地区土壌は3410±260 Bq/kg、また、O地区土壌は2350±50 Bq/kgと、Y地区の方がやや高値を示していた。しかしながら、安定同位体のセシウムを添加していないY-III群とO-III群の玄米や葉、茎中の<sup>137</sup>Cs放射能は、両群間には差を認めることはできなかった。このことは、土壌全体の放射エネルギーはY地区土壌の方が高いものの、土壌に固着されていないためにイネが吸収できる状態で存在する放射性セシウムの量が両地区土壌で差がないこと、または、もともとO地区土壌を入れたポット内の水に溶け出したカリウム濃度が低かったことからO-IIIでは積極的にカリウムイオンを吸収しようとしたために放射性セシウムのイオン（トレーサ量であり、カリウムイオンとの競合は問題にならないであろう。）の取り込み量も増えたと考えられることができる。

他方、中干し後にCsCl水溶液を添加した群については、いずれの群においても、放射性セシウムのイネへの取り込み量は増加し、土壌中に固着していた放射性セシウムイオンが非放射性のセシウムイオンによって水中に溶け出してきたことを示していた。また、玄米、葉および茎ともにY地区土壌のポットで栽培した場合の方がイネへの放射性セシウムの取り込み量は増加していた。これは、一つには土壌中の放射エネルギーの差が反映されたものと見ることができる。これに対し、3.3節で記したように、O地区土壌においてセシウムが吸着する空きサイトが多数存在することを仮定すれば、中干し後に加えられた非放射性のセシウムイオンの多くがそのサイトに固着したために、吸着サイトに固着している放射性セシウムとの交換量が少なくなったと考えることもできる。また、O地区土壌のイネによる、より積極的なアルカリ金属イオンの吸収・取り込みを考えると、添加された非放射性セシウムイオンの多くが土壌中の放射性セシウムイオンと置き換わることなく、それよりも前にイネに吸収されたことにより、土壌中の放射性セシウムと交換する量が少なくなったために水中に遊離してくる放射性セシウムのイオンが減少したと考えることや、添加された非放射性セシウムイオンを吸収したことによる成長障害にともなう吸収抑制が生じたという考え方もできる。もし、土壌中にセシウムイオンを強く固着するサイトの空きが多数あるならば、そこにセシウムイオンが固着されるはずであるから、イネが吸収できるような可溶性の状態にある放射性セシウムの土壌中における存在量は極めて少ないものと思われる。したがって、セシウムイオンを添加した場合におけるY地区土壌で栽培したイネとO地区土壌で栽培したイネの放射性セシウムの取り込み量の差は、もとの土壌中の放射エネルギーの差とともに、土壌中のカリウム量の差に起因するアルカリ金属イオンの取り込みの積極性の差が原因と考えるのが妥当であると思われる。

### 3.5 土壌およびイネ中の<sup>137</sup>Cs放射能

表3に、それぞれの群について、放射性セシウムの土壌から玄米への移行係数をまとめた。上述したように、Y地区土壌の方が含有放射エネルギーが多いにもかかわらず玄米中の放射能は両群間に差がなかったことから推定されるように、セシウム無添加群ではO地区土壌の場合の方が移行係数は高いものとなった。これに対してセシウムを添加した群での移行係数はO地区土壌の方が低い値となった。その理由は前述の通りであろう。

表3 各群の土壌から玄米への<sup>137</sup>Csの移行係数

	Y-I	Y-II	Y-III	O-I	O-II	O-III
玄米への移行係数	0.0919	0.0862	0.0182	0.0646	0.0445	0.0346

我々は、昨年も、O地区土壌を用いたセシウム添加実験を行った結果を報告したが、その時の土壌から玄米への移行係数は、無処理（セシウム無添加）の場合には0.00066～0.00170であった。また、非放射性セシウムを添加した場合の移行係数は0.00462～0.01125であった。今回の実験で得られた移行係数は、前報よりもかなり高いものであった。O地区同士と比較においても、セシウム無添加群の平均で約50倍の値となったが、これは用いた土壌の土質の違いに起因するものと考えている。前回および今回用

いた土壌は、同じ O 地区の土壌ではあるが採取した田が異なっている。具体的には、4 枚が並んだ田のうちの異なる 2 枚の田から採取したものであり、それぞれの田を所有する農家は異なっており、もともとの土質が異なっているだけではなく、過去数十年以上にわたる施肥・手入れ仕方にも違いがあるものと思われる。また、今回土壌の採取を行った田は、前年より稲作を行わなくなった田であり、さまざまな植物が生い茂る状態にあった。Y 地区で土壌を採取した田についても、2013 年以降は稲作を行っておらず荒地の状態であったとともに、その土壌の色は O 地区のそれとは異なっており、見た目にも土質が異なることが明らかであった。今後、このような耕作放棄がどのような影響を与えるかということも含め、放射性セシウムと非放射性セシウムとの間で起こっていると考えられる同位体交換を利用した放射性セシウムの除去について、土質との関連性を踏まえつつ検討していきたい。

#### 4 まとめ

本研究では、福島市内で採取した土壌を用い、実験室内におけるイネのポット栽培実験を行った。その結果、土壌に強く固着して容易に溶け出してこない状態にある放射性セシウムであっても、非放射性のセシウムを添加することにより、土壌中のセシウムを吸着するサイトにおいて交換がおこることにより放射性セシウムが遊離し、イネに吸収されるようになることが再確認されるとともに、その効果は土壌中に含まれるカリウム量の影響を強く受ける可能性があることが示唆された。また、原発事故後 7 年が経過した土壌においても、土壌中の水分に溶け出してイネに容易に吸収されるような状態にある放射性セシウムが存在することが確認された。

## **Cultivation and analysis of rice plant using the soil contaminated with radioactive cesium (II)**

M. Yanaga<sup>1</sup>, Y. Dezawa<sup>2</sup>, H. Miyoshi<sup>3</sup>, S. Higaki<sup>4</sup>, K. Mori<sup>5</sup>,  
K. Nishizawa<sup>6</sup>, S. Goto<sup>7</sup> and K. Sera<sup>8</sup>

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

<sup>2</sup> Department of Science, Graduate school of Integrated Science and Technology, Shizuoka  
University  
836 Ohya, Suruga-ku, Shizuoka 422-8529, Japan

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

<sup>4</sup> Radioisotope Center, The University of Tokyo  
2-11-16 Yayoi, Bukyo-ku, Tokyo 113-0032, Japan

<sup>5</sup> ING Co., Ltd.  
14-1 Senjumiyamotochou, Adachi-ku, Tokyo 120-0043, Japan

<sup>6</sup> Radioisotope Research Center, Nagoya University  
(Emeritus Professor of Nagoya University)  
Furocyo, Chikusa-ku, Nagoya 464-8602, Japan

<sup>7</sup> Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association  
348-58 Tomegamori, Takizawa 020-0603, Japan

<sup>8</sup> Cyclotron Research Center, Iwate Medical University  
348-58 Tomegamori, Takizawa 020-0603, Japan

### **Abstract**

It was examined that the effect of addition of stable cesium on the transfer of radioactive cesium from paddy soil to rice using the soil of rice paddies of two areas in Fukushima city. It was reconfirmed that the transfer factors of radioactive cesium for the brown rice cultivated with water including stable cesium ions 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. The effect seemed to be strongly influenced by the difference of the soil ingredient.