

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24510031

研究課題名(和文)放射性テルルの農作物への移行に関する研究

研究課題名(英文)Study on the transfer of tellurium from soil to plants

研究代表者

高橋 知之(Takahashi, Tomoyuki)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号：80314293

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：東京電力福島第一原子力発電所の事故では大量の放射性核種が環境中に放出された。このうちTe-127mの半減期は約109日と比較的長く、IAEAの報告書に記載された土壌-農作物移行係数を用いて評価すると、特に福島第一原発から南方向では、放射性テルルの内部被ばくへの寄与が放射性セシウムに比べて無視できるレベルではない可能性があった。よって、安定テルルと安定セシウムを同時に添加した土壌を用いて植物栽培実験を行い、それぞれの移行係数を求めた。その結果、テルルの移行係数は既報値よりも低く、実際の放射性テルルの線量の寄与は既報値を用いた評価よりも十分に低くなる可能性があることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：Radioactive tellurium were released to the environment along with radioactive cesium and radioactive iodine as a result of the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Te-127m may have moved from soil to foodstuffs and been ingested by local residents. However, little is known about soil retention and transfer from soil to plant of Te in the ecosystem. In this study, the transfer factors from soils to plants were determined for stable Te and Cs in radish and komatsuna. The ratios the committed effective doses for radioactive Te to radioactive Cs calculated with the transfer factors indicated by this study are two orders higher than those calculated with the transfer factors reported by IAEA. This result indicates that there is a possibility that the actual committed effective dose from the ingestion of radioactive Te is considerably lower than the dose calculated with the transfer factors of reported by IAEA.

研究分野：環境影響評価

キーワード：土壌-農作物移行係数 放射性テルル 放射性セシウム 内部被ばく 経口摂取 食品 福島第一原子力発電所事故

1. 研究開始当初の背景

東日本大震災に起因する東京電力福島第一原子力発電所の事故では、大量の放射性核種が大気あるいは海洋に放出された。このうち、大気中に放出された放射性核種の種類は、放射性ヨウ素、放射性セシウムをはじめとして、極めて多種にわたる。このため、この事故に起因する住民の被ばく線量を評価するためには、これらの核種のうち、被ばく線量に寄与する核種の環境中における移行挙動を精度良く評価する必要がある。

このような放射性核種の移行挙動を評価するためのモデルやパラメータは、これまで国内あるいは国際的に整備が進められており、特に被ばく線量評価において重要と考えられるストロンチウムやセシウムについては、多くのデータが蓄積されている。一方、これまで重要と考えられていなかった核種については、データ整備があまり進んでいない状況にある。その代表的な例が放射性テルルである。放射性テルルの同位体は一般的に半減期が短く、また安定テルルは環境中の存在量が極めて少ないことから、例えば最新の環境移行パラメータを集約した IAEA TRS-472 では、土壌から農作物へのテルルの移行係数はわずかに 1 例のデータを記載しているのみである。

今回の事故においては放射性テルルが他の核種と同様に環境中に放出され、事故直後の段階では Te-132 が大気中から検出され、また、その後のモニタリングでは Te-129m が土壌や淡水産物等から検出されている。Te-129m は半減期が 33.6 日であり、大気から農作物への直接沈着経路や、事故から一年程度における経根吸収経路についてその影響を評価する必要がある。これに加え、原子力安全・保安院による大気への放出量の推定では、Te-127m が Te-129m の約三分の一程度放出されたと推定されている。Te-127m の半減期は約 109 日であり、短期間ではあるが、事故後数年間は内部被ばく線量に一定の寄与がある可能性がある。

Te-127m は直接測定することが困難であることから、その線量評価には、Te-129m に関するモニタリングデータを用いるとともに、テルルの環境中移行パラメータの取得が重要となる。特に食品摂取による内部被ばく線量を評価するためには、その土壌から農作物への移行係数を明らかにすることが重要である。しかしながら、土壌から農作物への移行係数は、土壌の性状や、農作物の種類によって大きく変動することが知られており、その変動要因を明らかにするためには、多くの実験研究が必要であると考えられた。

2. 研究の目的

本研究で着目している放射性テルルは比較的半減期が短いため、事故から数年間までの被ばく線量評価において特に重要である。一方、土壌-農作物移行係数は、生育する農作

物の種類や、土質等の環境要因によって変動することが知られており、多くの土壌の種類や作物の種類を網羅的に実験することは困難である。このため、本研究では、線量評価において、可食部における放射性セシウムと放射性テルルの濃度比が重要であることに着目し、放射性テルルと放射性セシウムを同時に添加した土壌において植物を栽培し、放射性テルルと放射性セシウムの移行係数を求める。この比と、環境モニタリングによって得られている土壌中の放射性テルルと放射性セシウムの比から、農作物可食部中の両者の比を求めることにより、福島第一原子力発電所事故における、農作物摂取に起因する内部被ばく線量について、放射性セシウムと放射性テルルの比の推定を行う。この方法によって事故初期における放射性テルルの寄与について評価する。

3. 研究の方法

(1) 既存の知見を用いて、放射性テルルの農作物摂取による被ばく線量について、農作物の中でも摂取量の多い米に着目し、単回摂取と継続摂取(収穫から 1 年間)の両方について評価を行い、 ^{127m}Te の内部被ばくへの寄与が ^{137}Cs に対してどの程度であるか、また、放射性テルル ($^{127m} + ^{129m}\text{Te}$) の内部被ばくへの寄与が放射性セシウム ($^{134} + ^{137}\text{Cs}$) に対してどの程度であるかを推定する。また、実際に福島県で収穫された米中の放射性セシウム ($^{134} + ^{137}\text{Cs}$) 濃度を用い単回摂取と継続摂取 (1 年間) の両方について預託実効線量を評価する。

(2) 安定セシウムと安定テルルを土壌に添加し、いくつかの種類 of 農作物を栽培して、収穫時における可食部中のこれらの濃度を測定し、それぞれの濃度を土壌中濃度で除することによって、土壌-農作物移行係数を求める。この移行係数と、環境モニタリングで得られている放射性セシウムと放射性テルルの比を用いて、福島第一原子力発電所事故における、農作物摂取に起因する内部被ばく線量について、放射性セシウムと放射性テルルの比の推定を行い、放射性テルルの線量寄与について考察する。

4. 研究成果

(1) 線量評価に用いる放射性テルルの放出量比は原子力安全・保安院の報告から $^{127m}\text{Te} : ^{129m}\text{Te}$ は 1 : 3 とした。 ^{127m}Te 、 ^{129m}Te 、 ^{134}Cs の ^{137}Cs に対する沈着量比は、Saito らの研究における 2011 年 6 月 14 日時点の放射能に換算された土壌中の ^{129m}Te と ^{137}Cs の土壌沈着量比から算出した。それぞれの土壌-農作物移行係数は、国際原子力機関 (IAEA) の Technical Report Series 472 (TRS 472) から引用し、セシウムについては熱帯・亜熱帯地域におけるセシウムの全種類の土壌から米への移行係数の平均値である 8.3

$\times 10^{-3}$ (乾燥土壌の濃度 Bq/kg) に対する乾燥植物の濃度 Bq/kg) (N = 466) テルルについては温暖地域におけるテルルの全種類の土壌から穀物への移行係数は 1.0×10^{-1} (乾燥土壌の濃度 Bq/kg) に対する乾燥植物の濃度 Bq/kg) (N = 1) を用いた。線量係数は内部被ばく線量の計算には国際放射線防護委員会 (ICRP) の Publication 72 に勧告された経口摂取による線量係数を使用した。

土壌中放射性物質濃度が測定された地域の中で ^{137}Cs に対する $^{129\text{m}}\text{Te}$ の沈着量の比率が高かった地域 (福島第一原発から南方向) の平均の比率を用い、9月30日に収穫した米を1年間毎日摂取した場合の、放射性テルル ($^{127\text{m}} + ^{129\text{m}}\text{Te}$) による預託実効線量の放射性セシウム ($^{134} + ^{137}\text{Cs}$) による預託実効線量に対する比は年齢段階によって異なり、0.43-5.09 と推定された。また、測定地域全体における平均の比率を用いた場合は 0.05-0.58 と推定された。すなわち、TRS 472 において報告された土壌-農作物移行係数を用いた場合、沈着量の比率が平均的な地域においても放射性テルルの寄与は放射性セシウムに対して数% ~ 数十% 程度であり、福島第一原発から南方向ではそれよりも寄与が一桁程度高く、放射性テルルによる内部被ばく線量が無視し得ない可能性があることが示唆された。

(2) 土壌から農作物へのテルルとセシウムの移行を評価するため、まず予備実験として水耕栽培実験を実施し、その結果を踏まえて土壌栽培実験を行うことにより、テルルとセシウムの植物への移行係数を求めた。なお、セシウムとテルルとともに土壌に添加して同時にデータを確認することにより、同一土壌におけるテルルとセシウムの移行性の差異について比較検討することとした。

土壌は京都大学原子炉実験所の畑土、福島第一原発事故以前の福島県内の畑土 2 種類、および市販の植物培養土 1 種類の合計 4 種類の土壌とし、テルルとセシウムを添加してから1週間および4週間後に実験に使用することにより土壌中における経時変化についても検討した。対象とする農作物はラディッシュおよび小松菜とした。なお土壌の性状と移行係数の関係性についても考察を行った。

収穫したラディッシュは、葉 (茎を含む)、球状根 (胚軸)、側根の 3 つに分け、葉 (茎を含む) を「葉」の試料、根 (胚軸) を「根」の試料とした。これらの試料は乾燥した後、粉碎し、乾燥試料約 100 mg に 70% の HNO_3 (EL grade; 関東化学) 5 ml と 30% の H_2O_2 (EL grade; 関東化学) 1.2 ml を加え、マイクロ波加圧分解装置 (Topwave, Analytik Jena Japan) で湿式灰化した。乾燥試料が 100 mg に満たない場合は、試料全量を湿式灰化した。灰化により得た液体試料は超純水で希釈した後、ICP 質量分析装置 (ICP-MS, HP-4500, Yokogawa Japan) を用いてテルルとセシウム

を定量した。また、混合1週間後と4週間後の土壌を 105°C で一昼夜乾燥し、土壌:純水 = 1:10 の割合で混合したものを6時間振とうした後、フィルター ($0.45\ \mu\text{m}$, Advantec) を用いてろ過した。得られたろ液を植物試料と同様に ICP-MS で測定し、水溶性テルルと水溶性セシウムの存在率を求めた。

本研究におけるテルルの土壌から植物への移行係数は、ラディッシュの葉で 8.6×10^{-3} - 3.2×10^{-2} 、ラディッシュの根で 9.2×10^{-3} - 3.0×10^{-2} 、小松菜で 7.4×10^{-3} - 5.1×10^{-2} となった。また、セシウムの土壌から植物への移行係数は、ラディッシュの葉で 2.3×10^{-2} - 7.6×10^{-1} 、ラディッシュの根で 1.1×10^{-2} - 2.7×10^{-1} 、小松菜で 6.7×10^{-3} - 3.9×10^{-1} となった。また、本実験において、水耕栽培で確認した pH の影響に加え、土壌中に存在する交換性塩基や Al、Fe、有機炭素の量がテルルとセシウムの植物中の濃度に与える影響を確認することができた。

この土壌栽培実験によって得られた移行係数の平均値を用い、(1)と同様の方法で、葉菜あるいは根菜を1年間の継続摂取を想定した場合の、放射性セシウムによる預託実効線量に対する放射性テルルの預託実効線量の比を求めた。その結果、 ^{137}Cs に対する $^{129\text{m}}\text{Te}$ の沈着量の比率が高かった地域 (福島第一原発から南方向) にあっても、葉菜と根菜でそれぞれ 0.03-0.31 及び 0.01-0.08 であった。これに対し、TRS 472 の移行係数を用いた同様の評価では、放射性テルルの預託実効線量の比は放射性セシウムに対して葉菜では 1.06-11.89、根菜では 0.58-6.93 であった。すなわち、土壌栽培実験によって得られた移行係数による評価は、TRS 472 の移行係数による評価よりも放射性テルルの寄与は2桁程度低い結果となり、実際の放射性テルルの内部被ばく線量に対する寄与は、TRS 472 の移行係数による評価よりも十分に低くなる可能性があることが示唆された。

なお、土壌から農作物への移行係数は土壌の性状等によって大きな幅を持つため、より正確な内部被ばく線量評価のためには、より多くの土壌や植物を用いて移行係数を求めるとともに、その変動要因について十分に検討することが必要である。

<引用文献>

経済産業省, 原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書, Available at: <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/bac/kdir/pdf/appchap04-2.pdf>, 閲覧 2015 年 10 月 29 日.

K. Saito, I. Tanihata, M. Fujiwara, T. Saito, S. Shimoura, T. Otsuka, Y. Onda, M. Hoshi, Y. Ikeuchi, F. Takahashi, N. Kinouchi, J. Saegusa, A. Seki, H. Takemiya and T. Shibata; Detail

deposition density maps constructed by large-scale soil sampling for gamma-ray emitting radioactive nuclides from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J. Environ. Radioact., 139, 308-319(2015).

IAEA; IAEA Technical Report Series 472. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Vienna (2010).

ICRP; ICRP Publication 72, Ann. ICRP, 26 (1), (1995).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計2件)

藤原慶子、高橋知之、高橋千太郎、福島第一原子力発電所事故により放射性テルルで汚染された白米の経口摂取による預託実効線量、査読有、Jpn. J. Health Phys., 51, 2016, 19 - 26

K. Fujiwara, T. Takahashi, T. Kinouchi, S. Fukutani, Y. Hattori and S. Takahashi, Transfer Factors of Tellurium and Cesium from soil to Radish (*Raphanus sativus* var. *sativus*) and Komatsuna (*Brassica rapa* var. *perviridis*), 査読有, Jpn. J. Health Phys., 50, 2015, 189 - 193

[学会発表](計4件)

K. Fujiwara, T. Takahashi, T. Kinouchi, S. Fukutani, Y. Hattori and S. Takahashi, Transfer of Tellurium and Cesium from soil to plants and their distribution in the plants, International Symposium on Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future, 2015年5月30日～31日, パルセイロいざか(福島県福島市)

S. Fukutani, T. Takahashi, K. Fujiwara, M. Ikegami, T. Kinouchi and T. Fujii, Preparation of Radioactive Tellurium and Estimation of Its Migration Behavior in Soil - Plant System, International Symposium on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, 2015年4月12日～17日, Kailua-Kona, Hawaii

藤原慶子、高橋知之、木野内忠稔、福谷哲、服部友紀、高橋千太郎、水耕栽培におけるTeとCsの植物への移行とpHの影響、2014日本放射化学会年会、第58回放射化学討論会、2014年9月11日～13日、名古屋大学(愛知県名古屋市)

K. Fujiwara, T. Kinouchi, S. Fukutani, T. Takahashi, Y. Hattori and S. Takahashi, The uptake of Tellurium and Cesium by

radish (*Raphanus sativus*) under Hydroponic Culture, Asian and Oceanic Congress on Radiation Protection (AOCR-4), 2014年5月12日～16日, Kuala Lumpur

[図書](計0件)

[産業財産権]
出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 知之 (TAKAHASHI, Tomoyuki)
京都大学・原子炉実験所・准教授
研究者番号: 80314293

(2) 研究分担者

福谷 哲 (FUKUTANI, Satoshi)
京都大学・原子炉実験所・准教授
研究者番号: 00332734

(3) 研究協力者

藤原 慶子 (FUJIWARA, Keiko)
木野内忠稔 (KINOUCHI, Tadanori)
服部友紀 (HATTORI, Yuki)
高橋千太郎 (TAKAHASHI, Sentaro)