#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 元 年 5 月 2 1 日現在

機関番号: 12601

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2016~2018

課題番号: 16K00908

研究課題名(和文)「短期で安価、すぐにできる」新しい米の放射性セシウム汚染根治療法の探索

研究課題名(英文) "Short-term, Cheap and Quick", Trace of new radical treatment for radiocesium contaminated of rice

#### 研究代表者

桧垣 正吾 (Higaki, Shogo)

東京大学・アイソトープ総合センター・助教

研究者番号:50444097

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3.600.000円

研究成果の概要(和文):研究対象とした水田の土壌からイネへのセシウムの移行について解析に必要な基礎的データを明らかにした。用水中の放射性セシウム濃度に季節変動及び新たな流入があることを明らかにした。また、水田土壌中に存在するアルカリ金属元素の中でも、セシウムのみ存在する化学形がカリウム等の他の元素とは異なることを明らかにした。また、非放射性セシウムと、福島原発事故由来のCs-137との間でも存在状態が異 なることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究の成果は、直接的に米の放射性セシウム汚染根治療法の提案には至らなかったものの、今後の解析を考える上での基礎となるデータである。また、極端な放射性セシウム濃度の変動は、原発事故によって特定の時間帯に一定の割合で放出したと考えられている水に不溶で比放射能の高い放射性セシウム含有微粒子の存在が原因で ある可能性が否定できず、今後、同分野の研究を進める必要があると指摘できる。

研究成果の概要(英文): A basic data necessary for analysis of radiocesium transfer from paddy soil or reservoir to rice were clarified. It was clarified that there are seasonal fluctuation and new inflow in radiocesium concentration in the reservoir. In addition, it was clarified that the chemical form in which only cesium exists was different from other alkali metal elements. It was also clarified that the state of existence is different between non-radioactive cesium and Cs-137 derived from the Fukushima nuclear accident.

研究分野: 放射化学

キーワード: 放射性セシウム コメ 水田

# 様 式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

# 1.研究開始当初の背景

2011 年 3 月の東京電力福島第一原発事故により、特に福島県の一部地域には放出された放射性セシウムが多量沈着しており、その汚染はなお続いている。環境土壌中で放射性セシウムは土壌に殆どが吸着されて、時間の経過とともにより強く吸着して水中に殆ど溶出しなくなるとされており、水田土壌に一定の汚染があったとしても汚染米は出ない、と理論上は考えられていた。しかし、自治体による全数検査によって、食品の基準値(100Bq/kg)を超える放射性セシウムが含まれた高濃度の汚染米が希に見つかっており、中には1,000Bq/kg 超えのものもあった。申請者らも先行研究において汚染米を見いだし、土壌中の放射性セシウムの移行経路が根一茎一物であることを示唆する結果を得ている(「水中、土中の放射性セシウムと稲の吸収 中間報告書」、(中島、桧垣ら、日本放射線安全管理学会誌 13(1)、84-91 (2014))。

米の放射性セシウム汚染防止のため、カリウム肥料の大量供給や、放射性セシウム吸着のためのゼオライトの大量供給などが試みられている。しかし、高濃度の汚染米の発生を完全に抑えられていない。発生した高濃度の汚染米は、米の濃度と置換性カリウム濃度との相関から外れた「はずれ値」として処理されていることもあり、米の放射性セシウム吸収メカニズムは未解明で、風評被害を払拭できていない。このようなカリウム肥料やゼオライトの大量供給は対処療法であり、除染できない森林や山から水や土壌が移行して放射性セシウムの継続的な流入が今後も起こる可能性のある状況において、長期的に継続して施肥・投与し続けることは土壌中へのカリウムの蓄積に伴う作物の生育障害や土質悪化を招くほか、農家の経済的な負担にも繋がるため困難である。

我々は、先行研究において、福島県某所にある近接する数枚の水田において、1枚の水田の内、 その 1 箇所のみが、カリウム濃度は同じであるが放射性セシウム濃度だけが高いホットスポットであることを発見した。ホットスポットは、通常、樋の排水が落ちる場所など広範囲の降下物が狭い範囲に局所的に集積する場所にあるが、この地点は、地形上、特別に集積が起こる場所ではない。

# 2.研究の目的

本研究課題では、この水田で放射性セシウム濃度だけが高いホットスポットにおける解析を 糸口として、恒常的に稲への放射性セシウムの取込みを阻止する「短期で安価、農家の人にもす ぐにできる根治療法」を提案することを目的とし、米の放射性セシウム吸収メカニズム解明に貢 献するための基礎的研究を行った。

# 3.研究の方法

#### (1) 試料採取

2016年から2018年の3年間、福島県内の水田において5月から8月まで毎月、稲作に使用される溜め池等の水、土壌および稲の採取を行った。また、8月あるいは9月に稲を採取した。

### (2)放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP)定量

水田土壌を KCl -  $CaCl_2$  溶液中に投入して平衡にし、 $^{137}Cs$  溶液を添加して静置した後、溶液中に残った  $^{137}Cs$  濃度を測定することで定量した。

#### (3)逐次抽出による微量金属元素の化学形の決定

Tessier らが提案した逐次抽出法を改良して用い、水田土壌の微量金属元素を化学系ごとに分画・ 定量した。

# 4. 研究成果

(1) 収穫したコメ(モミ全体)の Cs-137 濃度を、5 月から 8 月までの水田土壌試料の平均 Cs-137 濃度で割ることで、土からコメへの放射性セシウム移行率を求めた。結果を表 1 に示す。2017 年は 0.1%未満と低いものの、2016 年及び 2018 年では 0.3~1%弱とやや大きい値であった。土壌の濃度が高いホットスポットであるが、収穫されたコメ中の濃度はそれほど大きな変動はなく、移行率は小さくなった。

	ホットスポット			対照地点		
年	土中の Cs- 137 濃度 ( Bq/kg )	コメ (Bq/kg)	コメへの 移行率 (%)	土中の Cs- 137 濃度 ( Bq/kg )	コメ (Bq/kg)	コメへの 移行率 (%)
2016	5,400	13.7±0.6	0.25	2,580	9.8±0.4	0.38
2017	4,050	3.1±0.4	0.077	2,370	2.1±0.6	0.089
2018	3,400	8.5±0.6	0.25	2,230	26.9±1.0	1.09

表 1 土とコメ(もみ全体)の測定結果および移行率

図 1 に、研究対象とした水田において用水として用いられるため池中の放射性セシウム(Cs-137)濃度の経時変動を示す。2017年以降に、2016年よりも5~10倍高い濃度の溶存態放射性セシウムが観測された。これは、森林等から用水に新たな放射性セシウムの流入があることを示す。 Cs-137/Cs 比を求めたところ、2016年の場合5月よりも6月、7月の方が低く、8月にかけて上昇する季節変動があったが、2017年は、5月に最も高く6月7月にかけて減少し、8月が最も低かった。このことから、以下の放射性セシウムの流入のメカニズムが示唆される。付近の森林に沈着した放射性セシウムが、樹皮や葉の生え替わりにより落下し、リター層となって堆積している。そのリター層から放射性セシウムは一定の割合でため池に溶出するが、面積の広いため池に降った降水によって希釈される。そのため、単純な季節変動ではなく、降水量との関連が推測された。

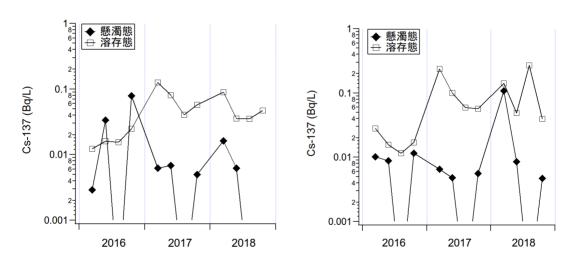


図1 ため池中の放射性セシウム濃度の経年変動(左 溜め池 A、右 溜め池 B)

(2)水田土壌を粒径ごとに分画し、RIP 値の定量を行った。さらに、環境中に存在するフタル酸等の有機物が、放射性セシウムの土壌への吸着を阻害し、RIP 値を低下させることが想定され

るため、試料を 500 度に加熱して有機物を分解した後に RIP の定量を行った。結果を図 2 に示す。RIP 値は粒径によって大きく変動し、概ね粒径が小さいほど大きい値を示した。また、ホットスポットでは、粒径の違いによる RIP 値の変動は小さかった。有機物は、存在しない方が RIP 値は低く、予想とは異なる結果であった。

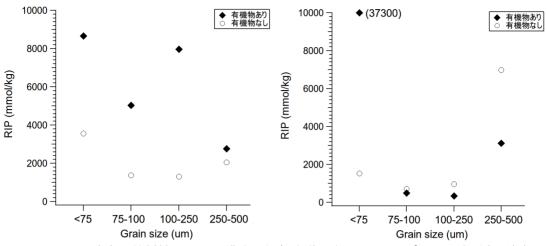
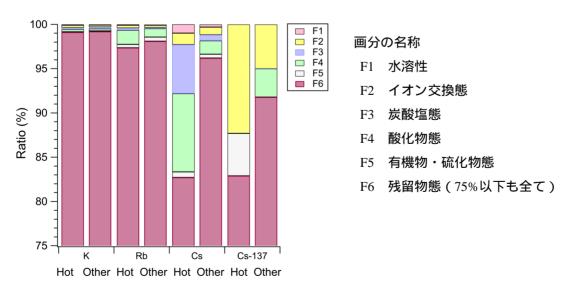


図 2 ため池中の放射性セシウム濃度の経年変動(左 ホットスポット、右 対照地点)

# (3)逐次抽出による微量金属元素の化学形の決定

図 3 に、2016 年 5 月に採取した水田土壌から逐次抽出によって分画した微量アルカリ金属元素の化学形ごとの存在割合を示す。カリウムは 99%以上、ルビジウムは 97%以上が残留物態として土壌と強く結合して存在していることが明らかとなった。その一方で、安定セシウムは、ホットスポットのみ残留態の存在度が 82%程度と低く、酸化物態や炭酸塩態など、他とは異なる化学系で存在していた。さらに、Cs-137 では、イオン交換態として存在する割合が非放射性セシウムよりも遙かに高かった。これは、用水から溶存態として水田に流入したものの、土壌とは結合していないものが多いことによると推測される。以上のように、研究対象とした水田の土壌からイネへのセシウムの移行について解析に必要な基礎的データを明らかにした。



Sequential Extraction from Soil of Rice Paddy (May, 2016)

図3 逐次抽出による水田土壌中微量アルカリ金属元素の存在割合(2016年5月採取)

# 5 . 主な発表論文等

## 〔雑誌論文〕(計0件)

# [学会発表](計5件)

矢永誠人、出沢良樹、三好弘一、<u>桧垣正吾</u>、森一幸、世良耕一郎、イネおよび田水中の微量元素の PIXE 分析(V)、日本放射線安全管理学会第 17 回学術大会、名古屋市、2018.

森井志織、<u>桧垣正吾</u>、矢永誠人、三好弘一、森一幸、久保謙哉、福島県森林下流域における コメへの放射性セシウム移行メカニズムの解明、楢葉町におけるイノベーション・コースト 構想促進事業ワークショップ、福島県楢葉町、2018.

出沢良樹、三好弘一、<u>桧垣正吾</u>、森一幸、世良耕一郎、矢永誠人、安定同位体を用いた水田 土壌の除染、2018 日本放射化学会年会・第 62 回放射化学討論会、京都市、2018.

森井志織、<u>桧垣正吾</u>、矢永誠人、三好弘一、森一幸、久保謙哉、福島県森林下流域における コメへの放射性セシウム移行メカニズムの解明、第 14 回日本放射線安全管理学会 12 月シン ポジウム、東京都文京区、2017.

Shogo Higaki, Makoto Yanaga, Hirokazu Miyoshi and Kazuyuki Mori, Mechanism of Cs-137 Transfer to Rice in Forest Downstream Area of Fukushima 2017, The 1st International Symposium of the network-type Joint Usage/Research Center for Radio Disaster Medical Science, 広島市、2017.

### 〔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

研究分担者および研究協力者共になし。

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。