

氏 名(本籍)	塚 ^{つか} 田 ^だ 祥 ^{ひろ} 文 ^{ふみ}
学位の種類	博 士 (農 学)
学位記番号	農 博 第 6 4 8 号
学位授与年月日	平 成 13 年 3 月 26 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科専攻	東北大学大学院農学研究科資源生物科学専攻 (博士課程)
学位論文題目	環境中における放射性および安定同位体の移行と動態に 関する研究
論文審査委員	(主 査) 教 授 山 崎 慎 一 教 授 三 枝 正 彦 教 授 金 濱 耕 基

論文内容要旨

第1章 序章

環境中にはかつて1950年代から1980年代に行われた大気圏内核実験、また、スリーマイル原子力発電所、チェルノブイリ原子力発電所等の事故時に多量の放射性核種が放出されている。さらに、現在でも微量ながら原子力施設から放射性核種が環境中に放出され続けている。環境大気中に放出された放射性核種は、図1に示すように、直接放射線による外部被曝の他に、直接吸入、土壌粒子の吸入、および農作物・畜産物に移行しての経口摂取等、様々な経路から人体中に移行し、内部被曝を引き起こす。環境中に放出された放射性核種の人体への影響を明らかにするためには、適切な環境移行モデルと移行パラメータを用いて、放射性核種がそれぞれの移行経路を経て、どれだけ人体に移行するかを正しく評価しておくことが必要となる。

放射性核種の移行パラメータは、局地環境により大きく変化することが知られている。したがって、現実的な移行評価を行うためには、原子力施設周辺におけるフィールド調査に基づいた移行実態やパラメータを用いることが重要である。そこで、本研究では、長期間にわたる環境中での放射性核種の挙動を推測するため、環境中での放射性および安定同位体の移行と動態に関して知見を得ることを目的とし、対象地域としては、各種原子力施設が立地・稼動する茨城県東海村、国内初の大型核

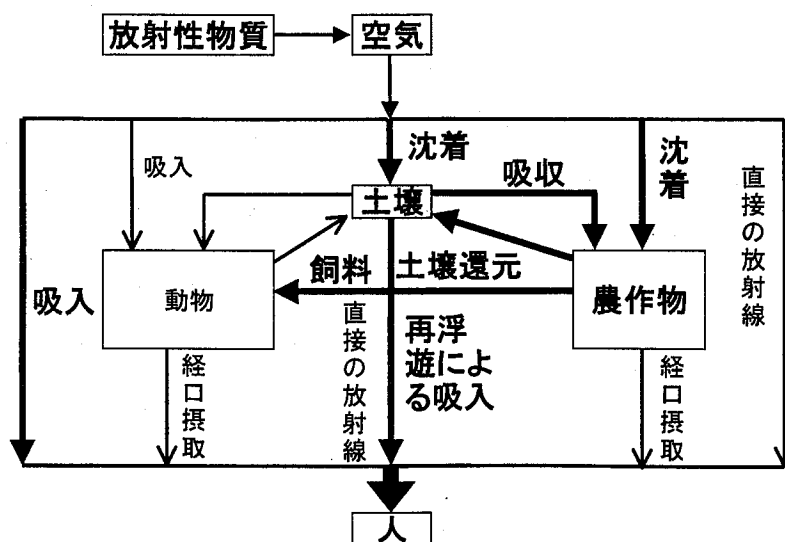


図1 大気中に放出された放射性核種と人との間の経路。

(ICRP Pul. 29 から作成)

燃料再処理施設が建設中である青森県等を選択した。

放射性ヨウ素 (^{129}I 、 ^{131}I 等) は、食物摂取や呼吸により人体に移行し、甲状腺に蓄積して甲状腺腫瘍を発生させることから、人体にとって最も注目すべき核種の一つである。土壌・農作物中におけるヨウ素 (I) は、大気を経由して供給されるため、大気中における I の分布・化学形態について研究した。また、放射性セシウム (^{134}Cs ・ ^{137}Cs)、放射性ストロンチウム (^{90}Sr) 等は、核分裂収率が大きく、生物への移行性も高いため極めて重要な核種である。これら核種の場合、農作物等を経由しての経口摂取が人体被曝に与える影響が大きいため、土壌からきのこ・農作物への放射性核種と安定元素の移行について比較、研究した。さらに、農作物の非可食部については、再び土壌に還元され、あるいは家畜の飼料等として用いられ、最終的には人体中へと移行することが予測されることから、将来の環境移行にとって重要な情報となる。そのため、農作物中における部位別の放射性核種と安定同位体の分布についても研究した。

第2章 大気中ヨウ素に関する研究

原子力施設から放出される放射性 I のうち ^{129}I は、長半減期 (1.6×10^7 年) であるため、安定ヨウ素 (^{127}I) と同様の挙動を示すものと考えられている。これらの同位体は大気中で混合し、湿性および乾性沈着により土壌や農作物に移行する。沈着の速度は、大気中での粒径分布や化学形態に依存するため、本研究では ^{129}I と ^{127}I について、これらの検討を行い、粒径分布の中央径 (Mass median diameter, MMD) および化学形態等に関する知見を得た。

粒径別大気エアロゾルを、茨城県東海村で、7 および 12 ヶ月間連続採取した。 ^{129}I は燃焼法により精製した後、破壊放射化分析によって定量した。また、 ^{127}I は試料の一部を分取し、放射化分析によって定量した。全粒子状 ^{129}I 濃度は、 9.0 ± 2.0 および $9.7 \pm 1.2 \text{ nBq m}^{-3}$ であり、これまでにアメリカ、ドイツ、ブラジル等で報告されている値と同程度であった。全粒子状 ^{127}I 濃度は、 4.2 および 1.7 ng m^{-3} であった。このときの $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は 3.3×10^{-7} および 8.7×10^{-7} であり、人為的な寄与があると推測される。エアロゾルの粒径分布は、 $>1 \mu\text{m}$ 以上 (粗大粒子) と $<1 \mu\text{m}$ 以下 (微小粒子) の二山分布を示した。しかし、 ^{129}I および ^{127}I エアロゾルの粒径分布は、微小粒子が卓越し、それぞれの分布パターンは類似していた (図 2)。 ^{129}I の MMD は、 $0.4 \mu\text{m}$ にあり、 ^{127}I と同様の値であった。また、粗大粒子中の ^{129}I および ^{127}I は、ともに土壌粒子の舞い上がりであることを明らかにした。以上から、大気中の ^{129}I および ^{127}I エアロゾルは、同じ挙動を示すと考えられた。大気エアロゾル中の ^{129}I

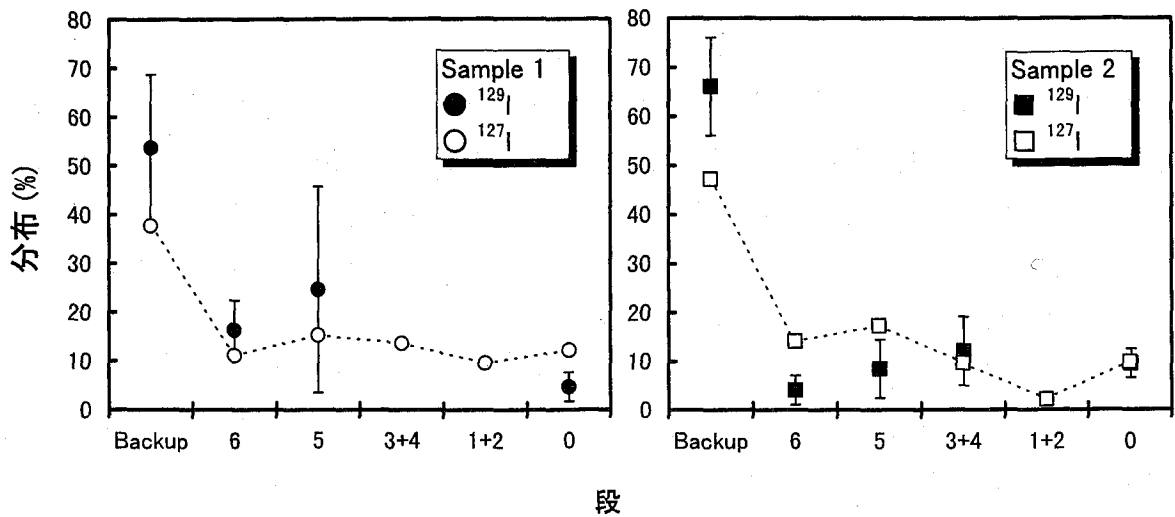


図2 粒径別大気エアロゾル中 ^{129}I および ^{127}I の分布。縦線は計数誤差を示す。
各段の50%捕集径; 0, 7.0; 1, 4.7; 2, 3.3; 3, 2.1; 4, 1.1; 5, 0.66; 6, 0.43 μm 。

の粒径分布については、新しく得られた知見であり、また、 ^{127}I の分布と比較することで、これら同位体の挙動における類似性を明らかにした。

エアロゾル中のIを水抽出し、化学形態を推測した。図3に示すように、約50%が抽出され、そのうちの約10%が IO_3^- (ヨウ素酸イオン) であることを明らかにした。さらに、粒子状および無機ガス状I濃度の季節変動を調査した結果、図4に示すように、粒子状I濃度は、夏に低く、冬に高い傾向にあった。一方、無機ガス状I濃度は、粒子状I濃度とは逆の変動パターンを示した。これら二相間における存在形態別の濃度変動を明らかにするため、 $f(\text{I})$ 値を以下のように定義した。

$$f(\text{I}) = \frac{P(\text{I})}{P(\text{I}) + G(\text{I})} \quad (1)$$

ここで、 $P(\text{I})$ は粒子状濃度、 $G(\text{I})$ は無機ガス状濃度を示す。 $f(\text{I})$ 値と捕集期間中の平

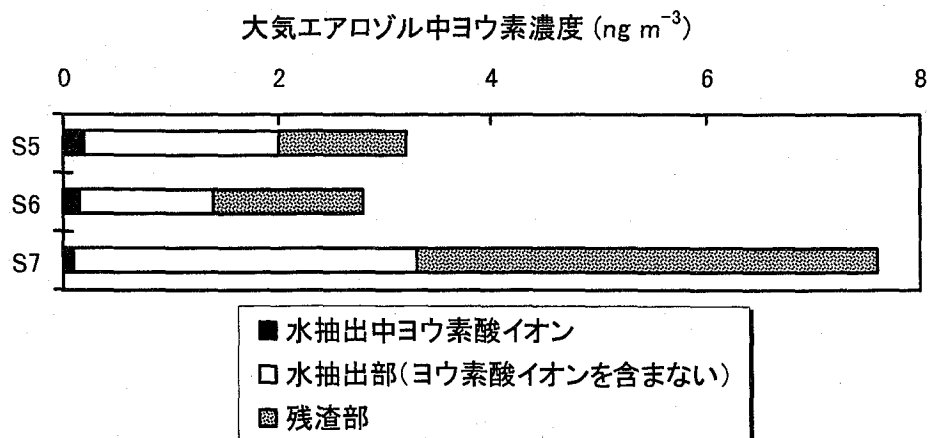


図3 大気エアロゾル中ヨウ素の形態分布。

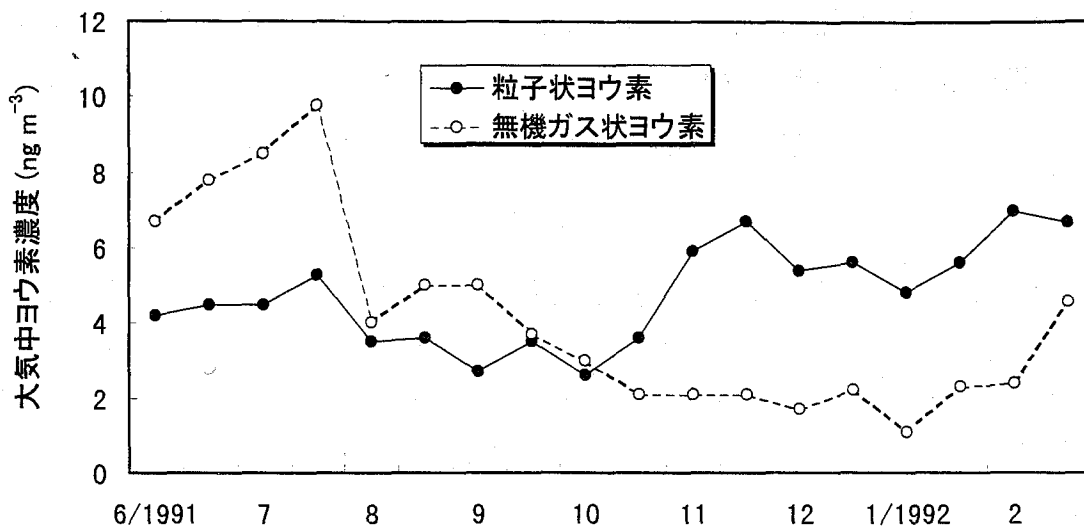


図4 大気中における粒子状および無機ガス状ヨウ素の変動.

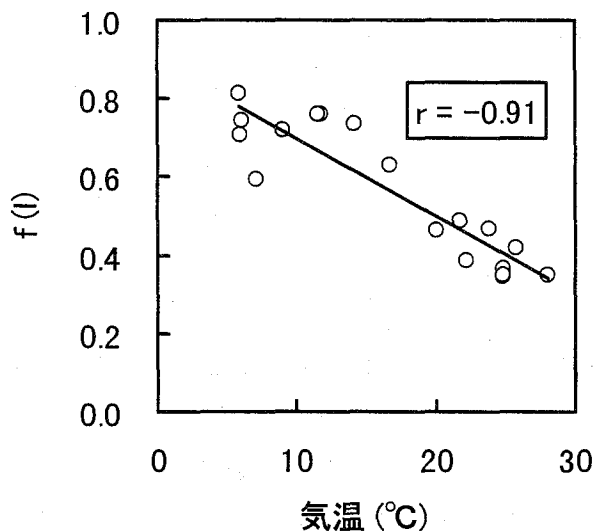


図5 f(I)値と気温の相関.

均気温の関係は、図5に示すように、高い負の相関を示し、気温の変化に伴って粒子状-無機ガス状I間で相変化の起きている可能性が示唆された。

第3章 土壌からきのこ・農作物への移行に関する研究

第1節 序論

環境中に放出される放射性核種による被曝線量評価を行う際、土壌から農作物への核種移行は、極めて重要な移行経路の一つである。土壌から農作物への放射性核

種等の移行係数 (Transfer factor, TF) は、以下に示すように定義され、食品摂取に伴う被曝線量評価上重要な環境移行パラメータである。

$$TF = \frac{\text{農作物中濃度 (Bq kg}^{-1} \text{ 乾燥重量または mg kg}^{-1} \text{ 乾燥重量)}}{\text{土壌中濃度 (Bq kg}^{-1} \text{ または mg kg}^{-1})} \quad (2)$$

移行係数は、原子力施設が内陸に多数設置されている欧米諸国を中心に研究が行われてきた。一方、我が国における移行係数の研究は、限られた核種についてのみ行われており、特にフィールドにおける実態調査は極めて乏しく、また地域特性を加味したデータは報告されていない。移行係数は、作物種ならびに、局地的な各種環境要因によっても影響を受けるとされ、同一農作物でも4桁以上変動すると報告されている。ここでは、大型核燃料再処理施設が建設中である青森県を対象地域として選定し、フィールド調査をもとに、土壌からきのこおよび農作物への¹³⁴Cs および¹³⁷Cs、安定セシウム (¹³³Cs)、ならびにその他元素の移行について研究した。なお、元素濃度は、放射化分析法、ICP-質量分析法および原子吸光分析法により、また¹³⁴Cs および¹³⁷Cs 濃度は Ge 半導体検出器を用いて定量した。

第2節 土壌からきのこへの放射性および安定セシウムの移行

天然きのこ中のセシウム (Cs) 濃度は、植物に比べ特異的に高く (表1)、森林生態系において¹³⁷Cs の移行・動態を支配する主要な生物であり、食料でもある。本研究では、1992年に青森県六ヶ所村沿岸の防風林 (松林) から菌根性きのこ24試料とそれらの土壌を採取し、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、および安定同位体である¹³³Cs の挙動を比較した。土壌中¹³⁴Cs は、全て1986年のチェルノブイリ原子力発電所事故に、一方¹³⁷Cs は、大気圏内核実験に由来するものが約90%である。

きのこ中¹³⁷Cs 濃度は、種に依存して差のあることがわかった。¹³⁴Cs と¹³⁷Cs の移行係数の相間を、図6に示した。土壌中¹³⁷Cs の大部分は20年以上前の核実験に由

表1 きのこおよび農作物中の¹³⁷Cs および¹³³Cs 濃度

試料	¹³⁷ Cs		¹³³ Cs		¹³⁷ Cs/ ¹³³ Cs 原子数比
	(Bq kg ⁻¹ dry wt.)		(mg kg ⁻¹ dry wt.)		
きのこ	1100	± 1500	2.7	± 4.1	1.3×10 ⁻⁷
バレイシヨ	0.55	± 0.51	0.044	± 0.036	3.9×10 ⁻⁹
キャベツ	0.51	± 0.55	0.040	± 0.018	4.0×10 ⁻⁹
白米	0.025	± 0.022	0.0017	± 0.0017	4.6×10 ⁻⁹

来し、一方 ^{134}Cs は試料採取 6 年前のチェルノブイリ事故に由来するが、両者の移行係数は極めて良く一致した。一方、土壌からきのこへの ^{137}Cs の移行係数は、図 7 に示すように、 ^{133}Cs の移行係数に比べ約 2 倍高く、また、互いに極めて高い相関 ($r=0.95$) を示した。 ^{137}Cs と ^{133}Cs の移行係数に差の生じる原因として、人為的に付加された ^{137}Cs は、土壌中において ^{133}Cs よりきのこに移行しやすい形態に富んでいるためと思われる。しかし、 ^{137}Cs と ^{133}Cs の移行係数の相関は高く、森林生態系では ^{133}Cs から ^{134}Cs ・ ^{137}Cs の移行と動態を類推することが可能であることが示唆された。

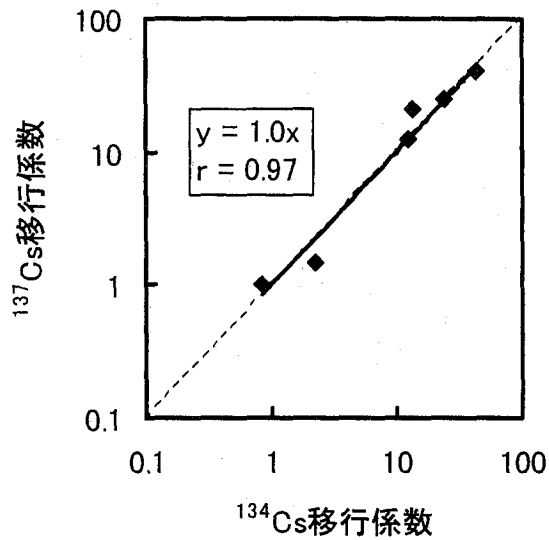


図 6 土壌-きのこ間における ^{134}Cs と ^{137}Cs の移行係数の相関。

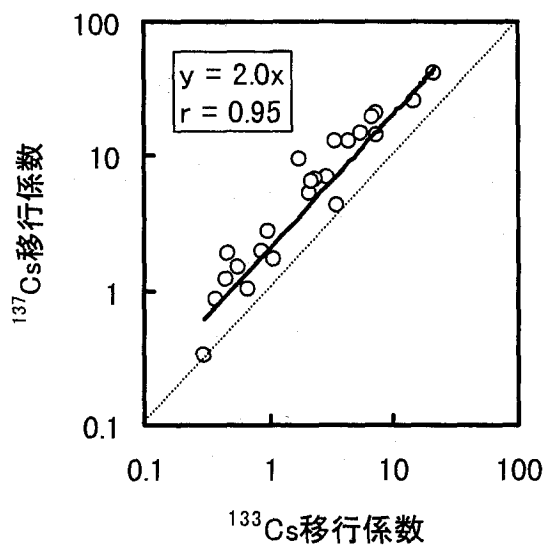


図 7 土壌-きのこ間における ^{133}Cs と ^{137}Cs の移行係数の相関。

第3節 土壌から農作物への放射性および安定セシウムの移行

青森県内からバレイショ、キャベツおよび白米、ならびにそれぞれの圃場土壌を採取し、土壌-農作物間の ^{137}Cs および ^{133}Cs の移行の差を明らかにするとともに、移行係数の整備を目的として研究を行った。

^{137}Cs の移行係数は、 ^{133}Cs の移行係数に比べ数倍高い値にあり、両者は比較的良い相関を示した(図8)。また、移行係数の $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 比の分布は、2~3 倍の範囲に収まっていた。これらの移行係数は、土壌中の K 濃度の増加とともに減少する傾向

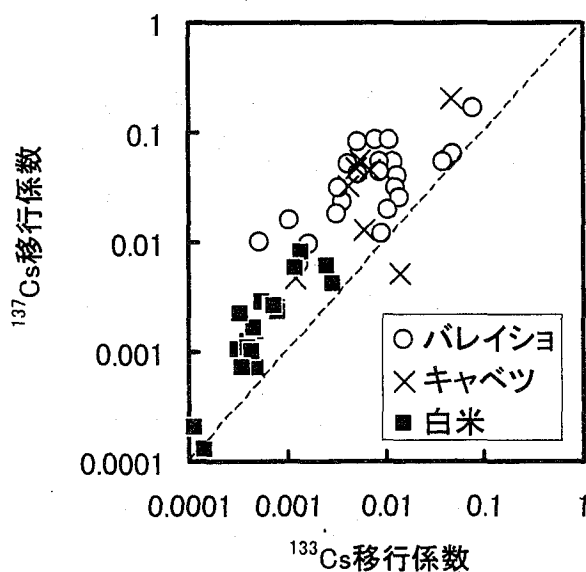


図8 土壌からバレイショ、キャベツおよびイネ(何れも可食部)への ^{133}Cs と ^{137}Cs の移行係数の相関。

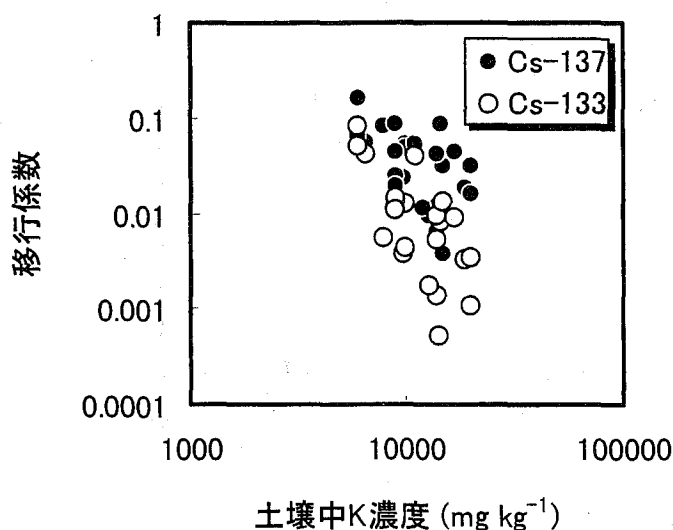


図9 バレイショにおける土壌中 K 濃度と ^{137}Cs ・ ^{133}Cs の移行係数の相関。

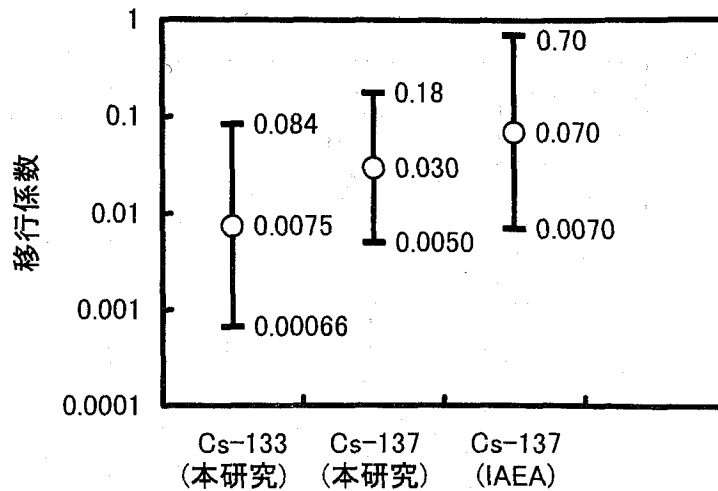


図10 白菜における ^{133}Cs と ^{137}Cs の移行係数の比較。
縦線は95%信頼区間を示す。

を示した(図9)が、土壌中有機物含量との間の相関は見られなかった。本研究で得られた白菜における ^{137}Cs の移行係数は、国際原子力機関(IAEA)の報告値に比べ1/2以下の値であった(図10)。したがって、より現実的な長期にわたる被曝線量評価のために用いる移行係数には、様々な環境要因を加味した局地的なデータが必要であることが明らかとなった。その場合、局地域における ^{137}Cs の移行パラメータの推定に、 ^{133}Cs のそれが有効であることが示唆された。

第4節 土壌から農作物への安定元素の移行

核分裂反応、放射化生成物等による多数の放射性核種について、原子力施設から

表2 青森県内の圃場から採取した農作物の一覧

農作物	採取試料数
根菜類	
白菜	26
ニンニク	14
ダイコン	13
ニンジン	9
ヤマノイモ	4
果菜類	
トマト	19
キュウリ	11
メロン	8
カボチャ	6
葉菜類	
キャベツ	8
ハクサイ	6
穀類	
イネ	20
牧草	26
合計	170

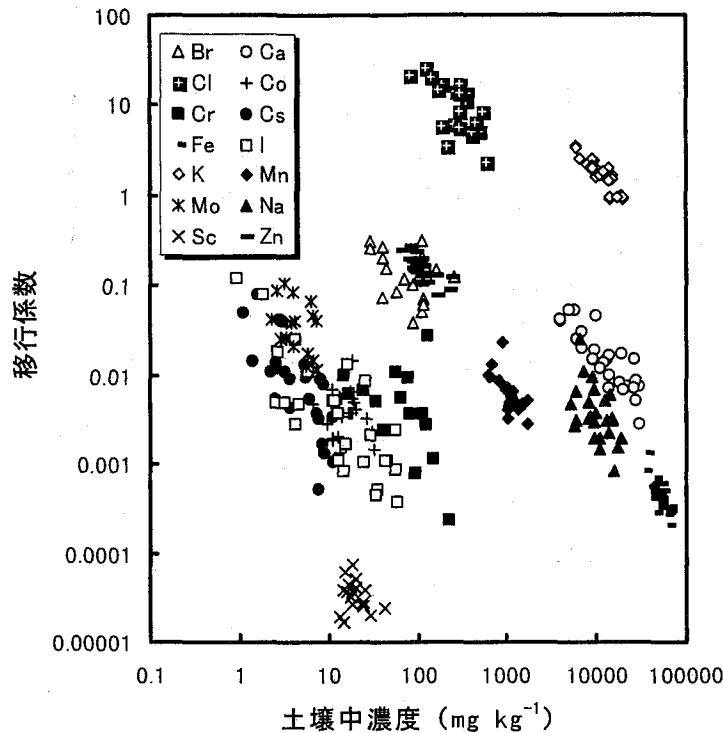


図 11 バレイショにおける土壌中の元素濃度と移行係数の関係。

環境中への放出を想定し、土壌から農作物への移行と挙動を把握しておくことが重要である。そのため本研究では、青森県内 170 地点の圃場から表 2 に示す農作物と土壌を採取し、土壌から農作物への 31 元素の移行係数を求め、整備した。一例として、土壌からバレイショへの移行係数を求めたところ、95%信頼区間は、概ね 1~2 桁の変動範囲にあった。また、図 11 に示したように、移行係数と土壌中の各種元素濃度との関係をプロットした結果から、土壌中の元素濃度に依存して移行係数の減少する元素 (Cl、K、Ca 等) と土壌中の濃度には依存せずに比較的一定の移行係数を示す元素 (Sc、Co 等) の 2 グループに分類されることを見出した。

第 4 章 農作物中分布に関する研究

土壌から農作物への放射性物質等の移行に関する研究は、可食部への移行が主な対象となり、非可食部への移行についての報告は少ない。しかし、実際には非可食部は有機物資材として土壌へと還元されるほか、家畜の飼料等としても利用される。そのため、非可食部中の放射性核種も、食物連鎖網を通して人体へ移行することが予想される。また、土壌へと還元された場合には、圃場土壌中における放射性および安定同位体の物理的・化学的形態の変化も予想される。さらに、農作物における

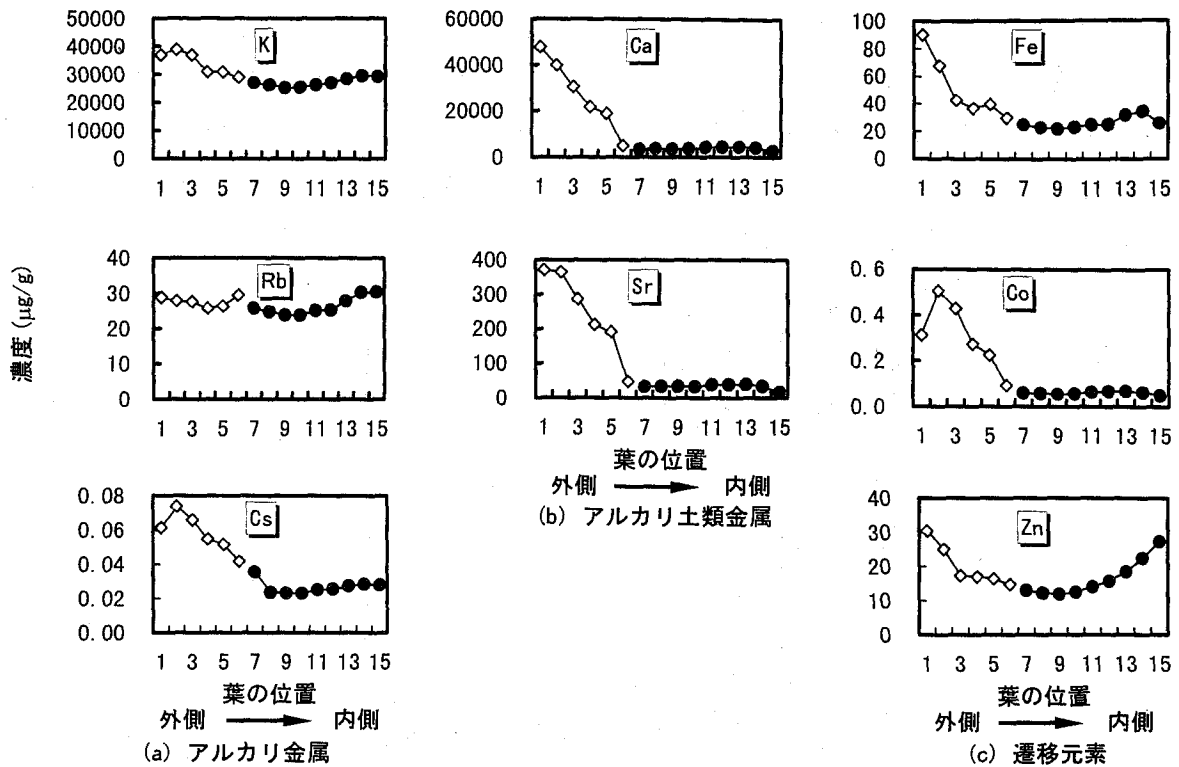


図 12 キャベツの葉における部位別の元素濃度。

非可食部, 1~6; 可食部, 7~15。

部位別の元素濃度の分布に関する情報は、植物中での放射性核種の移行と動態を明らかにするうえでも、有用な情報である。本研究では、キャベツ、イネ等における部位別の元素分布について研究した。

図 12 に示すように、キャベツの葉における部位別の元素濃度分布から、①外葉で高い濃度にある元素 (Ca, Sr 等)、②外葉から内葉まで比較的一様にある元素 (K, Rb 等)、および③外葉から内葉に向かって減少するが、球葉の外葉から内葉に向かって再び増加する元素 (Zn) の 3 種類に分類された。また、キャベツの葉における Cs の濃度分布が、K と異なることを見出した。一方で、Sr の濃度分布は Ca と類似していた。キャベツの葉に占める非可食部の元素の存在割合は、Sr で 91、Cs で 77、

表 3 白米および糠中における $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 、 $^{133}\text{Cs}/\text{K}$ および $^{137}\text{Cs}/\text{K}$ 濃度比の分布

	$^{137}\text{Cs}/\text{Cs}$	Cs/K	$^{137}\text{Cs}/\text{K}$
	Bq mg^{-1}	$\mu\text{g g}^{-1}$	mBq g^{-1}
白米 (実験圃場)	5.3 ± 1.2	1.3	7.0 ± 1.6
糠 (実験圃場)	3.3 ± 1.0	0.7	2.3 ± 0.7
白米 (黒石市)	13.6 ± 0.3	6.8	93.1 ± 1.9
糠 (黒石市)	14.5 ± 0.6	4.0	57.9 ± 2.3
白米 (六ヶ所村)	6.4 ± 1.2	1.3	8.1 ± 1.5
糠 (六ヶ所村)	8.6 ± 3.3	0.3	2.9 ± 1.1

サンプリング場所を括弧内に示す。

Zn で 68% と、それぞれ異なる値を示した。

玄米を白米と糠に分別し、 ^{137}Cs 、 ^{133}Cs および K の濃度を測定し、それぞれの濃度比を求めた結果 (表 3)、イネ中における ^{137}Cs と ^{133}Cs の動態は、類似していると考えられるが、 ^{137}Cs および ^{133}Cs の挙動は、K と異なっていることを認めた。葉身における部位別の Cs 濃度パターンも、K のそれとは異なっていた (図 13)。

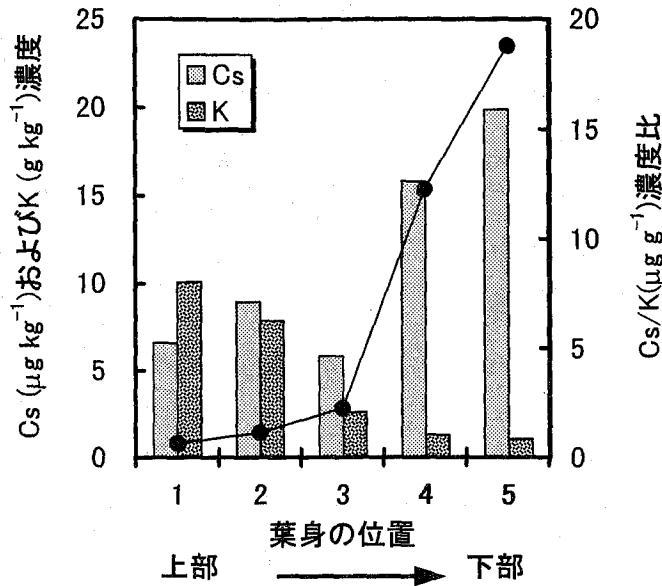


図 13 イネの葉身における部位別の Cs および K 濃度ならびに Cs/K 濃度比 (●)。

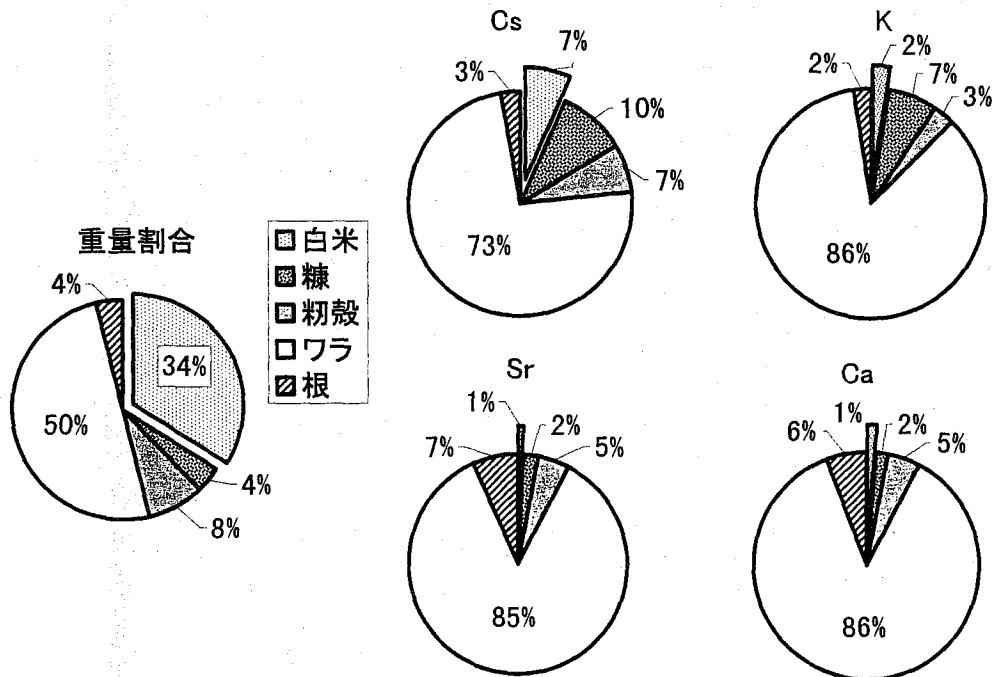


図 14 イネにおける部位別の乾燥重量割合、ならびにアルカリ金属 (K および Cs) およびアルカリ土類金属 (Sr および Ca) の含有率。

イネにおける白米の乾燥重量割合は、34%にあるが、K および Cs の含有率は、それぞれ2 および 7%、また、白米の Ca および Sr の含有率は、ともに 1%と極めて低かった (図 14)。以上のことから、イネ体内へと移行した元素の大部分が、非可食部に含まれていることは明らかであり、非可食部の利用に関する放射性核種および元素の移行は、環境中において重要な要因であることを指摘した。

第 5 章 総合考察

大気エアロゾル中の放射性 I の挙動と分布が、安定 I のそれと同様で、MMD は $0.4 \mu\text{m}$ であることを示した。また、エアロゾル中 I のうち、約 50%が水溶性で、そのうちの約 10%が IO_3^- であることを明らかにした。さらに、粒子状-無機ガス状 I の相変化は、気温に依存していることを示した。

土壌からきのこ・農作物への放射性 Cs の移行と動態は、安定 Cs と類似していること示した。また、フィールド研究により得られた移行パラメータの重要性を指摘した。さらに、土壌から農作物への安定元素の移行について、土壌中の元素濃度に依存する元素と依存しない元素の 2 グループに分類されることを示し、3500 以上の移行係数を整備した。

農作物における部位別の元素濃度の研究から、農作物中における Cs と K の挙動に違いがあることを見出した。一方で、Sr と Ca は、その挙動に類似性が高いことを示した。さらに、農作物の非可食部中に含まれる元素は、一般に可食部に比べて高く、非可食部の利用に伴う元素移行は、環境中での挙動に影響を及ぼす重要な要因であることを指摘した。

以上、本研究によって、環境中における放射性および安定同位体の移行と動態に関する知見を得た。特に、放射性 I と放射性 Cs の長期的な分布と挙動を類推する上で、安定同位体の移行と動態に関する研究が、有効な手掛りとなり得ると結論した。

論文目録

1. Tsukada, H., Hara, H., Iwashima, K. and Yamagata, N. (1987) The iodine content of atmospheric aerosols as determined by the use of a Fluoropore filter[®] for collection. Bull. Chem. Soc. Jpn. 60, 3195-3198.
2. Tsukada, H., Ishida, J. and Narita, O. (1991) Particle-size distributions of atmospheric ¹²⁹I and ¹²⁷I aerosols. Atmos. Environ. 25A, 905-908.

3. 磯村公郎, 樋口正信, 柴田尚, 塚田祥文, 岩島清, 杉山英男 (1993) 蘚苔類中の放射性セシウム濃度分布と指標生物としての応用, *Radioisotopes* 42, 157-163.
4. 杉山英男, 寺田宙, 磯村公郎, 塚田祥文, 柴田尚 (1993) キノコへの放射性セシウムの移行特性—野性キノコおよび培養キノコ—, *Radioisotopes* 42, 683-690.
5. 塚田祥文, 真田哲也, 上野隆, 天野光, 小林義威 (1995) 千葉市大気中における粒子状およびガス状塩素, 臭素およびヨウ素について, *エアロゾル研究* 10, 214-220.
6. 塚田祥文, 渡部輝久 (1996) 土壌—バレイショにおける元素の移行について, *保健物理* 31, 177-183.
7. Tsukada, H. Shibata, H. and Sugiyama, H. (1998) Transfer of radiocaesium and stable caesium from substrata to mushrooms in a pine forest in Rokkasho-mura, Aomori, Japan. *J. Environ. Radioactivity* 39, 149-160.
8. Tsukada, H. and Nakamura, Y. (1998) Transfer factors of 31 elements in several agricultural plants collected from 150 farm fields in Aomori, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 236, 123-131.
9. Tsukada, H. and Nakamura, Y. (1999) Transfer of ^{137}Cs and stable Cs from soil to potato in agricultural fields. *Sci. Total Environ.* 228, 111-120.
10. Tsukada, H. Hasegawa, H. Hisamatsu, S. and Yamasaki, S. (2001) Transfer of ^{137}Cs and stable Cs from paddy soil to polished rice in Aomori, Japan. *J. Environ. Radioactivity* (in press).
11. Tsukada, H. Hasegawa, H. Hisamatsu, S. and Yamasaki, S. (2001) Root uptake and distribution of ^{137}Cs , stable Cs and K from paddy soil to rice plant components. Submitted to *Environ. Poll.* (in press).
12. Tsukada, H. and Hasegawa, H. (2001) Soil-to-plant transfer of ^{137}Cs , essential and trace elements in cabbage plants. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* (in press).

論文審査結果要旨

環境中にはかつての大気圏内核実験や原子力発電所の事故で多量の放射性核種が放出されている。さらには、現時点においても原子力施設から種々の放射性核種が微量ながら放出され続けている。これら放射性物質に起因する内部被曝の予測には、環境中における適切な移行モデルの構築と移行パラメーターの整備が必要となる。

研究はまず大気中におけるヨウ素を対象として始められた。放射性ヨウ素は甲状腺腫瘍を発生させること、土壌・農作物中におけるヨウ素は大部分大気を経由して供給されることがその理由である。困難な分析法の開発から着手し、大気エアゾル中の放射性ヨウ素の挙動が安定ヨウ素のそれと類似していること、粒子状ヨウ素と無機ガス状ヨウ素の相変化が気温依存であること等を明らかにした。

次いで、きのこおよび農作物への放射性セシウム研究に着手し、その移行と動態は安定セシウムのそれから類推可能であることを膨大なデータを用いて証明した。さらに、各種土壌および農作物中の40種余りの元素を対象にその含有量の関係を3500以上の組み合わせについて検討し、各元素の物理的、化学的、生物学的特性と関連させて包括的に解釈することを試みた。また、従来の研究が人間への内部被曝を中心に考えられたことから、農作物の可食部のみを分析対象としていたのに対し、環境中における動態の解析にはむしろ非可食部に関するデータの蓄積がより重要であることを示す知見も得られている。

以上のように、従来の放射性元素のみを対照とした研究に加えて、最先端の各種分析機器を駆使して対応する安定同位元素をも含めた数多くの元素を対象に大気・土壌・植物系での挙動を、労多現場を対象に行っている点で高く評価できる。本研究で得られた膨大なデータとそれに基づく知見は、単に原子力施設等からの放射性核種の放出事故の場合のみならず、広く環境中における元素の移行と動態に関する基礎的資料として重用されることは疑う余地がない。

よって、審査員一同は、本論文が博士（農学）の学位を授与するに値するものと判定した。