【農環研報 31, 75-129 (2012)】

土壌 – 植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因

Behavior of radiocaesium in soil-plant systems and its controlling factor

山口紀子*·高田裕介**·林健太郎***·石川 覚*·倉俣正人*·江口定夫***·吉川省子*** 坂口 敦***·朝田 景***·和穎朗太***·牧野知之*·赤羽幾子*·平舘俊太郎****

(平成24年2月13日受理)

東京電力福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性核種は、広く環境中に拡散し、日本の農業にも大きな打撃を与えた。今後も長期にわたり半減期の長い放射性セシウム(¹³⁴Cs, 2.06年、¹³⁷Cs, 30.2 年)による影響が懸念される。土壌に沈着した放射性Csはまず土壌に吸着する。そして土壌溶液に再分配されることで植物の根から吸収され可食部まで移行する。一度土壌に吸着した放射性Csが土壌溶液に再分配される割合は非常にわずかである。このことが農作物の汚染を最小限に抑えている一方で、除染を難しいものにする一因ともなっている。森林生態系では放射性Csは比較的動きやすい形態を保存したままで循環しているため、農地への流入を含め、放射性Csのダイナミックな挙動を流域レベルで考慮する必要がある。本総説では、土壌・植物系あるいは農業生態系における放射性Csの挙動の特徴とその支配要因について解説した。さらに、農地から放射性物質を除去する手法についてとりまとめ、わが国におけるこれらの手法の有効性について議論した。

Ι	はじめに	76
II	土壌中のCsの挙動と福島の土壌汚染状況	78
1	はじめに	78
2	土壌中におけるCsの存在形態	78
3	土壌中の負電荷に対するCsの吸着メカニズム…	80
4	Csの吸着に関わる主な土壌構成成分	83
5	Csの吸着に関わる土壌構成成分の分布	85
6	福島県の土壌の特性および農地土壌中の放射性	
	Cs濃度分布	86
	(1) 福島県の土壌の特性	87
	(2) 福島県の農地土壌の放射能汚染状況	88
III	土壌固相–液相間におけるCsの分配に関わる要因…	90
1	はじめに	90

目	次

2	土壌中における NH4 ⁺ の動態	90
	(1) 大気 - 植物 - 土壌 - 土壌微生物系における	
	N循環·····	90
	(2) 土壌中における NH4 ⁺ の生成および消費 …	92
	 1) 無機化による NH₄⁺の生成および有機化に 	
	よる NH4 ⁺ の消費	92
	 3) 硝化による NH₄⁺の消費 	92
	(3) 土壌中における NH4⁺の挙動	93
3	土壌中における K ⁺ の動態および土壌のCs ⁺ 吸	
	着に対するK ⁺ の影響	93
IV	植物のCs吸収メカニズム、植物種・品種間差…	94
1	はじめに	94
2	Cs吸収に関わる生理メカニズム	94

^{* (}独)農業環境技術研究所 土壤環境研究領域

^{** (}独) 農業環境技術研究所 農業環境インベントリーセンター

^{*** (}独)農業環境技術研究所 物質循環研究領域

^{**** (}独)農業環境技術研究所 生物多様性研究領域、corresponding author

3	Cs吸収に関わる分子メカニズム	95
4	Csの体内挙動と分布	96
5	Cs吸収・集積における植物間差、品種間差…	97
V	土壌 - 地下水 - 流域における放射性Csの輸送	
	過程	99
1	はじめに	99
2	土壤中における ¹³⁷ Csの輸送1	00
	(1) 土壌の ¹³⁷ Cs鉛直分布に基づく移動速度 …1	00
	(2) 溶存態 ¹³⁷ Csの輸送過程:移流分散式の適用…1	00
	(3) コロイド担体輸送による¹³⁷Cs輸送1	05
3	地下水中の ¹³⁷ Cs輸送1	07
4	流域内での面的 ¹³⁷ Cs輸送1	07
	(1) 大気から地表面への不均一な ¹³⁷ Cs供給 …1	07
	(2) 水食と ¹³⁷ Cs輸送1	07
	(3) 風食と ¹³⁷ Cs輸送1	08
5	今後の課題など	08
VI	森林生態系における放射性Csの動態1	09

I はじめに

2011年3月11日に発生した東京電力福島第一原子力 発電所の事故(以下、東電原発事故)により、大量の放 射性核種が環境中に放出された。このうち¹³¹I、¹³⁴Cs、 ¹³⁷Csは放出量が多く、高温でガス化するため広範囲に拡 散しやすい性質を持つ。東電原発近隣地域だけでなく、 離れた地域で生産された作物の¹³¹I、¹³⁴Cs、¹³⁷Csが暫定 規制値を超過し、出荷制限される事態となった。事故後 早い段階で、放射性核種が作物から検出されたのは、大 気経由で輸送された放射性核種が作物体に直接沈着した ことが原因である。原子力発電所からの大量放出が収束 した現在では、直接沈着に由来する作物の汚染も収束に 向かっているといえる。また、¹³¹Iは、半減期が8.04日 と短いことから、2011年秋現在では検出されない。今後 は、土壌に残存する半減期2.06年の¹³⁴Csおよび半減期 30.2年の¹³⁷Csが、根を通じて作物可食部へ移行する経路 が問題となる。なお、本稿では、放射性、非放射性にか かわらずCsの一般的な性質を述べる場合はCs、¹³⁴Csお よび¹³⁷Cs双方について述べる場合は放射性Cs、イオン としての性質を述べる場合はCs⁺と記述する。

放射性Csは人工放射性核種であり、もともと自然界に は存在しなかった。しかし、今回の事故以前にすでに土 壌中には¹³⁷Csが存在しており、作物からも検出されてい た。1950年代から1985年ごろまでに実施された大気圏 内核実験により作りだされた放射性Csが、成層圏に達

1	はじめに109
2	森林生態系への放射性Csのインプットと循環…109
3	森林土壌表層における放射性Csの挙動110
4	森林土壌から樹木などへの放射性Csの移行…111
5	森林生態系におけるCsの長期動態を規定する
	要因
6	森林生態系におけるKの循環112
VII	農地における放射性Csの除染対策112
1	はじめに
2	各対策方法について112
	(1) 物理的手法
	(2) 化学的手法 (肥料・資材の施用)114
	(3) ファイトレメディエーション115
	(4) 土壤洗浄116
	(5) 電気修復法
引用	118
Sum	nmary

し世界中に拡散した影響をわが国も受けていたためであ る。大気圏内核実験由来の放射性核種を含む降下物を、 グローバルフォールアウトとよぶ。グローバルフォール アウトに加え、チェルノブイリ事故由来の放射性Csも環 境中に残存している地域もある。わが国では、チェルノ ブイリ事故の影響は限定的であり、小麦で1960年代に 相当する濃度の¹³⁷Csが検出されたものの、土壌中¹³⁷Cs 濃度は上昇しなかった(駒村ら,2006)。

環境中には、核実験や原子力発電所の事故に由来する 人工放射性核種ばかりではなく、宇宙線、あるいは地殻 中のウラン・トリウム・アクチニウム系列核種などに由 来する天然放射性核種も存在する。天然放射性核種由来 の被ばく量は、地質や標高などの影響を受けるため、地 域によって異なる。さらに生体にとって必須元素である Kのうち0.0117%が放射性の40Kである。たとえば塩化 カリウム肥料1kgは、約15,000 Bgの⁴⁰Kを含んでいる。 図1-1に、東電原発事故以前の農業環境技術研究所内 の林地、水田、畑土壌における¹³⁷Csおよび⁴⁰Kの深度分 布を示す。¹³⁷Csが表層および作土層のみに存在するのに 対し、⁴⁰Kは、下層にも一様に150~500 Bq kg⁻¹程度存 在する。放射性Csは元素そのものによる毒性は低いた め、放出されるβ線およびy線が健康被害への懸念材料 となる。とくに食物を介した放射性核種の摂取にともな う被ばくは内部被ばくとよばれ、体内に放射性核種が一 定期間とどまることにより継続的に体内組織が被ばくを 受ける点で、体外からの放射線による被ばく(外部被ば



図1-1 東電原発事故前の農業環境技術研究所内林地(黒ボク土1999.6.14採取)、畑地(黒ボク土1998.2.16採取)、水 田土壌(細粒質灰色低地土1992.2.25採取)における¹³⁷Csの深度分布

く)と異なることに注意が必要である。放射線防護の観 点から、放射線はどんなに微量でも確率的影響(発がん などの後発的影響)の原因になると仮定されている。し たがって、農作物由来の放射性核種の摂取も可能な限り 低く抑える必要がある。農作物中の放射性核種濃度を可 能な限り低く保つためには、作物による土壌中元素の吸 収特性とともに土壌が放射性核種を取り込み、溶出する 仕組みを理解する必要がある。。

植物が土壌から吸収する無機元素の組成は、植物種ご とに特徴がある。これは、植物が土壌から無機栄養元素 を獲得するメカニズムや植物の無機栄養元素に対する要 求性が、植物種ごとに特徴があるためである。農作物が 土壌から放射性核種を取り込む程度も植物種ごとに評価 する必要がある。植物種ごとおよび放射性核種ごとに下 式によって移行係数を算出し、放射性核種の吸収特性の 指標とすることが多い。

移行係数 = (植物体中の放射性核種濃度)/(土壌中の放射性核種濃度)(式1-1)

この移行係数は、計算が容易であること、計算式がわか りやすく説明もしやすいことなどから、放射性核種移行 モデルのパラメータなどとして用いられている。たとえ ばイネの作付制限を行う土壌濃度は、土壌から玄米への 移行係数を根拠として算定された。土壌中の放射性核種 の濃度に移行係数を掛けることによって、そこで栽培 された作物中の放射性核種濃度を算出できるためであ る。移行係数が意味を持つのは、根域の放射性核種濃度 が耕起により均一化されている場合に限られる(IAEA, 2010)。同じ植物種であっても移行係数に2桁程度の分布 幅があることが多い。このことは、植物による放射性核 種の吸収量は、土壌中に含まれる濃度からだけでは十分 に説明できないことを示している(Ehlken and Kirchner, 2002)。

放射性核種による汚染に対して対策を考える場合、対 象となる地域における放射性核種の土壌固相から液相へ の分配、植物の無機元素吸収特性や生育特性、栽培方法 や施肥法、また植物の生育をとりまく環境などを十分に 把握する必要がある。Csの土壌中における挙動は、現 在でも完全に解明された状況とは言い難い。これは、Cs が土壌中には微量にしか存在しないこと、植物の生育に 与える影響も大きくないことから、これまでほとんど注 目されなかったためであろう。東電原発事故に由来して 新たに降下した放射性Csは、土壌中にもともと存在し ていたCsとは挙動が異なる可能性も考慮する必要があ る。グローバルフォールアウト由来の¹³⁷Csは、もともと 土壌中に存在していた非放射性核種である¹³³Csよりも 桁違いに濃度が低いが(1 Bqの¹³⁷Csは、3×10⁻¹³gに、 ¹³⁴Csは2×10⁻¹⁴gに相当)、より植物に吸収されやすい 傾向にある(駒村・津村, 1994; Tsukada and Nakamura, 1999; Tsukada et al., 2002a)。放射性核種であるかどうか にかかわらず陽子の数が同じであれば(同じ元素記号で あれば)化学的性質はほぼ同等であるとみなすことがで きる。しかし、より長期間土壌中に存在していた元素は より安定で植物が吸収しにくい形態に変化している可能 性がある。これまでに報告されている土壌中におけるCs の挙動に関する研究の中には、放射性核種による汚染を 視野に入れたものばかりではないため、非現実的な高濃

度の条件で研究されたものも含まれており、その解釈に は注意が必要である。たとえば、¹³³Csを添加して測定し た土壌固相 - 液相間の分配係数は、微量にしか存在しな い放射性Csが分配されないようなCs親和性の低い吸着 サイトも土壌固相におけるCs吸着サイトとして過剰に 評価してしまっている。このため、土壌種間における微 量の放射性Cs吸着能の違いを正しく比較できない可能 性が高い。さらに、わが国の土壌中におけるCsの挙動を 考える上では、わが国の土壌がもつ特有の土壌特性や鉱 物学的特性の理解が不可欠である。とくに、わが国の土 壌は火山活動の影響を受けていること(火山灰土壌の分 布が広いこと)、雨が多い環境下で生成していること、地 形が急峻で狭い地域に多様な土壌が分布していること、 水田という特殊な土地利用形態が存在することなどの点 で諸外国の土壌に比較して際立って特徴的であり、これ らの要因によりわが国には独特の土壌環境が成立してい ると考えられる。したがって諸外国で研究された土壌固 相-液相間の放射性Csの分配、植物吸収、流域レベルで の放射性Csの循環をそのままわが国に適用することに は注意が必要である。

東電原発事故以来、すでに多くの総説や解説が発表さ れているが(たとえば浅見,2011,塚田ら,2011a,b)これ までの経過報告や現状把握、あるいはかつての事例報告 の紹介にとどまるものが多い。また、紙面の制限から、 放射性Csの挙動に影響をおよぼす周辺情報が十分にレ ビューされているとは言い難い。放射性Csによる農作物 の汚染を低減する技術、あるいは農地からの除染技術を 開発するにあたり、対象地域における植物の生育特性や 生育環境および土壌環境を把握することが必要となる。 加えて、中長期的な動態を把握する上でより基礎的な挙 動のメカニズムの理解が必要となる。本総説では、これ まで報告されているグローバルフォールアウト、チェル ノブイリ事故由来の¹³⁷Csあるいはモデル的な放射性Cs 添加実験による知見をとりまとめるとともに、放射性Cs の挙動に影響をおよぼす因子として重要な粘土鉱物組成 および農地を取りまく生態系におけるK⁺とNH₄⁺の挙動 についても解説する。

本総説の構成と各章の関連を図1-2に示す。まずII章 では、土壌がCsを吸着する仕組み、Csの吸着を支配する 土壌鉱物の特性とわが国に分布する鉱物の特徴と分布、 福島県の土壌特性を汚染状況と併せて解説する。次に、 III章でNH4⁺とK⁺の挙動が土壌固相-液相間における放 射性Csの分配に与える影響について解説した後、土壌液 相から根を介しての植物によるCs吸収メカニズムをIV 章で解説する。農地土壌では放射性Csは土壌固相に強 く吸着され、動きにくい形態で存在するのに対し、森林 土壌では、森林生態系における物質循環の特徴を反映し て、比較的動きやすい形態の放射性Csが森林生態系内部 で循環している。森林と隣接する農地では、森林に蓄積 した放射性Cs流入の可能性にも留意しておく必要があ る。森林と農地を含む流域で、放射性Csがどのように輸 送されるかをV章で議論し、森林生態系内部における放 射性Csの動態の特徴をVI章で解説する。最後のVII章で は、主にチェルノブイリ事故後の対策として行われてき た農地から放射性核種を除去する手法についてとりまと め、前章までの基礎的情報をもとに、わが国におけるこ れらの手法の有効性について若干の議論を行う。



図1-2 本総説の構成

■ 土壌中のCsの挙動と福島の土壌汚染状況

1 はじめに

土壌に降下した放射性Csは、水に溶けると1価の陽イ オン(Cs⁺)となる。したがって、土壌中の負電荷に捕捉 される。土壌有機物や粘土鉱物に由来する負電荷は、そ れぞれCs⁺に対する親和性が異なるとともに、土壌ごと に有機物や粘土鉱物の組成や含量も異なる。本章では、 土壌中におけるCsの存在形態、土壌の負電荷へのCs⁺ 吸着メカニズム、Cs⁺吸着サイトとして重要な土壌構成 成分の特徴とわが国の土壌における分布について解説す る。さらに、福島県の土壌の特性および土壌分類ごとの 分布状況をレビューした上で、福島県の農地土壌におけ る放射性Csの汚染状況をまとめる。

2 土壌中におけるCsの存在形態

図2-1は、東電原発事故前の1998年2月16日、事故



図2-1 農業環境技術研究所内黒ボク土畑地における東電 原発事故前後および耕起前後の¹³⁷Csの深度分布

後の2011年4月7日および20日に、農業環境技術研究 所敷地内の同じ畑圃場で深度別に土壌サンプルを採取 し、¹³⁷Cs濃度を測定した結果である。つくば市では、東 電原発事故由来の最初の放射性物質を含んだ雲(放射性 プルーム)が到達したのは3月15日であるが、土壌中の 事故由来放射性核種の大半は、3月21日から23日およ び26日の降雨に伴って負荷されたものである(佐波ら, 2011)。その後、土壌のサンプリングまでにはさらに数回 の降雨があったにも関わらず、¹³⁷Csは大部分が土壌表層 数cm以内にとどまっていた。大気圏内核実験由来、ある いはチェルノブイリ事故由来の¹³⁷Csも下方浸透速度は 極めて遅く、表層付近にとどまっているとの報告が多い (Almgren and Isaksson, 2006)。農業環境技術研究所敷地 内の林地においても同様であり、グローバルフォールア ウト由来の¹³⁷Csは、フォールアウトの最盛期から30年 以上経過しても表層30 cm以下からは検出されなかった (図1-1)。ただし、有機質土壌では、50 cm以下まで¹³⁷Cs が到達しているとの報告もある(Rosén et al., 1999)。農 地においては耕起によって作土層内が混合され、¹³⁷Cs濃 度が均一となる(図1-1)。農業環境技術研究所敷地内に おける東電原発事故由来の¹³⁷Cs降下量程度では、1回の 耕起により、放射性Cs濃度は作土内で均一となった(図 $(2-1)_{\circ}$

放射性Csが土壌表層付近に蓄積する傾向にあるのは、 土壌中に存在する負電荷をもつ部位に吸着されるためで ある。後述するようにCsは、吸着されている負電荷の性 質によって、弱く吸着されている場合と、きわめて強固 に吸着されている場合がある。土壌中のCsが溶脱や植物 の吸収によって土壌から失われていくのか、あるいは長 期にわたり土壌中に存在し続けるのかは、抽出性の違い により評価できる。たとえばBunzl et al. (1999) は、重 金属類に適用されている方法と同様の逐次抽出法をCs に適用した結果、鉱質土壌(Alfisol)ではフォールアウ ト由来の¹³⁷Csの大部分が残渣態に、リターを除いたポ トゾルのOf+O1層では30~40%が交換態、10%程度が 鉄・マンガン結合態および有機物結合態に、40~50%が 残渣態に配分されていることを示した。青森県の黒ボク 土では、交換態10%、有機物結合態が20%、粘土鉱物な どとの強固な結合態が70%との報告がある(Tsukada et al., 2008a)。逐次抽出法では、どの土壌構成成分にCsが 結合しているのかをある程度判断可能である。しかし、 抽出過程での形態変化の可能性や抽出試薬の妥当性など の問題があり、土壌構成成分別のCsの分布を厳密に示す ことはできない。

より簡便な評価として、水によって溶出される画分 (水溶性画分)、酢酸カリウムや酢酸アンモニウムなど中 性の塩類水溶液によって交換抽出される画分(交換態画 分)、中性の塩類水溶液によっても容易に交換・溶出され ない画分(固定態画分)に便宜的に大別している研究も 多い。これにさらに、酸抽出態を加えることもある。一 般に、交換性陽イオンを抽出するための溶液としては、 十分に高濃度の中性塩類溶液を用いれば、交換抽出量に 大きな差はない。ところが土壌中のCsは、Ca塩やNa塩 などではほとんど抽出されず、抽出するためにはK塩あ るいはNH₄塩が必要である。NH₄塩による抽出効率が格 段に高いのは、Csの特徴である(Takeda et al. 2006)。 水溶性画分は水の流れとともに移動する画分、交換態画 分は土壌の負電荷によって静電的に中程度の強さで吸着 された画分(水の流れよりは遅いがある程度の割合で溶 出されて移動する画分)、固定態画分は上記の静電的な 効果に加えて土壌鉱物の立体的な効果がはたらき非常に 強く吸着された画分(水や塩類水溶液によりほとんど溶 出されないため固液平衡を通じての移動はほとんど起こ らない画分)である。このような抽出性の違いによる区 分は、土壌中での長期的な挙動や植物による吸収を考え るうえで重要である。水抽出をする際、土壌が分散して 土壌微粒子が抽出液に混入してしまう。分散した微粒子 は、静置や遠心分離では水相から除去できない。孔径 0.45 µm以下のろ紙によるろ過が必要である。Csの安定 性は、交換態画分よりも固定態画分で高く、したがって 新たに土壌中に加えられたCsは、時間とともに水溶性画 分→交換態画分→固定態画分の順に推移していく(Roig et al., 2007; 武田ら, 2008)。加えられたCs量に対して土 壌のCs固定容量が十分に大きければ、いずれはほとんど のCsが固定態へと変化していくこととなる。

放射性Csがどれだけ土壌に固定されるかをあらわす 指標として、Radiocaesium Interception Potential (RIP) が、Cremers et al. (1988) により提案された。RIPは、 Csに対して極めて選択性の高いサイトであるフレイド・ エッジ・サイト (FES) におけるKに対する¹³⁷Csの選択 係数 ($K_c^{FES}_{(Cs-K)}$) とFES濃度 ([FES], mol kg⁻¹) の積と して定義され、次式であらわすことができる。

 $\operatorname{RIP}(\operatorname{mol} \operatorname{kg}^{-1}) = K_{c}^{\operatorname{FES}} (C_{S-K}) \times [\operatorname{FES}] \quad (\operatorname{\mathfrak{K}} 2-1)$

このCsに対して選択性の高いサイトFESは、雲母類 の風化により層間が膨潤した鉱物における膨潤層と非膨 潤層との境界に位置するくさび形に開いた部分であると 考えられている。FESに吸着されたCsは上述の固定態 Csに相当すると考えられる。FESの特徴について詳しく は後述する。交換態画分におけるCs⁺とK⁺の選択性の差 は大きくないが、FESにおける $K_c^{FES}_{(Cs-K)}$ は約1,000であ る。すなわちFESにおけるCs⁺の選択性はK⁺の選択性よ り1,000倍程度高い(Brouwer et al., 1983)。

 $K_{c}^{FES}(C_{s-K})$ は次式で定義される。

 $K_{c}^{FES}(CS-K) = \frac{FES に吸着した^{137}Cs 濃度}{吸着平衡溶液中K濃度} \times \frac{吸着平衡溶液中K濃度}{W着平衡溶液中^{137}Cs濃度} \times FES に吸着したK濃度$ (式2-2)

RIPを測定するためには、まず、FES以外の負電荷をチ オ尿素銀でマスクし、¹³⁷Csに対して過剰のK存在下でK と¹³⁷Csの土壌固相一液相間での反応を平衡にさせる。添 加した¹³⁷Csの濃度はKに比べ極めてわずかであるので、 FESに吸着したK濃度は近似的にFESの濃度と仮定でき る。原子吸光分析法やICP-MS分析などによる元素とし ての分析感度に比べ放射能測定の感度が格段に高いから こそ、この仮定が可能となる。FESに吸着したK濃度が FESの濃度と等しいと仮定すると、式2-2は以下のよう に書き換えることができる。

 $K_{c}^{FES}_{(C_{S}-K)} = \frac{FES に吸着した^{137}Cs 濃度}{吸着平衡溶液中^{137}Cs 濃度} \times \frac{吸着平衡溶液中K濃度}{[FES]}$

$(\underline{3}2 - 3)$

土壌に添加した¹³⁷Cs濃度と吸着平衡溶液中の¹³⁷Cs濃 度の差、あるいは土壌固相・液相中¹³⁷Cs濃度の直接分析 により、固相・液相中の¹³⁷Cs濃度および吸着平衡溶液中 のK濃度を実験的に求めれば、[FES] とK^{FES}_(Cs-K)の積 として定義される RIPを求めることができる。

Wauters et al. (1996) は、FES以外の負電荷へのK⁺の 吸着が、高濃度のCa²⁺存在下ではおこらないことを利用 し、Cremers et al. (1988) による原法を簡便化した。 $0.5 \operatorname{mol} L^{-1}$ 硝酸カルシウム溶液中でFESをKで飽和後、 ここに¹³⁷Csを添加し、Kおよび¹³⁷Csイオンの固液分配 係数を求める。RIPは土壌のバーミキュライト含量と相 関が高い(Delvaux et al., 2000)。FESにおける¹³⁷Csの固 液分配係数(K_d)とRIP、および土壌溶液中のK(C_K)、 NH₄(C_{NH4})イオン濃度の間には、以下の関係が成り立 つ(Wauters et al., 1994)。

$K_{\rm d} = {\rm RIP}/({\rm C}_{\rm K} + 5{\rm C}_{\rm NH4})$ (式 2-4)

すなわち、NH₄⁺はK⁺よりも5倍、Csに対する選択性が 高い。通常の農地土壌が持つ負電荷の量は10~100 cmol。 kg⁻¹の範囲内にあり、FESが土壌の陽イオン交換容量に 占める割合はそのわずか2%以下である(Cremers et al, 1988)。一方、土壌中¹³⁷Csは5,000 Bq kg⁻¹であっても10⁻⁹ cmol_ekg⁻¹程度であり、土壌の陽イオン交換容量の数 100億分の1程度である。すなわち、汚染土壌とされる 5,000 Bq kg⁻¹でも、放射性Csの原子数としては非常に 微量である。したがって、土壌中の負電荷へのFESの量 的寄与は小さいが、その高いCs選択性から、量的にはご く微量のCsを吸着する負電荷としてはきわめて重要で あると言える。

なお、非放射性のCs含量は、地殻中で<1~6 mg kg⁻¹ (<0.8~5×10⁻³ cmol kg⁻¹)、岩石中で0.05~10 mg kg⁻¹ (0.04~8×10⁻³ cmol kg⁻¹)、土壌中で0.8~30 mg kg⁻¹ (0.6~20×10⁻³ cmol kg⁻¹)、雨水中で0.01~0.5×10⁻³ mg L⁻¹ (0.008~0.4×10⁻⁶ cmol L⁻¹)、海水中で0.3~0.6× 10⁻³ mg L⁻¹ (0.2~0.5×10⁻⁶ cmol L⁻¹)、河川水中で0.003 ~0.02×10⁻³ mg L⁻¹ (0.002~0.02×10⁻⁶ cmol L⁻¹)であ ることが報告されている(Kabata-Pendias and Mukherjee, 2007)。日本の土壌では、黒ボク土で0.12~13、褐色森 林土で0.42~17、灰色低地土で1.8~10、赤黄色土(赤色 土と黄色土)で2.6~24 mg kg⁻¹の範囲にある(Takeda et al., 2004)。もともと土壌中に存在した¹³³Csは、放射性 Csよりも安定な形態で存在し、抽出・溶解されにくい。

3 土壌中の負電荷に対するCsの吸着メカニズム

1価の陽イオンであるCs⁺は土壌中の負電荷をもつ部 位に吸着される。土壌中の負電荷は、pHにより電荷の発 現量が異なる変異荷電と、pHによって電荷量が変化し ない永久荷電に大別できる(表2-1)。変異荷電サイト で負電荷が発現するのは、土壌pHが変異荷電サイトの 電荷ゼロ点よりも高い場合に限られる。変異荷電は、土 壌有機物中の解離したカルボキシ基あるいはカルボキシ レート基(R-COO⁻)、金属水酸化物や層状ケイ酸塩鉱 物の構造末端に存在する表面水酸基に発現する。変異荷 電由来の負電荷はCs⁺の吸着サイトとなりうるが、他の

土壤構成成分名	主な負電荷の発生源	Cs吸着反応	Cs固定反応
土壌有機物 (解離したカルボキシ基あるいはカルボキシレート基)	R-COO ⁻	0	×
主に変異荷電を発生させる鉱物(電荷ゼロ点よりも高いpH域に限る)			
・1:1型層状ケイ酸塩鉱物(例:カオリナイト、ハロイサイト)	МОН	\bigcirc	×
・金属酸化物(例:ゲータイト、ヘマタイト、フェリハイドライト)	МОН	\bigcirc	×
・低結晶性アルミノケイ酸塩鉱物(例:アロフェン、イモゴライト)	МОН	\bigcirc	\times or \triangle
主に永久荷電を発生させる鉱物			
・2:1型層状ケイ酸塩鉱物			
(a) スメクタイト族鉱物(単位胞あたりの電荷:0.2~0.6)			
モンモリロナイト	Oct	\bigcirc	×
バイデライト	Tet	0	$\triangle \sim \bigcirc$
ノントロナイト	Tet	0	$\triangle \sim \bigcirc$
(b) バーミキュライト族鉱物(単位胞あたりの電荷:0.6~0.9)			
2八面型バーミキュライト	Tet, Oct	0	0
3八面型バーミキュライト	Tet	0	\bigcirc
(c) 雲母族鉱物			
2八面型雲母(主に白雲母)	Tet	0	$\triangle \sim \bigcirc$
3八面型雲母(主に黒雲母)	Tet	\bigcirc	$\triangle \sim \bigcirc$
(d) 1.4 nm 中間種鉱物			
クロライト・スメクタイト中間体	MOH、スメクタイト	\bigcirc	×, △~○
クロライト・バーミキュライト中間体(Al - バーミキュライト)	MOH、バーミキュライト	\bigcirc	$\triangle \sim \bigcirc$
・ゼオライト	Tet	\bigcirc	本文参昭

表2-1 わが国の土壌においてCsの保持にかかわる主な構成成分(負電荷を発生させる主な土壌構成成分)

MOH、金属表面上に配位した活性な表面水酸基(変異荷電の発生源)、Tet:四面体シート上の同形置換(永久荷電の発生源)、Oct:八面体シート上の同形置換(永久荷電の発生源)

○:Csの保持量が多い、△:Csの保持量が中程度あるいは低い、×:Csの保持量はほとんどない。



図2-2 ケイ素四面体6個で構成されるリングの中央部にできる空間的く ぼみ (Siloxane Ditrigonal Cavity: SDC)

陽イオンに比べ、Cs⁺に対する選択性は低い。したがっ て、Ca²⁺などが多量に存在する場合は吸着が阻害され、 一度吸着したとしても容易に他の陽イオンによって追い 出されてしまう。一方、永久荷電由来の負電荷へのCs⁺ の選択性はNa⁺やK⁺に比較して際立って高い。Cs⁺のよ うにイオンサイズが大きく水和しにくい性質をもつイオ ンほど、イオンの正電荷の中心と粘土の負電荷との距離 が近くなり、相互作用が強くはたらくことで吸着されや すいためである(McBride, 1994)。さらに永久荷電をも つ2:1型粘土鉱物で層間に面したケイ素四面体シートに は、ケイ素四面体6個で構成 されるリングの中央部に出 来る空間的くぼみ(Siloxane Ditrigonal Cavity: SDC)が ある(図2-2)。層間が閉じ、ケイ素四面体シートどう しが密着すると、上下の層の空孔が合わさった直径0.26 nmの空洞ができることになるが、ここに入り込めるの は、Cs⁺、K⁺、NH₄⁺のみである。いずれも水和力が小さ く、水を配位せずに層間に吸着されることができるイオ ンである。一方、イオンサイズそのものは小さくても水 和力が強いNa⁺やCa²⁺のようなイオンは、配位した水和 水が障壁となるため、SDCには収まらない。Cs⁺、K⁺、 NH₄⁺が固定されるためには層間が閉じる必要がある。ア ルミニウム八面体シートに負電荷をもつモンモリロナイ トのような鉱物では、層間の陽イオンと負電荷の発現位 置までが離れているため、層間を閉じきることによって SDCにCs⁺、K⁺、NH₄⁺を固定することはできない。この 場合、Cs⁺に対する吸着選択性は高いものの、他の陽イ オンが多量に存在すれば、Cs⁺はイオン交換反応により 交換・溶出される。一方、層間に近い四面体シート中で 負電荷が発現している2:1型層状ケイ酸塩鉱物は、Cs⁺、 K⁺、NH₄⁺をはさみこんだまま層間を閉じることができ る。ただし風化程度の低い雲母類では、SDCをK⁺が占 有しており、後から添加されたCs⁺は侵入できない。雲 母類の風化がすすむと、端面付近の層間からK⁺が除去さ れ、膨潤する。このことにより、層間への吸着選択性の 高いCs⁺が入り込む余地ができる。さらに、層の膨潤し た領域と膨潤していない領域の境にあたる部分にCs⁺が 到達すると、Cs⁺がバインダーとなって一度膨潤しかけ た層間が再び閉じる。そしてCs⁺は固定される。非膨潤 層と膨潤層の境界にある部分が、前述のFESに相当する (Sawhney, 1972; 図2-3)。FESにおけるCs⁺吸着選択性 が極めて高いのは、(1)Cs⁺は脱水和しやすいため他の陽 イオンよりも負に帯電した表面に対する親和性が高い、 (2)FESは形状的にCs⁺をはめこむことができるSDCをも つこと、(3)FESにおける負電荷の発現部位が吸着された Cs⁺と空間的に近くCs⁺を吸着した後に層間が閉じるこ と、の3つの要因によるものであり、Cs⁺を極めて安定に 固定することができる。この条件は、必ずしも雲母でな くても成立しうる。すなわち、バーミキュライト、バイ デライト、およびノントロナイトにおいても、層間にK⁺ が固定されれば、雲母と同様なCs⁺の固定が可能である ろう。しかし、純粋なバイデライトおよびノントロナイ トについてはそのRIPの測定例はなく、現段階では十分 な情報がない。FESへCs⁺がアクセスするためには、膨 潤層内に存在する水和イオンとの交換反応を繰り返し、 層間の内部へ拡散する必要がある。このため、FESへの アクセスには時間がかかる。一方、FESに比べ、他の負 電荷へはCs⁺がより早く到達することができると考えら れる。



図2-3 2:1型層状ケイ酸塩鉱物の同形置換由来の負電荷へのCs⁺の吸着

	代表的な化学組成 ¹⁾	Si/Alモル比	カチオン交換容量 ²⁾
			${ m cmol}_{ m c}{ m kg}^{-1}$
斜プチロル沸石(Clinoptilolite)	$[Al_6Si_{30}O_{72}]^{6-}$	4.3-5.3	220
輝沸石(Heulandite)	$[Al_8Si_{28}O_{72}]^{8-}$	2.5-3.7	290
方沸石 (Analcime)	$[Al_{16}Si_{32}O_{96}]^{16-}$	1.8-2.8	460
菱沸石(Chabazite)	$[Al_{12}Si_{24}O_{72}]^{12-}$	1.6-3.0	420
濁沸石(Laumonite)	$[Al_8Si_{16}O_{48}]^{8-}$	1.8-2.3	420
エリオン沸石(Erionite)	$[Al_9Si_{27}O_{72}]^{9-}$	3.0-3.5	320
十字沸石 (Phillipsite)	$[Al_5Si_{11}O_{32}]^{5-}$	1.7-2.4	380
モルデン沸石 (Mordenite)	$[Al_8Si_{40}O_{96}]^{8-}$	4.2-5.0	220

表2-2 天然に産する主なゼオライト

1) 水和水を除いた組成式で示した。

²⁾ 組成式や比重など計算される理論上の値。

Boettinger and Ming (2002) より抜粋。

その他、土壌中でCs⁺を選択的に吸着する成分として ゼオライトが挙げられる。ゼオライトとはトンネル状の 空隙構造を持ったアルミノケイ酸塩鉱物の総称であり、 主な天然ゼオライトとしては表2-2に示したものが知 られている。ゼオライトの基本骨格はSiO2の組成を持っ ており、その一部が4配位Alと同形置換を起こすことに より負の永久荷電を発現している。ゼオライトは、層状 ケイ酸塩鉱物と異なり、イオン吸着や脱水および水和に 伴う構造の変化をほとんど起こさない。ゼオライトのイ オン吸着選択性は、ゼオライトのSi/Alモル比、ゼオライ トの持つ空隙サイズと空隙形状、吸着されるイオンの電 荷/イオン半径比に大きく依存している。たとえば、Si/ Alモル比の大きな斜プチロル沸石はCa²⁺よりもK⁺に対 する選択性の方が高いが、Si/Alモル比の小さなゼオラ イトでは2価の陽イオンに対する選択性がより高くなる (Boettinger and Ming, 2002)。ゼオライトの中でも、斜 プチロル沸石、モルデン沸石、十字沸石は、低塩類濃度 の低レベル放射性廃棄物からCs⁺などを選択的に吸着・ 除去する目的で用いられている。とくに斜プチロル沸石 は上記の目的でよく利用されているが、土壌に施用した 際に農作物の放射性Cs吸収抑制効果がどの程度あるか は不明である。ゼオライトは、とくに火山起源の堆積岩 (凝灰岩)に多く含まれており、斜プチロル沸石は最も普 通に見られるゼオライトである。土壌中にゼオライトが 認められる例は少なく、存在していたとしても土壌表層 ではゼオライト含量が5%を越えることはまれである。

4 Csの吸着に関わる主な土壌構成成分

Sawhney (1964) は、標準鉱物を用いた実験により、 雲母様鉱物 (黒雲母、白雲母、イライト) およびバーミ キュライトではCs⁺の固定が起こり、カオリナイトおよ びモンモリロナイトではCs⁺の固定が起こらないことを 示した。Nakao et al. (2008) も、イライトと3八面体バー ミキュライトではCs⁺の固定が起こるが、カオリナイト とモンモリロナイトはCs⁺の固定がほとんど起こらない ことを示した。津村ら(1984)も、カオリナイトのCs⁺ 固定量は非常に小さいことを報告している。また、Cs⁺ の固定メカニズムはK⁺の固定メカニズムと同様と考え られるが、土壌から精製したバイデライトは四面体シー ト中の負電荷量に比例してK⁺固定量が増えることが報 告されている(Bouabid et al., 1991) ことから、バイデ ライトもCs⁺の固定に関与しているものと考えられる。津 村ら(1984)はモンモリロナイトもCs⁺を固定すると報 告しているが、当時はスメクタイト族鉱物をモンモリロ ナイトと呼ぶことがあり、また実験に用いた粘土試料中 に四面体シート中で負電荷を発生させる2:1型層状ケイ 酸塩鉱物が含まれていた可能性がある。たとえば、豊順 工業が提供している商品「豊順ベントナイト」は標準モ ンモリロナイトとしてよく実験に用いられているが、こ れにはバイデライトが含まれていることが報告されてい る(加藤ら,1970)。また、日本粘土学会が頒布している 粘土鉱物試料の月布モンモリロナイトおよび三川モンモ リロナイトにも四配位AIが含まれていることが固体²⁷AI NMRスペクトルにより観測されることから(平舘,未発 表)、標準的な粘土試料を用いたとしても四面体シート 中で負電荷を発生させる鉱物が存在している可能性があ る。とくに、微量の放射性Csの固定反応を問題にするよ うな場面では、たとえ微量であっても四面体シートに負 電荷を持つ鉱物は無視できない存在である。以上のよう に、現在と過去における鉱物の呼び名の違いや混入成分 の可能性などを考慮すると、表2-1に示したように、主 としてCsの固定を起こすのは2:1型層状ケイ酸塩鉱物

の中でも四面体シート中に負電荷をもつものであり、逆 に2:1型層状ケイ酸塩鉱物でも八面体シートにしか電荷 を持たないものはCs⁺の固定にはほとんど寄与しないと 考えられる。

四面体シートに負電荷を持つ鉱物でも、鉱物の種類が 異なればCs⁺の固定量は異なり、また同じ鉱物でも風化 程度が異なればやはりCs⁺の固定量も差が出てくる。た とえば、バーミキュライトは雲母よりもCs⁺固定量が多 いこと (Nakao et al., 2008)、雲母族鉱物の場合には、 風化が進行して四面体シート間に固定されていたK⁺の 脱離が進むとCs固定量が増加すること(Nakao et al., 2008)、バーミキュライトの層間にヒドロキシアルミニ ウムポリマーイオンが入り込み1.4 nm中間種鉱物になる とCs固定量は減少すること(場合によっては2桁オー ダーで減少: Nakao et al., 2009a) が報告されている。こ のように、Cs固定量は鉱物の種類や風化程度によってさ まざまであるが、Nakao et al. (2008;2009a, b) のデータ から判断すると、四面体シート中に負電荷を発生させる 鉱物の場合、Cs固定量は概ね0.1~10 cmol kg⁻¹粘土の範 囲内にあると考えて良いだろう。

土壌腐植物質がCs⁺を固定するとの表現も見られる (津村ら, 1984) が、これは酢酸アンモニウムで抽出され ないCs画分が存在するという意味であり、上記の四面 体シートに挟まれる形で固定されたCs⁺と比較すれば安 定性は低いと考えられる。このことは、腐植物質含量の 高い黒ボク土である盛岡土壌を薄層クロマトグラフィー の担体として用いた津村ら(1984)の実験において、 0.5 M HClを展開溶媒とした場合には固定反応に特徴的 な原点付近のスポットが認められないことからも推察さ れる(他の鉱物質土壌を担体として用いた場合には非常 に強い固定反応が認められる)。腐植物質のCs吸着能力 は四面体シートに電荷を持つ2:1型層状ケイ酸塩鉱物 よりは低いものの、土壌表面において雨水の流れに対抗 してCsを留まらせる能力はある程度持っていると考え られる。ただし、Cs⁺と土壌有機成分の相互作用につい ては、解離したカルボキシ基とイオンペアのような弱い 会合体を作ることは十分に考えられるものの、低分子有 機酸やフルボ酸などと可溶性の安定な錯体を形成すると いった報告は見当たらないため、現在のところ、両者の 間で特別強い相互作用が存在するとは考えにくい。Rigol et al. (2002) は、土壌有機物がCsの吸着サイトとして機 能しているのは、粘土鉱物含量が極めて少ない有機質土 壌に限られると述べている。

わが国の農地に含まれる主要な粘土鉱物の中で、Csと

の相互作用において不明な点が残るのはアロフェンおよ びイモゴライトであろう。いずれもギブサイトシートの 内側に3点結合したモノマーケイ酸が曲面を作る構造と なっており、直径3.5~5.5 nmの中空球状となったものが アロフェン、直径2.3 nmの中空管状となったものがイモ ゴライトと考えられている(Harsh et al., 2002)。これら の構造には四面体シートは存在しないが、中空構造の内 側にはSi-OH基が突き出ており、これが解離すれば負電 荷を発生させることから、これらの鉱物の内側にCs⁺が 入り込めばある程度強い力で吸着される可能性がある。 津村ら(1984)は、アロフェンはカオリナイトよりも多 くのCs⁺を固定態として吸着すること(カオリナイト: 0~10%、アロフェン:15~25%)、アロフェンおよびイ モゴライトの含量が高い黒ボク土である盛岡土壌を薄層 クロマトグラフィーの担体とし酢酸アンモニウム水溶 液でCsを展開した場合には一部のCsは固定態として原 点付近に強く残ること、同じ薄層プレートでCsを0.5M HClで展開すると固定反応は見られないことを示してい る(他の鉱質土壌を担体として用いた場合には非常に強 い固定反応が認められる)。アロフェンおよびイモゴライ トは、0.5 M HCl程度の酸により溶解されることから、 この黒ボク土中でCsをある程度強く吸着していたのは (酢酸アンモニウムで抽出されない形態でCsを吸着して いたのは)アロフェンおよびイモゴライトである可能性 があるが、詳細は不明である。Vandebroek et al. (2012) は、88点の土壌のRIPを調べ、負電荷の発生源が有機物 やアロフェン・イモゴライトに由来する黒ボク土では、 他の土壌群に比べRIPが有意に低いことを示した。一方、 Joussein et al. (2004) は、カメルーンの黒ボク土の RIP の起源は、雲母類の風化鉱物によるものであることを示 している。津村ら(1984)が実験に使用した黒ボク土に は、少量ではあるがバーミキュライトが含まれており、 このバーミキュライトがCs⁺を固定した可能性が考えら れる。アロフェンに吸着されたCs⁺は、Na⁺およびK⁺に よるイオン交換で100%が回収できるという実験例もあ る (Mon et al., 2005)。ただし、Mon et al. (2005) の実 験では、大量の¹³³Csをアロフェンに添加しており、ごく 微量の放射性Csとアロフェンおよびイモゴライトとの 反応性については研究例がない。アロフェンおよびイモ ゴライトの精製法が確立している現在、この点を明らか にすることは可能であり、このような情報はとくにアロ フェンおよびイモゴライトを多量に含む黒ボク土から放 射性Csを除染する場合に重要であろう。ただし、このア ロフェンおよびイモゴライトを多量に含む黒ボク土は、

他の鉱質土壌に比較するとCsの吸着能力が弱く、植物に よるCsの吸収量も比較的多いことから、アロフェンおよ びイモゴライトによるCsの固定は四面体シートに負電 荷を持った2:1型層状ケイ酸鉱物によるものよりも強い とは考えにくいだろう。

以上、これまでの知見から総合的に考察すると、わが 国の土壌においてCs⁺の吸着にかかわる主な土壌構成成 分は表2-1のようにまとめられる。すなわち、Csの固 定反応を起こすのは、2:1型層状ケイ酸塩鉱物の中で も、四面体シートに負電荷を持つものが主体である考え られる。このような鉱物は、スメクタイト族鉱物の中で もバイデライトとノントロナイト、バーミキュライト族 鉱物、雲母族鉱物、1.4 nm 中間種鉱物が相当する。

なお、これらCs固定能を持った鉱物の種類や構造お よびCs固定メカニズムはかなり明らかになっている が、Csが交換態から固定態に変化する際の条件や反応 速度については不明な点が多い。たとえば、添加した Cs量よりも鉱物のCs固定容量が大きく上回っているに もかかわらずCsは部分的に酢酸アンモニウム溶液など によって抽出される場合がある。固定反応が進むために は乾燥と湿潤のサイクルが必要であるとの報告もあるが (Vandenhove et al., 2005; Wang and Staunton, 2010)、Cs の土壌中における動態を予測し制御に利用できるほどの 情報とはなっていない。また、植物によっては固定態Cs を吸収している可能性もある。これらの点については、 今後の研究課題であろう。

5 Csの吸着に関わる土壌構成成分の分布

わが国の国土には狭い地域に多様な土壌が分布してい る。これは、土壌母材、地形、気候、土壌生成にかかっ た時間、生物要因といった土壌の生成にかかわる要因が 多様なためである。しかし、他国に比較すればかなり詳 細な土壌図が整備されており、土壌分類名を見ればどの ような土壌構成成分が含まれているのか、ある程度予想 できる。土壌図についてはII-6で詳しく述べるが、ここ では主な土壌構成成分の起源や成因および土壌分類名と の関連について概説する。

土壌有機物は、主に植物が腐朽して生成するものであ り、泥炭土および黒ボク土に多い。また、主に変異荷電 を発生させる鉱物は風化初期の比較的若い土壌に多量に 含まれ、たとえばアロフェンおよびイモゴライトを多量 に含む黒ボク土がこれに該当する。これに対して主に永 久荷電を発生させる鉱物は、いくつかの起源が考えられ るが、最も重要なのは中国大陸から長距離輸送される風 成塵(黄砂成分)であろう。風成塵は、安定な地形面の 土壌や、急峻な斜面でも植生によって土壌表面が長期間 安定的に維持された土壌に多量に存在する。たとえば、 褐色森林土や非アロフェン質黒ボク土の多くがこれに該 当する。風成塵とは、主に春期に起こる砂嵐によって巻 き上げられた中国大陸起源の砂塵であり、主成分はカオ リナイト、雲母(白雲母)、バーミキュライト、モンモリ ロナイト、石英、カルサイトである (Inoue and Naruse, 1987)。風成塵は、給源からの距離によって堆積する成分 の粒径が異なるが、日本に降る風成塵の場合その粒径の 中央値は3~26 µmであり、多くが微細シルト~粘土サ イズに相当する (Inoue and Naruse, 1987)。風成塵は、 北西からの季節風が吹き込む地域(すなわち日本の大部 分)において地質時代を通じて多かれ少なかれ堆積して きたと考えられ、その堆積速度は最終氷期以降で0.5~ $1.0 g \text{ cm}^{-2} 1,000 y^{-1} (3.6~7.1 \text{ mm} 1,000 y^{-1})、大陸の内陸$ 部が乾燥した最終氷期で1.9~3.2g cm⁻²1,000 y⁻¹(13.5~ 22.9 mm 1,000 y⁻¹) と試算されている (Inoue and Naruse, 1987)。この堆積速度は、土壌が生成される年代スケール からみれば非常に速く、したがって土壌の母材として、基 岩の岩石および火山噴出物とともに、重要な存在である。

土壌の生成は、母材である基岩がその場で風化し下方 に向かって土壌化が進行する下方成長と、基岩の上に風 成塵や火山噴出物が累積的に堆積しながら土壌化が進行 する(すなわち上方に向かって土壌化が進行する)上方成 長に分けて考えられる(Almond and Tonkin, 1999)が、安 定な地形面に立地している森林など土壌が長期間安定的 に保持されてきた場所では、上方成長の影響が大きい。 2:1型層状ケイ酸塩鉱物の起源としては、風成塵起源の ほかに、基岩に含まれる雲母あるいはその風化物起源、 火口湖など閉塞環境下で生成した二次火山灰起源、噴火 や土砂崩れなどのイベントによる異質岩片の混入あるい はその風化物起源が考えられるが、土壌が上方成長する 場面では、これらの起源の影響は限定的であると考えら れる。

累積的に土壌生成が進む場合、その母材はわが国の場 合には主に風成塵と火山噴出物であるが、火山噴出物の 影響が強い層位ではCs固定能は小さく、逆に風成塵の 影響が強い層位ではCs固定能は大きい。風成塵のCs固 定能の起源は、主にバーミキュライトと白雲母に由来す る。白雲母は、風化によりK⁺が層間から脱離すればバー ミキュライトあるいはバイデライトになるためCs固定 能は大きくなるが、さらに風化が進み1.4 nm中間種鉱物 が生成され始めるとCs固定能は低くなる。このように、 風成塵を母材にした層位のCs固定能は、その風化程度や 土壤環境にも依存するが、これら四面体シートに負電荷 を持つ鉱物の土壌中における含量を考慮すると、Cs固定 量はおよそ0.01~10 cmol_c kg⁻¹の範囲内にあると見られ る。この値は、イネの作付けが制限される土壌中¹³⁷Cs濃 度として採用された5,000 Bq kg⁻¹の1,000万倍~100億 倍のCsを吸着できる容量に相当することから、風成塵を 起源とする層位のCs固定能力は非常に高いと言える。こ れに対して、火山噴出物あるいはその風化生成物である アロフェンやイモゴライトなどの変異荷電を主体とする 鉱物はCs固定能力を持たないか、あるいは持っていたと しても植物によるCs吸収を阻害するほどのものではな いと考えられる。すなわち、累積土壌の場合、風成塵の 混入程度がCs固定能力に大きな影響を及ぼしていると 考えられる。

モンモリロナイトは、水熱作用を受けて二次的に生成 される場合があり、厚い層位がしばしば報告されている が、このうち地表に近い部分ではバイデライトへの変性 が起こっていることが報告されている(加藤ら,1970)。 また、多くの論文でわが国の土壌の表層にはスメクタイ トが含まれていると報告されているが、そのスメクタイ ト族鉱物の中味を細かく同定している研究は少ない。し かし、風成塵がわが国のほぼ全域にわたって影響を及ぼ していることを考えると、白雲母に由来して生成したバ イデライトである可能性が高いと考えられる。ただし、 モンモリロナイトを主体とした土壌も十分にあり得るた め、土壌からの放射性Csの除染を考える場面などでは、 土壌構成成分を十分に把握する必要があるだろう。

どの土壌にCs固定能力の高い鉱物が含まれているか は、土壌図に記載されている土壌分類名からおおよその 予想ができる。たとえば、火山放出物未熟土とは火山放 出物が堆積して間もない土壌であり、アロフェンやイモ ゴライトもほとんど生成してない土壌であることから、 Cs固定能力はほとんどないと考えられる。アロフェン やイモゴライトを多量に含む黒ボク土も火山噴出物を主 な母材とした土壌であるが、より風化が進んでいるため アロフェンおよびイモゴライトが生成され、かつ多量の 土壌有機物が蓄積されていることから、植物が吸収しや すい形でCsを土壌中に吸着しやすいと考えられる。非 アロフェン質黒ボク土は、一般的にはアロフェンやイモ ゴライトを多量に含む黒ボク土よりもさらに風化が進ん だ土壌であり、風成塵の影響をより強く受けていると考 えられる。赤色土、黄色土、および褐色森林土は、長期 間土壌化作用を受けてきた土壌であり、この中でも長期

間地形面が安定的に保たれた土壌では、風成塵の影響を 非常に強く受けていると考えられる。このような土壌で は、降下したCsのほとんどが土壌表層に強く固定される と考えられる。また、河川の堆積作用を受けた低地土壌 (沖積土壌)では、河川上流の地質や土壌特性の影響を強 く受けることとなる。たとえば、南東北地域では、土壌 に含まれる鉱物の種類は河川の流域ごとに特徴があり、 多くの流域で主要な粘土鉱物はスメクタイト質となって いることが報告されている(佐野ら,2010)。ただし、ス メクタイト族鉱物の内容は明らかになっていない。

福島県の土壌の特性および農地土壌中の放射性Cs 濃度分布

東電原発事故後、原子力発電所から半径20 km 圏内が 警戒区域に、原子力発電所から北西方向に約45 km にか けて空間放射線量率がとくに高い地域が計画的避難区域 に、原子力発電所から半径30 km 圏内の大部分を占める 地域が緊急時避難準備区域(2011年9月30日に解除)に それぞれ設定された。これらの区域には約19,000 haの農 地が存在しており、作物の作付けなどが一時的に制限さ れている。これら区域外においても広範囲で放射性物質 が検出されていることから(文部科学省,2011a)、福島 県を中心に広範囲の農地土壌が放射性物質に汚染された といえる。

福島県はコメの生産量が全国第4位(農林水産省, 2011a)と農業生産拠点の一つであり、わが国の食の安 心・安全・安定供給の観点からも、福島県の汚染地域の 農業を早期に復旧することが強く望まれる。汚染地域で の農業の復旧のために重要なのが、食糧生産の基盤であ る農地土壌の除染である。農林水産省は、内閣府総合科 学技術会議、文部科学省、経済産業省と連携して、汚染 農地土壌などにおける表土の削り取り、水による土壌撹 **拌・除去、反転耕による汚染土壌の埋め込み、および高吸** 収植物による除染などの実証試験に取り組んでいる(農 林水産省,2011b)。除染に効果的である表土の削り取り や土壌撹拌・除去は多量の汚染残土を生じることから、 広範囲の低汚染地域に対して適用できるかどうかは議論 が必要である。さらに、今後の営農を考えると、肥沃な表 土を削り取ることは必要最小限に止めたいのが生産現場 の意向であろう。そのため、低汚染地域では土壌中から 作物への放射性Csの移行を可能な限り低減させる対策 を講じることが重要になると指摘されている(Smolders and Tsukada, 2011)。このように農業生産の観点からは、 土壌中の放射性Cs濃度の分布状況に応じた除染や作物

	水田			普通畑			樹園地			
土壤群	浜通り	中通り	会津	浜通り	中通り	会津	浜通り	中通り	会津	
黒ボク土	< 0.1	<0.1	<0.1	1.2	3.9	1.4	0.1	0.8	0.2	
多湿黒ボク土	0.9	4.8	4.4	< 0.1	0.6	0.4	< 0.1	0.1	0.1	
黒ボクグライ土	< 0.1	0.9	0.4	< 0.1	0.2	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	
褐色森林土	< 0.1	< 0.1	< 0.1	1.0	6.1	0.7	0.1	4.2	0.2	
灰色台地土	< 0.1	1.1	0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	0.1	< 0.1	
グライ台地土	< 0.1	0.4	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	
赤色土	< 0.1	0.2	< 0.1	< 0.1	0.2	< 0.1	< 0.1	0.1	< 0.1	
黄色土	1.7	5.8	0.8	0.7	0.6	0.1	0.2	1.0	0.1	
褐色低地土	2.1	2.0	1.2	0.7	0.9	0.3	0.1	1.5	< 0.1	
灰色低地土	11.4	21.4	15.6	1.0	2.0	0.9	0.1	1.0	0.2	
グライ土	3.2	13.4	0.9	0.5	2.3	< 0.1	< 0.1	0.5	< 0.1	
黒泥土	1.9	1.1	0.8	0.2	0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	
泥炭土	1.0	1.0	1.5	0.1	0.2	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	
小計	22.2	52.0	25.7	5.3	17.1	4.0	0.6	9.4	0.8	

表2-3 福島県の農地における土壌群別の分布面積(×1,000 ha)

への移行低減技術の適用を考える必要があり、農地土壌 中の放射性Cs濃度の分布図が基盤情報として重要であ る。土壌中での放射性Csの挙動は土壌中の粘土含量、粘 土鉱物組成、有機物含量などの影響を強く受けることか ら、作物への放射性Csの移行低減対策を適切に講じるた めには土壌の種類ごとに汚染状況を把握することが必要 である。

(1) 福島県の土壌の特性

福島県は、南北に走る阿武隈山地および奥羽山脈によ り、太平洋沿岸部の浜通り、中通り、および会津の3地 方に区分される。浜通りと中通り地方には広い低地や台 地がならび、会津地方には南北にのびる会津盆地が位置 する(経済企画庁,1967)。阿武隈山地以西の中通りおよ び会津地方にはグリーンタフ地域特有の凝灰岩類および 安山岩などが分布している。また、非グリーンタフ地域 である阿武隈山地には主に白亜紀の花崗岩類が分布し、 その東側の浜通り地方には新第三紀の砂岩や泥岩などの 堆積岩が広がる。

阿武隈山地に分布する土壌の母材は主に花崗岩であ り、褐色森林土が広く分布している。奥羽山脈を構成す る火山地(磐梯、猫魔、安達太良、鎌房、那須)および その周辺地域には、比較的新しい火山放出物を母材とし た黒ボク土が主に分布しており、そこにはアロフェンお よびイモゴライトが多量に含まれている。また、福島県 南東部および会津盆地には非アロフェン質黒ボク土が分 布しているが、福島県に分布する黒ボク土のうち40%程 度が非アロフェン質黒ボク土の特徴をもつと推定されて いる(三枝ら,1993)。

福島県では低地や台地に農地が広く分布しており、そ の面積は約15万haと全国第7位の規模である。最も農地 面積が広いのは中通りであり、次いで会津、浜通りの順 である(表2-3)。水田に特徴的な土壌群は灰色低地土 およびグライ土であり、これらは沖積低地において一般 的に見られる土壌群である。なお、水田として利用され ている灰色低地土およびグライ土のうち7割近くが粘土 を多く含む細粒土壌統群に区分されている。

これら水田土壌の粘土鉱物組成については、上流の地 質とともにその水田が位置する地形面の特徴あるいは地 形発達過程が強く影響することが知られている(三枝ら, 1976)。会津盆地やその周縁流域ではスメクタイト族鉱 物が主要粘土鉱物となっているが、これは本地域に広く 分布するグリーンタフを含む堆積岩および流紋岩の影響 を強く受けているためであろう(庄子ら,1973; 佐野ら, 2010)。会津地方に位置する佐賀瀬川流域や宮川流域の 扇状地ではゼオライト(主に斜プチロル沸石)も認めら れている(庄子ら,1973)。会津盆地の南部においては、 古生代の粘板岩・砂岩・チャートや流紋岩の影響を受け てクロライト質土壌が多く認められる(佐野ら,2010)。 猪苗代盆地では準スメクタイト質および1.4 nm中間種鉱 物質な水田土壌が分布しており、郡山盆地ではスメクタ イト含量が少なく、混合型(1.4 nm中間種鉱物およびカ オリン鉱物)が優占している(佐野ら,2010)。阿武隈川 下流に位置する福島盆地では、新期氾濫原地帯の水田土 壌ではスメクタイトに加えてクロライト、雲母、カオリ ナイトなどが含まれているが、古期氾濫原である後背湿 地ではスメクタイトが優占する(三枝ら,1975:三枝ら, 1976)。なお、本地域の水田土壌中には斜プチロル沸石 を主体としたゼオライトが含まれており、一般的に土性 の粗い新期氾濫原でその含量は高く、土性の細かい後背 湿地帯や洪積段丘では少ないことが報告されている(三 枝ら,1976)。阿武隈山地の谷津田においては、花崗岩の 影響を強く受けることから、混合型あるいは雲母が優占 する(佐野ら,2010)。太平洋沿岸の沖積地においては、 グリーンタフの影響を受けたスメクタイト質ならびに準 スメクタイト質土壌の分布域と阿武隈山地の花崗岩類の 影響を受けたスメクタイト含量の少ない混合型土壌の分 布域が河川ごとに異なる(佐野ら,2010)。

普通畑や樹園地で最も分布面積が広いのは褐色森林土 であり、次いで黒ボク土である。普通畑や樹園地とし て利用されている褐色森林土のうち7割が粘土を多く含 む細粒褐色森林土に区分されている。中通りの畑地に広 く分布する黒ボク土については、粘土含量の多寡ではな く、有機物を多く含む層位の深さで区分され、有機炭 素含量が6%を超える多腐植質な黒ボク土が3割弱、3 ~6%の範囲にある腐植質な黒ボク土が7割弱を占め、 腐植質層をもたない黒ボク土も若干分布する。浜通りの 海岸低地や猪苗代湖の近縁では湿性植物の遺体を母材と した泥炭土および黒泥土が分布しており(経済企画庁, 1967)、主に水田として利用されている。

なお、農地における土壌の分布状況については農業環 境技術研究所が公開している「土壌情報閲覧システム (http://agrimesh.dc.affrc.go.jp/soil_db/)」で確認するこ とができ、表層地質については産業技術総合研究所が公 開している「20万分の1日本シームレス地質図(http:// riodb02.ibase.aist.go.jp/db084/maps.html)」で確認するこ とが可能である。

(2) 福島県の農地土壌の放射能汚染状況

東電原発事故をうけ、農地土壌の放射性Cs汚染状況の 調査を行った結果を表2-4および図2-4に示した。本 調査は、農地の除染など今後の営農に向けた取組を進め るため、土壌の放射能汚染状況を把握することを目的と した平成23年度科学技術戦略推進費「放射性物質による 環境影響への対策基盤の確立」によるものである(農林 水産省,2011c)。本調査は福島県内の農地361箇所で行 われたもので、放射性物質のうち半減期が比較的長く、 作物への移行が長期的に懸念される¹³⁴Csと¹³⁷Csについ て、表層土壌中(0~15 cm)の乾土あたりの放射性Cs濃 度(Bq kg⁻¹)として測定したものである。

土壌中の放射性Cs濃度の平均値が最も高かったのは、 東電原発が立地する浜通りであり(5,030 Bq kg⁻¹)、次 いで中通り (1,828 Bq kg⁻¹)、会津地方 (331 Bq kg⁻¹) の順であった。また、本調査で最も放射性Cs濃度が高 かった農地は浪江町南津島に立地し、¹³⁴Csおよび¹³⁷Cs の濃度はそれぞれ13,243および14,854 Bq kg⁻¹であっ た。最小値は¹³⁴Csおよび¹³⁷Csがともに検出限界値以下 となった会津地方の2地点である。なお、2011年6月14 日時点の¹³⁴Csと¹³⁷Csの放射能比は0.85程度であり、濃 度比の空間依存性は認められなかった。¹³⁴Csと¹³⁷Cs放射 能比については佐波ら(2011)は3月25日時点での茨城 県つくば市の降下物で1.15、Tagami et al. (2011) が3月 11日時点での福島県内土壌で0.90であったと報告して いる。減衰補正をおこなうと6月14日の¹³⁴Csと¹³⁷Cs放 射能比はそれぞれ0.93(佐波ら 2011)、0.83 (Tagami et al. 2011) である。文部科学省(2011c)の別紙5から計 算された福島県内の土壌中¹³⁴Cs:¹³⁷Csの放射能比は0.83 ~1.2の範囲にある。本調査から得られた放射能比は概ね 他の調査で得られた範囲にある。

土壌中のCs濃度と空間放射線量率との間には、一定の 正の直線関係が認められている。この関係性は、耕起の 有無や黒ボク土・非黒ボク土の違いなどによる影響を受 けることが明らかとなっている。耕起をした圃場では、

表2-4 農地土壌中(0~15 cm)の放射性Cs濃度(2011年6月14日時点)測定結果(農林水産省,2011c)

	浜通り (N=115)			F	▶通り(N=18	39)	会津(N=57)		
	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	$^{134}Cs + ^{137}Cs$	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	$^{134}Cs + ^{137}Cs$	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	134Cs+137Cs
最小值	85	71	156	16	18	35	N.D.	N.D.	N.D.
最大值	13,243	14,854	28,029	3,886	4,681	8,567	885	1,030	1,915
中央值	842	1,023	1,865	758	877	1,627	102	125	224
平均值	2,314	2,716	5,030	836	992	1,828	150	181	331
標準偏差	3,102	3,581	6,679	706	828	1,533	170	197	366

単位: Bq kg⁻¹ (乾土換算)

N.D.:検出限界以下



図2-4 農地土壌中の放射性Cs濃度推計図(農林水産省(2011c)のプレスリリース資料を一部改定)

表2-5 土壌中 (0~15 cm)の放射性Cs濃度が5,000 Bq kg⁻¹を超えると推定される農地の土壌グループ別面積集計 (×1,000 ha)

	警戒区域		計画的避難区域		緊急時避難準備区域		区域外	
	田	畑	田	畑	田	畑	田	畑
非黒ボク土グループ	2.9	0.5	1.3	0.4	0.1	< 0.1	0.1	< 0.1
黒ボク土グループ	1.1	0.4	< 0.1	0.5	< 0.1	< 0.1	< 0.1	0.1
有機質土壌グループ	0.5	< 0.1	0.3	0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1

非黒ボク土グループ:褐色森林土、灰色台地土、赤色土、黄色土、褐色低地土、灰色低地土、グライ土 黒ボク土グループ:黒ボク土、多湿黒ボク土

有機質土壌グループ:黒泥土、泥炭土

汚染された最表層と非汚染の下層が混和される希釈効果 によって、空間放射線量率は土壌中の放射性Cs濃度に比 べて相対的に低くなる (Alexakhin, 1993; Vovk et al., 1993; European approach to nuclear and radiological emergency management and rehabilitation strategies, 2010)。また、 乾燥密度が低いことで特徴づけられる黒ボク土 (Nanzyo et al., 1993) が分布する圃場では、空間放射線量率は土壌 中の放射性Cs濃度に比べて相対的に高かった。さらに樹 園地では、樹体による放射性物質の捕捉がある程度あっ たためか、空間放射線量率は土壌中の放射性Cs濃度に比 べて相対的に高かった。そこで放射線量率を独立変数と した5つの直線回帰式を作成し(高田ら,未発表)、これ らの直線回帰式と文部科学省が公表している空間放射線 量率の航空機サーベイ結果(文部科学省,2011a)および 地上モニタリング結果(文部科学省,2011c)を用いて、 農地土壌の放射性Cs濃度推計図を作成した。

その結果、東電原発から北西方向にかけてとくに農地 土壌の汚染状況が深刻である地域が認められる。これら の汚染状況は緊急時迅速放射能影響予測ネットワークシ ステム (SPEEDI) などによる大気中の放射性物質の拡散 シミュレーションの結果 (内閣府, 2011) と類似の結果で あり、放射性プルームの通過経路や降雨のタイミングに よって、汚染状況に濃淡が生じたと考えられる(Morino et al. 2011)。また、農地が広く分布する中通り地方でも 土壌中の放射性Cs濃度が1,000~5,000 Bq kg⁻¹の範囲に あると推定される農地が多く、放射性Csによる汚染が広 範囲にわたっていることが示された。とくにイネの作付 制限対象区域設定の際の判断基準としている土壌中放射 性Cs濃度である 5,000 Bq kg⁻¹を超えると推定される農 地面積は、水田および畑地でそれぞれ約6,300 haおよび 約2,100 haであり、そのうち95%以上の農地は警戒区域 (東電原発から20km 圏内)および計画的避難区域に分布 している (図2-4および表2-5)。警戒区域および計画 的避難区域において、水田では非黒ボク土グループの方 が黒ボク土グループに比べて5,000 Bq kg⁻¹を超える汚 染農地の分布面積は広いが、畑地では同程度の分布面積 と推計される。これらの地域に分布している黒ボク土は 主にアロフェンを主要粘土鉱物として持つものと考えら れ (三枝ら, 1993)、放射性Csの挙動は2:1型層状ケイ 酸塩鉱物が主体の土壌とは異なることが予測される。ま た、5,000 Bq kg⁻¹を超える汚染農地面積の約10%を占め る有機質土壌グループでは、放射性Csは比較的移動しや

すい形態で土壌中に保持されている可能性があるため、 とくに放射性Csの挙動に注意を払う必要があるだろう。

農林水産省は農地の汚染状況に応じた除染技術の開発 に取り組んでおり、放射性Cs濃度を5,000 Bq kg⁻¹未満、 5,000~10,000 Bq kg⁻¹、10,000~25,000 Bq kg⁻¹、および 25,000 Bq kg⁻¹以上の4段階に分けて除染技術の適用の 考え方を示している(農林水産省,2011b)。水による土 壌撹拌・除去、表土削り取り、反転耕による除染が推奨 される 5,000~10,000 Bq kg⁻¹の汚染範囲と推定される 水田および畑地の面積は、それぞれ約1,800 haおよび約 700 haである。表土の削り取りが必要とされる10,000~ 25,000 Bq kg⁻¹の汚染範囲である水田および畑地の面積 は、それぞれ約2.200 haおよび約800 haあり、固化剤な どを用いて土壌飛散防止措置を講じたうえで5 cm以上 の厚さで表土を削り取ることが推奨される25,000 Bq kg⁻¹ 以上の水田および畑地はそれぞれ約2,300 haおよび約 200 haであると推定される。なお、5,000 Bq kg⁻¹以下の 農地については必要に応じて反転耕などにより農作物へ の移行低減対策および空間線量率低減対策を講じること が適当であろう。なお、太平洋沿岸の農地では、放射性 Cs濃度が5,000 Bq kg⁻¹を超えると推定された農地のう ち、津波の被害にあった農地は約600 haに上ると推定さ れ、これらの農地では除染対策と同時に除塩対策を講じ る必要がある。

工 土壌固相 - 液相間における Cs の分配に 関わる要因

1 はじめに

吸着とは、土壌固相-液相間において物質が不均質に 分配される現象であるが、この反応に影響を及ぼす要因 は多数ある。その中でも、農地土壌によるCsの吸着反応 に対しては、NH4⁺およびK⁺の影響がとくに大きい。こ れは、NH4⁺およびK⁺は、Cs⁺と土壌の吸着サイトおよび 固定サイトを奪い合う関係にあるためである。II章で述 べたように、土壌によるCs⁺固定反応の親和性はNH4⁺や K⁺よりも高いものの、高濃度のNH4⁺やK⁺が存在すると 一部のCs⁺が置換されて液相に放出され、植物にとって 吸収されやすい形態となる。このため、土壌中における 放射性Csの動態を理解する上では、NH4⁺およびK⁺の動 態を理解する必要がある。

加えて、NおよびKは植物の必須多量元素であり、農耕 地土壌に対してこれらの施肥が慣行的に行われている。 また、放射性Cs汚染土壌においては、植物を用いて放射 性Csを除去する手法の中で硝酸アンモニウム (NH4NO₃) を施用してCsの抽出効率を高める手法が提案されている (Lasat et al., 1997)。Kは植物による放射性Cs吸収を低 減させる効果が期待されている (Zhu and Shaw, 2000)。 しかしながら、過剰量のNやKの農地への施用は環境問 題を起こす危険性がある。

そこで、本章では NH_4^+ および K^+ の土壌中における動態を解説するとともに、土壌固相-土壌液相間におけるCsの分配に対する NH_4^+ および K^+ の影響について解説する。

2 土壌中におけるNH4⁺の動態

(1) 大気-植物-土壌-土壌微生物系におけるN循環

 NH_4^+ は、N循環において重要な化合物の一つであり、 硝酸イオン (NO_3^-)と並んで植物が利用しやすい可給態 Nである一方で、その過剰な施用はN負荷をはじめさま ざまな環境影響を引き起こす(QI3-1)。人為的なN負荷 の最大の原因は、農地へのN肥料の投入および大気から の含N化合物の沈着である。ただし、大気から沈着する 含N化合物には、家畜排せつ物およびN肥料を施肥した 農地から発生したアンモニア (NH_3)の寄与が大きい。 NH_3 の人為発生量は、化石燃料の消費などに伴い発生す るN酸化物の量よりも多い (Galloway et al., 2004)。すな わち、人為的なN負荷の最大の原因は農業活動由来のN である。なお、Nの環境動態および環境影響については Sutton et al. (2011) に最新の知見が集約されている。

N循環には様々な含N化合物が関与するが、ここで NH₃とNH₄⁺の相違について整理しておく。NH₃は常温で 気体の代表的な還元型N化合物である。NH₃は水溶性が 高く、水溶液中ではプロトン(H⁺)を取り込んでNH₄⁺ を生成しやすい。NH₃によるH⁺の取り込みおよびNH₄⁺ によるH⁺の放出は平衡しており、H⁺が豊富であるほど NH₄⁺の生成が進む。すなわち、液相のpHが低いほど液 相中でNH₄⁺が生成しやすい。逆に、液相のpHが上昇 するとNH₄⁺からのH⁺の解離が進行し、液相中で生成し たNH₃は電荷を持たないため気相へと揮散しやすくなる (林, 2011)。

農地におけるN循環を図3-2に示す。農地へのNの インプットとして重要なものは、N肥料の施肥、大気沈 着、および灌漑水である。含N化合物の大気からの沈着 量は場所によって大きく異なるものの、日本では大まか に20 kg N ha⁻¹ y⁻¹と推定されており (Hayashi and Yan, 2010)、必ずしも無視できる量ではない。

農地からのNのアウトプットとして重要なものは、

収穫物などの持ち出し、NO3⁻の地下への溶脱、大気へ のNH₃揮散、および硝化・脱窒の一連の過程を通じた分 子窒素(N₂)、一酸化窒素(NO)、および一酸化二窒素 (N₂O)の放出である。加えて、土壌粒子に結合した形で のNの移動も重要であるが、これについての詳細はV章 を参照されたい。NH₃の揮散は、投入したN肥料が無駄 となるだけでなく、揮散後には大気を通じて周辺地域に 沈着しN負荷をもたらす危険性がある。なお、火山灰を 母材とする黒ボク土の畑ではNH₃揮散はほとんど問題に ならない(Hayashi et al., 2011)。その原因として、黒ボ ク土は土壌pHが比較的低いこと、および硝化能が高い ことが効いている可能性がある。

土壌は各種の含N化合物を含有する。最も賦存量が多いのは土壌有機物としての含N化合物であるが、その多くは安定な化合物である。土壌中のN循環において重要な形態はNO₃⁻、NH₄⁺、およびアミノ酸などの低分子含



図3-1 窒素沈着の増加がもたらす影響 窒素沈着を窒素負荷に置き換えても同様である



図3-2 農地における窒素循環 赤線:人為的な過程、青線:水の動きとの関連が強い過程、淡青線:大気との交換過程

N化合物であり(Miller and Cramer, 2005)、これらの消 長には微生物が深く関与している。日本の農地土壌のN 含量はSano et al. (2004) によく整理されている。なお、 同一区画の農地内でもN含量には大きなばらつきがある (例えば Moritsuka et al., 2004)。

(2) 土壌中における NH4⁺の生成および消費

土壌に対するNH4⁺の吸着反応および固定反応は、土壌 固相-土壌液相間におけるCsの分配に影響を与える。こ のため、土壌中におけるNH4⁺の生成および消費自体も、 Csの土壌中における動態に影響を及ぼす。

土壌中におけるNH4⁺の生成には、微生物による無機化 (アンモニア化成)が深く関わっている(図3-2)。一方 で、土壌中のNH4⁺の消費には、植物による吸収、微生 物による有機化、および一部の微生物による硝化(アン モニア酸化:硝化過程の第一段階)が主として関わってい る。すなわち、土壌中においてNH4⁺は活発に代謝されて いる。

1) 無機化によるNH₄⁺の生成および有機化によるNH₄⁺の消費

土壌中の有機物は、微生物が生産する細胞外酵素に よって低分子有機物に分解された後、直接微生物に同化 されるか、あるいはさらにNH4⁺まで無機化された後、微 生物によって有機化される。含N化合物の無機化は植物 にとっても重要なNの供給過程であり、例えば、N無施 用区において水稲が吸収したNの約40%が無機化由来で あったとする報告がある (Yamamoto et al., 1994)。 無機 化によるNH4⁺の供給が微生物にとって十分な場合には、 NO3⁻や有機態Nの微生物による利用が減少する。逆に NH4⁺が少ない場合には、NH4⁺以外のN源にはたらく酵素 系の分泌が活発となる。この現象は、窒素調節 (nitrogen regulation)と呼ばれる。低分子有機物のほとんどはそ のまま同化されず、無機化まで分解が進むと仮定される ことが多いものの、有機態Nをそのまま利用すればエネ ルギー的に有利であり、かつ高エネルギーの炭素化合物 を得るという利点もあるため、低分子有機物は微生物に よって直接吸収されN栄養となっているとする報告もあ \mathcal{Z} (Geisseler et al., 2010).

100以上の研究報告をメタ解析したBooth et al. (2005) によると、無機化によって生成したNH4⁺の積算量は、微 生物バイオマスおよび土壌中のCおよびN含量と正の相 関を示す一方、C/N比とは負の相関を示した。また、有機 化速度は無機化速度に対してほぼ直線的に増加した。土 壌中の有機物の組成と含量は、土地利用や土壌型によっ て異なるため、無機化によって生成する土壌中のNH4⁺の 動態に影響を与えていると考えられる。

湛水および落水を繰り返す水田土壌では、無機化によ るNH4⁺の生成および有機化によるNH4⁺の消費の様相は 異なる。一般に、水田では湛水後に無機化が促進され、 NH4⁺の供給量が増す。湛水後は、時間の経過とともに土 壌は次第に嫌気的状態に変化していく。ただし、表層約 1 cm の厚さでは好気的状態が保たれる (Kyuma, 2004)。 Nishio (1994)の培養実験では、好気的状態での無機化速 度はほぼ一定であったものの、有機化速度は初期には無 機化速度の2~3倍大きく、その後急速に減少した。この 有機化速度の推移は、土壌のNH4⁺濃度の一次反応速度式 に従わなかった。また、好気的状態でのNの形態変化は 嫌気的状態に比べて10~100倍速かった。このように、 好気層は湛水した水田土壌のN循環にとって重要な部位 であると言える。また、水田土壌が嫌気的状態になると 鉄の還元が起こる (Fe³⁺ + e⁻ → Fe²⁺)。この反応が無機 化によるNH4⁺の生成に与える影響はよく分かっていな いものの、湛水土壌における無機化速度は還元可能なFe の濃度と有意な正の相関を示すという報告があることか ら、Fe²⁺の生成は有機物の酸化や無機化速度と強く関連 している可能性がある (Sahrawat, 2004)。

3 硝化によるNH4⁺の消費

硝化は、 NH_4^+ を亜硝酸 (NO_2^-) に酸化する過程 (ア ンモニア酸化) $\geq NO_2^- \geq NO_3^-$ に酸化する過程(亜硝酸 酸化)の2段階からなる。NH4⁺の動態を考慮する上で はアンモニア酸化が重要であるが、この反応にはごく限 られた微生物種のみが関与する。アンモニア酸化能を有 する微生物は、真正細菌および古細菌の双方にみられる (Hayatsu et al., 2008)。アンモニア酸化細菌は土壌や水 域だけでなく、植物の地上部にも存在している(Adhya et al., 1996)。北緯約80°のツンドラ土壌でも土壌有機 物の蓄積が多い箇所では農地と同程度のアンモニア酸化 能が認められる(Hayashi et al., 2010)。湛水した水田土 壌では嫌気化の進行に伴いアンモニア酸化が抑制される (Sahrawat, 2004)。したがって、水田土壌においてアンモ ニア酸化が盛んに起こる時期は、落水後のしばらくの期 間と非耕作期における耕起後のしばらくの期間である。 とくに、乾燥後再び湿潤する場面において硝化および脱 窒ともに活性が最大となる (Carrasco et al., 2004)。アン モニア酸化速度は無機化速度に対して対数的に増加する ことが知られている (Booth et al., 2005)。すなわち、無機 化速度の増加に対してアンモニア酸化速度は、無機化速 度が遅い範囲では直線的に増加するものの、ある程度以上 に無機化速度が速くなればその増加の割合が小さくなる。

(3) 土壌中における NH4⁺の挙動

吸着および固定反応にともなってNH4⁺の化学構造自体は変化しないことから、土壌溶液中に脱着されれば、 生物はそのNH4⁺を可給態Nとして速やかに利用可能であ る。

固定されたNH₄⁺の一部は、水稲などの作物により利用 されていると考えられる(Nieder et al., 2011)。とくに、新 しく固定されたNH₄⁺は比較的脱着されやすい (Scherer, 1993)。固定されたNH₄⁺の脱着には微生物も重要な役 割を果たしている。水田土壌においては、還元によって NH₄⁺の脱着が起りやすくなる (Xiong et al., 2010)。

実際の水田土壌においてNH4⁺の固定反応を制御する ためには、いくつかの課題がある。例えば、湛水後の無 機化の促進により放出されたNH4⁺は、2:1型層状ケイ 酸塩鉱物によって固定される場合もあれば有機化によっ て消費される場合もあり、これを制御している因子はま だよく理解されていない。2:1型層状ケイ酸塩鉱物上に 存在するCs固定サイトに対するNH4⁺の親和性はCs⁺の 1/200程度であることから(II, VII章参照)、施肥により 土壌溶液中のNH4⁺濃度を上昇させれば、固定されたCs の一部を脱着させたり、逆に土壌のCs固定容量を減少さ せたりすることができると期待される。これらの反応の 制御要因の詳細は今後の研究課題である。

3 土壌中におけるK⁺の動態および土壌のCs⁺吸着に対 するK⁺の影響

NH4⁺と異なり、K⁺は化学種としての形態変化は起こ さず、また有機酸や金属元素などとも強い錯体を形成し ないため、環境中におけるK⁺の動態はNH₄⁺より単純で ある。この点で、K⁺はCs⁺と非常によく似ていると言え る。しかし土壌中における含量は両者で大きく異なる。 土壌中におけるCs含量は0.3~20 mg kg⁻¹(中央値:4 mg kg⁻¹)と微量であるのに対し、土壌中におけるK含 量は $80\sim37,000 \text{ mg kg}^{-1}$ (中央値:14,000 mg kg⁻¹)と 圧倒的に大きい (Sparks, 2003)。これは、地殻中および 堆積物中におけるCs含量(それぞれ平均値で3および4.2 mg kg⁻¹) およびK含量(それぞれ平均値で21,000およ び20,000 mg kg⁻¹)を反映しているものと考えられる。 植物が通常通り生育するために必要なKの量は植物体乾 燥重量あたりで1%程度(10.000 mg kg⁻¹程度)と非常 に多いが (Marschner, 1986)、土壌中にはこの植物の生 育に必要な量を十分にまかなえるだけのKが存在してい

ると言える。

土壌中におけるKの主要な存在部位は、化学的風化を 受けていない一次鉱物の構成成分としてのKである。土 壌に含まれる一次鉱物の種類は、場所によって異なる が、たとえば風成塵の影響を強く受けた土壌では実母や 長石が、火山灰の影響を強く受けた土壌では火山ガラス が、それぞれの土壌における主要なKの存在部位と考え られる。火山灰の影響下で生成した土壌である黒ボク土 では、よく植物のK欠乏症状が報告されている。これは、 黒ボク土に含まれる一次鉱物(火山ガラス)がKの供給 能力に乏しいからであると考えられる(森塚, 2009)。

土壌中においてKは、液相中で溶解している形態(水 溶性K)、土壌固相が発現している負電荷に静電的に吸着 されている形態 (交換態K)、それ以外で土壌固相を構成 する鉱物の成分となっている形態(固定態K)として存 在する。ここで、交換態Kとは通常中性1 mol L⁻¹酢酸ア ンモニウム水溶液で交換可能な形態のKを意味する。一 方、植物が利用可能なKは、水溶性画分、交換態画分に加 えて、相当量の固定態画分も含まれていることが多い。 すなわち、植物は土壌鉱物を構成しているKを何らかの 形で溶解させ、体内に取り込んでいることになる。この ため、固定態画分の中味をさらに詳細に検討する手法が 検討されている。その中で、1 mol L⁻¹熱硝酸抽出法は植 物が吸収可能なKを説明する方法として比較的よく利用 されている。この方法は他の方法よりも長石由来のKを 選択的に抽出するとされている。また、テトラフェニル ホウ酸ナトリウム溶液抽出法は、粘土鉱物の層間に固定 されたKを選択的に抽出するとされている(森塚,2009)。

土壌中に存在しているKのうちどの画分のKを吸収で きるかは、植物種によって異なる。たとえば、ラッカセ イは水溶性Kおよび交換態Kを主に利用すること、イネ (陸稲)は熱硝酸では抽出できない形態のKも吸収できる こと、イネ(陸稲)、トウモロコシおよびヒマワリは黒雲 母から固定態Kを吸収できることが報告されている(杉 山・阿江,2000)。また、トウモロコシを栽培すると土壌 中の交換態Kおよび固定態Kも減少し、さらにこの栽培 跡地土壌にKを加え固定処理すると再びこの土壌の固定 態K含量が高まることから、トウモロコシによって吸収 された固定態Kの主な給源は2:1型層状ケイ酸塩鉱物の 層間に固定されているKであり、この固定サイトにおけ るKの吸着および脱着は少なくとも部分的には可逆的で あることが示されている(森塚,2009)。このように、植 物によっては非常に高いK吸収能力を持っていると考え られるが、そのメカニズムの詳細については未解明のま

まである。

Csが固定された2:1型層状ケイ酸塩鉱物の場合、植 物が鉱物の層間に固定されたKを吸収するためには、ま ずKより手前に位置するFESに吸着されたCsを除去す る必要があると考えられる。この過程でCsが土壌溶液中 に放出されやすくなる可能性は高いと考えられる。この ため、施肥などによって土壌中の交換態Kをある程度供 給しておけば、植物が粘土鉱物に固定されたKを利用す る必要性は低くなるため、植物によるCsの吸収を抑えら れる可能性がある。さらに次章で述べるように、ある条 件下では根によるKの吸収はCsの吸収と競合し、溶液中 のK濃度が高いほどCs吸収量は減少する。しかし、Cs 汚染土壌に対するKの添加は、固定されていたCsの放出 を促す効果もある。2:1型層状ケイ酸塩鉱物上に存在す るCs固定サイトに対するK⁺の親和性はCs⁺の親和性の 1/1.000程度である(II、VII章参照)。このため、植物に よるCs吸収を抑える目的で土壌にKを施す際には、植物 のK栄養状態、土壌に含まれるKの形態および含量、土 壌に含まれる粘土鉱物や一次鉱物の種類、土壌中のCsの 存在形態や含量などの面から、総合的な検討が必要であ ろう。

Ⅳ 植物のCs吸収メカニズム、植物種・ 品種間差

1 はじめに

土壌に蓄積した放射性Csは作物吸収を介することで、 我々の体内に取り込まれる。元素としてのCsはKと化学 的性質がよく似たアルカリ金属であり、作物吸収におい てはよくKと対比される。Csは植物にとって必須な元素 ではなく、吸収されたCsの植物体内における役割もわ かっていない。イタイイタイ病の原因物質であるカドミ ウム (Cd) や急性毒性の高いヒ素 (As) は、溶液中の濃 度として数µmol L⁻¹レベルで植物の生育を抑制するの に対し、Cs は約200 *µ* mol L⁻¹以下まで植物に対する毒 性がない(White and Broadley, 2000)。非放射性の¹³³Cs は、土壌溶液中において、この濃度よりも2桁低いオー ダーで存在するため、Csによる植物の生育障害を通常は 見ることはなく、Cs自体の動物に対する毒性程度も低い と予想される。それゆえ、この度の東電原発事故におい ては、放射性Cs自体の体内毒性を考える必要はなく、 放射性Csが減衰するのに伴って放出される β線もしく は y 線による内部被ばくが最も大きな問題と考えられ る。農地土壌に降下した放射性Csのほとんどは表土に蓄 積しているため、この部分を重機などで剥ぎ取ることに よって、作物のよる吸収は回避される。植物は放射性Cs と非放射性Csを区別することなく吸収し、地上部に移行 させる。それゆえ、Csをよく吸収し、地上部への移行性 の高い植物を使えば、植物による土壌浄化(ファイトレ メディエーション)が可能になる。さらに、Csを吸収し ない作物や品種を見つける、または新たに育種すること で、放射性Csの食品汚染は回避できる。しかしながら、 このような技術を開発するには、植物または作物のCs吸 収・集積システムを理解することが必要である。本章で は、このシステムに関する生理的・分子的知見をとりま とめ、植物種・品種間のデータを基に、Cs吸収能を活用 した放射性Csの低減技術の可能性を探る。

2 Cs吸収に関わる生理メカニズム

根によるCs吸収はKの吸収機構と類似することが多 くの生理実験などで明らかにされている(White and Broadley, 2000; Xiong et al., 2010)。K⁺は、システムIと システムIIと呼ばれる2つの機構によって根に吸収され る。これらのシステムは、酵素の反応速度と基質濃度の 関係を表す Michaelis-Menten 式 (酵素の反応速度は基質 濃度に比例するが、基質濃度が高くなると酵素の反応速 度が一定となる関係を表した式)でよく表現され、低K 濃度領域(0.2~0.5 mmol L⁻¹以下)と高K濃度領域(0.5 $mmol L^{-1}$ 以上) ではK吸収における K_m 値(最大吸収速 度 (V_{max}) が1/2の時の培地中K濃度) が著しく異なる。 例えば、トウモロコシの場合、システムIでは2 μ mol L⁻¹ であるのに対し、システムIIでは200~300 µmol L⁻¹と 100倍以上異なる。システムIはイオンの親和性や選択性 が高く、高親和性の輸送システムであるのに対し、シス テムIIは低親和性の輸送システムである。Csも同じよう に2元的なパターンによって根に取り込まれる。オオム ギの切断根へのCs曝露実験では、Michaelis-Menten式 に従った高親和性の輸送システム(Km値として8 µmol L^{-1})と培地Cs濃度が75 mmol L^{-1} でもCs吸収速度が飽 和に達しない低親和性輸送システムが見られた(Bange and Overstreet, 1960)。コムギの切断根を使った実験で は、培地のCs濃度が200 µmol L⁻¹以下で作動する2つの 高親和性システム (K_m : 1.18 μ mol L⁻¹ と 63.5 μ mol L⁻¹) と直線的な吸収を示す低親和性システムの多重の輸送機 構が示唆された (Shaw and Bell, 1989)。これらの輸送シ ステムには、後述するトランスポーターやチャンネルな どの細胞膜上に局在する輸送タンパク質が関与する。根 によるCs⁺の取り込みはK⁺やNH₄⁺などの他の陽イオン

の存在によって影響を受けることはよく知られている。 例えば、コムギ切断根を10 µmol L⁻¹のCs濃度に曝露 し、同モル濃度のK⁺を添加した場合としない場合の根 によるCs⁺取り込み速度を比較すると、K⁺添加した場合 にCs⁺取り込み速度は約1/4に低下する (Shaw and Bell, 1991)。一方、Cs⁺と同モル濃度のNH₄⁺を添加した場合 は、K⁺よりも低減効果が小さい。同モル濃度 (100 µmol L⁻¹)の1価の陽イオンによるCs吸収抑制を比較すると、 $Li^+ << Na^+ < NH_4^+ < Rb^+ << K^+$ の順で大きくなる (Bange and Overstreet, 1960)。3日間K欠乏にさせたコムギ根にCs を与えると、欠乏させない根に比べ、Csの吸収速度は6 倍以上と劇的に上昇する(Zhu and Smolders, 2000)。こ のような結果は、根の吸収部位(輸送タンパク質)にお いてK⁺とCs⁺の拮抗作用が存在することを意味する。一 方、培地へのK⁺添加による植物根のCs吸収抑制には限 界がある。様々な植物種において、培地K濃度に伴うCs の濃縮係数〔concentration factor (CF):植物体中のCs 濃度/培養液のCs濃度〕の変動を比較した結果では、ど の植物種でも250 μmol L⁻¹以上のK濃度からCFの減少 が緩やかになった (Zhu and Smolders, 2000)。これはCs 吸収におけるKの拮抗作用は限定的であることを示す。 土耕試験においても、水耕試験と同じくK肥料添加によ るCs吸収の著しい抑制効果が示されている (Smolders et al., 1996) が、K可給性の高い土壌ではK添加によるCs吸 収抑制効果は小さい(Lembrechts, 1993)。土壌へのNH₄⁺ 添加は、根のCs吸収抑制よりも土壌からCsを可溶化す る作用が大きく、植物によるCs吸収量が増大する例が 多い(Lasat et al., 1997)。Ca²⁺やMg²⁺など2価の陽イオ ン添加によるCs吸収抑制はほとんど効果がない(Bange and Overstreet, 1960; Smolders et al., 1997)。以上の知見 から、植物によるCs吸収は少なくとも低濃度領域におい てはKと同じ輸送システムを経由すると考えられ、分子 生物学的手法によって候補となるCs輸送タンパク質は 同定されつつある(以下参照)。

このように、根のCs吸収様式や吸収に及ぼす陽イオン の影響は多数研究されているが、II章に記載されている ように、降下したCsは、短期間のうちに非常に安定な形 態で土壌の粘土鉱物に固定されるため、植物は容易に吸 収できない。小島ら (1979) は人工的に¹³⁷Csを固定した バーミキュライトや雲母を調製し、それらを添加した土 壌で各作物 (イネ、ダイズ、エンドウ、サツマイモ、オオ ムギ、トウモロコシ、トマト、ホウレンソウ)を栽培し、 固定態¹³⁷Csの作物吸収をみた。その結果、与えた¹³⁷Cs 量に比べて作物による吸収割合は最大でも2.8%とかな

り低いが、明らかに作物間差が見られ、オオムギやサツ マイモなどで高く、ダイズ、ホウレンソウなどで1桁低 い値を示した。また、作物間における固定態Cs吸収の 差の原因を探るため、根から分泌される有機酸の種類に 着目し、19の有機酸による固定態Csの溶出実験を行っ た。その結果、Csを溶出させる効果が最も高い有機酸は シュウ酸であることがわかった。ホウレンソウはシュウ 酸集積植物であり、根からの分泌量も多いと考えられる が、吸収割合は他の作物に比べて低く、矛盾する結果の ように思われる。土壌に存在する難溶性リン酸の吸収機 構として、有機酸仮説の他に、根の接触置換説(根が持 つ陽イオンの吸着能力によって、接触している土壌固相 から直接養分を吸収する説) が報告されている (Ae et al., 1996)。粘土鉱物の層間に固定されたCsが根の接触反応 で溶出されるのか、あるいは根分泌有機酸によって固定 態Csが溶解されるのかなど、根圏における植物のCs吸 収メカニズムに関しては、今後の研究課題であろう。

3 Cs吸収に関わる分子メカニズム

植物は根圏のK⁺やCs⁺濃度に応じて、高親和性と低親 和性の2元的吸収システムにより、それらイオンを吸収 する。前者はトランスポーターと呼ばれる電気化学ポテ ンシャル勾配を利用しH⁺との共輸送によって細胞内に 能動的に運搬されるシステムであり、後者はチャンネル と呼ばれる細胞膜を貫通する親水性の孔の開閉によって イオンを受動的に運搬するシステムである。Kの輸送系 に関わる分子レベルの研究からCsがどの輸送体を介し て根細胞内に取り込まれるか、その一端が次第に見え始 めている。高親和性のK⁺トランスポーターであるKUP/ HAK/KTファミリーがCs吸収に関与することが紹介さ れている (White and Broadley, 2000)。シロイヌナズナ のAtKUP1を導入した酵母 (CY162) では、K⁺吸収が10 mmol L⁻¹ Cs⁺ によって部分的に抑制された(Bunzl et al., 1998)。さらに、AtKUP1とAtKUP2を発現させた大腸菌 (TK2463) は、10 mmol L⁻¹ Cs⁺によってその生育が完 全に停止した (Kim et al., 1998)。これらはCs⁺とK⁺の競 合を示す結果であるが、Cs⁺がKUPを経由して輸送され るかどうかは不明である。コムギ根のHKT1はK⁺/Na⁺の 共トランスポーターとして機能し、Cs⁺の添加はK⁺-Na⁺ 吸収を部分的に減少させる(Gassmann et al., 1996)が、 Cs⁺がこのトランスポーターを経由して輸送されるかど うかはわからない。AtHAK5は根の原形質膜に局在し、 K欠乏条件下で発現が増大する。野生株とAtHAK5の破 壊株であるhat5を300 μ mol L⁻¹ Cs⁺で処理すると、Csの

集積は破壊株で半減した。酵母にAtHAK5を発現させた 系では、培地のNH4⁺濃度の上昇と共に著しいCs吸収抑 制が認められた(Qi et al., 2008)。

AKT1 やKAT1 はシロイヌナズナから単離されたK⁺ チャンネル遺伝子であり、植物のK吸収において主要な 経路である(Hirsch et al., 1998)。AKT1 チャンネルを発 現させた酵母のK吸収はCsによって抑制された(Bertl et al., 1997)。しかしながら、シロイヌナズナのakt1 破壊株 はCs吸収と集積が野生株と同等であった(Broadley et al., 2001)。Cs⁺のイオン半径(0.169 nm)は、K⁺(0.133 nm) に比べて大きい。この事から類推すると、Cs⁺はK⁺チャ ンネルの孔を塞ぎ、K吸収を抑制することは可能だが、 イオン半径が大きいため通過はできないと思われる。

高K条件下では電位非依存性のカチオンチャンネルで ある VICC (voltage-insensitive cation channels) がCs 吸収 に関与することが報告されている (White and Broadley, 2000)。シロイヌナズナの場合、VICCsはAtCNGCと AtGLRの遺伝子ファミリーによってコードされる。20存 在するAtCNGC遺伝子を各々欠損させた株の地上部Cs濃 度を比較すると、野生型に比べてCs濃度が有意に減少す る株もあれば、変化しない、もしくは上昇する株が見ら れた(Hampton et al., 2005)。Cs 集積の異なるシロイヌナ ズナ株 Sq-1(低)と Sorbo(高)の F2 集団を用いて Cs 集積に関わる QTL 解析を行ったところ、第1染色体と第 5染色体にCs集積に関わる主要なQTLが現れた。その中 で第5染色体上にあるQTL領域にAtCNGC1が含まれて おり、そのアミノ酸配列には親株間で違い(5つのアミノ 酸で)が認められた。高Cs集積を示す10のシロイヌナズ ナ品種のうち、6品種がSorboタイプのCNGC1アリルを 持っていた(Kanter et al., 2010)。このようにCNGC1の Cs吸収に対する関与が示された。Cs吸収におけるVICCs の寄与率を、実際の土壌中のK濃度(10 μmol L⁻¹や1 mmol L^{-1}) やCs 濃度 (0.1 μ mol L^{-1} や10 μ mol L^{-1})、細 胞質内のK濃度(70 mmol L⁻¹)を仮定して理論モデルに よって解析したところ、30~90%と計算された(White and Broadley, 2000).

根に吸収されたCsはシンプラスチック経路により中 心柱付近まで運ばれ、導管を経由して地上部に移行す る。導管にCsが積み込まれる場合にも膜タンパク質を通 る必要がある。外向整流のK⁺チャンネルとしてシロイヌ ナズナからSKORが見つかっている。この遺伝子は根の 中心柱付近で強く発現し、そのノックアウト株は導管の K濃度を減少させることから、導管にK⁺を積み込むチャ ンネルとして同定された(Gaymard et al., 1998)。しか し、Cs⁺がこのK⁺運搬の導管チャンネルを経由して地上 部に輸送されるかどうかは不明である。

4 Csの体内挙動と分布

経根吸収されたCsは導管を経由して地上部に運ばれ、 各組織(子実、葉身、茎など)へと移行・蓄積する。こ こでは水稲内でのCs挙動について、津村ら(1984)、 Tsukada et al. (2002a), Tsukada et al. (2002b), Tsukada et al. (2008b)の結果を基に解説する。沖積土壌に¹³⁷Cs を添加しポットで水稲を栽培した結果、各組織における ¹³⁷Cs濃度は白米<玄米<籾殻≒葉鞘<葉身<稈≒糠の順で あった。類似の結果(白米<根≒籾殻<稲わら<糠)が圃 場で栽培した水稲の¹³³Cs濃度でも認められた。K濃度に おいても同様の傾向であった。各組織内での¹³³Cs分布 は、根(3%) <白米(7%)=籾殻(7%)<糠(10%)<稲わら (73%)であり、¹³⁷Csの分布もほぼ同じであった。K分 布は、根(2%)=白米(2%)<籾殻(3%)<糠(7%)<稲わら (86%) とCs分布と同様の傾向であった。CsとKの体内 挙動の異同性は各組織における¹³⁷Cs/Kや¹³³Cs/Kの割合 で表すことができる。その比は上位葉身<稈<籾殻<下位 葉鞘<上位葉鞘<糠<玄米<白米<下位葉身で大きくなり、 新たな葉身にKは移動しやすい一方、古い葉身にCsは蓄 積しやすい。しかし、白米のCs/K比や分布割合から、 相対的にCsはKよりも白米へ移行しやすいと思われる。 また玄米移行率(玄米中濃度/全地上部中濃度)は栽培 や施肥条件にもよるが、Csで11~23%、Kで8~11%で あり、この結果からもこれら元素間での体内挙動の違い が伺える。

経根吸収による汚染の他に、Cs降下物の葉面付着と 葉面吸収による直接的な汚染がある。実際、今回の東電 原発事故では、ホウレンソウやブロッコリーなどの葉菜 類がこれらの植物体への直接沈着由来の汚染によって出 荷停止処分となった。また、今回の事故を起こした原子 力発電所から約300 km離れた茶の生産地でも暫定規制 値(500 Bq kg⁻¹)を超過する放射性Csが検出されたこ とは記憶に新しい。大根葉にCsを含んだ水滴を与えた場 合、Csは葉面から吸収され、その約30%が塊茎に移行 する (Hasegawa et al., 2009)。果樹でも葉面から果実へ の放射性Csの移行性が認められ、リンゴでは6%、ブド ウでは4%が曝露した葉から実に移動した(Carini et al., 1999)。水稲栽培では、今回の場合、葉面吸収よりも田 面水中に浸されている葉鞘茎基部から直接吸収される懸 念もある。津村ら(1984)は¹³⁷Csと⁸⁹Srを水稲茎基部の 葉鞘に投与し、各部位への放射性物質の分布割合を調査

した。その結果、⁸⁹Srは投与した葉鞘に99%残り、他の 組織にはほとんど移行しなかったのに対し、¹³⁷Csは投与 した葉鞘に72.5%残存し、投与した部位の葉身に14%、 根に7%、上位の葉鞘・葉身に6.5%と、⁸⁹Srに比べてか なり動き易いことがわかった。葉面吸収においても¹³⁷Cs と⁹⁰Srの違いは明白であった。各生育ステージ(幼穂形 成期、穂ばらみ期、出穂開花期、結実初期)を迎えた水 稲の上位葉身に¹³⁷Csと⁹⁰Srを4日間のみ投与し、その後 登熟期まで栽培し、玄米への移行性を比較した。投与1 日当たりの玄米の放射線量(cpm g⁻¹)で比較すると、結 実初期を除いてSrに比較してCsで約500~750倍高く、 また結実初期でも250倍の差異(⁹⁰Sr<¹³⁷Cs)があった。

¹³⁷Csは穂ばらみ期~結実初期にかけて、葉面から玄米へ の移行性が高く、一方⁹⁰Srは結実初期での移行性が最も 高かった。このような報告例を参考に新茶葉で暫定基準 を超えた放射性Csが検出された理由を考察すると、古葉 に降下したCsが葉面から吸収され、新葉に積極的に移 行したためと思われた。古い葉で作られた光合成産物や 必要のなくなった養分は、積極的に新しい組織へと運ば れる。Csは必須元素ではないが、Kと類似の挙動をする こと(上述のようにすべてが一緒ではないが)を考える と、Csが新茶葉で検出されることは不思議ではない。

作物葉面に沈着した放射性物質の一部は、降雨や風な どによって葉面から除去される(川端ら,2009)。ハツカ ダイコンにCsの固体エアロゾルを吹き付け、人工降雨に よるCsの葉面残存率を見た結果では、降雨強度が増す に従いCsが葉面から除去され、最大で1/10以下になっ た。しかし、残存したCsは雨の曝露によって、葉面に吸 収される割合が高まると試算され、雨水によるCsの葉面 吸収促進も認められた。これらの結果から解釈すると、 Csが付着した葉菜類は水洗すればかなりの程度まで除 去できるが、残存したものは葉面から吸収され、除去が 容易ではないことを意味する。吸収されたCsが細胞内小 器官のどこに存在するのか、ほとんど情報はない。

5 Cs吸収・集積における植物間差、品種間差

植物は成長に合わせて、必要な無機栄養素を根から吸 収し、体内に蓄積する。土壌環境によっては、必要以上 に吸収し過剰害を示したり、逆に土壌に養分が不足する と欠乏症を示したりする。植物の養分要求性は種や品種 によって異なり、その吸収量や蓄積量には大きな植物種 間・品種間差がよく認められる。この差異は必須元素に 限らず、CdやAs等の植物有害元素、さらには今回問題 となっている放射性Csにも例外なく認められる。植物種 間におけるCs集積能における植物種間差は多数報告さ れている(Broadley and Willey, 1997; Gouthu et al., 1997; Broadley et al., 1999;山上ら, 2009;山上ら, 2010)。実験 に用いられた植物種の生育ステージ、栽培条件(水耕、 土耕、圃場)など、Cs吸収に及ぼす要因は文献間で異な るため、植物間差の順位付けは難しいが、大まかに分類 すると以下のようになる。

1) アカザ科 (Chenopodiaceae)、タデ科 (Polygonaceae)、 ヒユ科 (Amaranthaceae) の地上部Cs集積が高い。

 2) 栽培植物では、アカザ科のテンサイ (Beta valgaris)、 タデ科のソバ (Polygonum fagopyrum)、野生植物で は、ヒユ科のアマランサス属に属するアオゲイトウ (Amaranthus retroflexus) が高集積である。

3) 調査したイネ科(Poaceae)の22属の中では、カモジ グサ属(Agropyron)やキビ属(Panicum)で高く、イネ属 (Oryza)やライムギ属(Secale)で低い。しかし、イネ科 属は、栽培植物・野生植物を含め、他の科属よりもCs集積 が低い傾向にある。とくにイネ属は最も低い部類である。

作物間でのCs吸収能の比較は、主に可食部へのCs移 行係数(可食部のCs濃度/土壌のCs濃度の比)として表 される場合が多い。この移行係数は、同一作物での比較 でも、土壌の種類、栽培条件(とくに施肥)、気象条件な ど多くの環境要因によって桁違いに大きく変動すること が知られている。それゆえ、厳密に言えばこの係数を比 較するだけでは作物間におけるCs吸収能の遺伝的な変 異を評価できないが、おおよその目安にはなると思われ る。作物の放射性Cs移行係数に関する文献は多数あり、 IAEA報告書(IAEA, 2010)やJAEA(落合ら, 2009)で よくまとめられており、また農水省のホームページにも 掲載されている(http://www.maff.go.jp/j/press/syouan/ nouan/110527.html)ので、ここでは具体的数値や詳し い解説は割愛するが、これらのデータを基に、Cs移行係 数の幾何平均値を作物間で比較すると以下のようなこと が言える。

1) イネやムギなどの穀類に比べて、葉物野菜の移行係数 が高い。アブラナ科野菜のカラシナはとくに高い。アブ ラナ科(*Brassicaceae*)はCs集積が高いことが報告され ている(Broadley and Willey, 1997)。

2)根菜類の中でジャガイモ・サツマイモが高い傾向。これら作物はナス目(Solanales)に属するが、Cs吸収との関係は不明。

3) 果実の移行係数は最も低い。

4) 牧草の移行係数が高い。IAEA報告書(IAEA, 2010) では、穀類の子実への放射性Cs移行係数が0.029である



のに対し、牧草は0.25。

植物種間に比べて、同一種内でのCs吸収における品種 間差はコムギで若干報告例があるが、ほとんど情報がな い。そこで、我々は世界のイネコアコレクション(WRC) と日本の主要な栽培品種を同一圃場(農業環境技術研究 所水田圃場、灰色低地土)に栽培し、玄米中¹³³Cs濃度 の品種間差を調査した。WRCは約32,000点のイネ品種 (Oryza sativa) が持つ遺伝背景を代表的な69品種でほぼ カバーした集団であり、インディカ、ジャポニカ、熱帯 ジャポニカから構成される。栽培は2009年に実施し、6 月下旬の中干し以外は基本的に湛水処理とした。施肥は 茨城県の慣行に従い、元肥として50 kg-N ha⁻¹, 80 kg- P_2O_5 ha⁻¹, 80 kg-K₂O ha⁻¹とし、穂肥として 20 kg-N ha⁻¹ とした。WRCの中で9品種のみ、つくば市では登熟に 達しなかったので、これらのイネ品種は調査から除外し た。収穫した玄米は硝酸による熱分解後、ICP-MS(パー キンエルマー、ELAN DRC-e) で¹³³Csを分析した。玄米 中¹³³Cs濃度の平均(2連)を図4-1に示す。WRC内で は0.018~0.158 mg kg⁻¹の範囲にあり、最大9倍の差が 認められた。WRC01は日本晴であり、WRC内では2番目 に低い値であった。概してインディカ米が高い傾向にあ り、とくにWRC39 (Badari Dhan) やWRC57 (密陽23号) が最も¹³³Cs濃度が高い品種であった。一方、WRC内に ある日本晴同様、主要な日本品種の玄米中¹³³Cs濃度はど れも低い値 (0.0092~0.0201 mg kg⁻¹) を示した。玄米中 のCsとK濃度の関係を見る(図4-2)と、全く相関がな い。¹³³Csはサブppbレベルなのに対し、Kは%オーダーで あり、これほど濃度レベルが異なると両者を対等に比較 することは難しい。しかし、本結果と水稲におけるCs/K 濃度比の組織内差異に関する既往の報告(Tsukada et al., 2002a)から考察すると、CsとKは作物体内中で異なる挙 動を示すと言っても良い。本結果は一年のみのデータで あり、またCs吸収は土壌環境要因によっても大きく変動 することに注意が必要である。それゆえ、年次変動や他 地域での栽培を通して、イネ品種間差を再度検証する必 要はある。また、本データは土壌に比較的安定的に固定 されている¹³³Csの吸収を表すものであり、東電原発事故 由来の放射性Csのように、新たにインプットされたCs が土壌中で固定態へと移行する過程にある場合(II章参 照)での吸収を示すものではない。さらに、放射性Csは 表層5 cm以内での蓄積がほとんどのため、浅根性のイネ 品種でCs吸収が高くなる恐れがあり、そのため本結果と は異なる可能性がある。安全を見越して高く見積もった イネの移行係数(0.1)と米の暫定規制値(500 Bq kg⁻¹) を基に、作付可能地域の放射性Cs濃度の上限を5,000 Bq kg⁻¹と定めた結果、ほとんどが不検出レベルであった。 降下した放射性Csの土壌への素早い吸着と固定により、 イネが吸収可能な放射性Cs量が少なく、移行係数が0.1 を大きく下回ったことが大きな理由と考えられるが、日 本の品種は比較的Cs吸収が少ないことも理由の1つか もしれない。田面水中の含まれる放射性Csは頴花に行 きやすいことが示唆されているため(Myttenaere et al., 1969)、土壌に固定した放射性Csの脱着を抑制する、さ らに栽培途中に新たな放射性Csのインプットを防ぐこ とは、子実への移行性を抑制する上で重要である。Cs吸 収における品種間差を明らかにする上で、玄米に到達す るまでのプロセスはさらに研究する必要がある。

精玄米の安全性も含め、稲わらはとくに注意が必要と



図4-2 同一水田内で栽培した水稲70品種の玄米中におけるCs濃度とK濃度の関係 2009年、農業環境技術研究所内圃場での栽培(石川ら、未発表)

思われる。地上部に集積したCsの70~80%は稲わらに 存在し、移行係数は子実比べ1桁高い(IAEA, 2010)。コ ンバインなどの機械収穫では稲わらは土壌に還元され、 微生物分解で再溶解し、再びイネに吸収されうる。さら に飼料用イネは高バイオマス用に育種されているため、 インディカ品種の遺伝子を持つものが多い。本結果にあ るようにインディカ品種はCsを吸収しやすい傾向にあ ることから、飼料用イネはなおさら注意が必要である。

V 土壌-地下水-流域における放射性Csの 輸送過程

1 はじめに

東電原発事故を受けた福島県・緊急時モニタリング検 査において、同県二本松市旧小浜町の水田で2011年9月 12日に採取した玄米(ひとめぼれ)から、500 Bg kg⁻¹と いう高濃度の放射性Csが検出された。この水田は、周囲 を森林に囲まれた棚田地域にある。土壌は中粗粒質であ り、砂を多く含む。高い放射性Cs濃度の原因としては、 放射性Csが吸着されにくい砂が比較的多いため、イネの 放射性Cs吸収量が増加した可能性、有機物(落葉など)に 付着した放射性Csが水田に供給されていた可能性など が指摘されている(NHK, 2011)。また、東電原発から遠 く離れた千葉県柏市根戸の空き地(市有地)では、2011 年10月21日に採取した土壌(地表面および深さ30 cm 付近)から最大で276 kBq kg⁻¹と極めて高濃度の放射性 Csが検出された。原因としては、近くの側溝が破損し、 放射性Csを含む雨水が漏出して地中に浸透したためと 考えられている(朝日新聞社, 2011a; 2011b)。

これらはいずれも、事故由来の放射性Csが環境中で比 較的容易に輸送されうること、また、輸送先の土壌や作 物の放射性Cs濃度を大幅に増加させる場合があること を明確に示している。図5-1は、集水域スケールでの放 射性Cs動態の概要を示したものである。放射性Csは、 大気からの湿性・乾性沈着を通じて集水域内の植生や土 壌に供給される。土壌中の放射性Csは、主として水移動 に伴い溶存態または土壌コロイド吸着態として輸送され る。この輸送過程には、植物・微生物による吸収とそれ らの遺体の分解による還元、粘土鉱物への吸着・脱着、 陸上動物・土壌動物による摂取・運搬・排泄などが関係 し、根域下へ溶脱した放射性Csは、やがて地下水面へ 到達する。集水域スケールでの面的な放射性Csの輸送に は、地下水帯を通じた溶存態・懸濁態放射性Csの輸送の ほか、地表面における水食・風食の発生と凹地などへの 堆積、河川を通じた溶存態・懸濁態放射性Csの輸送と湖 沼・低湿地などへの堆積などが関係している。このよう に、集水域内のある地点で栽培される作物の放射性Cs吸 収量を説明・予測するためには、その地点の土壌だけで なく、集水域スケールでの面的な放射性Cs輸送過程を理 解する必要がある。

今回の事故以前に、1950年代から1985年ごろまで に実施された大気圏内核実験由来の¹³⁷Cs(グローバル フォールアウト¹³⁷Cs)などの放射性核種を含む降下物 が主に北半球全体に降下した。また、チェルノブイリ原 発などの事故由来、広島と長崎に投下された原爆由来の ¹³⁷Csも環境中に残存している。これまで、環境中におけ る¹³⁷Csなどの放射性核種の輸送過程について、数多くの 研究が行われている。ここでは、これら既往の知見に基



図5-1 集水域内における放射性Cs動態の概要

づき、土壌・地下水中および流域スケールでの放射性Cs 輸送過程に及ぼす要因を概括すると共に、今後の課題な どについて述べる。

2 土壌中における¹³⁷Csの輸送

(1) 土壌中の¹³⁷Cs鉛直分布に基づく移動速度

Migration rate (移動速度) は、地表面へ¹³⁷Csなどの放 射性核種が付加されてからの経過時間内における、土壌 中での放射性核種の鉛直下方への移動速度の時間平均値 である。これまで多くの研究において、¹³⁷Cs濃度の鉛直 分布を測定した結果から、土壌中における¹³⁷Csの移動速 度が求められている。移動速度は次のように定義される (Zygmunt et al., 1998; Chibowski et al., 1999)。

$$V_{\rm av} = \frac{d_{12}}{t}$$
 (式 5-1)

ここで、 V_{av} は移動速度 (LT⁻¹)、tは経過時間(T)、 $d_{1/2}$ は土層全体に含まれる全¹³⁷Cs存在量の1/2が含ま れる地表面から鉛直下方への土層の厚さ(L)であり、 mean depth(Forsberg et al., 2000; Arapis and Karandinos, 2004)、median depth (Rosén et al., 1999)、half depth (IAEA, 2010)などとも呼ばれる。このほか、土層を幾つ かの層に分けて移動速度を計算するコンパートメントモ デルを用いる方法もある(Bunzl et al., 1995; Holgye and Maly, 2000; Chibowski and Zygmunt, 2002)。この移動速 度は、土壌中の¹³⁷Csが溶存態として輸送されるか懸濁態 として輸送されるかなどを区別して考えることなく求め ることが出来るという点で、最も簡便な¹³⁷Cs移動速度の 指標といえる。

表5-1に、これまでに報告されている¹³⁷Csの移動速

度を整理した。土壌中における¹³⁷Csの移動速度は、年々 低下する傾向が認められる。中央〜北スウェーデンで は、8カ所の土壌断面の¹³⁷Cs濃度分布調査の結果、¹³⁷Cs 移動速度は1年目で0.5〜1.0 cm y⁻¹、2年目以降は0.2 〜0.6 cm y⁻¹であった(Rosén et al., 1999)。また、有機 物含量の高い泥炭土(Rosén et al., 1999)。また、有機 物含量の高い泥炭土(Rosén et al., 1999; Chibowski and Zygmunt, 2002)と、一部の中粗粒質土壌(Forsberg et al., 2000)において、1 cm y⁻¹以上の大きな¹³⁷Cs移動速 度が見られる。放射性Csの移動速度と関係のある土壌特 性値を知ることは、放射性Csの移動速度が土壌の乾燥密度 と負の相関関係を示すこと(Rosén et al., 1999)、有機態 N含量やK濃度と正の相関関係を示すこと(Forsberg et al., 2000)などが報告されている。

(2) 溶存態¹³⁷Csの輸送過程:移流分散式の適用

土壌中に存在する¹³⁷Csのごく一部は、液相中に存在す る。しかし、実際に土壌浸透水中の¹³⁷Cs濃度を実測した 例は少ない。Tegen and Dörr (1996) は、有機質土壌中で 実際に溶存態の¹³⁷Csが輸送されている証拠を示した。ド イツのHeidelbergから15 km南に位置する森林土壌にお いて、深さ5、10、30 および50 cmに設置したパンライ シメータにより採取した浸透水(孔径 0.4μ mフィルター で濾過したもの)中の¹³⁷Cs濃度の最大値は、それぞれ、 0.33、0.08、0.13 および 0.03 Bq L⁻¹であり、深さと共に 低下した。また、¹³⁷Cs濃度は、夏季に高く冬季に低下す る傾向を示した。これらのデータは、森林土壌で¹³⁷Csが 実際に土壌液相中に存在し、明瞭な深さ別・季節別の変 化を示しながら、土壌中を輸送されていることを実証し

引用元	土壌採取し	土壌	移動速度	粘土	シルト	砂	有機物含量
	た年		(cm y^{-1})	(%)	(%)	(%)	(%)
Bunzl et al. (1995) ²⁾	1991	ポドゾル土	0.1-1.0	3-5	11-17	80-84	2.6-8.9
Zygmunt et al. $(1998)^{1)}$	1996	レシベ土	0.3	10-15	30-33	67-70	0.7 - 1.9
		シルト質壌土	0.045	8-16	30-41	58-70	0.7 - 5.1
Rosén et al. (1999) ¹⁾	1987-1994	褐色森林土	$0.60('87) \rightarrow 0.06('92) \rightarrow 0.24('94)^{3)}$	42	43	15	$12.7^{4)}$
		泥炭土	$1.00(87) \rightarrow 0.23(94)^{3}$	-	-	-	$37.3^{(4)}$
		泥炭土	$1.00(87) \rightarrow 0.17(92) \rightarrow 0.59(94)^{3}$	-	-	-	$26.7^{(4)}$
		プレーリー土	$0.60('87) \rightarrow 0.18('92)^{3)}$	6	2	92	$0.7^{4)}$
		未熟土	0.90 ('87) →0.37 ('94) ³⁾	8-12	42 - 48	44 - 47	$1.8 - 4.2^{(4)}$
		未熟土	$0.57(87) \rightarrow 0.32(94)^{3}$	5-10	56-57	34-38	$1.3 - 4.1^{4}$
		未熟土	$0.47(87) \rightarrow 0.22(94)^{3}$	5-10	36-39	54 - 58	$1.1 - 16.6^{4)}$
		ポドゾル土	0.30 ('94) ³⁾	8-18	25-29	54-63	$1.9 - 31.8^{4)}$
Chibowski et al. $(1999)^{1)}$	1997	褐色土	0.67	12-18	31-35	65-69	-
		レシベ土	0.25	1-3	20-26	74-80	-
		ポドゾル土	0.18	1-5	2-8	92-98	-
Holgye and Maly $(2000)^{2}$	1994	チェルノーゼム	0.28-1.07	14 - 20	50-58	28-30	4.5-9.7
		褐色森林土	0.34-0.81	5-7	46-48	45-49	6.3-6.9
Forsberg et al. $(2000)^{1)}$	1997	シルト質壌土	0.7 ('97) →0.6 ('98) ³⁾	11	79	8	1.5
		壤土	1.0('97)→0.8('98) ³⁾	14	29	48	2.3
		壤質砂土	$0.5(96) \rightarrow 0.4(97) \rightarrow 0.4(98)^{3}$	6	14	79	1.5
		砂壤土	$1.8(97) \rightarrow 1.1(98)^{3}$	10	20	67	3.9
Chibowski and Zygmunt (2002) ²⁾	2000	泥炭土	5.4	-	-	-	87
		チェルノーゼム	0.6	-	-	-	22
Arapis and Karandinos (2004) ¹⁾	1996	重埴土	0.102-0.295	48	27	25	3.6

表5-1 土壌中の¹³⁷Csの鉛直下方への移動速度

¹⁾式 (5-1) または同じ原理に基づき移動速度を算出

²⁾コンパートメントモデルを用いて移動速度を算出

³⁾カッコ内は土壌採取した年

⁴⁾全炭素含量(%)

ている。なお、著者らは、溶存有機炭素(DOC)濃度と の正の相関関係が高いことなどから、易分解性の有機物 と結合した¹³⁷Csが、有機物の分解に伴って浸透水中に放 出されたと推定している。東電原発事故により土壌に降 下した放射性Csに関しては、事故から36日後に福島県 で採取した水田および畑土壌を用いた¹³⁷Cs、¹³⁴Cs(なら びに¹³¹I)の溶出実験の結果、水を用いた溶出率は水田、 畑土壌ともにどの核種でも約20%であったという(野川 ら,2011)。ただし、分析に供した水は、濾過を行ってい ない上澄み液であるため、この高い溶出率は、微細な懸 濁態粒子に吸着した放射性Csを含んでいた可能性が考 えられる。

土壌中の¹³⁷Cs輸送が、主に溶存態の¹³⁷Cs輸送によっ て行われる場合、かつ、巨視的に見て水平方向に均一な 濃度分布を示す場合(いわゆる miscible displacementが 仮定できる場合)、以下に示す移流分散式(convection dispersion equation)が適用できる。この式は、水移動に よるマスフロー(移流)と液相中での濃度勾配を駆動力 とする拡散・分散によって、溶存態の¹³⁷Csが輸送される ことを仮定している。

$$\frac{\partial (\theta c)}{\partial t} + \rho \frac{\partial s}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (\theta D_{s} \frac{\partial c}{\partial z} - v_{s} c) - \lambda (\theta c + \rho s)$$

(式5-2)

ここで、zは深さ (L)、tは時間 (T)、 θ は体積含水率 (L³ L⁻³)、cは液相中¹³⁷Cs濃度 (M L⁻³)、 ρ は乾燥密度 (M L⁻³)、sは固相吸着態の¹³⁷Cs濃度 (M M⁻¹)、 D_s は¹³⁷Cs の見かけ上の分散係数 (L² T⁻¹)、 v_s は移流による¹³⁷Csの 見かけ上の移動速度 (L T⁻¹)、 λ は¹³⁷Csの崩壊定数 (T⁻¹) である。崩壊定数 λ は、 $t_{1/2}$ を¹³⁷Csの半減期 (T) とす ると、 $\lambda = (\log_e 2)/t_{1/2}$ で表される。また、 D_s と v_s は、遅 延係数Rを用いて以下のように表される。

$$D_{\rm s} = \frac{D}{R} \quad (\not \exists 5 - 3)$$

$$v_{\rm s} = \frac{v}{R}$$
 (式 5-4)

ここで、Dは非吸着性溶質の見かけ上の分散係数 (L^2 T⁻¹)、vは平均間隙水流速 (LT⁻¹) である。さらに、遅 延係数Rは以下のように表される。

$$R = 1 + \left(\frac{\rho}{\theta}\right) K_{\rm d} \quad (\not \exists \xi \, 5 - 5)$$

ここで、 K_d は¹³⁷Csの固液分配係数 ($L^3 M^{-1}$) であり、 吸着態¹³⁷Cs濃度sと液相中¹³⁷Cs濃度cの比として定義される。

パラメータ		土壌グループ	データ数	幾何平均	幾何標準偏差	最小值	最大值
$K_{\rm d}~({\rm Lkg^{-1}})$	土壤類型別	全土壤 砂質土壤	469	1.2×10^3 5.3 × 10 ²	7.0 5.8	4.3 9.6	3.8×10^5 3.5×10^4
		应员工派 谊哲十谊+ 粘哲十谊	227	3.7×10^2	36	3.0×10^{1}	3.8×10^{5}
		有機質土壤	108	2.7×10^{2}	6.8	4.3	9.5×10^4
	RIP類型別	$RIP^{(1)} < 150$	47	7.4×10^{1}	2.4	1.0×10^{1}	7.3×10^{2}
		150 < RIP < 1000	78	3.2×10^{2}	5.6	1.0×10^{1}	3.4×10^{4}
		1000 < RIP < 2500	72	2.4×10^{3}	4.1	6.2×10^{1}	9.5×10^{4}
		RIP > 2500	60	7.2×10^{3}	4.0	2.2×10^{2}	$3.8 \times 10^{\circ}$
$D_{\rm s}~({\rm cm}^2{\rm y}^{-1})$	チェルノブイリ	全土壤	31	0.22	3.1	0.02	1.9
-	原発事故由来	砂質土壌	11	0.11	2.3	0.03	0.6
		壤質土壌	4	0.20	4.6	0.02	0.8
		有機質土壌	3	0.94	1.8	0.63	1.9
		分類不明	12	0.27	2.6	0.04	0.8
	核実験由来	全土壌	12	0.22	4.3	0.04	2.9
		砂質土壤	3	0.13	5.9	0.04	1.0
		壤質土壤	2	1.06	4.1	0.39	2.9
		有機質土壌	1	1.60	-	-	-
		分類不明	6	0.12	2.2	0.05	0.4
$v_{\rm s}~({\rm cm~y}^{-1})$	チェルノブイリ	全土壤	31	0.18	3.3	0.0	0.9
	原発事故由来	砂質土壌	11	0.15	1.7	0.07	0.6
		壤質土壤	4	0.06	18	0.0	0.6
		有機質土壌	3	0.69	1.6	0.4	0.9
		分類不明	12	0.22	1.6	0.09	0.5
	核実験由来	全土壌	11	0.09	3.3	0.01	0.7
		砂質土壌	2	0.20	6.1	0.06	0.7
		壤質土壤	2	0.01	3.6	0.01	0.1
		有機質土壌	1	0.10	-	-	-
		分類不明	6	0.13	1.4	0.09	0.2

表5-2 移流分散式による土壌中の¹³⁷Cs輸送過程のモデル化に必要なパラメータ

¹⁾ RIP: Radiocaesium interception potential

IAEA (2010) より抜粋

 $K_{\rm d} = \frac{s}{c}$ (式 5-6)

IAEA (2010) の報告書では、¹³⁷Csの輸送に関わる基本的なパラメータ K_d 、 D_s 、 v_s の値が、土壌類型別、RIP (II章参照) 類型別、チェルノブイリ原発事故由来¹³⁷Csとグローバルフォールアウト¹³⁷Csの違いによって、整理されている(表5-2)。これらのパラメータは、土壌中の¹³⁷Cs輸送が移流分散式に従う(すなわち、溶存態で輸送される)ことを前提として、この式の近似解析解に基づき、バルク土壌中の¹³⁷Cs濃度鉛直分布から求めたものである。なお、これらの場合、土壌中の体積含水率 θ については定常状態が仮定され、その値は間隙率で代替されている(Kirchner et al., 2009)。

表5-2によれば、¹³⁷Csは、有機質土壌では吸着がや や弱く(低 K_d 値)、濃度分布が広く拡がり(高 D_s 値)、 輸送が速いこと(高 v_s 値)、砂では比較的吸着が強く(高 K_d 値)、広がりは狭く(低 D_s 値)、グローバルフォールア ウト由来の¹³⁷Cs輸送は速いこと(高 v_s 値)、などが分か る。これらのパラメータを用いれば、移流分散式を用い て、様々な土壌中での¹³⁷Cs輸送過程を予測することがで きる。なお、これらのパラメータは、移流分散式を適用 するための実用上の見かけ上の値であり、真の¹³⁷Csの吸 着や輸送過程を必ずしも表さない。

表5-2のパラメータ(IAEA, 2010)は、すべて海外で 得られた値に基づいており、また、これらの値の実用性 を日本の土壌で確認した例も見当たらない。そこで、表 5-2の値を用いて、津村ら(1984)が実測した屋外の自 然気象条件下での土壌カラム実験による¹³⁷Cs輸送過程 を再現できるかどうか試みる。

津村ら(1984)の実験は、東京都北区西ヶ原、旧農業 技術研究所内の放射線管理区域で行われた。直径15 cm、 高さ23 cmのガラス製カラムに砂質土壌、黒ボク土をそ れぞれ9 cmの高さに詰めた。各カラムに¹³⁷Cs溶液(¹³⁷Cs を雨水により希釈)を370 kBq加え、表面水を自然蒸発 させて¹³⁷Csの表面吸着をうながした。これらのカラムを 1966年2月~8月の7カ月間屋外に放置後、表面より0~ 2 cm、2~4 cm、4~9 cmの各層に分けて¹³⁷Cs濃度を測 定した。

移流分散式を解くための¹³⁷Cs濃度分布の初期条件と して、添加したすべての¹³⁷Csはカラム上端0.5 cmに存在 するとした(図5-2中の黒色の細線で示した)。カラム 上端は大気境界条件とし、7カ月間の実際の日降水量と





日蒸発量を与えた。この期間の日別気象データは、西ヶ 原に最も近い気象庁のアメダス観測地である「東京」の データを使用した。なお、試験期間中の西ヶ原の降水量 は1,260 mmであったが、観測地「東京」では1,271 mmで あった。土壌中の¹³⁷Csの輸送に関わるパラメータ($K_{\rm dx}$) D_s 、分散長 = D_s/v_s)は、IAEA (2010)の値を用いた。 各土壌の水移動特性パラメータは、津村ら(1984)また は駒村ら(2006)を参考に決定した。また、泥炭土に ついては、IAEA(2010)の参考値を用いて、すべての 土壌特性値について仮想的な条件で計算を行った。移流 分散式に基づく土壌中の¹³⁷Cs輸送過程の数値解は、不 飽和水分移動汎用プログラムHYDRUS-1D(Simunek et al., 2005)を用いて得た。なお、実験期間が7ヶ月間であ り、¹³⁷Csの半減期30.1年と比較すれば十分に短期間であ ることから、ここでは、第一次近似として崩壊定数 λ を ゼロとおいて計算した。

図5-2は、土壌中の¹³⁷Cs濃度の土層内分布の計算結 果であり、表5-3では、実測値と予測値の比較を行っ た。計算結果は、津村ら(1984)のカラム実験結果の傾 向をおおむね再現した。砂質土よりも黒ボク土(盛岡土 壌)において、カラム深さ2 cmよりも深い層への¹³⁷Cs 侵入割合が大きいことについては、津村ら(1984)の実 験結果からも明らかであり、本計算結果でもその傾向を 再現することができた。これは、実験で用いた黒ボク土 の¹³⁷Cs吸着力が他の土壌に比べて小さいという津村ら (1984)の実験結果と矛盾しない。また、有機質土壌で ある泥炭土では、黒ボク土よりもさらに¹³⁷Csが下方へ移

表5-3 自然気象条件下でのカラム土壌中の¹³⁷Csの 土層内分布割合

		•		
土壤名	層位 (cm)	¹³⁷ Cs	s (%)	
		実測値	推定值	
砂質土	$0 \sim 2$	95.0	99.8	
	$2 \sim 4$	4.7	0.2	
	$4 \sim 9$	0.3	0.0	
	青	100.0	100.0	
盛岡土壌	$0 \sim 2$	90	95.9	
(黒ボク土)	$2 \sim 4$	9.6	4.1	
	$4 \sim 9$	0.4	0.0	
	計	100.0	100.0	

動しやすいことが示された(図5-2)。

以上の結果より、土壌中の¹³⁷Cs輸送に関わる IAEA (2010)の移流分散式パラメータは、日本の土壌に対し ても比較的妥当な予測結果を示しており、日本の土壌に 対しても適用できる可能性が示された。しかし、さらに 異なる種類の日本の土壌への適用性については、今後さ らに検証する必要がある。

Kamei-Ishikawa et al. (2008) によれば、日本各地で 採取した112土壌(水田土壌50、畑土壌62)について、 バッチ吸着実験により添加¹³⁷CsのKa値を求めたところ、 水田土壌では270~16.640 L kg⁻¹(平均2.260 L kg⁻¹)で あり、畑土壌では360~35,730 L kg⁻¹(平均3,900 L kg⁻¹) であった。なお、黒ボク土の¹³⁷Cs固定割合の値は89.8% ~97.1%であり、他の土壌(93.3~99.4%)よりもやや低 い傾向を示した。さらに、土壌の¹³⁷Cs固定能力を示す指 標としてFA(=粘土含量×pH/全炭素含量)という値を 導入し、FA値と¹³⁷Cs固定割合が正の相関関係を示すこ とから、FA値は¹³⁷Cs輸送の予測に有効とした。すなわ ち、有機物含量が高く、粘土が少なく、pHが低いと¹³⁷Cs は輸送されやすい。この結果は、粘土鉱物(イライトおよ びモンモリロナイト)に腐植物質(腐植酸またはフルボ 酸)を加えるとK₄が最大で1オーダー小さくなり、腐植 物質と粘土表面の相互作用がCsの輸送速度や存在量に 関わっていると考えられること (Staunton et al., 2002)、 チェルノブイリ事故8年後の8土壌断面の¹³⁷Cs濃度分布 より、有機質土壌とポドゾル土壌では¹³⁷Csが他の土壌よ りも深くまで侵入していたこと (Rosén et al., 1999) と合 致する。

原発事故などに由来する¹³⁷Csは、相対的に古いグロー バルフォールアウト起源の¹³⁷Csよりも輸送されやす い。これは、土壌に降下した¹³⁷Csが、月~年単位の時間

をかけて徐々に土壌に固定化されることを示唆する(II 章参照)。これまでの数多くの研究により、Kaが時間と共 に増大すること、すなわち、¹³⁷Csが時間と共に輸送され にくくなることが示されている(Kirchner et al., 2009)。 オーストリアでは、28土壌断面の解析から、チェルノブイ リ原発事故由来の¹³⁴Csの見かけの移流速度は0.3 cm y⁻¹、 グローバルフォールアウト由来の¹³⁷Csは 0.1 cm y^{-1} で あった (Bossew and Kirchner, 2004) $_{\circ}$ Bossew et al. (2004) は、1986年のチェルノブイリ原発事故14.4年後に発電 所から約8km離れた草地の3地点での放射性Cs濃度の 鉛直分布を調べた。その結果、放射性Csの見かけの移 流速度および分散係数は、それぞれ、0.14~0.23 cm y⁻¹ および $0.035 \sim 0.074 \text{ cm}^2 \text{ v}^{-1}$ であり、 134 Csと 137 Csについ てほぼ同じ値が得られた。しかし、チェルノブイリ原発 事故の翌年の¹³⁷Cs濃度鉛直分布に基づく報告(Ivanov et al., 1997) では、移流速度はほぼ同じ(0.155 cm y⁻¹) で あったのに対して、見かけの分散係数はずっと大きな値 (0.202 cm² y⁻¹) を示した。このため、放射性Csの輸送 速度は一定ではなく、時間依存性があるとしている。放 射性Csの輸送速度が、降下後年数の短い時期には大き く、年月と共に小さくなっていく現象は、経時的に増加 するK_d値をモデルに組み込むなどにより、ある程度予測 可能と考えられる。

土壌中の¹³⁷Cs輸送は、選択流の影響を強く受ける。選 択流路の¹³⁷Cs濃度は、土壌マトリクスの¹³⁷Cs濃度より も高く、最大で3.5倍に達する(Bundt et al., 2000)。土 壌中の¹³⁷Cs鉛直分布は、しばしば正規分布に従わず、 ピーク地点よりさらに深いところで予想外に高い濃度を 示す、いわゆるテーリング現象を示す(Bunzl, 2001)。 これらには、主に土壌の下層で発達する縦方向の構造や 亀裂、根成孔隙、またミミズなどによる生物活動(Jarvis et al., 2010)が関与していると考えられる。土壌構造の 不均一性や、植物根、土壌動物の活動などを考慮する必 要がある。

植生の影響としては、根の吸水と¹³⁷Cs吸収が、土壌中 の¹³⁷Cs輸送に与える影響が考えられる。森林土壌では、 落葉と共に地上へ還元された¹³⁷Csが、リター層内から再 び速やかに根に吸収されて樹体へ取り込まれ、なかなか 土壌深くへは侵入しない(VI章参照)。今回の事故前に 測定した林地土壌(図1-1)の表層近くに¹³⁷Csが高濃度 で分布することは、これを支持する結果である。

土壌動物の影響としては、ミミズによる攪拌作用があ る。Jarvis et al. (2010) は、ミミズによる¹³⁷Csの摂取・ 運搬・排泄効果を考慮したモデル式を作成し、実測値と の検証を行った。選択流も考慮したが、選択流だけでは 十分な適合を得ることが出来ず、ミミズの影響を組み入 れることにより、より良い適合性が得られた。

微生物が¹³⁷Csの輸送に与える影響として、Fukuyama and Takenaka (2004)の非常に興味深い室内土壌培養 実験がある。森林土壌を室内で培養し、微生物活動によ り、鉱物質土層の¹³⁷Csが、その上方の落葉層へ輸送され ることを実証した。この量は、林地における¹³⁷Csの物 質循環を考える上で大きな値であり、雨滴侵食によって 鉱物質土層の土壌粒子が落葉層上へ飛散する量と合わせ ると、この林地土壌における¹³⁷Csの年崩壊量41.9 Bq m⁻² に対して、上方への¹³⁷Cs年輸送量は、15.6 Bq m⁻²もあっ たという(Fukuyama et al., 2005)。ここで、¹³⁷Csを上方 の落葉層へ輸送した微生物は、糸状菌類かもしれない。 糸状菌類は、森林生態系における¹³⁷Csなどの放射性物 質の吸収や蓄積に大きな役割を果たすと考えられている (Steiner et al., 2002)。

現場不攪乱土壌中の¹³⁷Cs輸送過程を、放射性Cs濃度 の鉛直分布に基づき解析する際、最も注意を払うべきこ とは、土壌のサンプリング方法かもしれない。特に、原 発事故直後には、土壌最表層に非常に高濃度の放射性Cs が蓄積しているため、通常の方法でオーガーや採土管を 地表面から鉛直下方へ挿入すれば、最表層の土壌粒子が ごく微量でも下層土に混じる可能性があり、これが大き な誤差を招くことになる。これをできるだけ防ぐために は、少なくとも最表層(例えば、深さ数cmまで)につ いては可能な限り薄く(例えば、厚さ5mm~1cm)剥 ぎ取るようにサンプリングし、通常の採土管によるサン プリング法は次表層以下のみに適用するなどの工夫が必 要となる。また、採取した土壌コアの壁面を薄く削り取 り、コアの内部土壌のみを放射性Cs分析に供するなどの 注意も必要であろう。このようなサンプリング方法は、 測定者による個人差が非常に大きいと考えられる。した がって、土壌のサンプリング方法については、できるだ け詳細に記載した上で、放射性Cs濃度の鉛直分布データ とそれに基づく放射性Csの輸送過程を論ずる必要があ るだろう。塩沢ら(2011)は、東電原発事故から70日後 の福島県の耕起前の水田土壌中の放射性Cs濃度の鉛直 分布より、放射性Csの平均移動距離が約1.7 cmであるこ と、この移流速度は吸着平衡状態でのK_d値から計算され る値よりも2~3桁大きいことを報告した。なお、IAEA (2010) による¹³⁷CsのK_d値(表5-2)には、同じ土壌グ ループ内でも4~5桁もの違いが見られる。東電原発事故 由来の放射性Csの土壌中における移流速度については、

今後、さらに多くの情報が集積され、比較・検討されて いくべきだろう。

(3) コロイド担体輸送による¹³⁷Cs輸送

土壌コロイド粒子に強く吸着する¹³⁷Csなどの汚染物 質が、土壌コロイド粒子と共に土壌・地下水中を輸送 される現象を、コロイド担体輸送(colloid-facilitated transport)と呼ぶ(Kretzschmar et al., 1999)。一般に、 土壌水および地下水のpHが高く、Na⁺飽和度が高く、 イオン強度が低いときに、土壌および帯水層中のコロイ ド粒子は分散しやすくなり、可動化しやすい。土壌中の コロイド粒子は、コロイド粒子が沈積・吸着される気液 界面の多い不飽和土壌条件よりも、気液界面の無い地下 水帯水層のような飽和条件下でより高濃度で輸送される (Wan and Wilson, 1994)。この傾向は、親水性コロイドよ りも、疎水性コロイドでより強まる(Wan et al., 1994)。

酸化鉄コロイドは、通常の土壌pH条件下では正の電 荷をもつため、全体として負電荷が優占する土壌中では 輸送されにくい。しかし腐植酸などが吸着することによ り、酸化鉄コロイドの正電荷が中和されると、非常に輸 送されやすくなる (Kretzschmar and Sticher, 1997)。砂 質土壌中における腐植物質で覆われた酸化鉄コロイドの 輸送実験では、流速が大きいほど輸送されるコロイド粒 子濃度は高くなった(Kretzschmar et al., 1997)。Ryan and Gschwend (1990) は、地質学的に同じ帯水層の地 下水中におけるコロイド濃度は、還元的地下水中におい て高く(60 mg L⁻¹)酸化的地下水中では低いこと(<1 mg L⁻¹)、可動性コロイド粒子は主として粘土鉱物から 成り、腐植物質が吸着することによって安定化している ことを見いだした。これら有機-粘土複合体としての安 定なコロイド粒子は、自然条件下の土壌・地下水中にお いて、¹³⁷Csなどを遠くまで輸送する担体として機能する 可能性がある。

多くの研究は、室内カラム実験やライシメータ実験で 行われている。Torok et al. (1990) は、ライシメータ実 験により、粘土コロイド粒子に¹³⁷Csが吸着し、粘土コロ イド粒子を担体として輸送されることを示した。Faure et al. (1996) は、充填砂+5%粘土 (ベントナイト) カラ ム実験を行い、NaCl濃度0.16 mol L⁻¹を閾値にして、こ れより高濃度では溶存態¹³⁷Csが輸送されること、低濃度 では¹³⁷Csのコロイド担体輸送が生じることを示した。 Saiers and Hornberger (1996) は、石英砂カラムに浸入 させる溶液のカオリナイト濃度が高いほど (0~200 mg L⁻¹)、¹³⁷Cs輸送速度が増大すること (最大で約2倍)、 また、カオリナイトが共存すれば¹³⁷Csは水移動からほと んど遅延せずに低濃度ながらも流出し始めることを示し た。Noell et al. (1998) は、粒径の異なるガラスビーズ カラム中の¹³⁷Cs輸送が、コロイドの無いときは遅延係数 3.6~8.0で小粒径ビーズカラムほど遅延が大きいこと、 コロイド共存下では遅延係数が最大約半分に減少し、小 粒径ビーズカラムほどその減少が大きいことを示した。 Tang and Weisbrod (2010) は、亀裂を有する石灰岩の カラム実験により、モンモリロナイト共存下でのCs輸送 が溶存態主体であること、腐植酸とモンモリロナイトの 共存によりCsのコロイド担体輸送がやや促進されるこ とを示した。

自然条件下の土壌・地下水中における¹³⁷Csのコロイ ド担体輸送を明示する文献は、見当たらない。そこで以 下では、水田転換畑からの表面排水・暗渠排水を通じ た¹³⁷Cs流出を直接モニタリングした事例(Eguchi et al., 2010)について、未発表データも含めて紹介する。

調査は、新潟県上越高田の水田転換畑で実施した。土 壌は細粒灰色低地土で、土性は重埴土(HC)である。 粘土鉱物はスメクタイト主体であり、イライトおよびカ オリナイトを含む(中野, 1978)。グローバルフォールア ウト由来の¹³⁷Csは深さ40 cmまでにそのほとんどが分布 し、¹³⁷Cs濃度はほぼ一定でおよそ12~14 Bq kg⁻¹の範囲 内にある(図5-3)。耕盤層では¹³⁷Cs濃度が最大値を示 した。日本の農地土壌の物理的性質データベースSolphyJ (江口ら, 2011)によれば、細粒灰色低地土の普通畑の作 土~下層土の乾燥密度の全国平均値は、1.1~1.3 Mg m⁻³ である。第一次近似として、¹³⁷Cs濃度は13 Bq kg⁻¹、乾 燥密度は1.2 Mg m⁻³を用いると、深さ40 cmまでの¹³⁷Cs 存在量は、13×1.2×10³×0.40 = 6,240 Bq m⁻²となる。

ある降雨イベント時 (2007年11月)の表面排水および 暗渠排水中の懸濁物質 (>0.025 µm)に含まれる¹³⁷Cs濃 度は、それぞれ、平均で16.7および20.3 Bq kg⁻¹であり (Eguchi et al., 2010)、概してバルク土壌よりも高かった (図5-3、5-4)。このときの表面排水および暗渠排水中 の懸濁物質濃度は、それぞれ、平均で207および177 mg L⁻¹であった。なお、これらの排水試料の濾液を20 L以上 濃縮乾固した試料からは、¹³⁷Csを検出することは出来な かった。すなわち、¹³⁷Csは溶存態ではなく、懸濁粒子に吸 着した形態で、表面排水および暗渠排水を通じて圃場系 外へ流出していた。この土壌は、亀裂、割れ目状孔隙など の粗孔隙が発達しており(図5-3)、これらの粗孔隙が、 懸濁粒子の輸送経路として機能していたと考えられる。 暗渠排水中の懸濁物質の⁴⁰K濃度と¹³⁷Cs濃度には、明



因 3⁻³ 重柏工員転換加タイス運作画場(初偽宗工越高 田)におけるバルク土壌中の¹³⁷Cs濃度鉛直分布 (Eguchi et al. (2010) より改変・加筆)

瞭な正の相関関係が見られた(図5-4)。このことは、 少なくともこの圃場では、土壌中におけるKの動態を把 握すれば、土壌中の¹³⁷Cs輸送および暗渠からの¹³⁷Cs流 出を推定できる可能性があることを示している。一方、 表面排水中の懸濁物質の⁴⁰K濃度は暗渠排水中よりも常 に高く、⁴⁰K濃度と¹³⁷Cs濃度の関係は不明瞭であった。 この理由は、現時点では不明であるが、例えば、表面水 中の懸濁物質の⁴⁰Kには施肥由来の新しい⁴⁰Kが高濃度で 含まれるが、まだ強く固定されておらず、交換態⁴⁰Kと して存在する割合が高いため、固定態が主体と考えられ る¹³⁷Csとの相関関係が見られない、一方、暗渠流出する ⁴⁰Kは固定態が主体であり、固定態が主体である¹³⁷Csと の相関が高い、といった可能性がある。

深さ50 cm以深のバルク土壌中では、¹³⁷Cs濃度は検出 限界以下であった(図5-3)。それにも関わらず、それ よりも深い65 cm付近に施工された暗渠から、バルク土 壌よりも¹³⁷Cs濃度の高い懸濁物質が流出したという事 実は、¹³⁷Cs輸送に関する多くの示唆を与える。すなわ ち、このことは、グローバルフォールアウト起源の¹³⁷Cs が土壌粒子に吸着した形で土壌中を鉛直下方へ移動し暗 渠から流出していること、バルク土壌よりも¹³⁷Cs濃度の 高い画分の土壌粒子が選択的に土壌中を輸送されやすい こと、さらに、バルク土壌の¹³⁷Cs濃度鉛直分布だけを見 ていても¹³⁷Csが鉛直下方へ移動しているかどうかを判 断することは必ずしもできないことを示している。

鈴木ら(2005)によれば、2003年7月~11月の5ヶ月 間、この圃場からの表面排水および暗渠排水を通じた懸 濁物質の流出量は、それぞれ、0.26および0.53 Mg ha⁻¹ だった。非常に大まかな試算ではあるが、仮に、これに 上記(2007年11月の降雨イベント)の懸濁物質中¹³⁷Cs 濃度を乗ずれば、表面排水および暗渠排水を通じた圃場





系外への¹³⁷Cs流出量は、5ヶ月間で、それぞれ、0.43お よび1.1 Bq m⁻²と見積もられる。その合計(1.5 Bq m⁻²) は、土壌中¹³⁷Cs存在量が6,240 Bq m⁻²のときの5ヶ月間 での¹³⁷Csの放射壊変量59 Bq m⁻²の2.5%に相当する。 Fukuyama et al. (2005)は、斜度42.9°の急峻なヒノキ林に おいて、表面流去による落葉層や土壌の流出によって年 間で0.256 Bq m⁻²の¹³⁷Csが系外へ流出したと見積もっ た。しかし、その流出量は、このときの土壌中¹³⁷Csの年 間の放射壊変量41.9 Bq m⁻²の0.6%に過ぎなかった。

以上のように、排水性改良を施した平野部の農地にお ける表面排水・暗渠排水を通じた懸濁態¹³⁷Csの流出は、 林地よりも重要である可能性がある。東電原発事故前の 農環研内の水田土壌の¹³⁷Cs鉛直分布データ(図1-1) は、¹³⁷Csが土壌コロイド粒子に吸着したまま下層へ移行 した可能性を示唆すると考えられる。上記の試算結果の ように、農地系外への¹³⁷Cs流出は、農地における¹³⁷Cs の滞留半減時間(物理的な半減期だけでなく、農地系内 における物質収支を考慮したとき、¹³⁷Cs存在量が半減す るまでに要する時間)を数%程度小さくする可能性があ る一方、排水路を通じた¹³⁷Cs流出は、その流出・集積先 である河川や湖沼、湿地、沿岸部などにおける¹³⁷Csの滞 留半減時間を、大幅に増大させる可能性がある。福島県 内の農耕地土壌では、灰色低地土やグライ土などが広い 面積を占める(表2-3)。これらの低地土壌では、表面 排水・暗渠排水によって排水性を制御している農地が多 いことから、農地系外へ流出する¹³⁷Cs量の見積もりと、 その流出過程および流出先での¹³⁷Cs集積量の把握が必 要である。

3 地下水中の¹³⁷Cs輸送

地下水中の¹³⁷Cs輸送について、現場データは乏しい。 室内での飽和カラムを用いた模擬実験によるアプローチ がほとんどである。

溶液組成の影響としては、共存陽イオン濃度が高い ほど、¹³⁷Csは輸送されやすい。海岸近くの砂質不飽和 土層~帯水層(田中ら, 1991)、Pumice tuff(Rajib et al., 2011)、海岸砂質土壌・カオリン・ケイ砂(Tanaka and Ohnuki, 1994)について、同様の結果が得られている。

Fox et al. (2010) は、砂礫帯水層を対象に、現場トレー サー試験を行い、¹³⁷Csの遅延係数を2.3~4.4と算出した。

地下水中での¹³⁷Cs輸送は、直接、酸化還元の影響は受けにくいと思われるが、これまで十分に研究されていない。還元過程では、pH上昇がCEC増大につながり、液相中の¹³⁷Cs輸送を遅延させる可能性がある一方、還元的雰囲気の地下水では一般にNH4⁺濃度が高いことから、¹³⁷Csとの交換反応が生じ、液相中¹³⁷Cs濃度が高まる可能性もある。酸化還元過程は、これら間接的な要因を通じて、¹³⁷Cs輸送に影響を及ぼす可能性がある。地下水帯や水田土壌などを対象とした研究が望まれる。

4 流域内での面的¹³⁷Cs輸送

(1) 大気から地表面への不均一な¹³⁷Cs供給

大気からの乾性・湿性降下物による¹³⁷Cs供給量は、降 水、風などの気象条件によって大きく異なるため、空間 的に不均一である。大気中の¹³⁷Csは主に降水に溶かし込 まれて地上に降下する(湿性降下物)。例えば、アイス ランドの29地点の黒ボク土の¹³⁷Cs存在量は、年間降水 量と正の相関関係を示した (Sigurgeirsson et al., 2005)。 また、カナダの南西オンタリオでは、土壌中の¹³⁷Cs存在 量は、大気圏内核実験由来¹³⁷Csの降下量が最も多かっ た時期(1959~1964年)の降水量では説明することが 出来ず、成層圏中の¹³⁷Csを一掃するような夏の強い嵐 による大雨イベントの影響が大きいと報告されている (VandenBygaart et al., 1999)。台湾北部の調査事例 (Huh and Su, 2004) においても、降水量と土壌中の¹³⁷Cs存在 量は必ずしも高い相関関係を示さなかった。著者らは、 霧の多い山間部では、雲で覆われた時に放射性核種が土 壌へ直接付加される可能性を指摘している。

植生による被覆の有無もまた、地表面への放射性Cs 供給を大きく左右すると考えられる。福島県内の針葉樹 と広葉樹を対象に行われた調査(文部科学省,2011b)で は、針葉樹では落葉層よりも樹冠部の生葉および枯葉に 高い放射性Cs濃度が検出されたのに対して、広葉樹で は、ほとんどの放射性Csが落葉層にあり、樹冠部では低 濃度であった。このことは、東電原発事故由来の放射性 Csが降下した時期(3月下旬)に、樹冠が葉で覆われて いた針葉樹と、葉の無かった広葉樹の違いを強く反映し ていると考えられる。

これらの報告は、対象地域における地形や植生の分布 状況などが、大気から地表面への放射性Cs供給量を左右 する要因の一つとなることを示している。また、さらに 大きなスケールでは、東電原発事故における放射性Cs濃 度推計図(図2-4)、チェルノブイリ事故での¹³⁷Cs濃度 分布マップが示すように、¹³⁷Cs降下量は場所により大き く異なっている。流域スケールでの¹³⁷Cs輸送を考える上 で、いわゆるホットスポットと呼ばれる高線量地帯が流 域内のどこに位置しているかという情報は、¹³⁷Csの面的 輸送を考える上で重要である。

(2) 水食と¹³⁷Cs輸送

グローバルフォールアウト由来の¹³⁷Csは、これまで、 土壌侵食の指標として広く利用されてきた(Ritchie and McHenry, 1990)。土壌中の¹³⁷Cs存在量に変化をもたら す要因は、¹³⁷Csの表面流去水・浸透水への溶け込みと 系外への流出、植物への吸収と植物体の持ち出し、¹³⁷Cs を多く含む表層土壌の水食、風食とその堆積が考えられ る。この中で、降水量の多い日本で重要なものは、水食 と堆積であろう。

土壌に降下した¹³⁷Csの一部は、表面流去水とともに、 主として懸濁態として流域下方へ輸送され、凹地、湖沼 や流れの緩やかな河床、海洋などに蓄積する。チェルノ ブイリ原発周辺地域の凹地土壌では、相対的に多くの ¹³⁷Csが蓄積しているだけでなく、¹³⁷Csは深さ100 cm以 下まで侵入していた (Bixio et al., 2002)。これを説明す るため、表面水-地下水間の相互作用を考慮した水移動 モデル化を行い、凹地土壌へ向かって表面水が選択的に 浸入する様子が示された。表面水と共に懸濁態で輸送さ れる¹³⁷Cs量の寄与が推察される。また、ロシアのベロヤ ルスク原子力発電所周辺の¹³⁷Csの分布を調べたところ、 ⁹⁰Srほど顕著ではないが、堤防部に比べて低湿地部では 濃度が高かった(Yushikov, 2000)。東電原発事故後、福 島県内で、玄米の放射性Cs濃度が高い事例が報告され たが、その水田は背後に森林集水域を有する棚田であっ た。台湾の水田においても、森林を集水域とした谷線に 位置する水田土壌において、最も高い¹³⁷Cs濃度が観測さ れた (Nabyvanets et al., 2001)。

降下した¹³⁷Csは時間がたつと徐々に固定化し、ほとん

どが土壌の表層に留まる。そのため、グローバルフォー ルアウト由来の¹³⁷Csは、流域の土壌侵食量の推定に広く 用いられてきた。この¹³⁷Csを利用したテクニックは、 1960年から用いられており、1952年から始まった各国 の核実験などによる降下¹³⁷Cs量と年次をもとに、ある地 域において土壌侵食・堆積の生じていない土壌の¹³⁷Cs存 在量を基準とし、対象地点の¹³⁷Cs存在量と比較すること によって、土壌侵食または堆積量を求める手法である。 この手法に関するレビューでは、多様な地形のもとでの 土壌の侵食量や堆積量を推定することができるユニーク な手法であるとしている (Ritchie and McHenry, 1990)。 一方、¹³⁷Csを土壌侵食の推定に用いることに対しては、 降水や風などの気象条件、植生・耕耘などの違いによる ¹³⁷Cs動態の不均一性のために、無理があるとの指摘もあ る (Parsons and Foster, 2011)。このため、 137 Csよりも 土壌中で動きにくい²¹⁰Pbも測定し、深さと²¹⁰Pb/¹³⁷Cs比 をもとに、土壌侵食深を推定することが試みられている (Wallbrink and Murray, 1996)。侵食土壌とともに流出し た¹³⁷Csは、おおよそ土壌の侵食量あるいは堆積量と同じ 傾向を示すと考えられる。しかし地形などの違いによっ て、その傾向は異なる場合がある。水路の底質土壌とそ の堤防土壌の放射性CsとPuを測定したところ、堤防土 壌は水の流れが一様でなく水みちを通って流れるために バラつくが、底質土壌では均一性が高かった(Hakonson et al., 1980).

黒海へ注ぐコル川の山間地流域と低地流域でチェルノ ブイリ事故により放出された¹³⁷Csの減少傾向を調査し たところ、山間地流域の方が3倍の時間を要しており、 流域間での¹³⁷Cs減少速度の差異が確認された(Gulin et al., 2003)。山間部の流域の方が、¹³⁷Cs減少速度が3倍も 遅いことの主な原因については、森林による¹³⁷Cs吸収 (内部循環)が大きいためかもしれない(VI章参照)。日 本の地形は諸外国に比べて急峻であり、河川長が短く、 河川の傾斜が大きいため、土壌侵食が生じやすい。表層 土壌に固定化されている¹³⁷Csが、侵食土壌とともに輸送 される割合も高い可能性が考えられる。一方で、森林面 積割合が大きく、¹³⁷Csの有機物層への比較的弱い吸着や 植物への取り込みが大きいことなどに起因する、時間遅 れの緩やかな¹³⁷Cs流出も考えられる。今後、¹³⁷Csの環境 中濃度のモニタリングの継続と流域レベルの動態予測が 求められる。

(3) 風食と¹³⁷Cs輸送

風食は、一般に乾燥地や半乾燥地で生じやすいが、湿

潤な日本でも黒ボク土や砂丘未熟土において生じる。風 食発生の主な要因は、風の強さと土壌の乾燥である。ま た、裸地では、植生被覆下よりも風食が生じやすい。

岩手県奥中山高原地区の黒ボク土畑では、土壌表面の 含水比が28%以下、日最大風速が8ms⁻¹以上となる日 に、耕地・作物に影響を与える規模の風食が生じた。干 天が3日程度連続するだけで、土壌表面の含水比は28% 以下となった。この条件が成立するのは、毎年、4月中 旬~5月上旬の時期であり、1日の中で飛土量が多いの は11~15時の間であった(有森ら,2009)。

同じく黒ボク土を主体とする北海道網走地域では、雨 が少なく、強風(>5ms⁻¹)の多い4~6月に風食が発 生した。黒ボク土の乾燥密度が小さいことも、飛土粒子 が発生しやすい原因の一つと指摘されている(高橋ら, 1990)。

このほか、黒ボク土については、土壌水分10%では風速 4~5 m s⁻¹で風食が発生し、水分30%以上では10 m s⁻¹ でも風食が生じにくいこと(野口・川田, 1987)、栃木県 内の実験では、黒ボク土表土の水分が4%程度のときは 風速3~4 m s⁻¹で飛び始め、水分16%のときは5~6 m s⁻¹ で飛び始めること(日本農業気象学会, 1954)、北関東の ローム土壌(黒ボク土)では、含水率5%のときは風速 (地表面からの高さ1 m における風速)6 m s⁻¹、含水率 10%では8 m s⁻¹、含水率20%では12 m s⁻¹で土壌粒子 の跳躍が始まるとされる(真木ら, 1991)。

土壌一般については、粘土含量が30%を超えると耐食 性になること(国分, 1963)、土壌の粒径が0.1~0.3 mm の画分が最も風食を受けやすく、粒径0.80 mm以上およ び0.03 mm以下の土壌は、風食に対して耐性であること (Chepil, 1946)などが指摘されている。

東電原発事故由来の放射性Csは、耕起前は土壌最表 層、耕起後は作土層中に高濃度で集積している(図2-1)。黒ボク土は、福島県内の中通りにとくに多く分布し ている(表2-3)。福島県内において、干天が3日程度以 上連続し、風速が5~8 m s⁻¹以上となるような気象条件 は、とくに春先に多いと考えられる。少なくともこの時 期は、裸地状態ではなく、何らかの植生によって地表面 を被覆しておくことが、¹³⁷Csの飛散防止および気管を通 じた人体内への取り込みを防ぐ上で望ましい。

5 今後の課題など

土壌中の溶質輸送過程を記述する移流分散式は、固相 から液相への分配率が非常に低い¹³⁷Csの輸送過程の説 明・予測に対しても、少なくとも見かけ上は、有効であ



図6-1 森林生態系における¹³⁷Cs循環

ることが多くの報告によって示されている。また、今回 新たに行った数値計算により、わが国の黒ボク土につい ても、IAEA(2010)の輸送パラメータを用いて、移流分 散式による¹³⁷Cs輸送過程の説明・予測がある程度できる 可能性が示された。今後、黒ボク土での検証事例を増や すと共に、¹³⁷Cs吸着の時間変化や生物影響を考慮するな ど、改良・高度化を図ることが必要である。

世界的に見ると、わが国に特徴的な黒ボク土および水 田土壌における¹³⁷Csの動態に関する知見は乏しい。これ らの土壌では、他の土壌中よりも¹³⁷Csが輸送されやす い可能性がある。一般に、集水域内の低地部に位置する 水田へは、灌漑水や土壌侵食による土砂供給を通じて、 ¹³⁷Csが集積しやすいと考えられる。水田土壌や浅層地下 水中における酸化還元電位の変化が¹³⁷Cs輸送におよぼ す影響については、検討した文献が見当たらない。今後 の研究の進展が望まれる。

流域スケールでの¹³⁷Cs動態を推定するためには、面的 な¹³⁷Cs輸送予測モデルが必要である。流域内には、¹³⁷Cs の滞留半減時間が30年未満の場所があり、このことは、 すなわち流域内・外に、¹³⁷Csの滞留半減時間が30年を超 える場所が存在することを示している。その場所の特定 や、¹³⁷Cs存在量変化の将来予測が必要である。

M 森林生態系における放射性Csの動態

1 はじめに

日本全国においても福島県においても、土地面積の約 7割は森林である。農地に比べ森林では放射性Csが高い 濃度でかつ長期間滞留するため(10~100年オーダー)、 生態学的半減期が長いと言われる(Shaw, 2007)。その 主な原因としては、年間を通して存在する樹木など多年 生植物の地上部の構造が大気から降下した放射性Csを 高効率で捕集すること、そして森林生態系内部において 養分循環が活発に行われているために植物栄養元素であ るKに似た特性を持つCsの系外への流出が遅いことが 挙げられる。森林生態系における内部循環プロセスは、 地形、気候、樹種の影響を強く受けると考えられる。地 形が急峻でモンスーン型の降雨パターンを持つ日本にお いては、土壌表層付近における物質の移動や流亡、地滑 り、あるいは溶脱などの物理・水文プロセスによって、 放射性Csは比較的速く移動する可能性もある。このた め、森林にインプットされた放射性Csは、周辺農地に流 入する可能性もある。

放射性物質による汚染が深刻な場所では、人間活動が 制限されるため、農耕地や市街地として利用されていた 場所も森林への遷移をたどり始めることになる。このた め、森林における放射性物質の動態に関する知見は、汚 染地での放射性物質の挙動やその特性を理解し、今後の 除染対策を考えるうえで、非常に重要である。本章では、 森林生態系における放射性Csの動態を解説する。

2 森林生態系への放射性Csのインプットと循環

図6-1に森林生態系における放射性Csの動態を模擬 的に示した。森林生態系における放射性Cs動態は、放射 性Csのインプット後、系内での分配が迅速に起こる初 期ステージ(0~5年に特徴的)と、その後の生物への分 配率に大きな変化がない定常状態ステージに大別できる (Calmon et al., 2009)。

放射性Csのインプットは、雨水に溶けた形態や大気中 に浮遊する微粒子に付着した形態で、植物の葉や枝に、 あるいは土壌表面に直接沈着することでおこる。一般的 な農地に比べ、植物体地上部が比較的大きな表面積を持 つ森林では放射性Csが高効率にトラップされる。初期ス テージにおける樹木の放射性Cs汚染は、主に放射性Cs の葉への沈着およびその葉面吸収によって起こり、その 後樹木内で各部位に移行する (Calmon et al., 2009)。し かし、葉面吸収および樹木体内における移行速度につい ては不明な点が多い。樹木から土壌への放射性Csの移行 は、主にリターフォール(落ち葉や枯枝)と樹冠通過雨 を通して起こると考えられる。アイルランド・ロックミ ルダウン山麓における樹齢35年のマツ (Pinus contorta) の林内では、チェルノブイリ事故の7年後から8年後に かけての2年間に土壌ヘインプットされた放射性Csは、 樹冠通過雨経由が65 Bq m⁻² y⁻¹、リターフォール経由が 45 Bq m⁻² y⁻¹、降雨由来は過大評価の可能性もあるが28 Bq $m^{-2} y^{-1}$ であった (Rafferty et al., 2000)。地表面に降 下した放射性Csは、主に鉱物質土壌の最表層およびそ の上を覆う落葉など植物リター含量の高い有機質層に貯 留される。1989年における農業環境技術研究所内の林地 土壌では、¹³⁷Cs濃度は深度10 cmで最大であり、ほぼす べてが0~20 cm内に存在していたのに対し、畑地では0 ~40 cm までの深度に希釈されつつ一様に存在していた (図1-1)。この結果は、農耕地土壌に比べて森林土壌で は放射性Csの土壌下層への移行速度は遅いことを示し ており、これは森林土壌では耕起などによる撹乱が少な いこと、また森林土壌表面上の有機質層から根による吸 収および微生物による保持が常に起こっていることに起因 していると考えられる。上述のアイルランドのマツ林下に 発達したポドゾル土壌では、事故由来¹³⁷Cs (8.3 kBq m⁻²) の8割が土壌表層の0~5 cmおよびその上を覆うリター 層(O層)におよそ同量ずつ存在していた(Rafferty et al., 2000)。O層内では、分解が進んでいないリターで構 成される上層(Oi層)で¹³⁷Cs濃度が顕著に低い。ほと んどの¹³⁷Csは、分解の進んだリターからなる中層(Oe 層)および下層(Oa層)に貯留されていた(Rafferty et al., 2000)。有機質層に存在する放射性Csは、腐植化の 進んだ有機物表面や微生物バイオマスなどに生じる陽イ オン交換サイトに交換態として存在している割合が高い が、鉱物層では固定態画分としても存在する。しかし、 ドイツのポドゾル土壌において0層から0~20 cmの鉱 物層までの¹³⁷Cs移動速度を調べたところ、いったんOa 層から鉱物質層へ¹³⁷Csが移動すると、その後の¹³⁷Csの 下方移動速度は上がることが示されており、土壌表層に おいては鉱物粒子への固定反応よりも微生物や根の活動 が¹³⁷Cs移動を規定している可能性がある(Bunzl et al., 1995)。

土壌表面に移行した放射性Csの多くは、Kと共に土壌 表層に張り巡らされた根から吸収され、再び植物体内を 移行する。このとき、とくに有機質層を生息域とするキ ノコ類が、菌糸を介して放射性Csを吸収するプロセスも 重要である(Steiner et al., 2002)。植物体にとりこまれた 放射性Csは、落葉や根の分解に伴い放出され、これらは 菌糸や根を通じて再び植物に戻る。森林土壌には、菌糸 を介して樹木と共生する菌根性キノコ、枯死した植物体 を分解し栄養源とする腐生性キノコが生息し、有機物分 解や樹木の養分吸収そして放射性Csの移動・再循環に大 きな影響を与えている(Steiner et al., 2002)。一般に、低 養分環境に適応している森林生態系では、この生物的再 循環(Biologial Recycling)が卓越しており、系外への流 出は著しく少ないため、長期にわたり放射性Csが滞留す ると考えられる。

このように、森林生態系では、その物質循環の特徴か ら、溶脱や表層土壌の侵食などによる系外への放射性Cs の移行は遅いと考えられている。しかし、これまで研究 されてきたユーラシア大陸に比べ、日本の森林の地形は 急峻であり、またモンスーン気候(湿潤な夏季に豪雨や 強風を伴う)の影響を受けるため、森林系外への放射性 Csの流出を考慮する必要があるかもしれない。比較的高 濃度の放射性Csを貯留し続ける森林生態系においては、 系外、とくに農地や河川への輸送経路・速度について、 継続的なモニタリングを行うことが重要であろう。

3 森林土壌表層における放射性Csの挙動

森林生態系内での放射性Csの中・長期的な動態は、土 壌表層およびその上層の有機質層での貯留、根からの吸 収、樹木の各部位への配分、落葉・落枝・枯死などによ る土壌への再加入という生物的再循環の影響下にある。 根による放射性Csの吸収は、RIP値(II章参照)あるい は放射性Csの土壌固相から液相への分配率に大きな影 響を受ける(Konopleva et al., 2009)。Kが施肥されない森 林土壌では交換態K濃度が低い場合があり、植物はK不 足を補うため、土壌表層への根の伸長などにより放射性 Cs吸収を促進させると考えられる(Rigol et al., 2002)。微 生物による分解反応により、リター中の有機炭素は最終 的にはCO2まで酸化されるが、とくに低温・過湿条件下 では、微生物分解の中間生成物である有機酸や腐植物質 が集積する。腐植物質の存在は、土壌表層中の粘土含量 を相対的に低下させるとともに、負電荷を発現するサイ ト(主にカルボキシ基)を提供することから、交換態Cs の割合を増加させる。同時に、腐植物質は粘土鉱物の表 面を被覆するように存在することから、粘土鉱物による Csの固定反応が妨げられる(Rigol et al., 2002)。また、 腐植物質およびリターの分解過程で、Nの無機化が同時 に起こるために土壌溶液中のNH4⁺濃度が上昇すると考 えられ、このこともCs動態および植物の根によるCs吸 収に影響を及ぼす(Konopleva et al., 2009: III章参照)。 枝打ちやリター層の持ち出しといった除染対策は腐植物 質含量を低下させるため、粘土鉱物による放射性Csの固 定反応を促進させることで植物の放射性Cs吸収抑制に 働く可能性があるが、地表面上の有機物層からのKの供 給が途切れるため、後述するように、土壌中K濃度の低 下により根によるK吸収要求が高まるとともに放射性Cs 吸収も高まる恐れもあるだろう。

森林土壌の地表面における放射性Csの動態には、物理 化学的な要因に加え、生物あるは生物間相互作用の影響 も無視できない。例えば、カタツムリ、ミミズ、あるい は両者が共存する条件下において¹³⁷Cs汚染土壌でレタ スを栽培した結果、土壌からレタスへの¹³⁷Csの移行係数 はミミズの影響を受けなかったが、ミミズの存在はカタ ツムリへの¹³⁷Cs移行係数を有意に増加させたという報 告がある(Fritsch et al., 2008)。このように、森林生態系 では動物バイオマス中に放射性Csが移行しやすく、その 循環も活発であると考えられる。

4 森林土壌から樹木などへの放射性Csの移行

放射性核種の土壌から植物への移行係数 (TF) の算出 には、重量あたりの濃度比を使うのが一般的である (I 章、IV章)。しかし、森林土壌では、地点や土壌の層位に よって土壌の乾燥密度、理化学性および放射性Cs濃度が 大きく異なるため、重量あたりで算出した移行係数にく わえ、土地面積あたりで算出した移行係数 (aggregated transfer factor, TF_{ag})が提案されている。これは以下の式 で定義され、単位は m^2 kg⁻¹となる。

 $TF_{ag} = [植物中あるいは林産物中の放射性核種濃度 (Bq kg⁻¹)]/[単位地表面積あたりに沈着した放射性核種の 総量 (Bq m⁻²)] (式6-1)$

樹種がTF_{ag}におよぼす影響を、排水性が良好な土壌タ イプに絞って調べたところ、木材への移行係数として樹 種によって70×10⁻⁶~480×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wtの値と なった (Calmon et al., 2009)。この調査では、同じ樹種で も3~5倍の変動幅があった。樹木中のKおよびCs含量 は、生理的に活発な部位で高い傾向がある。このCalmon et al. (2009) のレビューでは、西ヨーロッパの樹木の各 部位における TF_{ag}の平均値は、小枝 (6,200×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wt) で最も高く、次いで葉、樹皮、そして最も低い部 位が枝および材 (1,400×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wt) であるこ とを報告している。また、チェルノブイリおよびクイシ トゥイム事故 (1966~1972) 由来の放射性 Csの森林への 影響を評価した研究をまとめ、TF_{ag} は針葉樹の材で570 ×10⁻⁶~10,000×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wt (最小〜最大)、落葉 樹の材で470×10⁻⁶~6,200×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wt、葉お よび1年目の針葉で1,500×10⁻⁶~21,000×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wtであることを示した。さらに、TF_{ag} は森林内で生 産されるキノコで100~7,000,000×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wt、 食用小果実であるベリー類で10,000~100,000×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wt、猟獣で最大800,000×10⁻⁶ m² kg⁻¹ dry wt で あった。

東電原発事故以後の東日本においても、野外において 採取されたキノコ、果実、ミミズ、大型哺乳動物(例.イノ シシ、シカ)などから比較的高濃度の放射性Csが検出さ れているため、上記同様に高いTFagを取りうると考えら れる。わが国の森林においてグローバルフォールアウト 由来放射性Csのキノコへの移行を1992年に調査した結 果、キノコは一般的な作物より放射性Cs移行係数が1~ 3倍高いことが報告されている(Tsukada et al., 1998)。 一般に、放射性Csの濃度は、人工栽培されたキノコより も野生のキノコで、腐性よりも菌根性キノコで高く、ま た土壤環境だけでなくキノコの種類に依存することが知 られている(Ban-nai et al., 1997; Tsukada et al., 1998)。 樹木や土壌からの野生生物への放射性Csの移行は、これ らを摂取する人間の内部被ばくおよび食物連鎖を介した 放射性Csの広域拡散の要因になりうる。

5 森林生態系における放射性Csの長期動態を規定す る要因

発生源からの距離や気象条件だけでなく、立地条件、 土壌タイプ、肥沃度、樹木組成などによっても森林の放 射性Cs貯留量および保持力は大きく異なる。Shcheglov et al. (2001) は、チェルノブイリ原発から北東方向に 向かって幅30~50 km、長さ300 kmの地域(East Ural Radioactive Trace, EURT) における放射性核種の挙動に 関する総合的な研究をまとめ、樹木の放射性Cs汚染レ ベルに影響を与えた環境要因は、土壌タイプ ≫ 土壌水 分環境 > 森林群落タイプ > 樹齢 > 樹種の順であるとラン ク付けした。また、スペインにおいても、土壌タイプご とに¹³⁷Cs貯留量は異なっていることが報告されている (Conde Bueno et al., 2008)。一方、Calmon et al. (2009) は、EURT地域では、谷筋や沼地などの還元的な土壌 (hydromorphic soil)においては、好気的な土壌 (Aerobic or automorphic soil)に比べてTF_{ag}が3~60倍高いことを 報告している。また、トルコ共和国西部のイズミル地方 では、標高、年間降水量、および土壌有機物含量が高い 森林土壌ほど、¹³⁷Csが高濃度に貯留されていることが報 告されている (Karadeniz and Yaprak, 2008)。これらの 研究事例から、有機物分解が停滞する立地条件 (例:排水 性の悪い低地、多雨、寒冷)に成立する森林生態系ほど 放射性Csが滞留されやすい傾向が見られるが、その原因 は上述の通り複合的 (腐植物質による放射性Cs固定の低 下、生物による放射性Cs保持、貧栄養的な生態系におけ る低損失率の元素循環など)であると考えられる。

6 森林生態系におけるKの循環

降雨や塵などの沈着およびリターフォールを介して森 林土壌表層にインプットされた放射性Csの動態は、土壌 表層で根に吸収されるか、あるいは下方浸透し土壌鉱物 に固定されるかで大きく異なる。森林では、土壌表層-樹木間の生物的再循環が卓越していることから、一旦根 に吸収された放射性Csは高度に循環すると考えられ、こ の循環プロセスは樹木のK要求によって駆動されている と考えられる。

包括的な物質循環研究が行われてきた米国北東部の カエデ属、カバノキ属、ブナ属などが優占する温帯林 では、Kの年間要求量67 kg ha⁻¹に対し、リター分解に よってその87%が、母材の風化により11%が、落葉前の 養分の引き戻しにより4%が供給可能であると推定され た(Schlesinger, 1997)。つまり樹木は、土壌表層に根を張 り、リター分解に伴い溶出したKを吸収することで大半 のKを獲得している。温帯から寒帯までの森林においけ るKの年間吸収量は、針葉樹林であるか広葉樹林である か、あるいは天然林であるか植林地であるかなどによっ て、19~120 kg ha⁻¹の幅があり、針葉樹林に比べて広葉 樹林のほうが高い傾向にある(堤,1989)。また、リター フォールによる土壌表層へのK供給速度は、亜寒帯〜温 帯の針葉樹林で平均7.1~9.3 kg ha⁻¹ y⁻¹、温帯広葉樹林 で16.0 kg ha⁻¹ y⁻¹、照葉樹林で25.0 kg ha⁻¹ y⁻¹と報告さ れている(堤,1989)。同じ植生帯や集水域内においても、 斜面の上部か下部かなどの立地によって、樹木や土壌の 養分保持量および循環量は大きく異なる(岩坪,1996)。 日本の森林においては、多地点において森林生態系の各 コンパートメント中のKの存在量やコンパートメント間

のK移行速度について調査がなされているため、今後の 放射性Csの挙動を予測する上で貴重な情報源となる。

₩ 農地における放射性Csの除染対策

1 はじめに

農地の放射性Csがわが国の暫定規制値値(5,000 Bq kg⁻¹)を超過する地域は水田および畑地でそれぞれ約 6,300 haおよび約2,100 haに達すると推測され (II章 参照)、農地における放射性Csに対する対策方法の確 立が喫緊の課題となっている。1986年に起きたチェル ノブイリ原子力発電事故後には、農地の除染、作物の 放射性Cs吸収リスク低減のために様々な対策がとられ てきた (IAEA, 1999; IAEA, 2004; Fesenko et al., 2007, European approach to nuclear and radiological emergency management and rehabilitation strategies, 2010)。本章で は、チェルノブイリ事故後に、農地において実際に行わ れた対策をとりまとめるとともに、実用化には至らな かったものの研究が精力的に行われている対策手法であ るファイトレメディエーションおよび土壌洗浄について 解説する。また、前章までの基礎的情報をもとに、各手 法について、わが国における有効性、考え得る対策研究 に関する若干の議論をする。

チェルノブイリ事故後に農地において実施された対策 は、物理的手法、化学的手法、生物的手法に大別され る。これらの対策技術の効果は、多くの文献で低減効率 や低減係数(対策による放射性核種の減少など)として 表現されている。対象が土壌なのか作物なのか、また同 一作物でも可食部なのか否かなどによって低減係数は大 きく変化するため、対策技術の評価にあたってはこれら の条件を明確にすることが必要である。また、これらの 対策において、目標として重要視されているのは、除染 そのものに加え、経済性あるいは持続的な農業活動の継 続の可否である。例えば、牧草地として利用できなけれ ば、工業用作物(バイオ燃料の原料など)に品種を変え るなどの対策がとられている。また、施肥を検討する際 には、放射性物質の低減だけでなく収量の増加も考慮さ れている。これら対策の一覧を表7-1に示し、次節以降 で各手法の詳細を述べる。

- 2 各対策方法について
- (1) 物理的手法

物理的手法には、表土の剥ぎ取り、耕起(浅耕、深 耕)、天地返しなどがある。これらの手法は、植物の根が

	技術		概略、課題等		
物理的手法	汚染表面土壌の除去		・5 cm 程度の土壌を剥ぎ取り、排土する。畝状態となっている畑地の場合、一定深さの土壌を均 一に削り取るのは難しい。		
	耕起		・圃場の土壌を混合または下層へ移行させる。		
		単純な耕起	・放射性Csの希釈効果はあるが汚染を拡散させ、汚染土壌を増加させる可能性がある。		
		深耕	・5 cm深さまでの汚染土壌の層を削り取って、掘り起こされた耕作可能層(30-50 cm)の下に鋤きこむ。		
			 汚染された深い層の土壌が掘り返されたり、その層に根が到達したりするのを避けるため、鋤おこし後の耕作は、浅い層に限るべきである。 		
			・深く鋤くと、肥沃度を顕著に低下させるおそれがある。		
		天地返し	 ・汚染された表層の下層の土壌を入れ替えるもの。 ・通常、1回のみ(2回目を行うと、汚染土壌が再度表面に出てくることとなる)。 		
化学的手法	石灰		・土壌pHを上昇させて、放射性Csの可給性を低下させる。 ・石灰施用の効果が高いのは、酸性土壌である。		
	肥料		・放射性Csの作物吸収を競合によって減少させる。また、植物の生産の増進によって、植物体内の放射性物質の濃度を低下させるもの。		
		カリウム	 ・効果は、土壌の交換態Kの量に強く依存する。Kの量が少ないか最適な場合は、多量のK肥料の施用が非常に効果的である。Kの量が多い土壌の場合には、作物生産による消費を補う程度の適度な量のK肥料でよい。 		
		窒素	・窒素量が過剰となると、放射性Csを吸収しやすくなる。		
		有機質	・主要な効果はKの供給と考えられる。放射性Csの吸着サイト増加の寄与は少ないと考えられる。		
	吸着資材		・ゼオライト、粘土鉱物などに放射性Csを吸着させ、植物への可給性を低減させる。		
生物学的手法	品種の選択		 ・低吸収性品種の選抜 ・気候や土壌の条件に適した代替作物を探索する必要がある。 		
組み合わせ	Radical Improvement		 ・古い根を破壊し、土壌を耕し、肥料や石灰を投与し、豆や穀草を播くことによって、新しい土 壌を作るもの。 ・チェルノブイリ事故の際、牧草地等で推奨されている。 		

表7-1 チェルノブイリ原発事故後の対策として実施された技術の概略

存在する土壌表層の放射性核種濃度を低下させるもので ある。単純な手法であるが、汚染軽減のためには最も確 実であり、チェルノブイリ事故後の対策として広範囲に 適用された(IAEA, 1999)。表土の剥ぎ取り方法としては、 表層5 cmを除去する場合はスクレイパーやグレイダー が、表層10 cmを除去する場合はブルドーザーなどが用 いられた。これらの表土除去による放射性Cs低減率は80 ~100%に達する。とくにスクレイパーは何層にも分けて 土壌を排除可能であるので、最も効果的であると報告さ れている (Vovk et al., 1993)。土壌条件や用いる機械の条 件によって最適な排土厚は3~20 cmまでと大きく異な る。一部地域では、掃引と吸引、芝や牧草などのルート マットを利用した汚染土壌の除去が行われた(Maubert et al., 1993)。客土も行われ、客土厚15 cmと30 cmでは 低減効果に大きな相違は無かった。低減係数(DF:対策前 後の放射性Csの濃度比)は、排土厚5cmのスクレイパー で26、同グレイダーで10、排土厚10 cmのブルドーザー で6、耕起で7、客土15 cm および30 cm で20、人力によ る排土で6とのデータが示されている(Vovk et al., 1993)。

農林水産省は、農地の放射性Cs汚染レベルに対応した農用地除染技術をとりまとめ、0~15cmの放射性Cs

平均濃度を5,000 Bq kg⁻¹以下、5,000~10,000 Bq kg⁻¹、 10,000~25,000 Bq kg⁻¹、および25,000 Bq kg⁻¹以上の4 段階に分けて除染技術の適用の考え方を示している(農 林水産省,2011b)。その基本的な除染技術は物理的手法 である。イネの作付制限対象区域設定の際の判断基準と している放射性Cs濃度5,000 Bq kg⁻¹未満の農地につい ては、すでに耕作が行われている場合が多いが、必要に 応じて反転耕などを行うこと、5,000~10,000 Bq kg⁻¹の 農地については、地目や土壌の条件を考慮した上で、水 による土壌撹拌・除去、表土削り取り、反転耕を選択し て行うことが適当としている。0~15 cmの平均濃度が 10.000 Bq kg⁻¹を超えると、深さ30 cmの反転耕よって 5,000 Bq kg⁻¹未満にすることが困難になるため、10,000 ~25,000 Bq kg⁻¹の農地については、表土削り取りを行 うことが適当としている。25,000 Bq kg⁻¹を超える農地 については、固化剤などによる土埃飛散防止措置を講じ た上で、5 cm以上の厚さで表土の削り取りを行うことが 適当としている。IAEA(2004)では、555 kBq m⁻²を超 過する地域において表土の排除が推奨されている。この 数値を、作土10 cm、土壌の乾燥密度1として換算する と5,550 Bq kg⁻¹となることから、除染技術の適用に関す

る考え方は農林水産省とほぼ同様であると言える。

物理的手法は有効な対策方法であるが、反転耕を除 き、表土除去に伴って排土が発生するため、その処理が 大きな課題となる。反転耕は圃場内での処理が可能なた め排土が生じない利点があるが、肥沃度の低い下層土が 表層となるため、作物生産に影響を及ぼす可能性が高 い。これまでに、表層の0~5 cmの層位を剥ぎ取り、5~ 45 cmの層位を反転することなく45 cmの深さに埋め込 む新型のプラウが開発されている(Roed et al., 1996)。わ が国の主要な畑地土壌である黒ボク土は乾燥密度が小さ いため本プラウを適用しやすいと予想され、今後の検討 が期待される。

(2) 化学的手法(肥料・資材の施用)

作物体に含まれる放射性Cs含量は土壌に含まれる放 射性Csの濃度からだけでは十分に説明できない。作物の 可食部に含まれる放射性Cs含量は土壌からの放射性Cs の移行過程、すなわち土壌固相→土壌溶液→根→茎葉部 →可食部の各段階によって規定されると考えられる。換 言すれば、資材を施用することで土壌特性・肥沃度が変 化し、土壌固相から土壌溶液への放射性Csの溶出抑制 や、作物体内の吸収移行過程における拮抗作用を生じさ せれば、可食部における放射性Cs含量の低減が期待でき る。また、作物生育を促進することによって植物体内の 放射性物質の濃度低下も予期される。

表7-1に示したように、チェルノブイリ後に利用さ れた肥料・資材には、K肥料、石灰、有機質資材、吸着 資材などがある。K⁺やNH₄⁺のイオン半径は、Cs⁺に近 く、FESやSDCにおいてCs⁺と競合しながら吸着する(II 章参照)。ただし、固液分配係数(Kd)とRIPからみた Cs⁺に対するK⁺の選択性はNa⁺の50倍(Smolders et al., 1997) であるが、NH4⁺と比較すると1/5と相対的に小 さな値となる (Wauters et al., 1994)。このため、K⁺添加 による交換態Cs⁺の増加効果はNH₄⁺に比べて小さく(津 村ら,1984)、また水耕栽培での実験結果にみられるよう に、添加したK⁺は植物根や植物体内でCs⁺とは拮抗的に 作用するため (IV章)、作物の放射性Cs吸収には抑制的 に働くと考えられる。30種類の土壌を供試してライグラ スを栽培した試験によると、土壌から植物への放射性Cs の移行係数(TF)とK_dとの間は弱い負の相関であるが、 植物と土壌の溶液中における¹³⁷Cs濃度の比率(CF)は土 壌溶液中のK濃度と有意な関係が認められた。K濃度を 最高1 mmol L^{-1} まで高めた場合、CFはK濃度の上昇に 従って2オーダー以上低下した。K濃度が1 mmol L⁻¹以 上になると、CFはKの供給にほとんど影響されなくなった(Smolders et al., 1997)。以上の結果およびKの施用量 によって水稲の放射性Cs吸収量が10倍程度異なる(津 村ら, 1984)ことを鑑みると、Kの肥沃度が低~中レベ ルの土壌においてK施用は非常に重要な対策法といえる であろう。現実の圃場では、肉眼的なK欠乏症が認めら れないにもかかわらず、Kが制限因子になって生育およ び収量が低下している例がある(松坂ら, 1962)。Nに比 較してKでは、施肥に対する見かけ上の生育応答が低い ため、通常の施肥ではNに比べて軽視されがちである。 放射性Cs吸収対策としては、当面は充分な施肥につとめ るとともに、植物の栄養状態、CsやKの存在状態を含め た土壌理化学性、土壌の粘土鉱物組成、およびこれらの 条件と吸収抑制効果との関係について総合的な検討が必 要であろう(II、III、IV章参照)。

一方、アロフェンやイモゴライトを多量に含む黒ボク 土、層状ケイ酸塩鉱物を含む灰色低地土およびグライ 土に酸あるいはアルカリを加えてpHを3~8程度に調整 した際の、水溶性¹³⁷Cs、交換態¹³⁷Csおよび固定態¹³⁷Cs 含量の変化が報告されている。各画分の¹³⁷Csの総和を 100とした場合、pH3からpH8への上昇に伴い、交換態 ¹³⁷Csは約10~20%減少し、ほぼこれに相当する割合の 固定態¹³⁷Csが増加した(津村ら,1984)。石灰資材の施用 も、低減係数は2以下と低い値ではあるが、効果が認め られている(Nisbet, 1993)。

これまでに、ダイズによるCdの吸収を抑制する目的 で、うね中央部の播種位置付近に苦土石灰と化成肥料を 同時に帯状に施用する新たな同時部分施用法が開発され ている(三浦ら,2009)。作物根は局所施肥された肥料に 向かって伸長するため、同時施肥した苦土石灰によるCd 吸収抑制効果が効率的に働く利点がある。放射性Csの作 物吸収に関しても同様に、N肥料とKおよび石灰質資材 を部分同時施用することで、施用量が低減され、対策コ ストを軽減できる可能性がある。今後の検討事項の一つ と考えられる。

有機質肥料も施用効果が報告されているが(Entry et al, 2001)、有機質肥料において負電荷を発現する主要な官能 基であるカルボキシ基とCs⁺の間では特別強い相互作用 が存在するとは考えにくい(II章)。そのため、有機質資 材の施用に伴う作物の放射性Cs吸収抑制効果には、資材 からのK供給が大きなウエイトを占めると推定される。一 方、有機質肥料に含まれる有機態Nの一部は無機化して NH₄⁺となり、放射性Cs溶出を促進する可能性も考えられ る。

表7-2 植物の機能に基づくファイトレメディエーションの分類

分 類	機能	対象物質
Phytoextraction	土壌中の汚染物質を吸収、植物体に蓄積	重金属、無機塩類、有機化合物
Phytostabilization	土壌中の汚染物質を根表面に蓄積、酸化・還元による無害化、不溶化	重金属
Phytodegradation (Phytotrasformation)	植物による汚染物質の吸収・分解	有機化合物
Phytostimulation(Rhizodegradation)	根圏微生物を賦活化することにより汚染物質を分解	PCP、PAHs、TNT等
Phytofiltration(Rhizofiltration)	地下水中の汚染物質を根表面に吸着することにより除去	重金属、放射性核種
Phytovolatilization	土壌中の汚染物質を吸収、地上部に移行、大気中に拡散	水銀、セレン、VOCs
Hydraulic barriers	植物の揚水機能により、汚染地下水の拡散を制御	重金属、無機塩類、有機化合物
Vegetative caps	雨水の浸透を抑制することにより、汚染物質の移行を抑制	重金属、無機塩類、有機化合物

また、チェルノブイリ事故後には、汚染土壌に含まれ る¹³⁷Csを吸着する吸着資材を土壌に施用し、作物への ¹³⁷Csの取り込みを低下させる手法も行われた。吸着資材 施用の実施判定として、吸着資材のK_d値が土壌と比べて 100倍以上であれば効果が期待できると報告された(Zhu and Shaw, 2000)。吸着資材としては、例えば、ゼオラ イト (Valcke et al., 1997a)、ヘキサシアノ鉄酸アンモニ ウム (AFCF) (Vandenhove et al., 1996)、各種粘土鉱物 (Valcke et al., 1997b)などがある。Kを吸着させたベント ナイトの施用も検討された(Vandenhove et al., 2003)。と ころで、わが国の主要な畑地土壌である黒ボク土は他の 鉱質土壌と比較するとCsの吸着能力が弱く、植物による Csの吸収量も比較的多いことから、アロフェンおよびイ モゴライトといった黒ボク土によく見られる粘土鉱物に よるCsの固定は、四面体シートに負電荷を持った2:1 型層状ケイ酸鉱物によるものよりも強いとは考えにくい (II章)。すなわち、アロフェン質の黒ボク土における吸 着資材の施用効果は2:1型層状ケイ酸塩鉱物を主要な粘 土鉱物とする鉱質土壌に比べて高くなると予想される。 吸着資材施用による作物吸収抑制効果については、アロ フェン質の黒ボク土と対比させつつ土壌タイプ別に解析 する必要があると考えられる。

(3) ファイトレメディエーション

ファイトレメディエーションとは植物を利用した環境 修復技術の総称で、利用する機能に応じて表7-2のよ うに分類される。一般的に、植物による吸収・蓄積機能を 利用するファイトエクストラクションにより土壌を浄化 する事例が多い。植物は、重金属吸収に関して、indicator (土壌の重金属濃度に比例して蓄積)、excluder (重金属 を排除し吸収しない)、hyper accumulator (土壌よりも高 濃度に蓄積)の3タイプに分類され、とくに重金属蓄積 能の高い植物は super hyper accumulator (重金属超集積 植物)とされる。最近は、遺伝子組換えなどを利用して 新たなhyper accumulatorの作出が試みられている。ファ イトレメディエーションは植物を用いるため環境に優し く、低コストで浄化可能な利点がある。

農業環境技術研究所が中心となって行っているCd のファイトレメディエーションは以下の点を考慮に入 れて、浄化植物を選定した。①汚染土壌の大部分が 水田もしくは水田転換畑であるため、その土壌での 栽培に適していること、②栽培管理法が確立されてい ること、③播種、移植、収穫まで機械化が可能であ ること、④浄化後はすぐに水稲もしくは転換畑作物を 栽培できることを考慮にいれて浄化植物を選定した。 ヒマワリ (Helianthus annuus L.) による放射性Csのファ イトレメディエーションが期待され、福島県飯舘村や 福島県農業総合センターの圃場内で試験的に栽培が実 施された。しかし、農水省の発表によると、青刈りヒ マワリの放射性Cs濃度は新鮮重あたりで52 Bq kg⁻¹で あり、単位面積あたりの吸収量は作付け時に含まれて いた土壌の放射性Csの約1/2,000であり、ほとんど浄 化効果がなかった。福島県農業総合センターでも同様 の結果であり、ヒマワリ茎葉への移行係数は0.031、子 実への移行係数は0.0031とかなり低い値であった(福 島県農業総合センター、http://www4.pref.fukushima.jp/ nougyou-centre/kenkyuseika/h23 radiologic/111013 siryou.pdf)。ヒマワリへの過度の期待は、放射性物質の Rhizofiltrationによる濃縮が発信元になっているように 思われる。Rhizofiltrationとは、貯水池などの水環境が有 害物質によって汚染された場合、植物根の物質吸収能を 利用して水質を浄化あるいは有害物質の拡散を防止する 方法である。例えば、4週間齢のヒマワリを水耕液(¹³³Cs 200 µg L⁻¹, 750 mL) で栽培したところ、24時間後には 水耕液中のCsがほぼすべて吸収された(Dushenkov et al., 1997)。しかしこれは容量の小さな水耕液での結果であ るとともに、水中に溶解したCs⁺に対する吸収能力を示 すものであり、土壌の粘土鉱物に固定されたCsに対する

吸収能力ではない。実際、チェルノブイリの実験圃場(ウ クライナ・チェルノブイリ原発の10 km 南)において、 ヒマワリを含む数植物種を栽培し、¹³⁷Csの植物濃縮係数 (BF: Bioconcentration factor、土壌と植物体間の¹³⁷Csの 放射能濃度の比、移行係数と同じ)とポドゾル土壌から の収奪量を比較した結果(Dushenkov et al., 1999)をみ ると、ヒマワリはアオゲイトウ(Amaranthus retroflexus L.) よりもBFで1/6以下(ヒマワリ:0.24、アオゲイト ウ:1.50)、収奪量で1/10以下(ヒマワリ:319 Bg m⁻²、 アオゲイトウ:3,225 Bq m⁻²) であり、少なくとも鉱物 質土壌からのCs吸収能は高くない。ヒマワリにおける この値はイネ科のトウモロコシ (Zea may L.) 以下であ る (BF: 0.28、収奪量: 409 Bq m⁻²)。加えて、ヒマワリ の地上部/根部の¹³⁷Cs濃度比は約1/4であり、根への集 積が高い。浄化植物の収穫を考慮に入れると、地上部へ のCs移行性が高い植物でないとファイトレメディエー ションは困難である。

外来雑草であるアオゲイトウは高Cs吸収植物である が、栽培管理法を確立する必要があることと、防除が難 しく蔓延が懸念される農耕地雑草であることから浄化後 の駆除が懸念材料である。

シバやイネ科牧草類は土壌表層に根を張り、ルート マットを形成する。ルートマットは土壌粒子を巻き込ん で形成されるので、根ごと回収すれば表土の剥ぎ取りと 同じ効果が期待でき、チェルノブイリ事故後の除染プロ ジェクトでは除去率が90~100%であったとの報告があ る (Vovk et al., 1993)。飯館村では、13,600 Bg kg⁻¹の 土壌中放射性Cs濃度が327 Bq kg⁻¹(低減率97%)まで 低下した例がある。これは、表土のみを薄く剥ぎ取る方 法(低減率75%)よりも効果的であることが実証され た(http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/pdf/110914-05. pdf)。この方法は、従来のファイトレメディエーション の概念には含まれないが、土壌の飛散を防ぎながら表層 土壌を効率的に剥ぎ取るやり方で、現段階では最も適し た浄化技術と言える。しかしながら、バイオマスを含め た排土量は400 t ha⁻¹に達し、その処分が今後の課題と なる。また、作業時間は41.7時間 ha⁻¹と表土のみの剥ぎ 取り(9.17時間~11.7時間 10 a⁻¹)に比べて非効率的で あることは否めない。

一方、前述のように高親和性K⁺トランスポーターで あるKUP/HAK/KTファミリーはCs吸収に関与すること が報告されている(White and Broadley, 2000, IV章3参 照)。シロイヌナズナのHAKトランスポーターやCNGC チャンネルに相同性の高い遺伝子はイネやその他の植物 にも存在する(Hirsch et al., 1998)。従って、Csを通すK⁺ トランスポーターやK⁺チャンネルを過剰発現させた植 物を用いることでファイトレメディエーションが効率的 に行える可能性がある。この場合、植物根のCs吸収性を 高めると同時に、地上部へのCs移行に関わる遺伝子も操 作し強化することが望ましい。また、土壌に固定された 放射性Csを何らかの方法(例えばNH4⁺の施用)によっ て水溶液中に遊離させる手法を検討する必要がある。浄 化植物の処分、一般圃場における組み換え植物の栽培規 制なども、解決すべき課題である。

(4) 土壤洗浄

土壌洗浄による有害化学物質の除染プロセスは粒径別 分級と汚染物質の抽出処理の2つに大きく分けられる。 前者の粒径別分級では、水を使って汚染土壌を洗浄し ながら土壌粒子のサイズによって分級して、非汚染土 壌と汚染土壌に分け、減容する方法である (Anderson, 1993)。一般的にサイズの小さな土壌粒子ほど、相対的 な汚染物質の濃度が高く、微細粒子を分離することで汚 染除去が可能となる。装置としては、スクリュー分離機、 液体サイクロンなどが使われる (Anderson, 1993)。後者 の汚染物質の抽出処理では、汚染土壌に洗浄資材を加え 液状で混合して土壌から液相に有害化学物質を浸出除去 し、浄化システムで排水を処理する修復技術である。化 学的手法であるため除去効率が高く短期間で修復可能と いう長所をもつ。実際に抽出処理法による洗浄法を農用 地に適用する際の課題として、①低環境負荷・高効率・低 コストの洗浄資材選定、22効果的な排水処理システムの 開発、③洗浄後の良好な土壌肥沃度・作物生育の確保、 ④洗浄効果の維持、などに留意する必要がある(Makino et al., 2008).

放射性Csは、上述のように土壌のFESあるいはSDC に強く固定されているため、土壌からの抽出は困難であ り、そのため粒径別分級を主体とした浄化システムが試 みられてきた。粒径別分級を用いた土壌洗浄システムの 一例を以下に示す(Anderson et al., 1999)。その処理プロ セスは以下のように多段階から成る。①土壌粒子の粗分 級:土壌はトロンメル内で脱凝集し、汚染物質を含む小さ な土壌粒子は大きな土壌粒子から分離される。数 mm 以 上の土壌粒子は、高圧スプレーで洗浄され、清浄土とし て排出される。②数 mm 以下の土壌粒子は、1段階目の スクリュー分離機に送られ、ストークスの法則により砂 と微細土粒子に分類される。この段階で、微細粒子は、 オーバーフローして、排水だめに溜まり、砂はアトリッ ションミルに送られる。③アトリションミルでは、砂同 士を摺り合わせて、砂に付着している微細粒子が除去さ れる。除去された微細粒子は②の微細粒子と合一させ る。④微細粒子は2番目のスクリュー分離機に移され、 60メッシュの粒子サイズカットが行われる。60メッシュ 以上は清浄土として回収、60メッシュ以下の画分は、液 体サイクロンに送り出される。⑤液体サイクロンは遠心 力によって分級する装置であり、200メッシュ(75 μm) のカットと脱水を行う。⑥さらに水力分級器において、 200~325メッシュ(75~45 μm)の微細粒子のカット が行われる。水力分級器は、ストークスの法則と干渉沈 降を利用した装置である。水力分級器で集められた粒子 は、液体サイクロンから出た微細粒子と合一する。⑦最 終的に得られる放射性Csを高濃度に含む直径45 μm以 下の微細粒子は、ポリマーを使って凝集・回収する。

以上のプロセスでは微細粒子の分離が重要となる。一 般的に、農耕地は工場跡地などと比べると微細粒子であ る粘土($\phi 2 \mu m$ 以下)およびシルト画分(2~20 μm)を 多く含むため、微細粒子の分離が難しい場合が多い。と くに、黒ボク土のように腐植物質を多く含む土壌では、 腐植物質による微細粒子間の架橋が進んでおり、比較的 強い凝集体を形成しているため、粒子を完全分散させる ことが困難である。本法の適用には、凝集体の凝集構造 を壊し分散させることが重要となる。

一方、薬剤による放射性Csの抽出に関しては、水、 クエン酸、クエン酸と硝酸、硝酸アンモニウム、塩化鉄 (III)、シュウ酸カリウム水和物、硫酸アンモニウム、 シュウ酸水和物、水酸化ナトリウム、リン酸ナトリウ ム、酢酸アンモニウム、トリメチルクロロシラン、塩 化鉄、塩酸、硝酸の水溶液などが検討されている(津 村ら, 1984; Szabo et al., 1997; Kim et al., 2007)。Kim et al. (2007) は、各種抽出資材の中から0.5 mol L⁻¹シュウ 酸溶液を最適資材として選抜し、洗浄時間を最適化して 4時間とし、¹³⁷Csに対して75%以上の除去効率を得た。 この報告には用いた土壌の分類名および粘土含量の記載 は無いが、直径63 µm以下の画分が4~10%以下である ことから、Cs吸着能の低い土壌であると考えられる。 Szabo et al. (1997) は、英国および西ヨーロッパの代表的 な土壌を用いた¹³⁷Cs抽出試験において0.02 mol L⁻¹シュ ウ酸アンモニウムが¹³⁷Csを5~20%程度抽出すると報告 している。津村ら(1984)は、¹³⁷Csを添加した3種類の 土壌(バーミキュライトを含む鉱質土壌2種類およびア ロフェン質の黒ボク土)5gに対して、王水、6 mol L⁻¹ 硝酸、あるいは6 mol L⁻¹塩酸を15 mlを加え15分間煮沸

し、または1 mol L⁻¹酢酸アンモニウムあるいは6 mol L⁻¹ 塩酸を同量加えて1時間振とうし、この操作を4回繰り 返し、各回で抽出液を得た。その結果、4回の合量で熱 酸抽出は抽出率が70~90%となった一方で、酢酸アン モニウムおよび塩酸では20~60%となった。とくに鉱質 土壌では酢酸アンモニウム抽出で20%程度と低い値を 示し、FESあるいはSDCに対する¹³⁷Csの強固な固定反応 が伺える。以上のように、土壌特性、とくに粘土鉱物組 成によって放射性Csの抽出率は大きく変化する。Cs固 定能の低い黒ボク土は薬剤抽出タイプによる土壌洗浄が 比較的適用しやすいと考えられる。抽出剤を検討する際 には、土壌特性を考慮しつつ多種類の土壌で検討する必 要がある。

(5) 電気修復法

電気修復法とは、汚染土壌に陽極と陰極を設置し、直 流電流を流すことにより、イオン化した汚染物質を電解 液に回収する方法である。汚染土壌に直流電圧を印加す ることによって、土壌に含まれる放射性核種を移動させ て、土壌を浄化することができる。電界中の汚染物質移 動の主なメカニズムは、イオン種の移動と液体の電気浸 透である。水の電気分解、水の電気浸透、イオンの電位 勾配による移動、これら3つの現象を浄化原理に用いて 汚染土壌を浄化する。

土壌懸濁液に電極を挿入して電場をかけると、水が電 気分解して陽極および陰極でそれぞれH⁺、OH⁻が生じ て陽極付近の土壌は酸性化し、陰極付近の土壌はアルカ リ化する。生成したH⁺とOH⁻は電気泳動現象によりそ れぞれ陰極および陽極側へと移動する。この際、H⁺の移 動速度はOH⁻の移動速度よりも速く、鉱物溶解(H⁺消費 およびAl³⁺生成)が生じないモデル実験ではアルカリ化 領域に比べて酸性化領域が広くなる (Wada and Umegaki, 2001)。一方、土壌懸濁液に電場をかけ続けると、一般 的に負に帯電している土壌粒子(永久荷電をもつ層状ケ イ酸塩鉱物など)の表面において陰イオンに比べて過剰 に存在する陽イオンが、陰極に向かって移動を始める。 この際、陽イオンは土壌に対する吸着能の弱い順に移動 する。イオンの移動に引かれて水が流れ出し、電気浸透 流が発生する。電気修復法による放射性Cs除去はこの電 気浸透流を利用する。

これまでに、砂質土壌に¹³⁷Csを人工的に付加した土 壌を作成し、電気浸透流にポンプを付加してイオンの移 動性を高めた動電学的フラッシング技術を適用した場 合の除去効果が検討された(Kim et al., 2008a; Kim et al., 2008b)。装置は、アクリル製の土壌セル、2つの電極コ ンパートメント、電解溶液タンク、排水貯蔵タンク、水 流ポンプより構成される。土壌孔内に存在する溶液の輸 送圧力を増加するためにポンプを使用した。12種類の薬 剤(水、水酸化ナトリウム、硝酸アンモニウム、硫酸ア ンモニウム、リン酸ナトリウム (Na₃PO₄)、シュウ酸、 酢酸、クエン酸、エチレンジアミン四酢酸など)を用い て土壌洗浄処理にて¹³⁷Cs抽出率を予備的に検討し、シュ ウ酸、酢酸、クエン酸、エチレンジアミン四酢酸を、動 電学的フラッシング実験に使用する電解質試薬の候補と した。電解質試薬候補のうち、¹³⁷Csの除去効率は酢酸が 83.1%と最も高く、最適な電解質試薬として選定した。 陽極付近のコバルト(Co)と¹³⁷Csの除去効率は10%低 下した。これは、電解質試薬と¹³⁷Csから形成された錯イ オンが、陽極に輸送されたためである。電解質溶液の平 均流出量は65.5 mL 日⁻¹であった。

電気修復法は放射性Csの除去に時間を要するため、抽 出剤との組み合わせを更に検討する必要がある。2:1型 層状ケイ酸塩鉱物を含む鉱物質土壌に適用する際には、 土壌に固定された放射性Csの脱着が必要となるため、実 際の適用は難しいと考えられる。

引用文献

- Adhya, T.K., P. Patnaik, V.R. Rao and N. Sethunathan. (1996): Nitrification of ammonium in different components of a flooded rice soil system. *Biology and Fertility of Soils*, 23, 321–326
- Ae, N., T. Otani, T. Makino and J. Tazawa. (1996): Role of cell wall of groundnut roots in solubilizing sparingly soluble phosphorus in soil. *Plant and Soil*, **186**, 197–204
- Alexakhin, R.M. (1993): Countermeasures in agricultural production as an effective means of mitigating the radiological consequences of the Chernobyl accident. *Science of the Total Environment*, 137, 9-20
- Almgren, S. and M. Isaksson. (2006): Vertical migration studies of Cs-137 from nuclear weapons fallout and the Chernobyl accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 91, 90-102
- 5) Almond, P.C. and P.J. Tonkin. (1999): Pedogenesis by upbuilding in an extreme leaching and weathering environment, and slow loess accretion, south Westland, New Zealand. *Geoderma*, 92, 1–36

- Anderson, R., E. Rasor and F. Van Ryn. (1999): Particle size separation via soil washing to obtain volume reduction. *Journal of Hazardous Materials*, 66, 89-98
- Anderson, W.C. (1993):Innovative site remediation technology, Soil washing/Soil flushing, American academy of environmental engineers. p 1-192, Annapolis, Maryland
- Arapis, G.D. and Karandinos, M.G. (2004): Migration of ¹³⁷Cs in the soil of sloping semi-natural ecosystems in Northern Greece. *Journal of Environmental Radioactivity*, **77**:133–142
- 9) 有森正浩,遠藤泰,小林孝至.(2009):風食による土 壌飛散に風・土壌水分が及ぼす影響―岩手県奥中山 高原地区の火山灰性土壌畑における事例.農業農村 工学会論文集,260,23-30
- 朝日新聞社. (2011a): 高線量の柏、高濃度セシウム 検出 原発由来? 土壌が類似. http://www.asahi.com/ special/10005/TKY201110220424.html, (accessed 2012-1-30)
- 11) 朝日新聞社. (2011b): 千葉・柏の高線量、文科省「原 発の可能性強い」. http://www.asahi.com/national/ update/1023/TKY201110230180.html, (accessed 2012-1-30)
- 12) 浅見輝男 (2011): 土壌と農作物の放射性核種汚染, p. 127, アグネ技術センター, 東京
- Bange, G.G.J. and R. Overstreet. (1960): Some Observation on adsorption of cesium by excited barley roots. *Plant Physiology*, **35**, 605–608
- Ban-nai, T., Y. Muramatsu and S. Yoshida. (1997): Concentrations of ¹³⁷Cs and ⁴⁰K in edible mushrooms collected in Japan and radiation dose due to their consumption. *Health Physics*, **72**, 384–389
- 15) Bertl, A., J.D. Reid, H. Sentenac and C.L. Slayman. (1997): Functional comparison of plant inwardrectifier channels expressed in yeast. *Journal of Experimental Botany*, **48**, 405-413
- 16) Bixio, A.C., G. Gambolati, C. Paniconi, M. Putti, V.M. Shestopalov, V.N. Bublias, A.S. Bohuslavsky, N.B. Kasteltseva and Y.F. Rudenko. (2002): Modeling groundwater-surface water interactions including effects of morphogenetic depressions in the Chernobyl exclusion zone. *Environmental Geology*, 42, 162-177

- 17) Boettinger, J.L. and D.W. Ming (2002): Soil Mineralogy with Environmental Applications. SSSA Book Series No.7, p.585–610. Soil Science Society of America. Madison
- 18) Booth, M.S., J.M. Stark and E. Rastetter. (2005): Controls on nitrogen cycling in terrestrial ecosystems: A synthetic analysis of literature data. *Ecological Monographs*, **75**, 139-157
- 19) Bossew, P. and G. Kirchner. (2004): Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection-dispersion equation revisited. *Journal of Environmental Radioactivity*, **73**, 127-150
- 20) Bossew, P., M. Gastberger, H. Gohla, P. Hofer and A. Hubmer. (2004): Vertical distribution of radionuclides in soil of a grassland site in Chernobyl exclusion zone. *Journal of Environmental Radioactivity*, **73**, 87-99
- 21) Bouabid, R., M. Badraoui and P.R. Bloom. (1991): Potassium fixation and charge characteristics of soil clays. *Soil Science Society of America Journal*, 55, 1493-1498
- 22) Broadley, M.R. and N.J. Willey. (1997): Differences in root uptake of radiocaesium by 30 plant taxa. *Environmental Pollution*, **97**, 11-15
- 23) Broadley, M.R., N.J. Willey and A. Mead. (1999): A method to assess taxonomic variation in shoot caesium concentration among flowering plants. *Environmental Pollution*, **106**, 341-349
- 24) Broadley, M.R., AJ. Escobar-Gutierrez, H.C. Bowen, N.J. Willey and P.J. White. (2001): Influx and accumulation of Cs+ by the akt1 mutant of Arabidopsis thaliana (L.) Heynh. lacking a dominant K⁺ transport system. *Journal of Experimental Botany*, 52, 839-844
- Brouwer, E., B. Baeyens, A. Maes and A. Cremers. (1983): Cesium and rubidium ion equilibria in illite clay. *Journal of Physical Chemistry*, 87, 1213–1219
- 26) Bundt, M., A. Albrecht, P. Froidevaux, P. Blaser and H. Fluhler. (2000): Impact of preferential flow on radionuclide distribution in soil. *Environmental Science & Technology*, **34**, 3895–3899
- 27) Bunzl, K., W. Kracke, W. Schimmack and K. Auerswald. (1995): Migration of fallout ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in the various horizons of a forest soil

under pine. *Journal of Environmental Radioactivity*, **28**, 17–34

- 28) Bunzl, K., W. Kracke, W. Schimmack and L. Zelles. (1998): Forms of fallout Cs-137 and Pu239+240 in successive horizons of a forest soil. *Journal of Environmental Radioactivity*, **39**, 55-68
- 29) Bunzl, K., W. Schimmack, P. Schramel and M. Suomela. (1999): Effect of sample drying and storage time on the extraction of fallout Pu239+240, Cs-137 and natural Pb-210 as well as of stable Cs, Pb and Mn from soils. *Analyst*, **124**, 1383-1387
- 30) Bunzl, K. (2001): Migration of fallout-radionuclides in the soil: effect of non-uniformity of the sorption properties on the activity-depth profiles. *Radiation and Environmental Biophysics*, **40**, 237–241
- 31) Calmon, P., Y. Thiry, G. Zibold, A. Rantavaara and S. Fesenko. (2009): Transfer parameter values in temperate forest ecosystems: a review. *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 757-766
- 32) Carini, F., I. A. Scotti, and P. G. D' Alessandro. (1999):
 ¹³⁴Cs and ⁸⁵Sr in fruit plants following wet aerial deposition. *Health Physics*, 77, 520-529
- 33) Carrasco, D., E. Fernandez-Valiente, Y. Ariosa and A. Quesada. (2004): Measurement of coupled nitrification-denitrification in paddy fields affected by Terrazole, a nitrification inhibitor. *Biology and Fertility* of Soils, **39**, 186-192
- 34) Chepil, W.S. (1946): Dynamics of wind erosion. 6.Sorption of soil material by the wind. *Soil Science*, 61, 331–340
- 35) Chibowski, S. and J. Zygmunt. (2002): The influence of the sorptive properties of organic soils on the migration rate of Cs-137. *Journal of Environmental Radioactivity*, 61, 213-223
- 36) Chibowski, S., Zygmunt, J. and Klimowicz Z. (1999): Investigation of adsorption and vertical migration of ¹³⁷Cs in three kinds of soil at Lublin vicinity. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **242**: 287–295.
- 37) Conde Bueno, P., J. Martín Rubí and R. Jiménez Ballesta. (2008): Environmental evaluation of elemental cesium and strontium contents and their isotopic activity concentrations in different soils of La Mancha (Central Spain). *Environmental Geology*, 56, 327-334

- 38) Cremers, A., A. Elsen, P. Depreter and A. Maes. (1988): Quantitative-analysis of radiocesium retention in soils. *Nature*, 335, 247-249
- 39) Delvaux, B., N. Kruyts and A. Cremers. (2000): Rhizospheric mobilization of radiocesium in soils. *Environmental Science & Technology*, 34, 1489–1493
- 40) Dushenkov, S., D. Vasudev, Y. Kapulnik, D. Gleba, D. Fleisher, K.C. Ting and B. Ensley. (1997): Removal of Uranium from water using terrestrial plants. *Environmental Science & Technology*, **31**, 3468-3474
- 41) Dushenkov, S., A. Mikheev, A. Prokhnevsky, M. Ruchko and B. Sorochinsky. (1999): Phytoremediation of radiocesium-contaminated soil in the vicinity of Chernobyl, Ukraine. *Environmental Science & Technology*, 33, 469-475
- 42) Eguchi, S., N. Yamaguchi, H. Fujiwara, T. Fukuyama, Y. Mori, K. Seki, K. Suzuki and K. Adachi. (2010): Cosmogenic, anthropogenic, and airborne radionuclides for tracing the mobile soil particles in a tile-drained heavy clay soil. 19th World Congress of Soil Science, Soil Solutions for a Changing World, 1–6 August 2010, Brisbane, Australia. Published on DVD
- 43) 江口定夫,青木和博,神山和則. (2011):日本の農地
 土壌の物理的性質データベース SolphyJ の作成.農
 業環境技術研究所 研究成果情報,27,60-61
- 44) Ehlken, S. and G. Kirchner. (2002): Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: a review. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58, 97–112
- 45) Entry, J.A., L.S. Watrud and M. Reeves. (2001): Influence of organic amendments on the accumulation of Cs-137 and Sr-90 from contaminated soil by three grass species. *Water Air and Soil Pollution*, **126**, 385-398
- 46) European approach to nuclear and radiological emergency management and rehabilitation strategies. (2010): Generic handbook for assisting in the management of contaminated food production systems in Europe following a radiological emergency, http://www.euranos.fzk.de/index.php (accessed 2012-1-30)
- 47) Faure, M.H., M. Sardin and P. Vitorge. (1996): Transport of clay particles and radioelements in a

salinity gradient: Experiments and simulations. *Journal* of Contaminant Hydrology, **21**, 255–267

- 48) Fesenko, S.V., R.M. Alexakhin, M.I. Balonov, I.M. Bogdevitch, B.J. Howard, V.A. Kashparov, N.I. Sanzharova, A.V. Panov, G. Voigt and Y.M. Zhuchenka. (2007): An extended critical review of twenty years of countermeasures used in agriculture after the Chernobyl accident. *Science of the Total Environment*, **383**, 1-24
- 49) Forsberg, S., K. Rosén, V. Fernandez and H. Juhan. (2000): Migration of Cs-137 and Sr-90 in undisturbed soil profiles under controlled and close-to-real conditions. *Journal of Environmental Radioactivity*, **50**, 235-252
- 50) Fox, P.M., D.B. Kent and J.A. Davis. (2010): Redox transformations and transport of cesium and iodine (-1,0,+5) in oxidizing and reducing zones of a sand and gravel aquifer. *Environmental Science & Technology*, 44, 1940-1946
- 51) Fritsch, C., R. Scheifler, K. Beaugelin-Seiller, P. Hubert, M. Cœurdassier, A. De Vaufleury and P. M. Badot. (2008): Biotic interactions modify the transfer of Cesium-137 in a soil-earthworm-plant-snail food web. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 27, 1698-1707
- 52) Fukuyama, T. and C. Takenaka. (2004): Upward mobilization of Cs-137 in surface soils of *Chamaecyparis obtusa Sieb. et Zucc.* (hinoki) plantation in Japan. *Science of the Total Environment*, 318, 187-195
- 53) Fukuyama, T., C. Takenaka and Y. Onda. (2005): Cs-137 loss via soil erosion from a mountainous headwater catchment in central Japan. *Science of the Total Environment*, **350**, 238–247
- 54) Galloway, J.N., F.J. Dentener, D.G. Capone, E.W. Boyer, R.W. Howarth, S.P. Seitzinger, G.P. Asner, C.C. Cleveland, P.A. Green, E.A. Holland, D.M. Karl, A.F. Michaels, J.H. Porter, A.R. Townsend and C.J. Vörösmarty. (2004): Nitrogen cycles: past, present, and future. *Biogeochemistry*, **70**, 153–226
- 55) Gassmann, W., F. Rubio and J.I. Schroeder. (1996):
 Alkali cation selectivity of the wheat root high-affinity potassium transporter HKT1. *Plant Journal*, **10**, 869– 882

- 56) Gaymard, F., G. Pilot, B. Lacombe, D. Bouchez, D. Bruneau, J. Boucherez, N. Michaux-Ferriere, J.B. Thibaud and H. Sentenac. (1998): Identification and disruption of a plant shaker-like outward channel involved in K+ release into the xylem sap. *Cell*, **94**, 647-655
- 57) Geisseler, D., W.R. Horwath, R.G. Joergensen and B. Ludwig. (2010): Pathways of nitrogen utilization by soil microorganisms - A review. *Soil Biology & Biochemistry*, **42**, 2058-2067
- 58) Gouthu, S., T. Arie, S. Ambe and I. Yamaguchi. (1997): Screening of plant species for comparative uptake abilities of radioactive Co, Rb, Sr and Cs from soil. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 222, 247-251
- 59) Gulin, S.B., G.G. Polikarpov and J.M. Martin. (2003): Geochronological reconstruction of Cs-137 transport from the Coruh river to the SE Black Sea: comparative assessment of radionuclide retention in the mountainous catchment area. *Continental Shelf Research*, 23, 1811-1819
- 60) Hakonson, T.E., G.C. White, E.S. Gladney and M. Dreicer. (1980): The distribution of mercury, cesium-137 and plutonium in an intermitted stream at Los Alamos. *Journal of Environmental Quality*, 9, 289– 292
- 61) Hampton, C.R., M.R. Broadley and P.J. White. (2005): Short review: The mechanisms of radiocaesium uptake by arabidopsis roots. *Nukleonika*, **50**, S3-S8
- 62) Harsh, J., J. Chorover and E. Nizeyimana. (2002): Soil Mineralogy with Environmental Application, SSSA Book Series No.7, p.291–322. Soil Science Society of America. Madison
- 63) Hasegawa, H., H. Tsukada, H. Kawabata, Y. Chikuchi,
 Y. Takaku, and S. Hisamatsu. (2009): Effect of the counter anion of cesium on foliar uptake and translocation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100, 54–57
- 64) 林健太郎 (2011): 農業由来のアンモニア負荷 その 環境影響と対策, p.13-38. 博友社. 東京
- 65) Hayashi, K. and X. Yan. (2010): Airborne nitrogen load in Japanese and Chinese agroecosystems. *Soil Science and Plant Nutrition*, **56**, 2–18.
- 66) Hayashi, K., M. Hayatsu, S. Morimoto, A. Kishimoto

(Mo W), T. Motohka, M. Uchida and T. Nakatsubo. (2010): Features of nitrification and denitrification of an arctic soil in Ny-Ålesund, Svalbard. Second International Symposium on the Arctic Research.

- 67) Hayashi, K., Koga, N., Fueki, N., (2011): Limited ammonia volatilization loss from upland fields of Andosols following fertilizer applications. *Agriculture*, *Ecosystems and Environment* 140, 534–538.
- 68) Hayatsu, M., K. Tago and M. Saito. (2008): Various players in the nitrogen cycle: Diversity and functions of the microorganisms involved in nitrification and denitrification. *Soil Science and Plant Nutrition*, **54**, 33-45
- 69) Hirsch, R.E., B.D. Lewis, E.P. Spalding and M.R. Sussman. (1998): A role for the AKT1 potassium channel in plant nutrition. *Science*, **280**, 918–921
- 70) Holgye Z. and Maly M. (2000): Sources, vertical distribution, and migration rates of ^{239,240}Pu, ²³⁸Pu, and ¹³⁷Cs in grassland soil in three localities of central Bohemia. *Journal of Environmental Radioactivity*, **47**, 135–147
- 71) Huh, C.A. and C.C. Su. (2004): Distribution of fallout radionuclides (Be-7, Cs-137, Pb-210 and Pu-239,Pu-240) in soils of Taiwan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 77, 87-100
- 72) IAEA (1999): Technologies for remediation of radioactivity contaminated sites, IAEA-TECDOC-1086, 1-101
- 73) IAEA (2004): Remediation of Sites with Dispersed Radioactive Contamination, Technical Reports Series
 424, 1–117
- 74) IAEA (2010): Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Reports Series.
 472, 1–194
- 75) Inoue, K. and T. Naruse. (1987): Physical, chemical, and mineralogical characteristics of modern eolian dust in Japan and rate of dust deposition *Soil Science* and Plant Nutrition, **33**, 327–345
- 76) Ivanov, Y.A., N. Lewyckyj, S.E. Levchuk, B.S. Prister, S.K. Firsakova, N.P. Arkhipov, A.N. Arkhipov, S.V. Kruglov, R.M. Alexakhin, J. Sandalls and S. Askbrant. (1997): Migration of Cs-137 and Sr-90 from Chernobyl fallout in Ukrainian, Belarussian and

Russian soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, **35**, 1–21

- 77) 岩坪五郎(1996):第5章 各種の森林生態系の物質 生産と養分循環,森林生態学 306 pp. 文永堂出版 東京
- 78) Jarvis, N.J., A. Taylor, M. Larsbo, A. Etana and K. Rosén. (2010): Modelling the effects of bioturbation on the re-distribution of 137Cs in an undisturbed grassland soil. *European Journal of Soil Science*, 61, 24-34
- 79) Joussein, E., N. Kruyts, D. Righi, S. Petit and B. Delvaux. (2004): Specific retention of radiocesium in volcanic ash soils devoid of micaceous clay minerals. *Soil Science Society of America Journal*, 68, 313–319
- 80) Kabata-Pendias, A. and A.B. Mukherjee (2007): Trace Elements from Soil to Human, p. 550, Springer, Berlin
- 81) Kamei-Ishikawa, N., S. Uchida and K. Tagami. (2008): Distribution coefficients for Sr-85 and Cs-137 in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **277**, 433-439
- 82) Kanter, U., A. Hauser, B. Michalke, S. Draxl and A.R. Schaffner. (2010): Caesium and strontium accumulation in shoots of Arabidopsis thaliana: genetic and physiological aspects. *Journal of Experimental Botany*, **61**, 3995-4009
- 83) Karadeniz, Ö. and G. Yaprak. (2008): Geographical and vertical distribution of radiocesium levels in coniferous forest soils in Izmir. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 277, 567-577
- 84)加藤芳朗,中西寿彦,中田正志 (1970):由比町の小河
 内層泥岩に由来する土壌のモンモリロナイト鉱物.
 静岡大学地学研究報告,2,21-29
- 85)川端一史,長谷川英尚,塚田祥文,高久雄一,久松俊
 一(2009):作物葉面における挙動.平成21年度環境 技術研究所報告.
- 86) 経済企画庁(1967):土地分類図(福島県)縮尺
 1:20,000、付属資料
- Kim, E.J., J.M. Kwak, N. Uozumi and J.I. Schroeder. (1998): AtKUP1: An Arabidopsis gene encoding high-affinity potassium transport activity. *Plant Cell*, 10, 51-62
- 88) Kim, G.N., W.K. Choi, C.H. Jung and J.K. Moon. (2007): Development of a washing system for soil

contaminated with radionuclides around TRIGA reactors. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, **13**, 406–413

- 89) Kim, G.N., Y.H. Jung, JJ. Lee, J.K. Moon and C.H. Jung. (2008a): An analysis of a flushing effect on the electrokinetic-flushing removal of cobalt and cesium from a soil around decommissioning site. *Separation and Purification Technology*, **63**, 116–121
- 90) Kim, G.N., Y.H. Jung, J.J. Lee, J.K. Moon and C.H. Jung. (2008b): Development of electrokinetic-flushing technology for the remediation of contaminated soil around nuclear facilities. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, **14**, 732-738
- 91) Kirchner, G., F. Strebl, P. Bossew, S. Ehlken and M.H. Gerzabek. (2009): Vertical migration of radionuclides in undisturbed grassland soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 716-720
- 92)小島懋,藤本弘,虎屋博一,太田襄二(1979):2:1型粘 土鉱物に固定されたセシウムの植物による吸収.日 本土壌肥料学雑誌,51,1-7
- 93) 国分欣一 (1963): 風蝕の機構ならびに防止対策に関す る土壌肥料学的研究. 農事試験場研究報告, 5, 45-98
- 94) 駒村美佐子,津村昭人 (1994): 誘導結合プラズマ質 量分析法による土壌から白米への放射性核種の移行 係数算定. Radioisotopes, 43, 1-8
- 95) 駒村美佐子,津村昭人,山口紀子,藤原英司,木方展 治,小平潔 (2006):わが国の米、麦および土壌におけ る⁹⁰Sr と¹³⁷Cs 濃度の長期モニタリングと変動解析. 農業環境技術研究所報告,24,1-21
- 96) Konopleva, I., E. Klemt, A. Konoplev and G. Zibold. (2009): Migration and bioavailability of ¹³⁷Cs in forest soil of southern Germany. *Journal of Environmental Radioactivity*, **100**, 315-321
- 97) Kretzschmar, R. and H. Sticher. (1997): Transport of humic-coated iron oxide colloids in a sandy soil: Influence of Ca²⁺ and trace metals. *Environmental Science & Technology*, **31**, 3497-3504
- 98) Kretzschmar, R., K. Barmettler, D. Grolimund, Y.D. Yan, M. Borkovec and H. Sticher. (1997): Experimental determination of colloid deposition rates and collision efficiencies in natural porous media. *Water Resources Research* **33**, 1129–1137
- 99) Kretzschmar, R, M. Borkovec, D. Grolimund and M. Elimelech. (1999): Mobile subsurface colloids and

their role in contaminant transport. *Advances in Agronomy*, **66**, 121–193

- 100) Kyuma, K. (2004):Paddy Soil Science, p.1–280 Kyoto University Press. Kyoto
- 101) Lasat, M.M., W.A. Norvell and L.V. Kochian. (1997): Potential for phytoextraction of Cs-137 from a contaminated soil. *Plant and Soil*, **195**, 99-106
- 102) Lembrechts, J. (1993): A review of literature on the effectiveness of chemical amendments in reducing the soil-to-plant transfer of radiostrontium and radiocesium. *Science of the Total Environment*, **137**, 81-98
- 103) Makino, T., H. Takano, T. Kamiya, T. Itou, N. Sekiya, M. Inahara and Y. Sakurai. (2008): Restoration of cadmium-contaminated paddy soils by washing with ferric chloride: Cd extraction mechanism and benchscale verification. *Chemosphere*, **70**, 1035–1043
- 104) 真木太一,鴨田福也,泊功,鈴木義則,早川誠而(1991):農業気象災害と対策 p.217-219. 養賢堂.東京
- 105) Marschner, H. (1986): Mineral nutrition of higer plants (2nd Ed.), p. 5. Academic Press. London
- 106) 松坂泰明,白井昭登,今泉吉郎(1962):水稲のカリ 欠乏に関する研究(第3報)カリ欠乏水稲の養分吸収 および代謝の異常性について(その2).日本土壌肥料 学雑誌,33,173-176
- 107) Maubert, H., I. Vovk, J. Roed, G. Arapis and A. Jouve. (1993): Reduction of soil-plant transfer-factors – Mechanical aspect. *Science of the Total Environment*, 137, 163–167
- 108) McBride, M.B. (1994): Environmental chemistry of soils, p. 1–416 Oxford University Press. New York
- 109) Miller, A.J. and M.D. Cramer. (2005): Root nitrogen acquisition and assimilation. *Plant and Soil*, **274**, 1–36
- 110) 三浦憲蔵,吉住佳与,青木和彦,屋代幹雄(2009):ダ イズのカドミウム吸収抑制に効果的な資材施用法. 東北農業研究,61,59-60.
- Mon, J., Y.J. Deng, M. Flury and J.B. Harsh. (2005): Cesium incorporation and diffusion in cancrinite, sodalite, zeolite, and allophane. *Microporous and Mesoporous Materials*, 86, 277–286
- 112) 文部科学省 (2011a): 文部科学省による第3次航空機モニタリングの測定結果について. http://radioactivity. mext.go.jp/ja/monitoring_around_FukushimaNPP_ MEXT_DOE_airborne_monitoring/.(accessed 2012-

1 - 30)

- 113) 文部科学省(2011b): 文部科学省による放射性物質 の分布状況等に関する調査研究(森林内における放 射性物質の移行調査)の結果について.http:// radioactivity.mext.go.jp/ja/distribution_map_ around_FukushimaNPP/. (accessed 2012-1-30)
- 114) 文部科学省(2011c): 文部科学省による放射線量等 分布マップの作成について.http://radioactivity. mext.go.jp/ja/distribution_map_around_ FukushimaNPP/. (accessed 2012-1-30)
- 115) Morino, Y., T. Ohara and M. Nishizawa. (2011): Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011. *Geophysical Research Letters*, **38**, L00G11, 1-7
- 116) Moritsuka, N., J. Yanai, M. Umeda and T. Kosaki. (2004): Spatial relationships among different forms of soil nutrients in a paddy field. *Soil Science and Plant Nutrition*, **50**, 565–573
- 117) 森塚直樹(2009):日本の農耕地土壌のカリウムの
 形態 -地域・圃場・根域スケールでの評価-.日本土
 壌肥料学雑誌,80,80-88
- 118) Myttenaere, C., P. Bourdeau, and M. Masset. (1969): Relative importance of soil and water in the indirect contamination of flooded rice with radiocaesium. *Health Physics*, **16**, 701-707
- 119) Nabyvanets, Y.B., T.F. Gesell, M.H. Jen and W.P. Chang.
 (2001): Distribution of Cs-137 in soil along Ta-han River Valley in Tau-Yuan County in Taiwan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54, 391-400
- 120) 内閣府(2011):緊急時迅速放射能影響予測ネット ワークシステム(SPEEDI)の試算について.http:// www.nsc.go.jp/briefing/speedi.html. (accessed 2011-10-31)
- 121) 中野啓三(1978): 低湿重粘土水田の畑転換に伴う 土壌物理性の推移.北陸農業試験場報告,21,63-94
- 122) Nakao, A., Y. Thiry, S. Funakawa and T. Kosaki. (2008): Characterization of the frayed edge site of micaceous minerals in soil clays influenced by different pedogenetic conditions in Japan and northern Thailand. Soil Science and Plant Nutrition, 54, 479-489
- 123) Nakao, A., S. Funakawa and T. Kosaki. (2009a): Hydroxy-Al polymers block the frayed edge sites of

illitic minerals in acid soils: studies in southwestern Japan at various weathering stages. *European Journal of Soil Science*, **60**, 127–138

- 124) Nakao, A., S. Funakawa, T. Watanabe and T. Kosaki. (2009b): Pedogenic alterations of illitic minerals represented by Radiocaesium Interception Potential in soils with different soil moisture regimes in humid Asia. *European Journal of Soil Science*, **60**, 139–152
- 125) Nanzyo, M., S. Shoji and R.A. Dahlgren. (1993): Volcanic Ash Soils, p.189–251, Elsevier, Amsterdam
- 126) NHK. (2011) NHK NEWS WEB: 米に放射性物質 水田の砂原因か. http://www3.nhk.or.jp/news/html/20111005/k10013041281000.html (accessed 2012-1-30)
- 127) Nieder, R., D.K. Benbi and H.W. Scherer. (2011): Fixation and defixation of ammonium in soils: a review. *Biology and Fertility of Soils*, 47, 1-14
- 128) 日本農業気象学会.(1954):災害防除農業気象新 典, p.67-68. 養賢堂.東京
- 129) Nisbet, A. (1993): Effect of soil-based countermeasures on solid-liquid equilibria in agricultural soils contaminated with radiocesium and radiostrontium. *Science of the Total Environment*, **137**, 99–118
- 130) Nishio, T. (1994): Estimating nitrogen transformation rates in surface aerobic soil of a paddy field. *Soil Biology & Biochemistry*, **26**, 1273–1280
- 131) Noell, A.L., J.L. Thompson, M.Y. Corapcioglu and I.R. Triay. (1998): The role of silica colloids on facilitated cesium transport through glass bead columns and modeling. *Journal of Contaminant Hydrology*, **31**, 23–56
- 132) 野川憲夫,橋本健,田野井慶太朗,中西友子,二瓶 直登,小野勇治. (2011):速報 - 福島県の水田およ び畑作土壌からの¹³⁷Cs,¹³⁴Cs ならびに¹³¹Iの溶出実 験. *Radioisotopes*, **60**, 311-315
- 133) 野口弥吉,川田信一郎 (1987):農学大事典, p.422-423. 養賢堂.東京
- 134) 農林水産省(2011a): 平成22年産水陸稲の収穫量. http://www.maff.go.jp/j/press/tokei/seiryu/101208. html. (accessed 2012-1-30)
- 135) 農林水産省(2011b):農地土壌の放射性物質除去技術(除染技術)について、報道発表資料、http://www. s.affrc.go.jp/docs/press/110914.htm. (accessed 2012-1-30)
- 136) 農林水産省(2011c): 農地土壌の放射性物質濃度分

布図の作成について. http://www.s.affrc.go.jp/docs/ press/110830.htm. (accessed 2012-1-30)

- 137) 落合透,竹田聖司,木村英雄(2009):生物圏評価の ための土壌から農作物への移行係数に関するデータ ベース.JAEA-Fata/Code,1-62
- 138) Parsons, A.J. and I.D.L. Foster. (2011): What can we learn about soil erosion from the use of ¹³⁷Cs. *Earth–Science Reviews*, **108**, 101–113
- 139) Qi, Z., C.R. Hampton, R. Shin, BJ. Barkla, PJ. White and D.P. Schachtman. (2008): The high affinity K⁺ transporter AtHAK5 plays a physiological role in planta at very low K⁺ concentrations and provides a caesium uptake pathway in Arabidopsis. *Journal of Experimental Botany*, **59**, 595-607
- Rafferty, B., M. Brennan, D. Dawson and D. Dowding.
 (2000): Mechanisms of ¹³⁷Cs migration in coniferous forest soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 48, 131–143
- 141) Rajib, M., T. Sasaki, T. Kobayashi, Y. Miyauchi, I. Takagi and H. Moriyama. (2011): Analysis of Sorption Behavior of Cesium and Iodide Ions on Pumice Tuff. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 48, 950–957
- 142) Rigol, A., M. Vidal and G. Rauret. (2002): An overview of the effect of organic matter on soil-radiocaesium interaction: implications in root uptake. *Journal of Environmental Radioactivity*, **58**, 191-216
- 143) Ritchie, J.C. and J.R. McHenry. (1990): Application of radioactive fallout Cs-137 for measuring soil-erosion and sediment accumulation rates and pattern - A review. *Journal of Environmental Quality*, 19, 215-233
- 144) Roed, J., K. Andersson and H. Prip. (1996): The skim and burial plough: A new implement for reclamation of radioactively contaminated land. *Journal of Environmental Radioactivity*, **33**, 117-128
- 145) Roig, M., M. Vidal, G. Rauret and A. Rigol. (2007): Prediction of radionuclide aging in soils from the Chernobyl and Mediterranean areas. *Journal of Environmental Quality*, **36**, 943-952
- 146) Rosén, K., I. Oborn and H. Lonsjo. (1999): Migration of radiocaesium in Swedish soil profiles after the Chernobyl accident, 1987-1995. *Journal of Environmental Radioactivity*, **46**, 45-66
- 147) Ryan, J.N. and P.M. Gschwend. (1990): Colloid mobilization in 2 atlantic coastal-plain aquifers- field

studies Water Resources Research, 26, 307-322

- 148) Sahrawat, K.L. (2004): Ammonium production in submerged soils and sediments: The role of reducible iron. *Communications in Soil Science and Plant Analysis*, **35**, 399-411
- 149) Saiers, J.E. and G.M. Hornberger. (1996): The role of colloidal kaolinite in the transport of cesium through laboratory sand columns. *Water Resources Research*, **32**, 33–41
- 150) 三枝正彦, 庄子貞雄, 安藤豊 (1975): 東北地方の水 田土壌の粘土鉱物(第8報). 日本土壌肥料学雑誌, 46, 536-541
- 151) 三枝正彦,庄子貞雄,安藤豊,増井淳一(1976):東北地方の水田土壌の粘土鉱物(第11報) 福島盆地北部の水田土壌(その4).日本土壌肥料学雑誌,47,65-68
- 152) 三枝正彦,松山信彦,阿部篤郎(1993):東北地方に おけるアロフェン質黒ボク土と非アロフェン質黒ボ ク土の分布.日本土壌肥料学雑誌,64,423-430
- 153) 佐波俊哉,佐々木慎一,飯島和彦,岸本祐二,齋藤 究(2011):茨城県つくば市における福島第一原子力 発電所の事故由来の線量率とガンマ線スペクトルの 経時変化.日本原子力学会和文論文誌,10,163-169
- 154) Sano, S., J. Yanai and T. Kosaki. (2004): Evaluation of soil nitrogen status in Japanese agricultural lands with reference to land use and soil types. *Soil Science and Plant Nutrition*, **50**, 501–510
- 155) 佐野大樹,伊藤豊彰,安藤正,南條正巳,斎藤元也, 三枝正彦(2010):南東北地方の代表的な水田土壌 の粘土鉱物組成.ペドロジスト,54,82-82
- 156) Sawhney, B.L. (1964): Sorption and fixation of microquantities of cesium by clay minerals: Effect of saturating cations. *Proceedings of Soil Science Society of America*, 28, 183–186
- 157) Sawhney, B.L. (1972): Selective sorption and fixation of cations by clay-minerals – Review. *Clays and Clay Minerals*, **20**, 93–100
- 158) Scherer, H.W. (1993): Dynamics and availability of the non-exchangeable NH₄-N - a review. *European Journal of Agronomy*, 2, 149-160
- 159) Schlesinger, W.H. (1997): The biosphere: biogeochemical cycling on land. In: Biogeochemistry. An analysis of global change. 166–223 pp. Academic Press. San Diego, California.

- 160) Shaw, G. (2007): Radionuclides in forest ecosystems. Chapter 6. *In* Baxter, M.S. (ed.), Radioactivity in the Environment, vol. 10., Elsevier Science Publishers, Amsterdam
- 161) Shaw, G. and J.N.B. Bell. (1989): The kinetics of cesium absorption by roots of winter-wheat and the possible consequences for the derivation of soil-to-plant transfer factors for radiocesium. *Journal of environmental radioactivity*, **10**, 213-231
- 162) Shaw, G. and J.N.B. Bell. (1991): Competitive effects of potassium and ammonium on cesium uptake kinetics in wheat. *Journal of Environmental Radioactivity*, **13**, 283–296
- 163) Shcheglov, A.I., O.B., Tsvetnova and A.L. Klyashtorin. (2001): Biogeochemical Migration of Technogenic Radionuclides in Forest Ecosystems. p 1–235, Moscow Nauka, Moscow
- 164) 塩沢昌,田野井慶太朗,根本圭介,吉田修一郎,西 田和宏,橋本健,桜井健太,中西友子,二瓶直登, 小野勇治 (2011):速報-福島県の水田土壌における 放射性セシウムの深度別濃度と移流速度. *Radioisotopes*, **60**, 323-328
- 165) 庄子貞雄, 安藤豊, 増井淳一(1973):東北地方の 水田土壌の粘土鉱物(第3報). 日本土壌肥料学雑 誌,44,197-203
- 166) Sigurgeirsson, M.A., O. Arnalds, S.E. Palsson, B. Howard and K. Gudnason. (2005): Radiocaesium fallout behaviour in volcanic soils in Iceland. *Journal of Environmental Radioactivity*, **79**, 39–53
- 167) Simunek, J., M.T. Van Genuchten and M. Sejna. (2005): The HYDRUS-1D software package for simulating the movement of water, heat, and multiple solutes in variably saturated media. Version 3.0. HYDRUS Software Series 1, Dep. of Environmental Sciences, Univ. of California. Riverside, CA
- 168) Smolders, E. and H. Tsukada. (2011): The transfer of Radiocesium from soil to plants: Mechanisms, data, and perspectives for potential countermeasures in Japan. Integrated Environmental Assessment and Management, 7, 379-381
- 169) Smolders, E., L. Kiebooms, J. Buysse and R. Merckx. (1996): Cs-137 uptake in spring wheat (*Triticum aestivum* L cv Tonic) at varying K supply .2. A potted soil experiment. *Plant and Soil*, **181**, 211-220

- Smolders, E., K. Vandenbrande and R. Merckx. (1997): Concentrations of Cs-137 and K in soil solution predict the plant availability of Cs-137 in soils. *Environmental Science & Technology*, **31**, 3432–3438
- 171) Sparks, D.L. (2003): Environmental soil chemistry, 2nd ed., p.45–46. Academic Press. San Diego
- 172) Staunton, S., C. Dumat and A. Zsolnay. (2002): Possible role of organic matter in radiocaesium adsorption in soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, **58**, 163– 173
- 173) Steiner, M., I. Linkov and S. Yoshida. (2002): The role of fungi in the transfer and cycling of radionuclides in forest ecosystems. *Journal of Environmental Radioactivity*, 58, 217-241
- 174) 杉山恵,阿江教治(2000):黒ボク土および黒ボク土 に施用した鉱物に対する作物のカリウム吸収反応. 日本土壌肥料学雑誌,71,786-793
- 175) Sutton, M.A., C.M. Howard, J.W. Erisman, G. Billen, A. Bleeker, P. Grennfelt, H. Van Grinsven and B. Grizzetti. (2011): The European Nitrogen Assessment: Sources, Effects and Policy Perspectives, p 1-664, Cambridge University Press.
- 176)鈴木克拓,足立一日出,関口哲生,吉田修一郎,中 野恵子,加藤英孝.(2005):亀裂の発達した転換畑 における懸濁物質およびリンの暗渠流出.日本土壌 肥料学雑誌,76,43-47
- 177) Szabo, G., J. Guczi and A. Nisbet. (1997): Investigation of the solid phase speciation of Sr-90, Cs-137, Pu-239 and Am-241 in soils determined by extraction and ultra-filtration methods. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **226**, 255-259
- 178) Tagami K, S. Uchida, Y. Uchihori, N. Ishii, H. Kitamura, Y.Shirakawa (2011): Specific activity and activity ratios of radionuclides in soil collected about 20km from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant: Radionuclide release to the south and southwest. *Science of the Total Environment*, **409**, 4885-4888
- 179)高橋悟,田中弥寿男,矢橋晨吾(1990):網走地域 における風食と土壌因子.農業土木学会誌,58, 1169-1175
- 180) Takeda, A., K. Kimura and S. Yamasaki. (2004): Analysis of 57 elements in Japanese soils, with special reference to soil group and agricultural use. *Geoderma*, **119**, 291–307

- 181) Takeda, A., H. Tsukada, Y. Takaku, S. Hisamatsu, J. Inaba and M. Nanzyo. (2006): Extractability of major and trace elements from agricultural soils using chemical extraction methods: Application for phytoavailability assessment. *Soil Science and Plant Nutrition*, **52**, 406– 417
- 182) 武田晃,塚田祥文,高久雄一,久松俊一 (2008):土 壌に添加されたCsおよびIの形態変化及び植物吸収.平成20年度環境科学技術研究所年報,21-23
- 183) Tanaka, T. and T. Ohnuki. (1994): Influence of soil solution ratio on absorption behavior of cesium on soils. *Geochemical Journal*, 28, 369–376
- 184)田中忠夫,山本忠利,加藤正平,風間広志(1991):
 臨界砂質地層における放射性核種の分配係数に及ぼ す地下水中イオン組成の影響.日本原子力学会誌, 33,373-380
- 185) Tang, X.Y. and N. Weisbrod. (2010): Dissolved and Colloidal Transport of Cesium in Natural Discrete Fractures. *Journal of Environmental Quality*, **39**, 1066-1076
- 186) Tegen, I. and H. Dörr. (1996): Mobilization of cesium in organic rich soils: Correlation with production of dissolved organic carbon. *Water, Air, & Soil Pollution,* 88, 133-144
- 187) Torok, J., L.P. Buckley and B.L. Woods. (1990): The separation of radionuclide migration by solution and particle transport in soil. *Journal of Contaminant Hydrology*, 6, 185–203
- 188) Tsukada, H., H. Shibata and H. Sugiyama. (1998): Tansfer of radiocaesium and stable caesium from substrate to mushrooms in a pine forest in Rokkashomura, Aomori, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, **39**, 149–160
- 189) Tsukada, H. and Y. Nakamura. (1999): Transfer of Cs-137 and stable Cs from soil to potato in agricultural fields. *Science of the Total Environment*, **228**, 111–120
- 190) Tsukada, H., H. Hasegawa, S. Hisamatsu and S. Yamasaki. (2002a): Rice uptake and distributions of radioactive ¹³⁷Cs, stable ¹³³Cs and K from soil. *Environmental Pollution*, **117**, 403-409
- 191) Tsukada, H., H. Hasegawa, S. Hisamatsu and S. Yamasaki. (2002b): Transfer of Cs-137 and stable Cs from paddy soil to polished rice in Aomori, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, **59**, 351-363

- 192) Tsukada, H., A. Takeda, S. Hisamatsu and J. Inaba. (2008a): Concentration and specific activity of fallout Cs-137 in extracted and particle-size fractions of cultivated soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99**, 875-881
- 193) Tsukada, H., A. Takeda and H. Hasegawa. (2008b): Uptake and Distribution of ⁹⁰Sr amd ¹³⁷Cs in Rice Plants. 16th Pacific Basin Nuclear Conference. Aomori, Japan: P16P1121.
- 194)塚田祥文,山口紀子,高橋知之(2011a):土壌-作物 系における放射性セシウムおよび放射性ストロンチ ウムの動態.化学と生物,49,834-842
- 195)塚田祥文,鳥山和伸,山口紀子・武田晃,中尾淳,原 田久富美,高橋知之,山上陸,小林大輔,吉田聡,杉 山英男,柴田尚(2011b):土壌-作物系における放射 性核種の挙動.日本土壌肥料学雑誌,82,408-418
- 196)津村昭人,駒村美佐子,小林宏信(1984):土壌及び 土壌 - 植物系における放射性ストロンチウムとセシ ウムの挙動に関する研究.農業技術研究所報告B,36, 57-113
- 197) 堤利夫 (1989): 森林生態学. p1-166 朝倉書店. 東京
- 198) Valcke, E., A. Elsen and A. Cremers. (1997a): The use of zeolites as amendments in radiocaesium- and radiostrontium-contaminated soils: A soil-chemical approach .4. A potted soil experiment to verify laboratory-based predictions. *Zeolites*, **18**, 225-231
- 199) Valcke, E., B. Engels and A. Cremers. (1997b): The use of zeolites as amendments in radiocaesium- and radiostrontium-contaminated soils: A soil-chemical approach .2. Sr-Ca exchange in clinoptilolite, mordenite, and zeolite A. *Zeolites*, **18**, 212-217
- 200) Vandebroek, L, M. Van Hees, B. Delvaux, O. Spaargaren and Y. Thiry. (2012): Relevance of radiocaesium interception potential (RIP) on a worldwide scale to assess soil vulnerability to ¹³⁷Cs contamination. *Journal* of Environmental Radioactivity, **104**, 87–93
- 201) VandenBygaart, A.J., R. Protz and D.C. Mccabe. (1999): Distribution of natural radionuclides and Cs-137 in soils of southwestern Ontario. *Canadian Journal of Soil Science*, **79**, 161–171
- 202) Vandenhove, H., M. Vanhees, S. Debrouwer and C. Vandecasteele. (1996): Transfer of radiocaesium from podzol to ryegrass as affected by AFCF concentration. *Science of the Total Environment*, **187**, 237–245

- 203) Vandenhove, H., E. Smolders and A. Cremers. (2003):
 Potassium bentonites reduce radiocaesium availability to plants. *European Journal of Soil Science*, **54**, 91–102
- 204) Vandenhove, H., A. Cremers, E. Smolders and M. Van Hees. (2005): Effect of K and bentonite additions on Cs-transfer to ryegrass. *Journal of Environmental Radioactivity*, 81, 233-253
- 205) Vovk, I.F., V.V. Blagoyev, A.N. Lyashenko and I.S. Kovalev. (1993): Technical approaches to decontamination of terrestrial environments in the CIS (Former USSR) *Science of the Total Environment*, 137, 49-63
- 206) Wada, S. and Y. Umegaki. (2001): Major ion and electrical potential distribution in soil under electrokinetic remediation. *Environmental Science & Technology*, **35**, 2151-2155
- 207) Wallbrink, P.J. and A.S. Murray. (1996): Determining soil loss using the inventory ratio of excess lead-210 to cesium-137. *Soil Science Society of America Journal*, 60, 1201-1208
- 208) Wan, J.M. and J.L. Wilson. (1994): Colloid transport in unsaturated porous media. *Water Resources Research*, 30, 857–864
- 209) Wan, J.M., J.L. Wilson and T.L. Kieft. (1994): Influence of the gas-water interface on transport of microorganisms through unsaturated porous media. *Applied and Environmental Microbiology*, **60**, 509–516
- 210) Wang, G. and S. Staunton. (2010): Dynamics of caesium in aerated and flooded soils: experimental assessment of ongoing adsorption and fixation. *European Journal* of Soil Science, 61, 1005–1013
- 211) Wauters, J., L. Sweeck, E. Valcke, A. Elsen and A. Cremers. (1994): Availability of radiocesium in soils A new methodology. *Science of the Total Environment*, 157, 239–248
- 212) Wauters, J., A. Elsen, A. Cremers, A.V. Konoplev, A.A. Bulgakov and R.N.J. Comans. (1996): Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocaesium in soils and sediments .1. A simplified procedure for the solid phase characterisation. *Applied Geochemistry*, 11, 589–594
- 213) White, P.J. and M.R. Broadley. (2000): Mechanisms of caesium uptake by plants. *New Phytologist*, **147**, 241–256
- 214) Xiong, Z.Q., T.Q. Huang, Y.C. Ma, G.X. Xing and Z.L. Zhu.

(2010): Nitrate and ammonium leaching in variableand permanent-charge paddy soils. *Pedosphere*, **20**, 209-216

- 215)山上睦,箭内真寿美,久松俊一(2009):第3章 植物の元素集積性に関する調査研究.平成20年度環境科学技術研究所年報,27-29
- 216)山上睦,箭内真寿美, 久松俊一 (2010):第3章 植物の元素集積性に関する調査研究 平成20年度環境科学技術研究所年報 http://www.ies.or.jp/japanese/research/seikaH20pdf/3_H20.pdf
- 217) Yamamoto, T., K. Tanaka and K. Kadosige. (1994): Patterns of soil-nitrogen release in paddy fields of warm regions in Japan and diagnosis of fertilizer application. 3. Evaluation of amount of soil-nitrogen supplied from paddy fields in relation to rice yield. *Japanese Journal of Crop Science*, **63**, 411-417

- 218) Yushkov, P.I. (2000): Accumulation and distribution of Sr-90 and Cs-137 in birch in the zone affected by liquid discharge from the Beloyarskaya Nuclear Power Plant. *Russian Journal of Ecology*, **31**, 90-95
- 219) Zhu, Y.G. and E. Smolders. (2000): Plant uptake of radiocaesium: a review of mechanisms, regulation and application. *Journal of Experimental Botany*, **51**, 1635– 1645
- 220) Zhu, Y.G. and G. Shaw. (2000): Soil contamination with radionuclides and potential remediation. *Chemosphere*, 41, 121–128
- 221) Zygmunt, J., Chibowski, S. and Klimowicz, Z. (1998): The effect of sorption properties of soil minerals on the vertical migration rate of cesium in soil. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **231**:57–62.

Behavior of radiocaesium in soil-plant systems and its controlling factor: A review

Noriko Yamaguchi, Yusuke Takata, Kentaro Hayashi, Satoru Ishikawa, Masato Kuramata, Sadao Eguchi, Seiko Yoshikawa, Atsushi Sakaguchi, Kei Asada, Rota Wagai, Tomoyuki Makino, Ikuko Akahane and Syuntaro Hiradate

Summary

Radionuclides released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant of Tokyo Electric Power Company widely spread to the environment and severely damaged Japanese agricultural sector. Radiation exposure likely continues for a long time due mainly to radioactive caesium which has long half-life (¹³⁴Cs: 2.06 y, ¹³⁷Cs: 30.2 y). Once deposited to soil, radioactive caesium first adsorbs on soil surfaces and a fraction of the adsorbed caesium dissolves into soil solution. The dissolved caesium transfers to plants via root uptake and some of it translocate to edible parts of the plants. Only a minuscule fraction of adsorbed caesium dissolves into soil solution because of strong affinity of radioactive caesium ion to soil particles. The strong affinity of caesium with soil minimizes the radioactive contamination of agricultural products, however effective removal of radioactive caesium from soil is difficult. In forest and other semi-natural ecosystems, large fractions of radioactive caesium are present in relatively mobile forms due to active biological recycling. The mobile caesium in forests can transfer into nearby agricultural lands via fluvial processes. It is therefore necessary to account for the dynamics of radioactive caesium at watershed scale. In this article, we review the behavior of radioactive caesium in agricultural ecosystem and other plant-soil systems as well as its controlling factors. In addition, we summarize the potentially-viable techniques for the removal of radionuclides in agricultural lands and discuss the balance between effectiveness and possible (or potential) side-effects of each technique.