

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

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 独立行政法人 農業環境技術研究所 公開日: 2019-12-20 キーワード: 作成者: 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 メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.24514/00002996

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*・平館俊太郎****

(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 (^{134}Cs , 2.06年、 ^{137}Cs , 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。

目 次

I	はじめに	76	2	土壌中における NH_4^+ の動態	90
II	土壌中のCsの挙動と福島の土壌汚染状況	78	(1)	大気-植物-土壌-土壌微生物系における N循環	90
1	はじめに	78	(2)	土壌中における NH_4^+ の生成および消費	92
2	土壌中におけるCsの存在形態	78	1)	無機化による NH_4^+ の生成および有機化に よる NH_4^+ の消費	92
3	土壌中の負電荷に対するCsの吸着メカニズム	80	2)	硝化による NH_4^+ の消費	92
4	Csの吸着に関わる主な土壌構成成分	83	(3)	土壌中における NH_4^+ の挙動	93
5	Csの吸着に関わる土壌構成成分の分布	85	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
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	IV	植物のCs吸収メカニズム、植物種・品種間差	94
(1)	福島県の土壌の特性	87	1	はじめに	94
(2)	福島県の農地土壌の放射能汚染状況	88	2	Cs吸収に関わる生理メカニズム	94
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			

* (独) 農業環境技術研究所 土壌環境研究領域

** (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	1 はじめに ……………	109
4 Csの体内挙動と分布 ……………	96	2 森林生態系への放射性Csのインプットと循環 …	109
5 Cs吸収・集積における植物間差、品種間差 …	97	3 森林土壌表層における放射性Csの挙動 ……………	110
V 土壌・地下水・流域における放射性Csの輸送		4 森林土壌から樹木などへの放射性Csの移行 …	111
過程 ……………	99	5 森林生態系におけるCsの長期動態を規定する	
1 はじめに ……………	99	要因 ……………	111
2 土壌中における ¹³⁷ Csの輸送 ……………	100	6 森林生態系におけるKの循環 ……………	112
(1) 土壌の ¹³⁷ Cs鉛直分布に基づく移動速度 …	100	VII 農地における放射性Csの除染対策 ……………	112
(2) 溶存態 ¹³⁷ Csの輸送過程:移流分散式の適用 …	100	1 はじめに ……………	112
(3) コロイド担体輸送による ¹³⁷ Cs輸送 ……………	105	2 各対策方法について ……………	112
3 地下水中の ¹³⁷ Cs輸送 ……………	107	(1) 物理的手法 ……………	112
4 流域内での面的 ¹³⁷ Cs輸送 ……………	107	(2) 化学的手法 (肥料・資材の施用) ……………	114
(1) 大気から地表面への不均一な ¹³⁷ Cs供給 …	107	(3) ファイトレメディエーション ……………	115
(2) 水食と ¹³⁷ Cs輸送 ……………	107	(4) 土壌洗浄 ……………	116
(3) 風食と ¹³⁷ Cs輸送 ……………	108	(5) 電気修復法 ……………	117
5 今後の課題など ……………	108	引用文献 ……………	118
VI 森林生態系における放射性Csの動態 ……………	109	Summary ……………	129

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見える。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

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 Bq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γ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

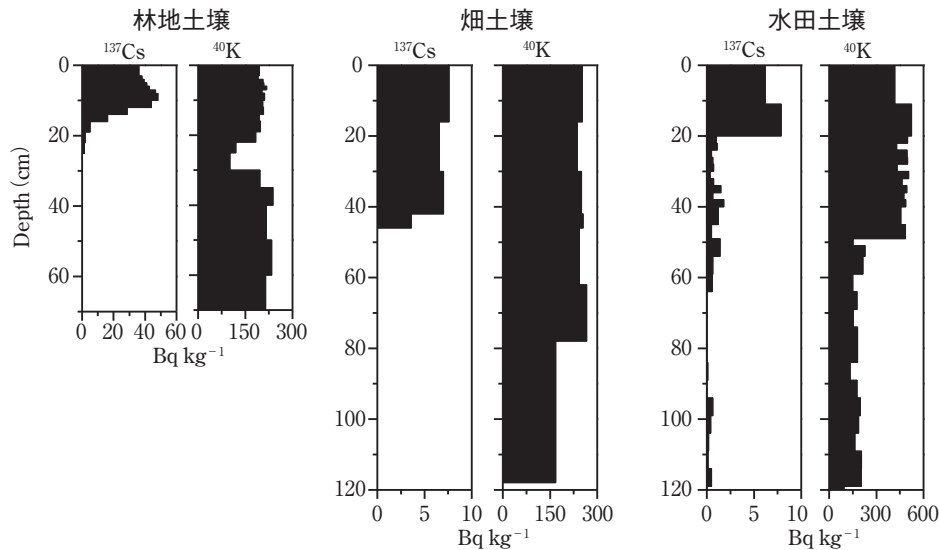


図1-1 東電原発事故前の農業環境技術研究所内林地（黒ボク土1999.6.14採取）、畑地（黒ボク土1998.2.16採取）、水田土壌（細粒質灰色低地土1992.2.25採取）における¹³⁷Csの深度分布

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^s (1 Bqの¹³⁷Csは、 3×10^{-13} gに、¹³⁴Csは 2×10^{-14} g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、 ^{137}Cs 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）、雨が深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 ^{137}Cs 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 NH_4^+ 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 NH_4^+ 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。

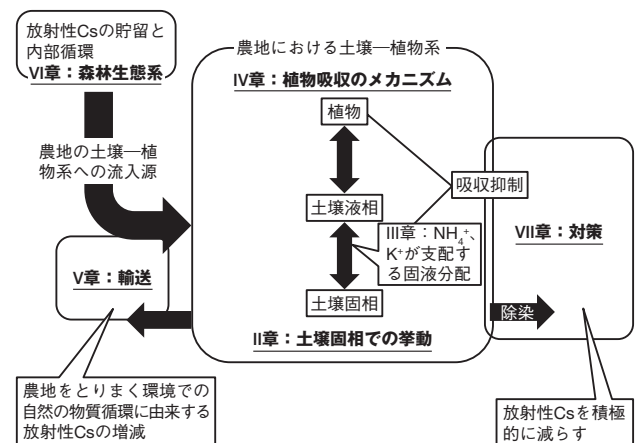


図1-2 本総説の構成

II 土壌中のCsの挙動と福島県の土壌汚染状況

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

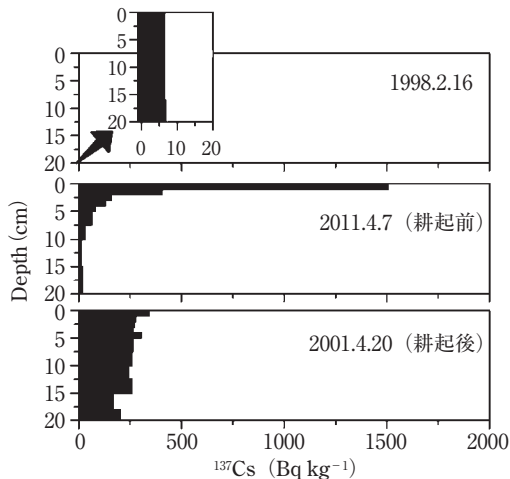


図2-1 農業環境技術研究所内黒ボク土畑地における東電原発事故前後および耕起前後の ^{137}Cs の深度分布

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、 ^{137}Cs 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かかわらず、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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）。

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、鈹質土壌（Alfisol）ではフォールアウト由来の ^{137}Cs 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%、粘土鈹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 NH_4 塩が必要である。 NH_4 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鈹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 $0.45 \mu\text{m}$ 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。

$$RIP(\text{mol kg}^{-1}) = K_c^{FES}_{(Cs-K)} \times [FES] \quad (\text{式2-1})$$

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)。

$K_c^{FES}_{(Cs-K)}$ は次式で定義される。

$$K_c^{FES}_{(Cs-K)} = \frac{\text{FESに吸着した}^{137}\text{Cs濃度}}{\text{吸着平衡溶液中}^{137}\text{Cs濃度}} \times \frac{\text{吸着平衡溶液中K濃度}}{\text{FESに吸着したK濃度}} \quad (\text{式2-2})$$

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-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之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。

$$K_c^{FES}_{(Cs-K)} = \frac{\text{FESに吸着した}^{137}\text{Cs濃度}}{\text{吸着平衡溶液中}^{137}\text{Cs濃度}} \times \frac{\text{吸着平衡溶液中K濃度}}{[FES]} \quad (\text{式2-3})$$

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 $K_c^{FES}_{(Cs-K)}$ 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 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は土壌のパ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)。

$$K_d = RIP / (C_K + 5C_{NH4}) \quad (\text{式2-4})$$

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_c 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_c kg⁻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、非放射性的の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

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）

土壌構成成分名	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 ⁻	○	×
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）	MOH	○	×
・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）	MOH	○	×
・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）	MOH	○	× or △
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	○	×
バイデライト	Tet	○	△~○
ノントロナイト	Tet	○	△~○
(b) パーミキュライト族鉱物（単位胞あたりの電荷：0.6~0.9）			
2八面型パーミキュライト	Tet, Oct	○	○
3八面型パーミキュライト	Tet	○	○
(c) 雲母族鉱物			
2八面型雲母（主に白雲母）	Tet	○	△~○
3八面型雲母（主に黒雲母）	Tet	○	△~○
(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	○	×、△~○
クロライト・パーミキュライト中間体（Al-パーミキュライト）	MOH、パーミキュライト	○	△~○
ゼオライト	Tet	○	本文参照

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。

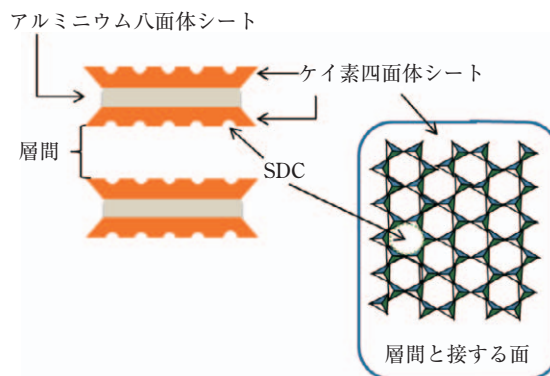


図2-2 ケイ素四面体6個で構成されるリングの中央部にできる空間的くぼみ（Siloxane Ditrigonal Cavity: SDC）

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、相互作用が強くなる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出来るイオンである。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には取まらない。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^+ 、 NH_4^+ 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、パーミキュライト、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。

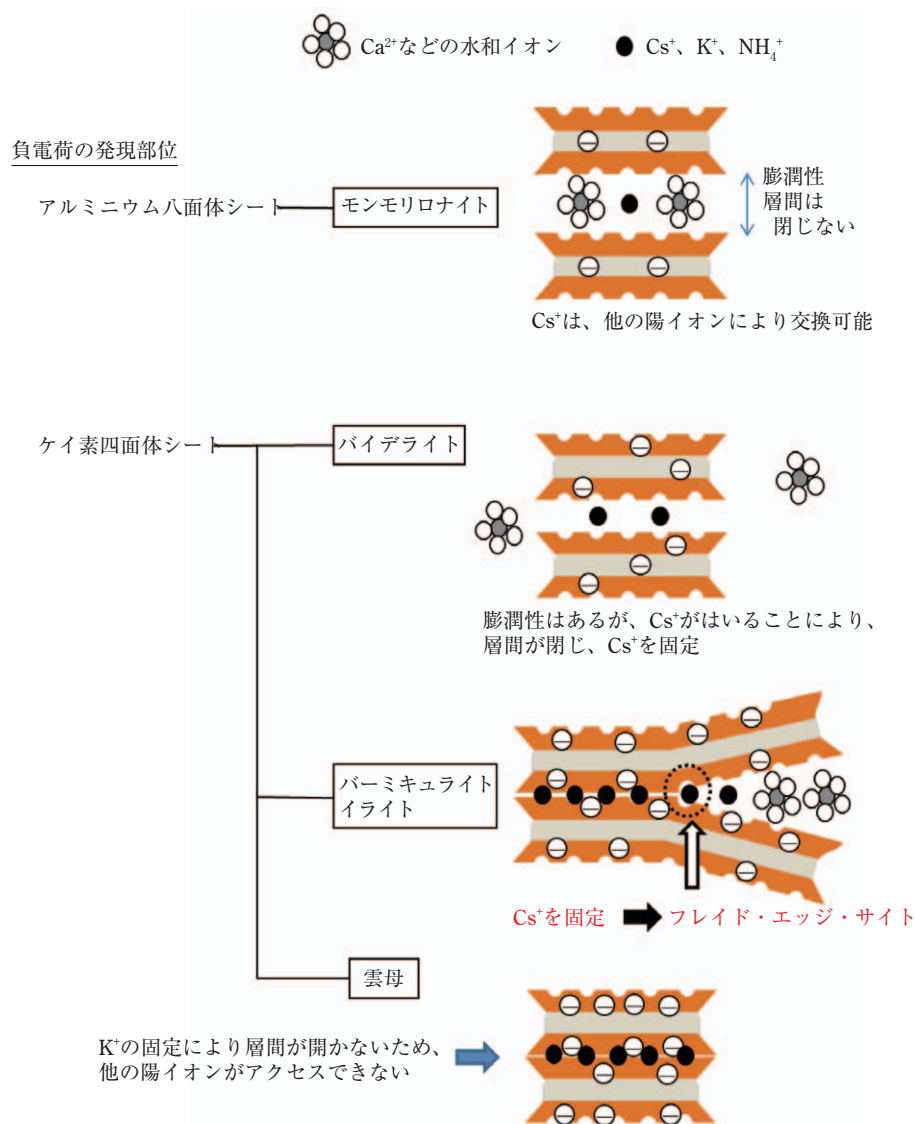


図2-3 2:1型層状ケイ酸塩鉱物の同形置換由来の負電荷への Cs^+ の吸着

表2-2 天然に産する主なゼオライト

	代表的な化学組成 ¹⁾	Si/Alモル比	カチオン交換容量 ²⁾ cmol _c kg ⁻¹
斜プチロル沸石 (Clinoptilolite)	[Al ₆ Si ₃₀ O ₇₂] ⁶⁻	4.3-5.3	220
輝沸石 (Heulandite)	[Al ₈ Si 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 ₈ Si ₁₆ O ₄₈] ⁸⁻	1.8-2.3	420
エリオン沸石 (Erionite)	[Al ₉ Si ₂₇ O ₇₂] ⁹⁻	3.0-3.5	320
十字沸石 (Phillipsite)	[Al ₅ Si ₁₁ O ₃₂] ⁵⁻	1.7-2.4	380
モルデン沸石 (Mordenite)	[Al ₈ Si ₄₀ O ₉₆] ⁸⁻	4.2-5.0	220

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生している。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)およびパ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3八面体パ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Alが含まれていることが固体²⁷Al NMRスペクトルにより観測されることから(平館, 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、パ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)、パ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。

土壤腐植物質が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、土壤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⁺と土壤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成す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、土壤有機物が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)。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、少量ではあるがパーミキュライトが含まれており、このパーミキュライトが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、

他の鉍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型層状ケイ酸鉍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型層状ケイ酸塩鉍物の中でも、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。このような鉍物は、スメクタイト族鉍物の中でもバイデライトとノントロナイト、パーミキュライト族鉍物、雲母族鉍物、1.4 nm中間種鉍物が相当する。

なお、これらCs固定能を持った鉍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量よりも鉍物の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鉍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鉍物は、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)、パーミキュライト、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 cm⁻² 1,000 y⁻¹ (3.6~7.1 mm 1,000 y⁻¹)、大陸の内陸部が乾燥した最終氷期で1.9~3.2 g cm⁻² 1,000 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型層状ケイ酸塩鉍物の起源としては、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、主にパ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パ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中間種鉍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壤中における含量を考慮すると、Cs固定量はおよそ $0.01\sim 10\text{ cmol}_e\text{ kg}^{-1}$ 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壤中 ^{137}Cs 濃度として採用された $5,000\text{ Bq kg}^{-1}$ 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、累積土壤の場合、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壤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壤も十分にあり得るため、土壤からの放射性Csの除染を考える場面などでは、土壤構成成分を十分に把握する必要があるだろう。

どの土壤にCs固定能力の高い鉱物が含まれているかは、土壤図に記載されている土壤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壤であり、アロフェンやイモゴライトもほとんど生成してない土壤であることから、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壤であるが、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、かつ多量の土壤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を土壤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壤であり、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、長期間土壤化作用を受けてきた土壤であり、この中でも長期

間地形面が安定的に保たれた土壤では、風成塵の影響を非常に強く受けていると考えられる。このような土壤では、降下したCsのほとんどが土壤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壤(沖積土壤)では、河川上流の地質や土壤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、土壤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。

6 福島県の土壤の特性および農地土壤中の放射性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壤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壤の除染である。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、汚染農地土壤などにおける表土の削り取り、水による土壤攪拌・除去、反転耕による汚染土壤の埋め込み、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壤攪拌・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、低汚染地域では土壤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、土壤中の放射性Cs濃度の分布状況に応じた除染や作物

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）

土壌群	水田			普通畑			樹園地		
	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

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 ^{134}Cs と ^{137}Cs 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($5,030 \text{ Bq kg}^{-1}$)、次いで中通り($1,828 \text{ Bq kg}^{-1}$)、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、 ^{134}Cs および ^{137}Cs 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 ^{134}Cs および ^{137}Cs 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 ^{134}Cs と ^{137}Cs 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。 ^{134}Cs と ^{137}Cs 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 ^{134}Cs と ^{137}Cs 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 ^{134}Cs : ^{137}Cs 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)			中通り (N=189)			会津 (N=57)		
	^{134}Cs	^{137}Cs	$^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$	^{134}Cs	^{137}Cs	$^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$	^{134}Cs	^{137}Cs	$^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$
最小値	85	71	156	16	18	35	N.D.	N.D.	N.D.
最大値	13,243	14,854	28,029	3,886	4,681	8,567	885	1,030	1,915
中央値	842	1,023	1,865	758	877	1,627	102	125	224
平均値	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

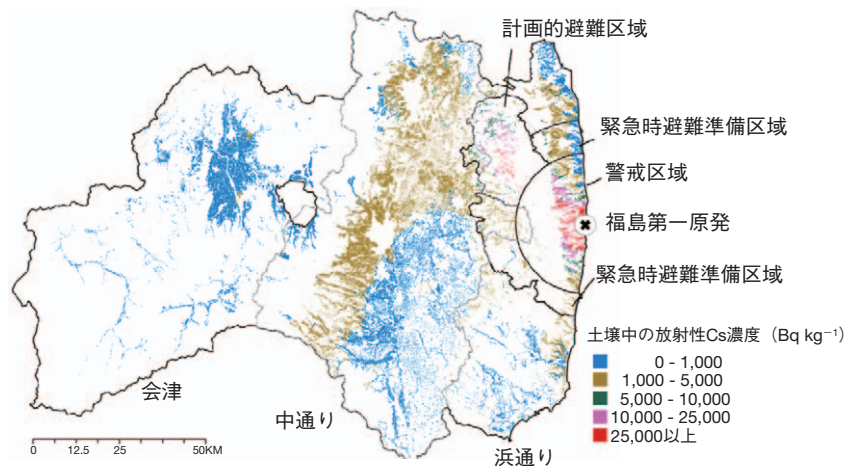


図2-4 農地土壌中の放射性Cs濃度推計図（農林水産省(2011c)のプレスリリース資料を一部改定)

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

すい形態で土壤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 $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 未満、 $5,000 \sim 10,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 、 $10,000 \sim 25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 、および $25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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)。水による土壌攪拌・除去、表土削り取り、反転耕による除染が推奨される $5,000 \sim 10,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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 $10,000 \sim 25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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 $25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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、 $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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 $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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。

Ⅲ 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、 NH_4^+ および K^+ の影響がとくに大きい。これは、 NH_4^+ 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 NH_4^+ や K^+ よりも高いものの、高濃度の NH_4^+ 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、 NH_4^+ 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(NH_4NO_3)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 NH_4^+ 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(図3-1)。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 NH_3 と NH_4^+ の相違について整理しておく。 NH_3 は常温で気体の代表的な還元型N化合物である。 NH_3 は水溶性が高く、水溶液中ではプロトン(H^+)を取り込んで NH_4^+ を生成しやすい。 NH_3 による H^+ の取り込みおよび NH_4^+ による H^+ の放出は平衡しており、 H^+ が豊富であるほど NH_4^+ の生成が進む。すなわち、液相のpHが低いほど液相中で NH_4^+ が生成しやすい。逆に、液相のpHが上昇すると NH_4^+ からの H^+ の解離が進行し、液相中で生成した NH_3 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 $20 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 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、 NO_3^- の地下への溶脱、大気への NH_3 揮散、および硝化・脱窒の一連の過程を通じた分子窒素 (N_2)、一酸化窒素 (NO)、および一酸化二窒素 (N_2O) の放出である。加えて、土壌粒子に結合した形で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。 NH_3 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 NH_3 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 NO_3^- 、 NH_4^+ 、およびアミノ酸などの低分子含

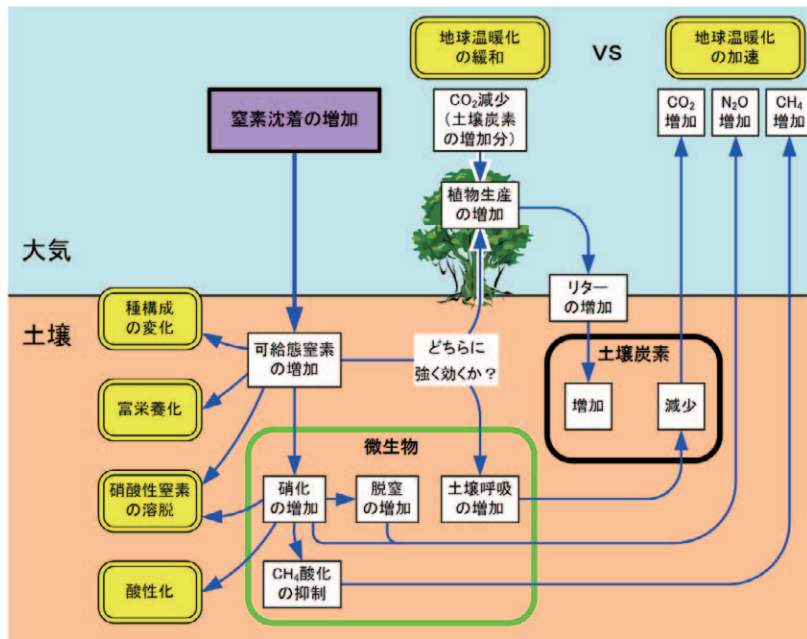


図3-1 窒素沈着の増加がもたらす影響
窒素沈着を窒素負荷に置き換えても同様である

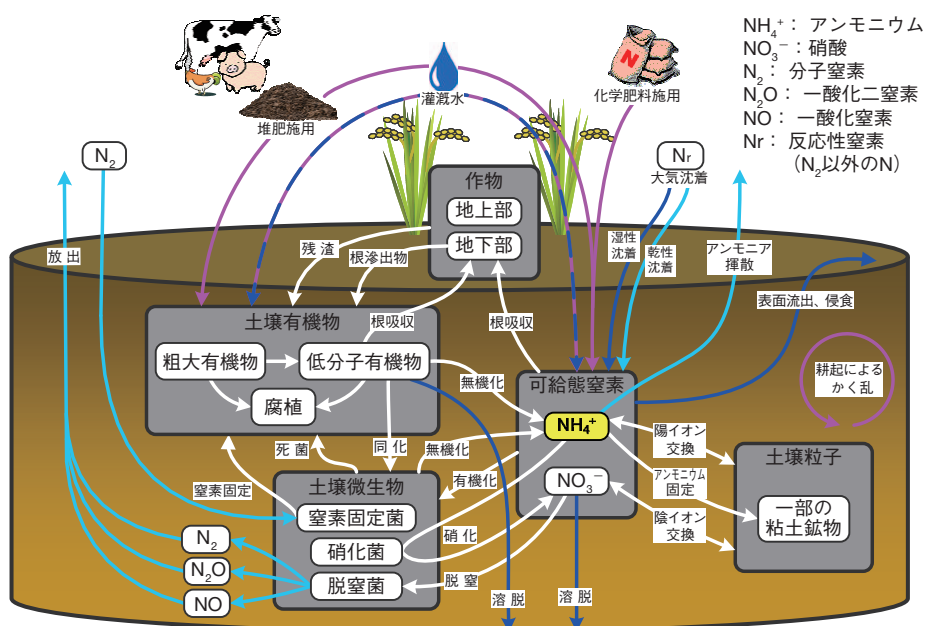


図3-2 農地における窒素循環
赤線：人為的な過程、青線：水の動きとの関連が強い過程、淡青線：大気との交換過程

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) 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る (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狀態に変化していく。ただし、表層約1 cmの厚さでは好氣的狀態が保たれる (Kyuma, 2004)。Nishio (1994)の培養実験では、好氣的狀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、好氣的狀態でのNの形態変化は嫌氣的狀態に比べて10~100倍速かった。このように、好氣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、水田土壌が嫌氣的狀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)。

2) 硝化によるNH₄⁺の消費

硝化は、NH₄⁺を亜硝酸 (NO₂⁻) に酸化する過程 (アンモニア酸化) とNO₂⁻をNO₃⁻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 NH_4^+ の挙動

吸着および固定反応にともなう NH_4^+ 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 NH_4^+ を可給態Nとして速やかに利用可能である。

固定された NH_4^+ の一部は、水稻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 NH_4^+ は比較的脱着されやすい(Scherer, 1993)。固定された NH_4^+ 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 NH_4^+ 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 NH_4^+ 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 NH_4^+ 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 NH_4^+ 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 NH_4^+ 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

NH_4^+ 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 NH_4^+ 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 $0.3\sim 20\text{ mg kg}^{-1}$ (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 $80\sim 37,000\text{ mg kg}^{-1}$ (中央値: $14,000\text{ mg kg}^{-1}$)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 $20,000\text{ mg kg}^{-1}$)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($10,000\text{ mg kg}^{-1}$ 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雲母や長石が、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 $\mu\text{mol L}^{-1}$ レベルで植物の生育を抑制するのに対し、Csは約 $200 \mu\text{mol L}^{-1}$ 以下まで植物に対する毒性がない (White and Broadley, 2000)。非放射性の ^{133}Cs 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 γ 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 ($0.2\sim 0.5 \text{ mmol L}^{-1}$ 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 $2 \mu\text{mol L}^{-1}$ であるのに対し、システムIIでは $200\sim 300 \mu\text{mol L}^{-1}$ 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 (K_m 値として $8 \mu\text{mol L}^{-1}$) 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 $200 \mu\text{mol L}^{-1}$ 以下で作動する2つの高親和性システム (K_m : $1.18 \mu\text{mol L}^{-1}$ と $63.5 \mu\text{mol L}^{-1}$) 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 NH_4^+ 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 $10 \mu\text{mol L}^{-1}$ 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 NH_4^+ 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 ($100 \mu\text{mol L}^{-1}$) の 1 価の陽イオンによる Cs 吸収抑制を比較すると、 $\text{Li}^+ \ll \text{Na}^+ < \text{NH}_4^+ < \text{Rb}^+ \ll \text{K}^+$ 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 $250 \mu\text{mol L}^{-1}$ 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 NH_4^+ 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)。 Ca^{2+} や Mg^{2+} 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 ^{137}Cs を固定したパ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、ハウレンソウ) を栽培し、固定態 ^{137}Cs の作物吸収をみた。その結果、与えた ^{137}Cs 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、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、ハウレンソウなどで 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。ハ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 $10 \text{ mmol L}^{-1} \text{ Cs}^+$ 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、 $10 \text{ mmol L}^{-1} \text{ Cs}^+$ 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 $300 \mu\text{mol L}^{-1} \text{ Cs}^+$ 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 NH_4^+ 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、実際の土壤中のK濃度 ($10 \mu\text{mol L}^{-1}$ や 1mmol L^{-1}) やCs濃度 ($0.1 \mu\text{mol L}^{-1}$ や $10 \mu\text{mol L}^{-1}$)、細胞質内のK濃度 (70mmol 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、導管を經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が見つまっている。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經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は導管を經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。ここでは水稻内での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 ^{137}Cs を添加しポットで水稻を栽培した結果、各組織における ^{137}Cs 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稻の ^{133}Cs 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 ^{133}Cs 分布は、根 (3%) <白米 (7%) = 籾殻 (7%) <糠 (10%) <稲わら (73%) であり、 ^{137}Cs 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 $^{137}\text{Cs}/\text{K}$ や $^{133}\text{Cs}/\text{K}$ 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、ハ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 (500Bq 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)。水稻栽培では、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 ^{137}Cs と ^{89}Sr を水稻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、 ^{89}Sr 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、 ^{137}Cs 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、 ^{89}Sr 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 ^{137}Cs と ^{90}Sr 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 ^{137}Cs と ^{90}Sr 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 ($^{90}\text{Sr} < ^{137}\text{Cs}$) があった。 ^{137}Cs 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 ^{90}Sr 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 vulgaris*)、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

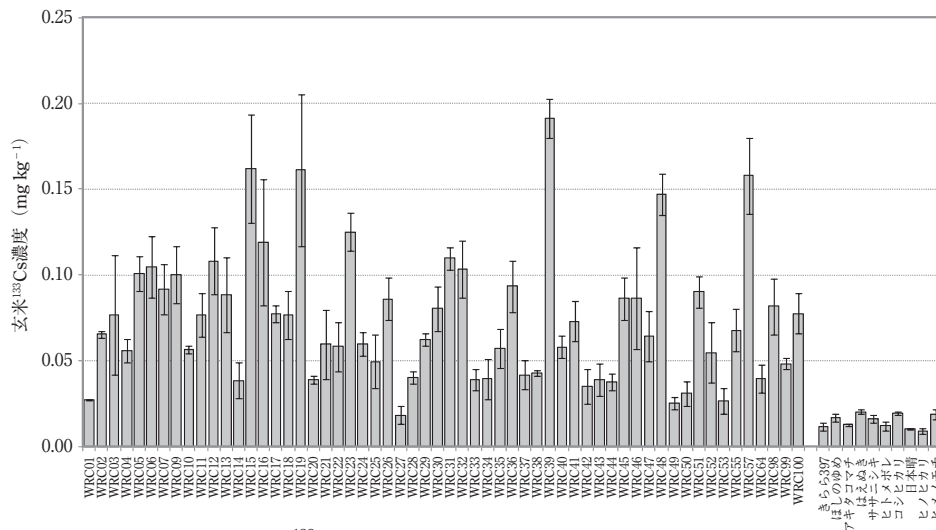


図4-1 玄米中¹³³Cs濃度の比較（風乾重あたり）
2009年、農業環境技術研究所内圃場での栽培（石川ら、未発表）

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} 、 $80 \text{ kg-P}_2\text{O}_5 \text{ ha}^{-1}$ 、 $80 \text{ kg-K}_2\text{O ha}^{-1}$ 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ため、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 $0.018 \sim 0.158 \text{ mg kg}^{-1}$ 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($0.0092 \sim 0.0201 \text{ mg kg}^{-1}$)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、本結果と水稻における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吸収は土壤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がある。また、本データは土壤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が土壤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 $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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の土壤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は穎花に行きやすいことが示唆されているため (Myttenaere et al., 1969)、土壤に固定した放射性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

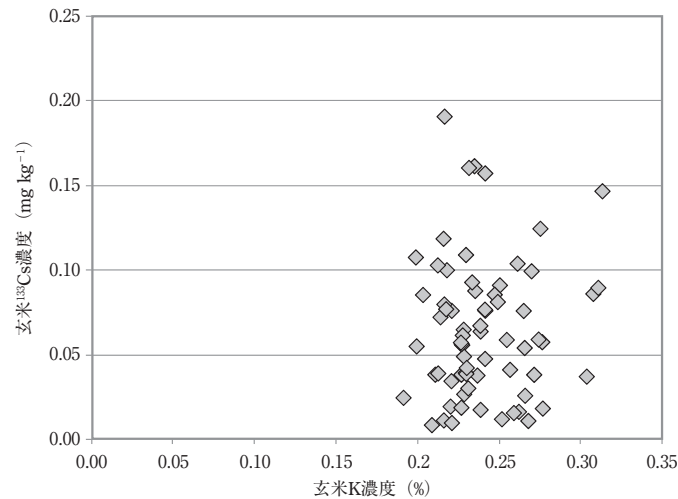


図4-2 同一水田内で栽培した水稻70品種の玄米中におけるCs濃度とK濃度の関係
2009年、農業環境技術研究所内圃場での栽培（石川ら、未発表）

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 Bq 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 ^{137}Cs （グローバルフォールアウト ^{137}Cs ）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 ^{137}Cs も環境中に残存している。これまで、環境中における ^{137}Cs 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

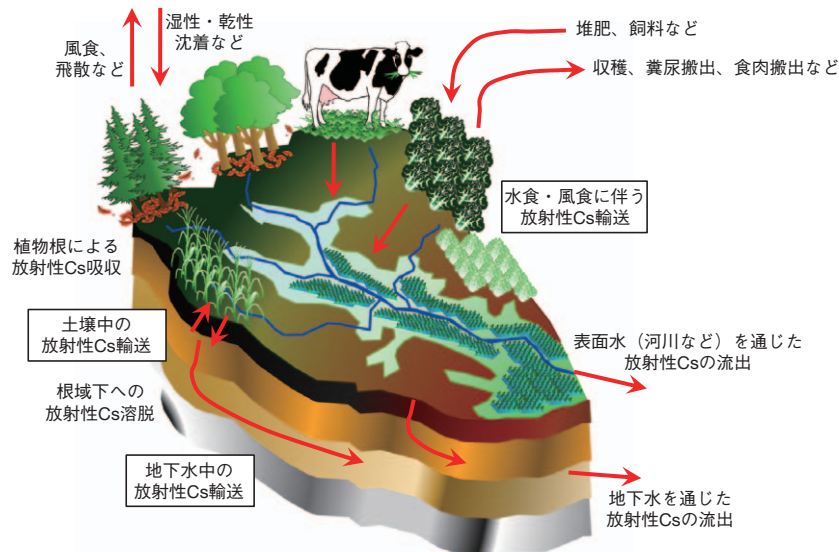


図5-1 集水域内における放射性Cs動態の概要

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 ^{137}Cs の輸送

(1) 土壌中の ^{137}Cs 鉛直分布に基づく移動速度

Migration rate (移動速度) は、地表面へ ^{137}Cs 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、 ^{137}Cs 濃度の鉛直分布を測定した結果から、土壌中における ^{137}Cs 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)。

$$V_{av} = \frac{d_{1/2}}{t} \quad (\text{式5-1})$$

ここで、 V_{av} は移動速度 (L T^{-1})、 t は経過時間 (T)、 $d_{1/2}$ は土層全体に含まれる全 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs の移動速

度を整理した。土壌中における ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 濃度分布調査の結果、 ^{137}Cs 移動速度は1年目で $0.5 \sim 1.0 \text{ cm y}^{-1}$ 、2年目以降は $0.2 \sim 0.6 \text{ cm y}^{-1}$ 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; 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 ^{137}Cs 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の動態を把握する上で必要である。この他にも、 ^{137}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 ^{137}Cs の輸送過程: 移流分散式の適用

土壌中に存在する ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 $0.4 \mu\text{m}$ フィルターで濾過したもの) 中の ^{137}Cs 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、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs が実際に土壌液相中に存在し、明瞭な深さ別・季節別の变化を示しながら、土壌中を輸送されていることを実証し

表5-1 土壌中の¹³⁷Csの鉛直下方への移動速度

引用元	土壌採取した年	土壌	移動速度 (cm y ⁻¹)	粘土 (%)	シルト (%)	砂 (%)	有機物含量 (%)
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
		シルト質壤土	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)→0.06('92)→0.24('94) ³⁾	42	43	15	12.7 ⁴⁾
		泥炭土	1.00('87)→0.23('94) ³⁾	-	-	-	37.3 ⁴⁾
		泥炭土	1.00('87)→0.17('92)→0.59('94) ³⁾	-	-	-	26.7 ⁴⁾
		プレーリー土	0.60('87)→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)→0.32('94) ³⁾	5-10	56-57	34-38	1.3-4.1 ⁴⁾
		未熟土	0.47('87)→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	シルト質壤土	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)→0.4('97)→0.4('98) ³⁾	6	14	79	1.5
		砂壤土	1.8('97)→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	重植土	0.102-0.295	48	27	25	3.6

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 ($L^3 L^{-3}$)、 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 ($L^2 T^{-1}$)、 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。

$$D_s = \frac{D}{R} \quad (\text{式5-3})$$

$$v_s = \frac{v}{R} \quad (\text{式5-4})$$

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 ($L T^{-1}$) である。さらに、遅延係数 R は以下のように表される。

$$R = 1 + \left(\frac{\rho}{\theta} \right) K_d \quad (\text{式5-5})$$

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。

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

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	最小値	最大値			
K_d (L kg ⁻¹)	土壌類型別	全土壌	469	1.2×10^3	7.0	4.3	3.8×10^5		
		砂質土壌	114	5.3×10^2	5.8	9.6	3.5×10^4		
		壤質土壌 + 粘質土壌	227	3.7×10^2	3.6	3.9×10^1	3.8×10^5		
		有機質土壌	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	3.8×10^5		
		D_s (cm ² y ⁻¹)	チェルノブイリ 原発事故由来	全土壌	31	0.22	3.1	0.02	1.9
				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		
	砂質土壌	3	0.13	5.9	0.04	1.0			
v_s (cm y ⁻¹)	チェルノブイリ 原発事故由来	全土壌	31	0.18	3.3	0.0	0.9		
		砂質土壌	11	0.15	1.7	0.07	0.6		
		壤質土壌	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		
		壤質土壌	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		

¹⁾ RIP: Radiocaesium interception potential
IAEA (2010) より抜粋

$$K_d = \frac{S}{c} \quad (\text{式5-6})$$

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、土壤中の¹³⁷Cs輸送が移流分散式に従う (すなわち、溶存状態で輸送される) 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

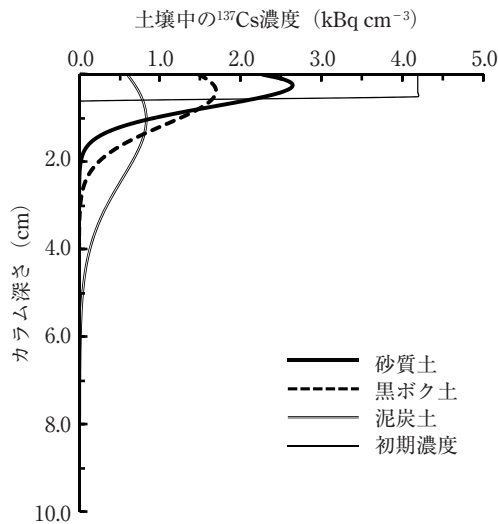


図5-2 自然気象条件下でのカラム土壌中の¹³⁷Csの土層内分布の計算値。津村ら(1984)の実験は、東京都北区西ヶ原、旧農業技術研究所内の放射線管理区域で行われた。

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_d 、 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

土壌名	層位 (cm)	¹³⁷ Cs (%)	
		実測値	推定値
砂質土	0~2	95.0	99.8
	2~4	4.7	0.2
	4~9	0.3	0.0
	計	100.0	100.0
盛岡土壌 (黒ボク土)	0~2	90	95.9
	2~4	9.6	4.1
	4~9	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 K_d 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 K_d 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、 K_d が時間と共に増大すること、すなわち、 ^{137}Cs 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 ^{134}Cs 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 ^{137}Cs は 0.1 cm y^{-1} であった (Bossew and Kirchner, 2004)。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8 km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、 $0.14\sim 0.23\text{ cm y}^{-1}$ および $0.035\sim 0.074\text{ cm}^2\text{ y}^{-1}$ 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 ^{137}Cs 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 ($0.202\text{ cm}^2\text{ y}^{-1}$)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 ^{137}Cs 輸送は、選択流の影響を強く受ける。選択流路の ^{137}Cs 濃度は、土壌マトリクスの ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 吸収が、土壌中の ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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、鉍物質土層の ^{137}Cs 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 ^{137}Cs の物質循環を考える上で大きな値であり、雨滴侵食によって鉍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 ^{137}Cs の年崩壊量 41.9 Bq m^{-2} に対して、上方への ^{137}Cs 年輸送量は、 15.6 Bq m^{-2} もあったという (Fukuyama et al., 2005)。ここで、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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5 mm~1 cm) 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も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 ^{137}Cs 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、 $13 \times 1.2 \times 10^3 \times 0.40 = 6,240 \text{ Bq m}^{-2}$ 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

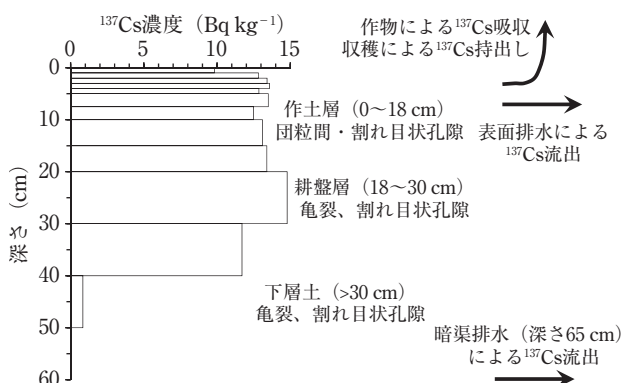


図5-3 重粘土質転換畑ガイズ連作圃場 (新潟県上越高田)におけるバルク土壌中の¹³⁷Cs濃度鉛直分布 (Eguchi et al. (2010) より改変・加筆)

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

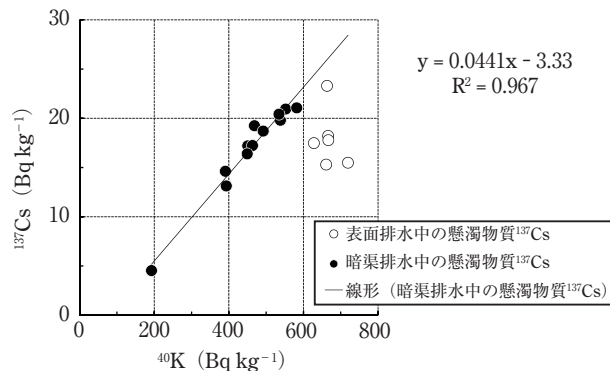


図5-4 重粘土質転換畑圃場 (新潟県上越高田)からの暗渠排水及び表面排水水中に含まれる懸濁態粒子の¹³⁷Cs及び⁴⁰K濃度の関係 (江口ら, 未発表)

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 (VandenBygaert 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 ^{137}Cs は、流域の土壌侵食量の推定に広く用いられてきた。この ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 存在量を基準とし、対象地点の ^{137}Cs 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、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 ^{210}Pb も測定し、深さと $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ 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 ^{137}Cs 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樣でなく水みちを通し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 (Hakanson 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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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、 ^{137}Cs 減少速度が3倍も遅いことの原因については、森林による ^{137}Cs 吸収 (内部循環) が大きいかもしれない (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こと、土壌侵食が生じやすい。表層土壌に固定化されている ^{137}Cs 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、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 流出も考えられる。今後、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 8 m s^{-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 ($> 5\text{ m s}^{-1}$) 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)。

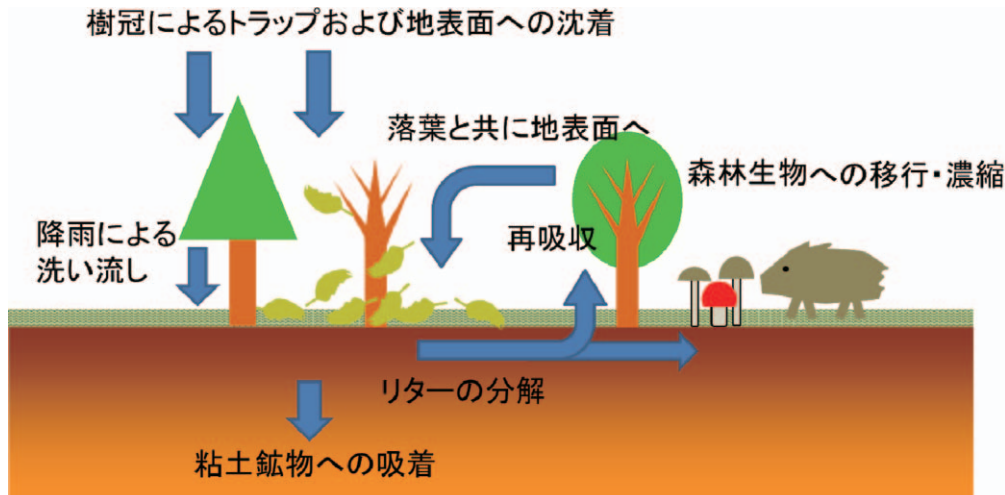
このほか、黒ボク土については、土壌水分10%では風速 $4\sim 5\text{ m s}^{-1}$ で風食が発生し、水分30%以上では 10 m s^{-1} でも風食が生じにくいこと (野口・川田, 1987)、栃木県内の実験では、黒ボク土表土の水分が4%程度のときは風速 $3\sim 4\text{ m s}^{-1}$ で飛び始め、水分16%のときは $5\sim 6\text{ m s}^{-1}$ で飛び始めること (日本農業気象学会, 1954)、北関東のローム土壌 (黒ボク土) では、含水率5%のときは風速 (地表面からの高さ1 mにおける風速) 6 m s^{-1} 、含水率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 $0.1\sim 0.3\text{ mm}$ 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 $5\sim 8\text{ m s}^{-1}$ 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、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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。

VI 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の動態を模式的に示した。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、

あるいは土壤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。樹木から土壤への放射性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年間に土壤へインプットされた放射性Csは、樹冠通過雨経由が $65 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、リターフォール経由が $45 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、降雨由来は過大評価の可能性もあるが $28 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であった (Rafferty et al., 2000)。地表面に降下した放射性Csは、主に鉍物質土壤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壤では、 ^{137}Cs 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、農耕地土壤に比べて森林土壤では放射性Csの土壤下層への移行速度は遅いことを示しており、これは森林土壤では耕起などによる攪乱が少ないこと、また森林土壤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壤では、事故由来 ^{137}Cs (8.3 kBq m^{-2}) の8割が土壤表層の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 ^{137}Cs 濃度が顕著に低い。ほとんどの ^{137}Cs 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、鉍物質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壤においてO層から0~20 cmの鉍物質層までの ^{137}Cs 移動速度を調べたところ、いったんOa層から鉍物質層へ ^{137}Cs が移動すると、その後の ^{137}Cs の下方移動速度は上がることが示されており、土壤表層においては鉍物質粒子への固定反応よりも微生物や根の活動

が ^{137}Cs 移動を規定している可能性がある (Bunzl et al., 1995)。

土壤表面に移行した放射性Csの多くは、Kと共に土壤表層に張り巡らされた根から吸収され、再び植物体内に移行する。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。森林土壤には、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 (Biological 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、溶脱や表層土壤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 森林土壤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、土壤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・枯死などによる土壤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の土壤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壤では交換態K濃度が低い場合があり、植物はK不足を補うため、土壤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 CO_2 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、土壤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 NH_4^+ 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、生物あるい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 ^{137}Cs 汚染土壌でレタスを栽培した結果、土壌からレタスへの ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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比べ、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 $\text{m}^2 \text{kg}^{-1}$ となる。

$\text{TF}_{\text{ag}} = [\text{植物中あるいは林産物中の放射性核種濃度 (Bq kg}^{-1})] / [\text{単位地表面積あたりに沈着した放射性核種の総量 (Bq m}^{-2})]$ (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 $70 \times 10^{-6} \sim 480 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$ 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 ($6,200 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$) 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 ($1,400 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$) 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ストゥイム事故（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 $570 \times 10^{-6} \sim 10,000 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$ （最小~最大）、落葉樹の材で $470 \times 10^{-6} \sim 6,200 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$ 、葉および1年目の針葉で $1,500 \times 10^{-6} \sim 21,000 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$ 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 $100 \sim 7,000,000 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$ 、食用小果実であるベリー類で $10,000 \sim 100,000 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$ 、猟獣で最大 $800,000 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ dry wt}$ であった。

東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 TF_{ag} 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、また土壌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 ^{137}Cs 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、好氣的な土壌 (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、 ^{137}Cs 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、 $19\sim 120 \text{ kg ha}^{-1}$ 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 $7.1\sim 9.3 \text{ kg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、温帯広葉樹林で $16.0 \text{ kg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、照葉樹林で $25.0 \text{ kg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 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。

VII 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 (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

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

	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。

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5 cm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 $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 以下、 $5,000 \sim 10,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 、 $10,000 \sim 25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 、および $25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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 $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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、 $5,000 \sim 10,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ の農地については、地目や土壌の条件を考慮した上で、水による土壌攪拌・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。 $0 \sim 15 \text{ cm}$ の平均濃度が $10,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ を超えると、深さ30 cmの反転耕によって $5,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 未満にすることが困難になるため、 $10,000 \sim 25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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。 $25,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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 $5,550 \text{ Bq kg}^{-1}$ となることから、除染技術の適用に関する

る考え方は農林水産省とは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の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→莖葉部→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(K_d)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稻の放射性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、当面は十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、pH 3からpH 8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 (Phytotransformation)	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。最近では、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浄化後はすぐに水稻もしくは転換畑作物を栽培できることを考慮に入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_siryu.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、 ^{137}Cs の植物濃縮係数(BF: Bioconcentration factor、土壌と植物体間の ^{137}Cs 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 Bq m^{-2} 、アオゲイトウ: $3,225 \text{ Bq m}^{-2}$)であり、少なくとも鉍物質土壌からの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 mays* 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 ^{137}Cs 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、 $13,600 \text{ Bq kg}^{-1}$ 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($9.17 \text{ 時間} \sim 11.7 \text{ 時間 } 10 \text{ a}^{-1}$)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 NH_4^+ 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) 土壌洗浄

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、②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(ϕ 2 μm 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(パ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15ml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回繰り返す、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がる(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 (Na_3PO_4)、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 ^{137}Cs 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、 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs の除去効率は10%低下した。これは、電解質試薬と ^{137}Cs 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
- 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 ^{137}Cs in the soil of sloping semi-natural ecosystems in Northern Greece. *Journal of Environmental Radioactivity*, **77**:133-142
- 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)
- 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)
- 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 ^{137}Cs and ^{40}K in edible mushrooms collected in Japan and radiation dose due to their consumption. *Health Physics*, **72**, 384-389
- Bertl, A., J.D. Reid, H. Sentenac and C.L. Slayman. (1997): Functional comparison of plant inward-rectifier channels expressed in yeast. *Journal of Experimental Botany*, **48**, 405-413
- Bixio, A.C., G. Gambolati, C. Paniconi, M. Putti, V.M. Shestopalov, V.N. Bubljas, 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., A.J. 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
- 25) 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. Ariososa 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) Ehlsen, 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 ^{137}Cs 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壤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
- 87) 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, J.J. 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. 日本土壤肥科学雑誌, **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壤肥料学的研究. 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壤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、麦および土壤における ^{90}Sr と ^{137}Cs 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 ^{137}Cs 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 Ca^{2+} 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 bench-scale 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 higher plants (2nd Ed.), p. 5. Academic Press. London
- 106) 松坂泰明, 白井昭登, 今泉吉郎 (1962): 水稻のカリ欠乏に関する研究(第3報) カリ欠乏水稻の養分吸収および代謝の異常性について(その2). 日本土壌肥科学雑誌, **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.
- 111) 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-. 日本土壌肥科学雑誌, **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 radiocaesium 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, 田野井慶太郎, 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, B.J. Barkla, P.J. 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
- 140) 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). *日本土壌肥科学雑誌*, **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). *日本土壌肥科学雑誌*, **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. *日本土壌肥科学雑誌*, **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, 齋藤元也, 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 $\text{NH}_4\text{-N}$ - 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, 田野井慶太郎, 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). *日本土壌肥科学雑誌*, **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

- 170) 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鉍物に対する作物のカリウム吸収反応. 日本土壤肥科学雑誌, **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. 日本土壤肥科学雑誌, **76**, 43-47
- 177) Szabo, G., J. Gucci 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壤因子. 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): 土壤に添加された 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): Transfer of radiocaesium and stable caesium from substrate to mushrooms in a pine forest in Rokkasho-mura, 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 and 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. *日本土壌肥科学雑誌*, **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. p 1-166 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 radiocaesium 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 variable- and 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 (^{134}Cs : 2.06 y, ^{137}Cs : 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.