

8. 堆肥肥料中の放射性セシウムの農作物への影響

に関する研究

○勝亦正明（神奈川県衛生研究所）、高山順子（神奈川県衛生研究所）

【研究目的】

福島第一原発事故により放射性セシウム(Cs)が広域に放出され、微量ながら農作物からも検出されている。農作物の放射性 Cs 汚染の原因として土壌由来がある。しかし、土壌に吸着した放射性 Cs は他の陽イオンと置換しづらいため、土壌中の放射性 Cs の農作物への移行率は低いという報告がある[1-2]。一方、腐植物質(分解された落葉などの高分子化合物)に吸着した放射性 Cs は他の陽イオンと置換しやすい[1]。よって腐植物質から放射性 Cs の溶出により農作物への腐植物質由来の放射性 Cs の汚染が推定される。実際に我々の研究では、放射性 Cs が土壌から低 pH 溶液(酸性雨に近い pH 値)に溶出するのを確認しており、土壌中の放射性 Cs の農作物への移行の一部を腐植物質が担っている可能性があると考えている。

農作物への放射性 Cs の汚染として、土壌だけでなく堆肥肥料による影響も考えられる。堆肥肥料には福島第一原発事故により飛散した放射性 Cs を含むことが報告されている[3]。堆肥肥料は分解された植物組織、すなわち腐植物質を多く含むと考えられる。よって土壌中の腐植物質と同様に放射性 Cs が雨水により堆肥肥料から溶出し、農作物へ移行すると考えられる。

一方、肥料中の放射性 Cs には肥料中の植物組織の内部に取り込まれていて、溶出しないものも存在すると考えられる。木の葉などを含む堆肥肥料は土壌中で分解されて農作物に吸収されるので、堆肥肥料中に含まれる溶出しない放射性 Cs は分解の工程を経てゆっくり農作物へ移行する可能性が考えられる。

本研究では現在市販されている堆肥肥料の放射性 Cs を調べ、さらに肥料中から溶出される放射性 Cs や分解された肥料中の放射性 Cs の農作物への寄与を明らかにする。

【研究の必要性】

福島第一原発事故により、堆肥肥料の放射性 Cs の暫定許容値が設定され、肥料の放射性 Cs のモニタリングが続けられている。現在では暫定許容値より十分低い値が報告されるようになった。しかし、土壌中放射性 Cs の汚染に比べて、肥料中放射性 Cs 汚染の研究データは少ない。さらに、腐植物質を含む堆肥肥料に吸着している放射性 Cs の土壌への溶出の影響を調べた研究はない。本研究では肥料の放射性濃度や土壌への溶出の影響を明らかにすることで、肥料中の放射性 Cs の農作物への移行の理解への一助になる。

【研究計画】

1. 肥料中の放射性 Cs の濃度測定

堆肥肥料には腐葉土（ケヤキやブナなどの広葉樹の落ち葉や枝を積み重ね発酵させたもの）やバーク堆肥（針葉樹や広葉樹の樹皮を発酵させたもの）などの植物性のものと牛糞、豚糞、鶏糞などの動物性のものに分けられる。動物性の堆肥肥料にも腐植物質が含まれていると考えられるので、市販の植物性の堆肥肥料と動物性の堆肥肥料を購入し放射性 Cs 濃度を測定する。また、比較として市販の堆肥肥料以外の肥料を購入し放射性 Cs 濃度を測定する。購入した肥料を 105°C で乾燥し、乾燥重量あたりの放射性 Cs の濃度(Bq/kg)をゲルマニウム半導体検出器で測定する。

2. 肥料から溶出される放射性 Cs の測定

肥料から放射性 Cs が溶出される割合（溶出率）を調べるために、酸性雨に模した水(神奈川県の水の平均 pH4.6 に調整したもの)で放射性 Cs の溶出を行い、溶出したものの放射性 Cs を測定する。堆肥肥料の溶出率から農作物中の放射性 Cs について堆肥肥料の寄与を調べる。

3. 分解された肥料中の放射性 Cs の測定

堆肥肥料中の放射性 Cs に対して、分解されたものの中に含まれる放射性 Cs の割合（分解率）を調べるために、土壌中での堆肥肥料の分解の代用として水酸化ナトリウムを用いて肥料を分解し、分解された肥料中の放射性 Cs を測定する。堆肥肥料の分解率から農作物中の放射性 Cs について堆肥肥料の寄与を調べる。

【実験方法】

1. 肥料中の放射性 Cs の測定方法

肥料を 105°C で乾燥させ粉砕器で粉砕したものを乾燥試料とする。その乾燥試料を U8 容器（高さ 5 cm 直径 47mm の円柱のプラスチック容器）に入れ、ゲルマニウム半導体検出器で放射性 Cs 濃度 A_a (Bq/kg dry)を測定した。

2. 酢酸バッファー水溶液を用いた溶出方法

酸性雨に模した水として 0.1 M 酢酸(AcOH)水溶液と 0.1 M 酢酸ナトリウム水(AcNa)溶液を 0.51 : 0.49 で混ぜた酢酸バッファー水溶液 pH4.6、800 mL を用意した。実際の酸性雨は土壌の pH の影響を受けるため、酢酸バッファー水溶液の肥料中放射性 Cs への溶出効果は実際の酸性雨に比べ高くなると考えられる。本研究では雨水による溶出を過大評価するために酢酸バッファー水溶液を用いて肥料中の放射性 Cs の溶出を行った。乾燥試料を W_{a1} (kg)とり、酢酸バッファー水溶液にいれ 1 日間攪拌した。その後、1 日静置し、上澄み液から肥料を遠心分離機(5000 rpm、20 min)で分離し、さらにアドバンテック社製メンブレンフィルター（仕様:A045A047A、材質:セルロース混合エステルタイプ、孔径:0.45 μ m、直径 47 mm）で分離した。分離後の溶液に熱をかけ蒸発させ濃縮した。その濃縮溶液を U8 容器に入れ恒温槽で乾固させたものを測定試料とする。その測定試料をゲルマニウム半導体検出器で測定した。溶出率を以下のとおり計算した。

$$\text{溶出率} = (A_b \times W_b) / (A_a \times W_{a1}) \quad (1)$$

W_b と A_b はそれぞれ乾固させた測定試料の重量(kg)と放射性 Cs 濃度(Bq/kg)である。

3. 水酸化ナトリウム水溶液による分解方法

0.5 M 水酸化ナトリウム(NaOH)水溶液と 0.1 M ピロリン酸ナトリウム($\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$)水溶液を用意し 1:1 で混ぜ、それを 800 mL 用意し、分解溶液とする[4]。乾燥試料を W_{a2} (kg)とり、分解溶液にいれ 1 日間スターラーで攪拌した。硝酸で中和後、1 日静置し上澄み液から肥料を遠心分離機で分離し、さらに桐山ルート用ろ紙(型番: No4、材質: セルロース、保留粒子径 1 μm 、直径 60 mm) で分離する。溶出方法と同じフィルターを用いない理由は分解された肥料がフィルターで詰まったためである。分離後の溶液に熱をかけ蒸発させ濃縮した。その濃縮溶液を U8 容器に入れ恒温槽で乾固させたものを測定試料とする。その測定試料をゲルマニウム半導体検出器で測定した。分解率を以下のとおり計算した。

$$\text{分解率} = (A_c \times W_c) / (A_a \times W_{a2}) \quad (2)$$

W_c と A_c はそれぞれ乾固した測定試料の重量(kg)と放射性 Cs 濃度(Bq/kg)である。

【実施内容・結果】

1. 肥料中の Cs-137 濃度測定の結果

植物性の堆肥肥料(腐葉土とバーク堆肥)と動物性の堆肥肥料(牛糞、鶏糞、豚糞)の Cs-137 濃度(Bq/kg)を調べた。参考として化成肥料、石灰、なたね油かすなど堆肥肥料以外の肥料の放射性 Cs を測定した。各々の肥料の Cs-137 濃度の測定結果を表 1 と図 1 に示す。

表 1 肥料中の Cs-137 濃度

肥料の種類	分類	濃度(Bq/kg)	3 σ 未満をND	
001化成肥料	堆肥肥料以外	0.4 \pm 0.3	ND(1.4 σ)	
002化成肥料		-0.2 \pm 0.2	ND(-1 σ)	
003化成肥料		0.1 \pm 0.3	ND(0.5 σ)	
012石灰		-0.1 \pm 0.1	ND(-1.2 σ)	
011なたね油かす		0.8 \pm 0.3	ND(2.3 σ)	
006腐葉土	植物性堆肥肥料	66.2 \pm 0.9	検出(77 σ)	
007腐葉土		20.8 \pm 0.7	検出(29 σ)	
004バーク堆肥		60.7 \pm 1.3	検出(48 σ)	
005バーク堆肥		79.5 \pm 1.2	検出(69 σ)	
008バーク堆肥		47.1 \pm 0.9	検出(55 σ)	
009バーク堆肥		25.9 \pm 0.9	検出(30 σ)	
010牛糞		動物性堆肥肥料	9.4 \pm 0.4	検出(22 σ)
015牛糞			9.0 \pm 0.3	検出(26 σ)
013鶏糞			0.4 \pm 0.2	ND(1.6 σ)
014豚糞	0.5 \pm 0.3		ND(1.8 σ)	

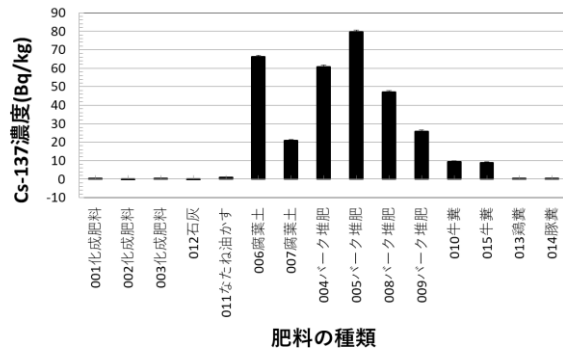


図 1. 肥料の種類と Cs-137 濃度

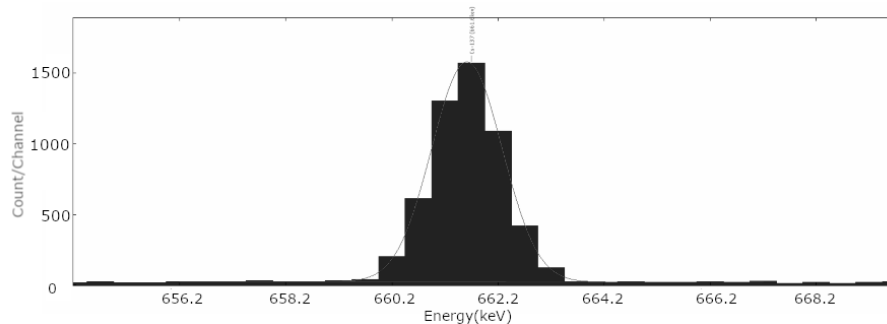


図 2. "005 バーク堆肥"をゲルマニウム半導体検出器で測定した Cs-137 のスペクトル

ここで、放射性 Cs 濃度が 3σ 未満であるときを不検出(ND)とした。例として図 2 にゲルマニウム半導体検出器で測定した試料のうち”005 バーク堆肥”の Cs-137 のスペクトルを示した。Cs-137 ピークの半値幅は 1.6 keV であった。植物性堆肥肥料の Cs-137 濃度は 20.8–79.5 Bq/kg の範囲であった。動物性堆肥肥料中 Cs-137 濃度は牛糞では 9.0–9.4 Bq/kg、鶏糞と豚糞では不検出であった。堆肥肥料の放射性 Cs 濃度は基準値 400 Bq/kg 未満であり十分低いことが確認された[5]。動物性堆肥肥料の試料数は少ないが、動物性の堆肥肥料の Cs-137 濃度は植物性の堆肥肥料のものに比べ低い傾向があった。

参考として堆肥肥料以外の 3 種類の化成肥料、石灰、なたね油かす肥料中の Cs-137 濃度を調べたが、それらの肥料の Cs-137 濃度は不検出であった。

2. 酢酸バッファー水溶液による溶出と分解溶液による分解の結果

実験方法 2、3 で記述した方法を用いて Cs-137 濃度が検出された肥料の溶出率と分解率を調べた。酢酸バッファー水溶液による溶出率の結果を表 2 と図 3 に、水酸化ナトリウムによる分解率の結果を表 3 と図 4 に示した。

腐葉土とバーク堆肥の溶出率は高いもので 4.5% であった。腐葉土とバーク堆肥の分解率は高いもので 9.2% であった。腐葉土とバーク堆肥のそれぞれの試料の分解率は溶出率に比べ高い傾向にあった。一方牛糞の堆肥肥料の溶出率と分解率はそれぞれ 62.0–67.0% と 69.1–74.3% になり、植物性の堆肥肥料の溶出率と分解率より高い。牛糞の溶出率と分解率が高い理由として以下の 2 点が考えられる。

表 2 それぞれの試料の溶出率

試料名	溶出率%
006腐葉土	0.7±0.2
007腐葉土	3.5±1.5
004バーク堆肥	4.5±0.3
005バーク堆肥	1.5±0.4
008バーク堆肥	2.0±0.3
009バーク堆肥	0.7±1.2
010牛糞	62.0±3.7
015牛糞	67.0±3.6

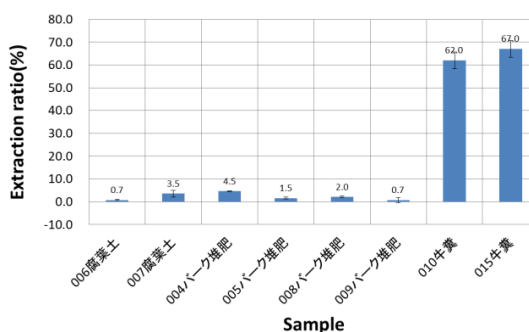


表 3 それぞれの試料の分解率

試料名	分解率%
006腐葉土	4.0±0.4
007腐葉土	5.2±2.2
004バーク堆肥	9.2±0.7
005バーク堆肥	4.8±0.5
008バーク堆肥	3.8±0.8
009バーク堆肥	6.2±1.2
010牛糞	74.3±6.7
015牛糞	69.1±4.3

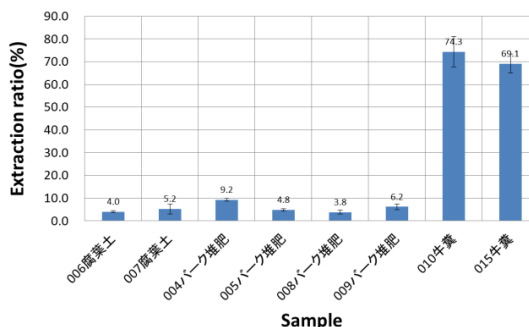


図 3. それぞれの試料の溶出率

図 4. それぞれの試料の分解率

(ア) 牛糞肥料は牛の体内で飼料が分解されたものであり、牛糞肥料中の放射性 Cs が酢酸バッファー水溶液中に溶出されやすくなったため。

(イ) 牛糞肥料は牛の体内で飼料が分解されたものであり、他の肥料に比べて牛糞肥料の粒子が小さくなり、放射性 Cs 付き肥料がろ紙を通過しやすくなったため。

3. 肥料の農作物への放射性 Cs の寄与

肥料の農作物への放射性 Cs の寄与を肥料から農作物へ Cs-137 が移行する割合(移行係数)を用いて評価した。肥料から農作物への Cs-137 の移行係数を推定するために以下のような単純なモデルを考え移行係数を計算した。肥料から農作物へ吸収される量を Tot(Veg) (Bq)、野菜に与える肥料の Cs-137 濃度を A_3 (Bq/kg)、1 つの野菜に与える肥料の重さを W_3 (kg)、溶出率または分解率を R_{extra} とすると溶出または分解された肥料の Cs-137 が農作物に吸収される割合 R_{abs} は以下のとおり計算された。

$$R_{abs} = \text{Tot(Veg)} / (A_3 \times W_3 \times R_{extra}) \quad (3)$$

肥料の農作物へ寄与する放射性 Cs 濃度 A_{Veg} 、農作物の重さを W_{Veg} とすると Tot(Veg) は以下のとおり計算された。

$$\text{Tot(Veg)} = A_{Veg} \times W_{Veg} \quad (4)$$

移行係数は以下のとおり計算された。

$$\text{移行係数} = R_{extra} \times R_{abs} \quad (5)$$

各々の農作物に対する R_{abs} が分かると様々な堆肥肥料の移行係数の推定が簡便になると考えられる。

我々は神奈川県内のほうれん草の放射性 Cs 濃度を調査している。そのデータを用いてほうれん草の移行係数の推定を行った。ほうれん草を 1 m^3 で栽培するとし、 A_{Veg} を $0.04 - 0.2 \text{ Bq/kg}$ (我々が 2012 - 2022 年に神奈川県内で調べたほうれん草の Cs-137 濃度範囲を採用した (検出下限値以下の場合を含まない。))、 A_3 を 50 Bq/kg (本研究で調査した腐葉土とバーク堆肥の Cs-137 濃度の平均値を採用した。)、 W_3 を 2 kg (本研究で使用したバーク堆肥肥料の説明書きによれば、使用量は $1 - 3 \text{ kg/m}^3$ でありその範囲の中間の値を採用した。)、 R_{extra} を 0.039 (本研究で調査した腐葉土とバーク堆肥の溶出率と分解率のすべてのデータの平均値を採用した。)、 W_{Veg} を 1.5 kg (ほうれん草の目標収穫量 1.5 kg/m^3 を採用した[6。]) とし、土壌からの放射性 Cs の寄与がないとすると、式(3)、(4)からほうれん草のパラメータ R_{abs} (ほうれん草)は $0.015 - 0.077$ と推定された。ほうれん草への移行係数を $R_{extra} \cdot R_{abs}$ (ほうれん草)とすると、推定される移行係数は $0.00077 - 0.0038$ となった。すでに土壌からの農作物への移行係数が調査されており、その報告での移行係数は $0.0006 - 0.0055$ である[2]。ほうれん草の移行係数が調査されており、その調査によるとほうれん草の移行係数は 0.0024 であった[7]。以上で示された肥料の移行係数の評価方法は他の研究による土壌の移行係数の評価方法と違うが、堆肥肥料による移行係数は土壌と近い値になった。しかし、我々が神奈川県で調査したほうれん草の放射性 Cs 濃度は肥料だけでなく土壌からの放射性 Cs の寄与も含まれているため、この移行係数の結果は過大評価と考えられた。今後堆肥肥料と

それを使用して栽培した農作物の放射性 Cs 濃度を測定すれば、正確な R_{abs} がわかり様々な堆肥肥料に対する移行係数が得られると考えられる。

【考察と今後の課題】

多種類の堆肥肥料の放射性 Cs の濃度を調べた結果、堆肥肥料の放射性 Cs 基準値 400 Bq/kg を超える堆肥肥料は確認されなかった。植物性堆肥肥料中放射性 Cs の溶出率と分解率は高いものでそれぞれ 4.5%と 9.2%であった。実際の酸性雨より高い溶出効果のある酢酸バッファー水溶液を用いたため、肥料の溶出率は過大評価と考えられる。植物性堆肥の分解率は溶出率に比べ高い傾向にあった。動物性の堆肥肥料の放射性 Cs 濃度は植物性のものと比べ低かったが、植物性の堆肥肥料に比べて動物性の堆肥肥料の溶出率と分解率は高く、動物性の堆肥肥料の溶出率と分解率はそれぞれ 62.0–67.0%と 69.1–74.3%であった。肥料から農作物への放射性 Cs の簡単なモデルを作り、ほうれん草の移行係数の評価を行った。ほうれん草の移行係数のパラメータ R_{abs} の評価は過大評価であるが、このパラメータを正確に決定することで、堆肥肥料から農作物への移行の評価が簡便になると期待される。

【参考文献】

- [1] 中尾淳 学術の動向 2012年 17巻 10号 p.10_40-10_45
- [2] 村山徹 東北農業研究センターたより 37 (2012)
- [3] 肥料中の放射性物質の検査結果について
https://www.maff.go.jp/j/syouan/soumu/saigai/hiryo_kekka.html
- [4] 市川貴大ら 土木学会論文集 No.797/VII-36,95-100,2005.8
- [5] 放射性セシウムを含む肥料・土壌改良資材・培土及び飼料の暫定許容値の設定について
<https://www.maff.go.jp/j/syouan/soumu/saigai/supply.html>
- [6] 農林水産省 主要作物の施肥基準
https://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyohozen_type/h_sehi_kizyun/miy01.html
- [7] 小林智之ら 福島県農業総合センター研究報告 放射性物質対策特集号 p.46-p.49, 2014-02

【経費使途明細】

用途		金額(円)
試料	肥料	¥3,716
器材	粉砕機	¥95,040
	強カスターラー	¥77,990
	シャーレ、メスシリンダー	¥11,935
	光電子増倍管	¥108,900
その他	事務手数料	¥2,420
合計		¥300,001
大同生命厚生事業団助成金		¥300,000
通帳作成手数料		¥1,100