

土壤及び植物中のRa-226またはフッ素のU-238との濃度関係について

Relationships between Ra-226 or Fluorine and U-238 in soil and plant

森上嘉亮, 道広憲秀, 清水光郎, 宮崎 清 (放射能科)

Yoshiaki Morikami, Kenshu Michihiro, Mitsuo Shimizu, Kiyoshi Miyazaki

【調査研究】

土壌及び植物中のRa-226またはフッ素のU-238との濃度関係について

Relationships between Ra-226 or Fluorine and U-238 in soil and plant

森上嘉亮, 道広憲秀, 清水光郎, 宮崎 清 (放射能科)

Yoshiaki Morikami, Kenshu Michihiro, Mitsuo Shimizu, Kiyoshi Miyazaki

要 旨

土壌及び植物中のU-238濃度に対してRa-226濃度及びフッ素(F)濃度との関係は、未耕土ではRa-226とは相関が認められたが、Fとは相関が認められなかった。一方、畑土ではRa-226とは相関が認められなかったが、Fとは相関が認められた。この違いは、未耕土に対し畑土では施肥されるリン酸肥料にはU-238とFが微量含まれるために、畑土壌に残存した肥料の存在を示すものであると考えられた。また、樹葉や野菜についても、それぞれ土壌と類似した傾向が見られた。特異値の平常時監視データ散布図上へのプロットや相関関係を検討評価することは、特異値の評価において、有効であることがわかった。

[キーワード：U-238, Ra-226, フッ素, 肥料, 相関]

[Key words : U-238, Ra-226, Fluorine, Fertilizer, Relationship]

1 まえがき

U-238は約45億年の半減期をもつ天然放射性核種であり、その子孫核種であるRa-226と共に、自然環境中に普遍的に存在している。岡山県では昭和54年に現独立行政法人原子力研究開発機構人形峠環境技術センター(以下「人形峠センター」)のウラン濃縮施設が運転を開始して以来、施設周辺の環境放射線等の監視測定を行っている。人形峠センターが扱う六フッ化ウラン(UF₆)の漏えいを監視するために土壌、樹葉、野菜などを採取し、項目としてはU-238, Fそして人形峠にはウラン鉱床が存在するためRa-226濃度を測定してきた。

筆者らはこれまでの測定データを整理することで、肥料の土壌や植物への影響や特異値の評価方法について新しい知見を得たので報告する。

2 調査方法

2-1 対象データ

人形峠付近に位置する、峠西、夜次、峠南、天王、赤和瀬地区で採取した畑土、未耕土、野菜、樹葉の測定結果を検討した。

土壌、樹葉については測定方法が定まった昭和56年

度から、また、野菜についてはサンプリング対象が定まった昭和58年から平成18年度までの監視測定結果を整理した。また、測定結果のうち、測定値が計数誤差の3倍を下回るものについて、推移図上では0とし、散布図上では除外した。

本調査においては、測定結果の中で、U-238に対するRa-226及びF濃度の関係をグラフにプロットするとともに、相関係数を求めた。

2-2 項目及び測定方法

試料採取方法は文部科学省編環境試料採取法に準拠した。すなわち、土壌試料は1~3kg(生)を採取し、石や植物根等を除去した後風乾し、U-238は2mm, Ra-226は50mesh, Fは100meshの篩を通した。樹葉試料である杉葉または松葉は、2年生のものを毎年6月に採取した。また、野菜は葉菜類の白菜及びほうれん草をそれぞれ収穫期にサンプリングした。植物試料はそれぞれ乾燥させ、U-238及びRa-226はさらに灰化させた後、それぞれ粉碎し、室温にて保存した。

分析・測定については以下の方法を用いた。

U-238：文部科学省編ウラン分析法に準拠

Ra-226：文部科学省編ラジウム分析法に準拠

F：ふっ素イオン電極法に準拠

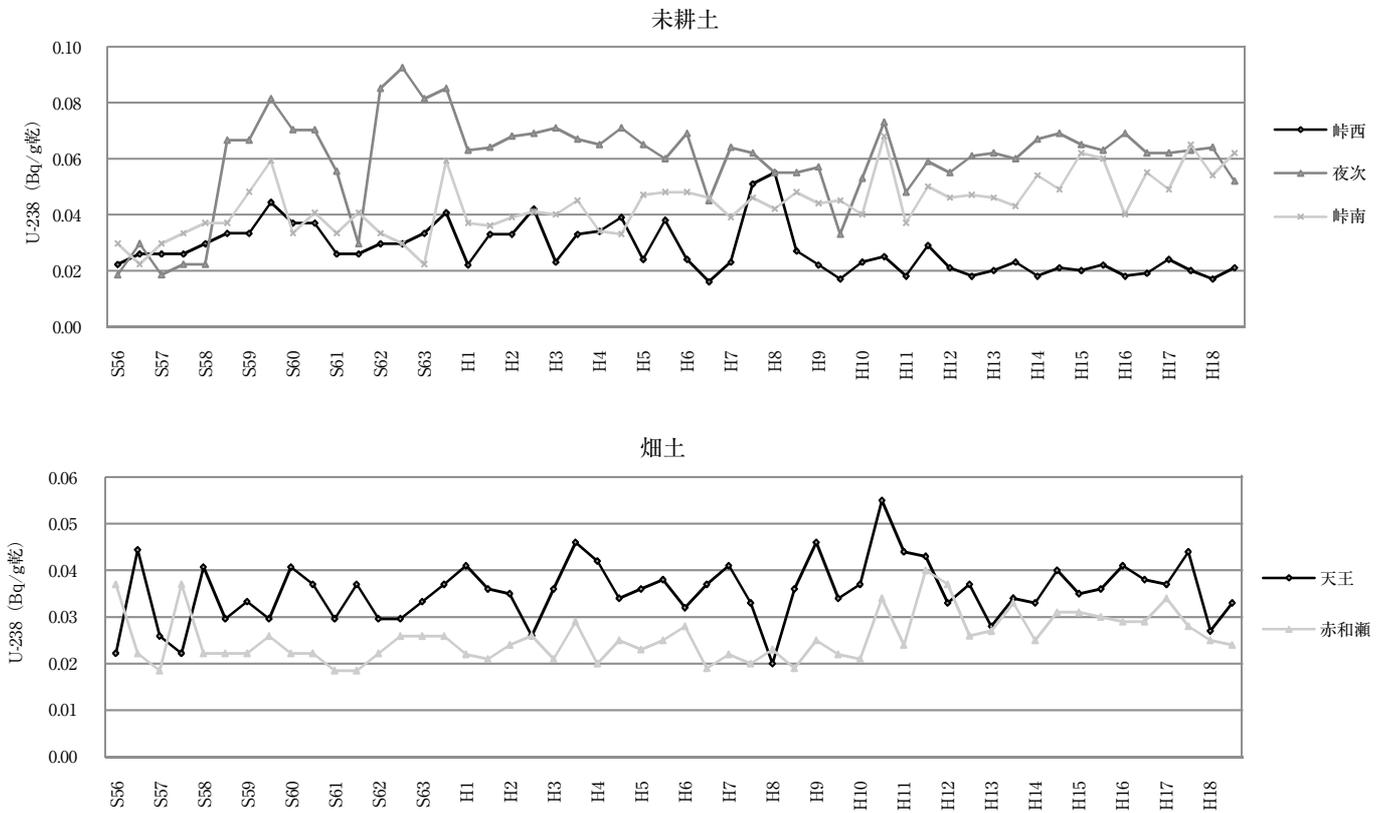


図1 土壤中U-238濃度の推移図

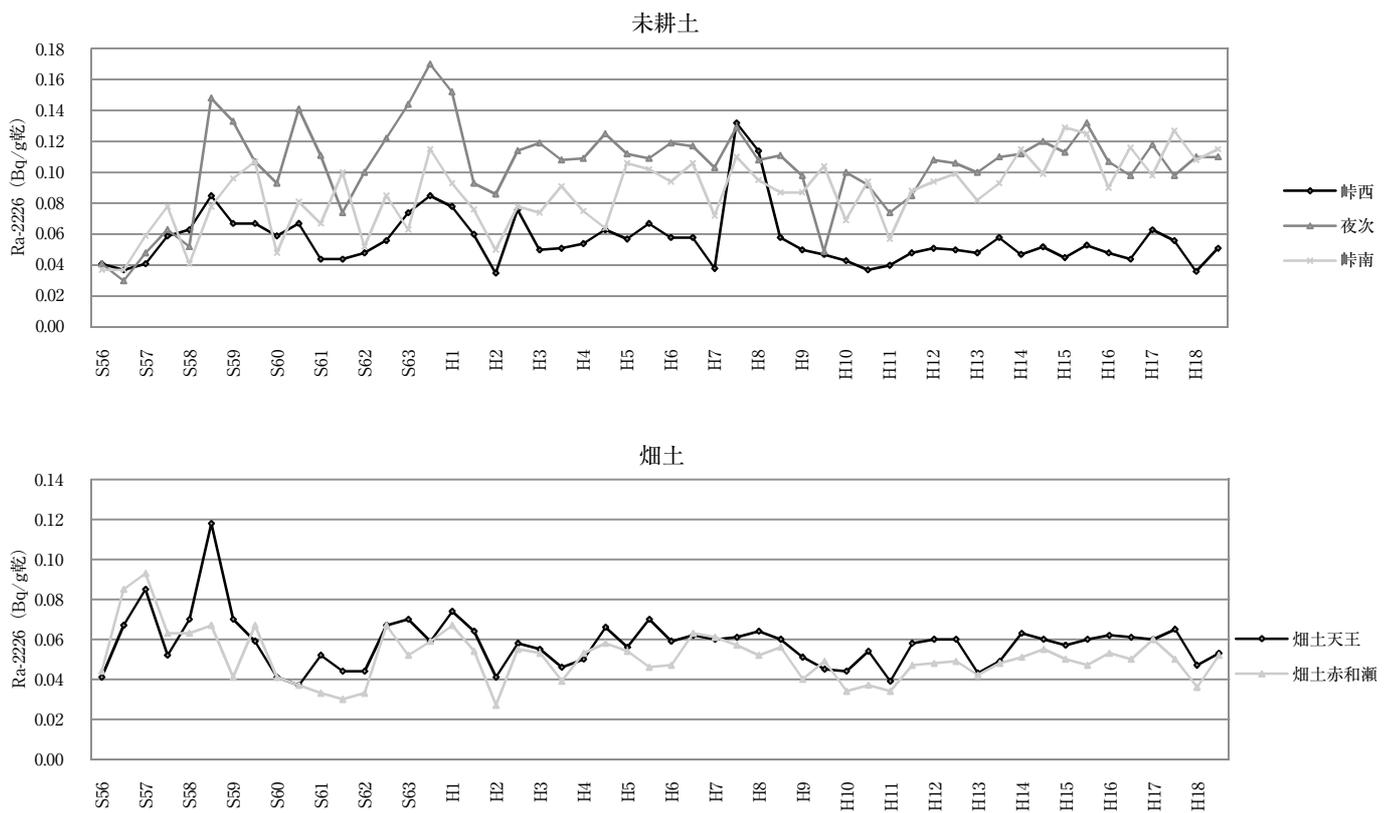


図2 土壤中Ra-226濃度の推移図

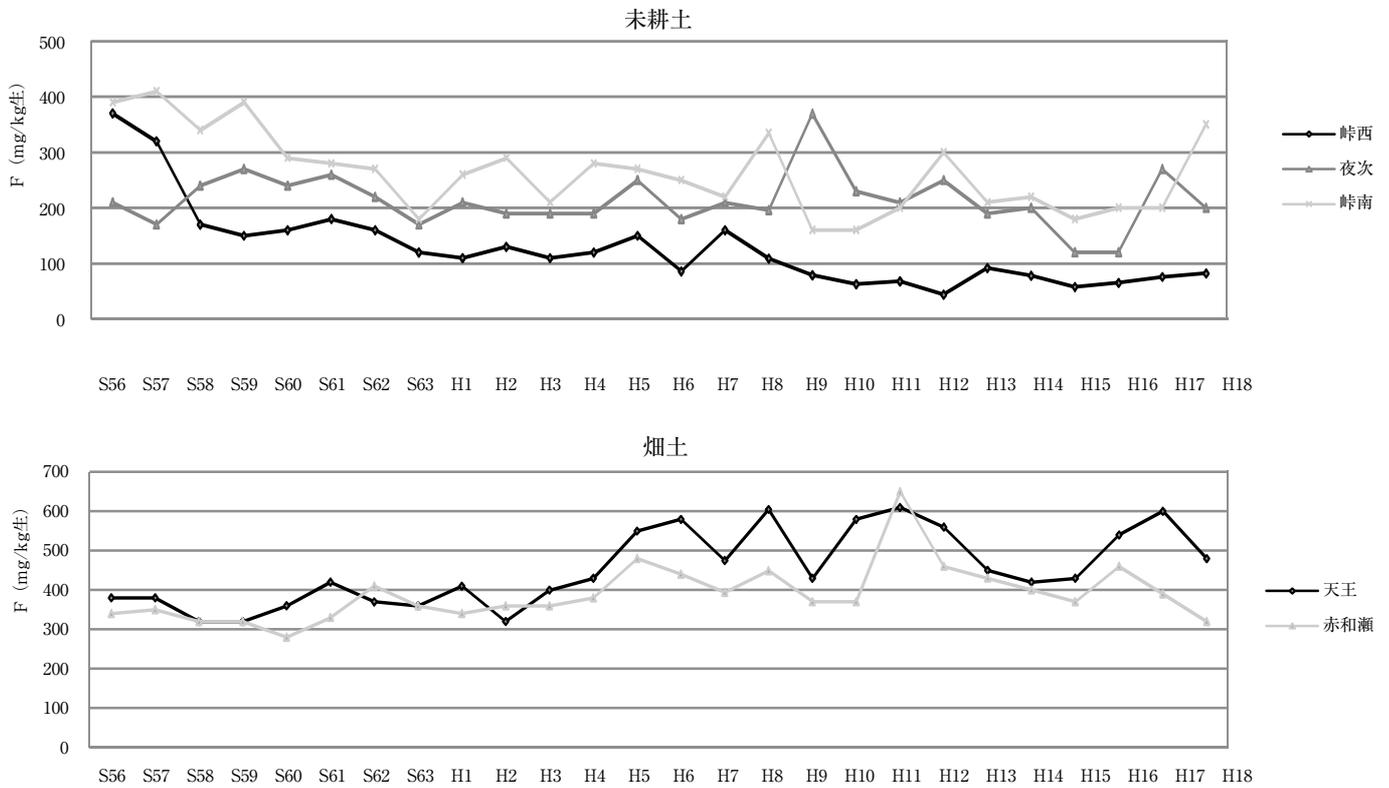


図3 土壤中F濃度の推移図

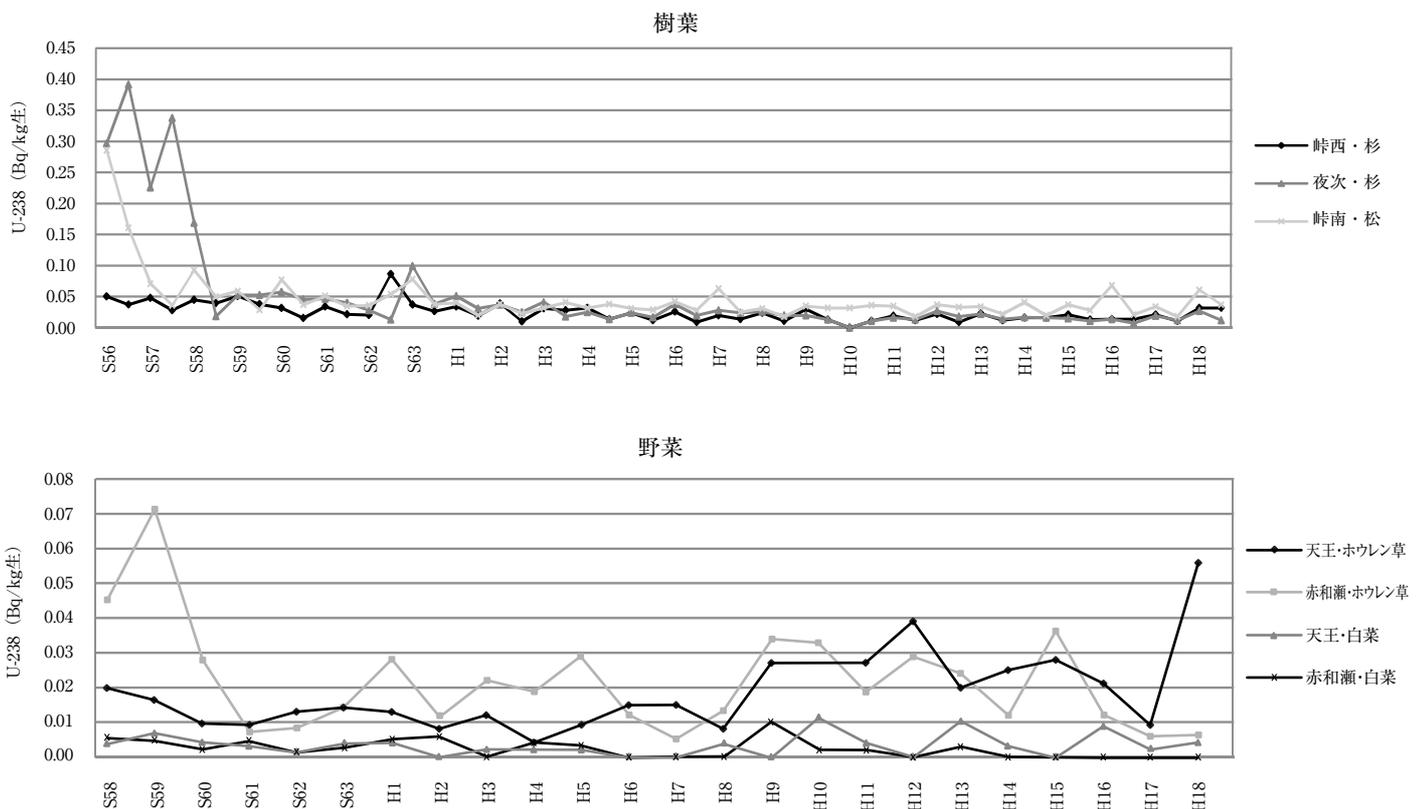


図4 植物中U-238濃度の推移図

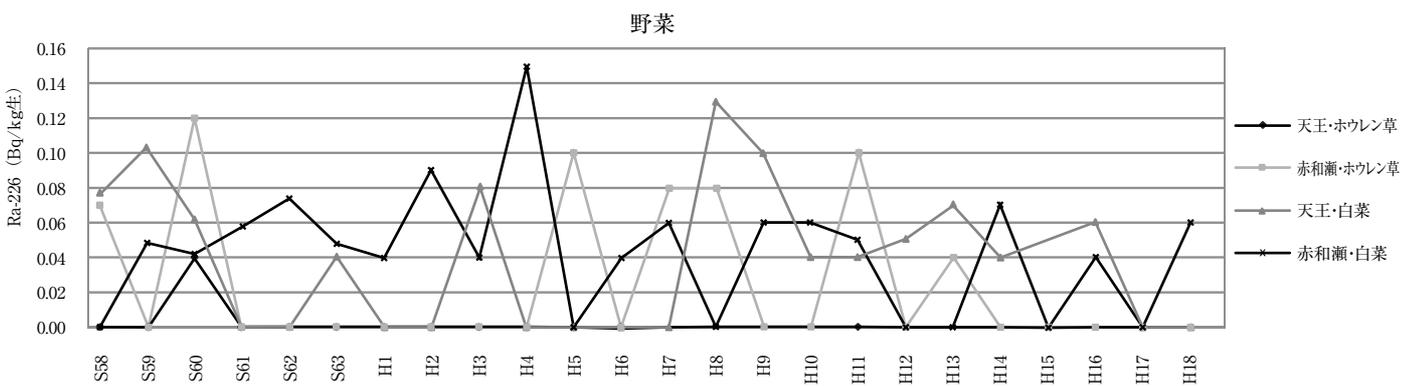
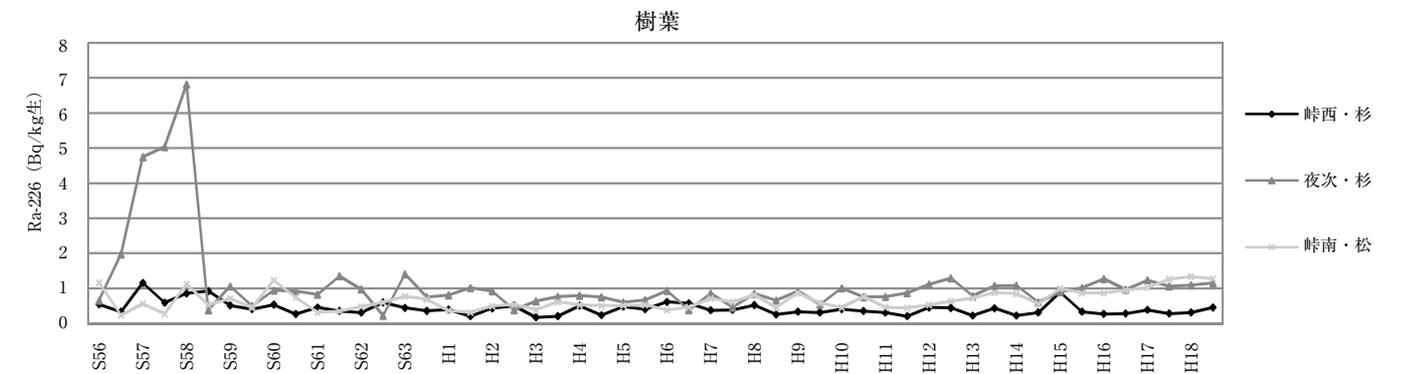


図5 植物中Ra-226濃度の推移図

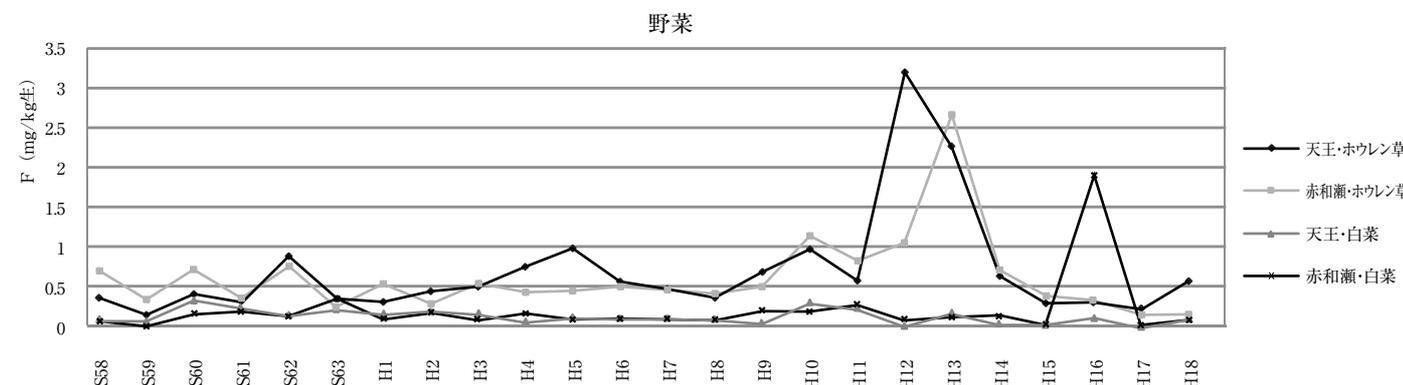
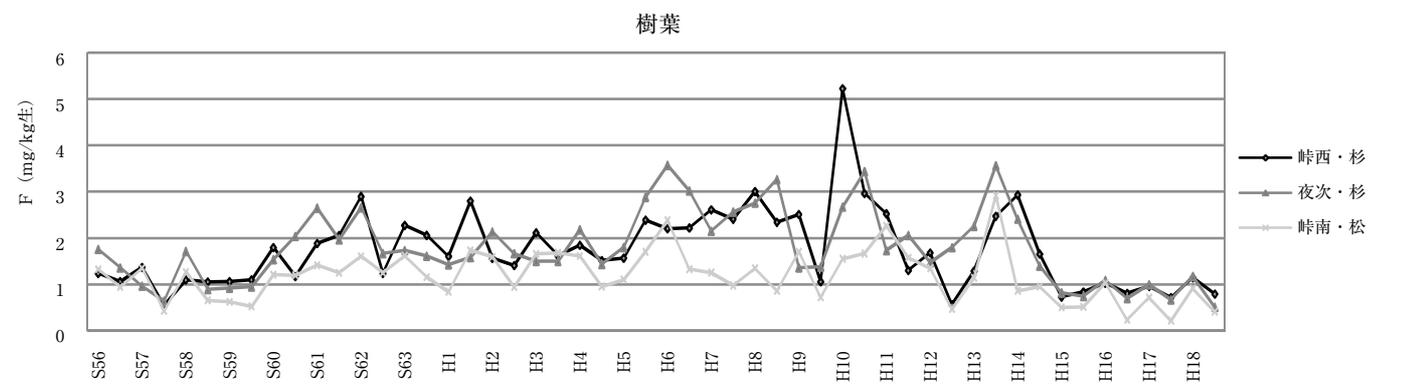


図6 植物中F濃度の推移図

3 結果及び考察

はじめに、土壌中のU-238, Ra-226及びF濃度について経年変化をみるために推移図にまとめてみたところ、いずれも大きな変化は無く、蓄積傾向は認められなかった。(図1, 2, 3, 4, 5及び6)

3-2 U-238濃度とRa-226濃度の相関関係 (U-Ra相関)

U-Ra相関を検討するために散布図を作成し、相関係数 r が0.3以上の場合には回帰直線を加えた。

未耕土には強い相関が認められた(図7)が、畑土に

は相関が認められなかった。(図8)このことは、畑土に施肥されているリン酸肥料に含まれるU-238¹⁾が影響しているためだと考えられる。なお、上齋原地区で使用されている肥料を測定したところ、U-238は0.35~0.76Bq/gであり、土壌の10倍程度含まれていたが、Ra-226は0.021~0.022Bq/gとほとんど含まれていなかった。これは、UNSCEAR2000年報告²⁾とよく一致していた。

一方、植物において、杉葉についてはU-Ra相関が認められたが、松葉についてはU-Ra相関が低かった。

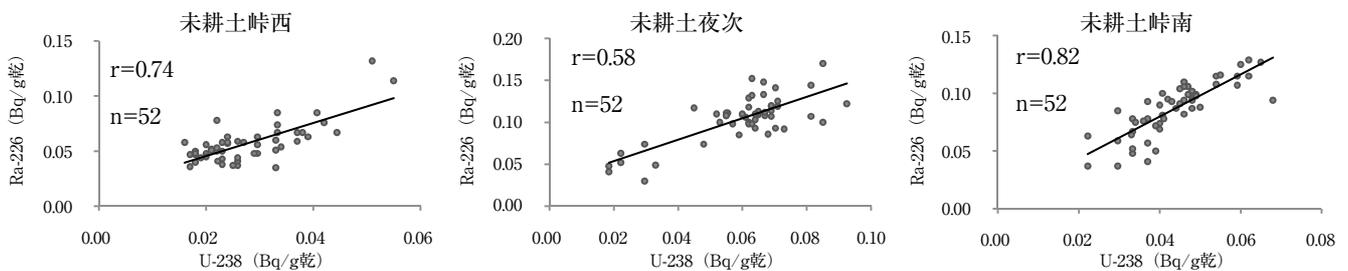


図7 未耕土中のU-238 とRa-226 の関係

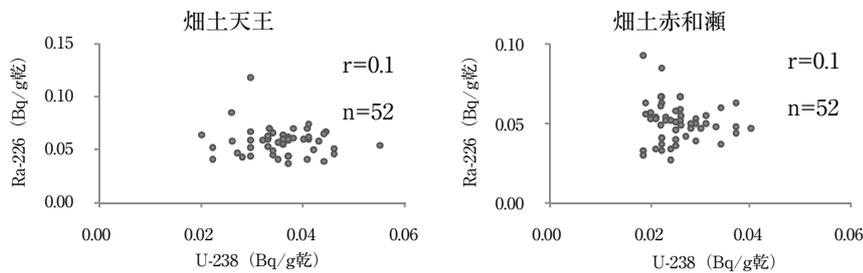


図8 畑土中のU-238 とRa-226 の関係

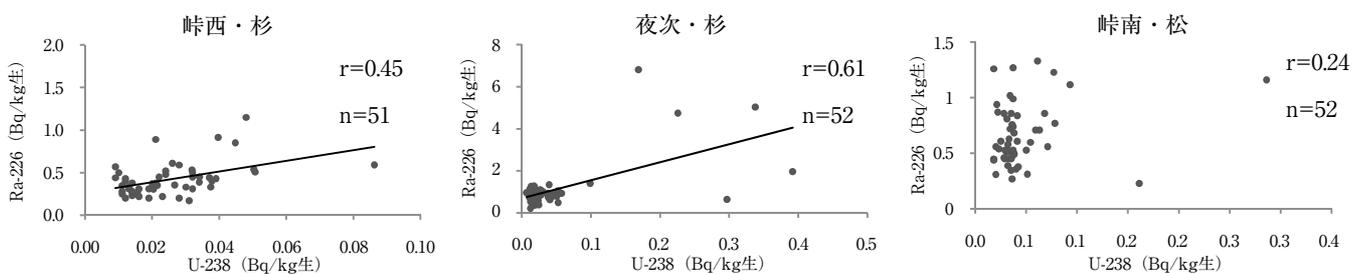


図9 樹葉中のU-238 とRa-226 の関係

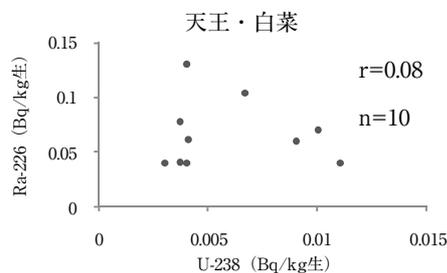


図10 野菜中のU-238 とRa-226 の関係

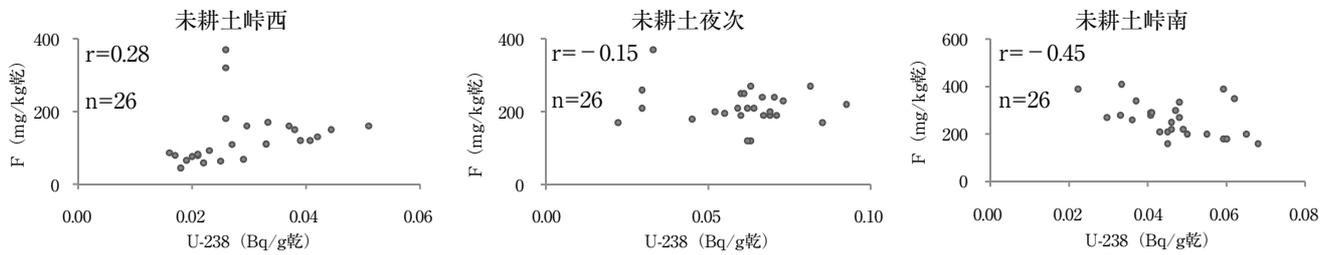


図11 未耕地中のU-238 と F の関係

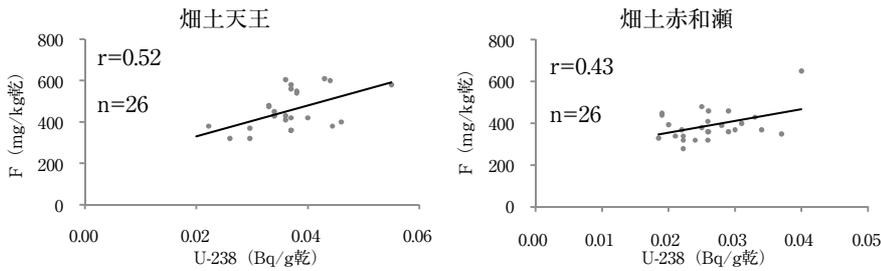


図12 畑土中のU-238 と F の関係

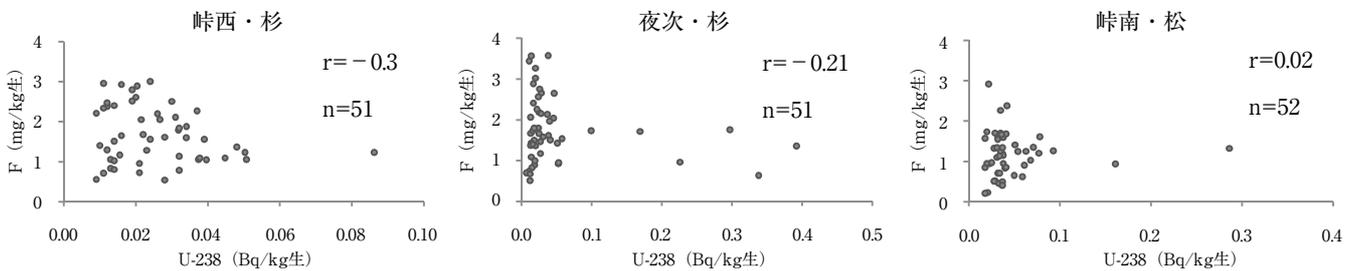


図13 樹葉中のU-238 と F の関係

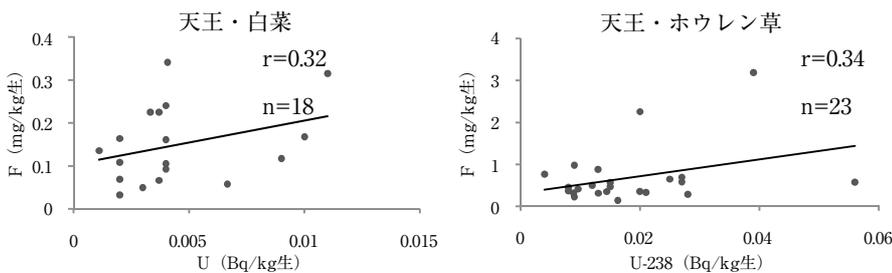


図14 野菜中のU-238 と F の関係

(図9)また、野菜(白菜)にはU-Ra相関がなかった。
(図10)

すなわち、未耕地およびそこに生える樹木の葉部のU-238とRa-226の濃度にはそれぞれ相関があり、見かけ上、土壌中の濃度を反映させているようであった。一方、畑土ではU-Ra相関はなく、それを反映して野菜(白菜)にもU-Ra相関がなかったと考えられることから、植物中のU-238やRa-226の濃度は、生育土壌に含まれるU-238およびRa-226の濃度を反映させているとが示唆された。

3-3 U-238濃度とF濃度の相関関係(U-F相関)

U-F相関を検討するために散布図を作成し、回帰直線を加えた。未耕地ではU-F相関が認められなかった(図11)が、畑土ではU-F相関が認められ(図12)、U-Ra相関とは逆の傾向を示した。

畑土に投入されるリン酸肥料にはU-238と共にFが1~3 g/kgが含まれる³⁾ことが知られている。畑土赤和瀬は畑土天王に比べて相関が弱い。そこで、農家に聞き取り調査を行ったところ、畑土赤和瀬は毎年、リン酸肥料を天王畑土に比べて少量しか施肥していない

ことがわかった。この施肥量の違いが相関の強さに反映されていると考えられた。

樹葉には相関は認められなかった(図13)が、野菜は弱い相関が認められた。(図14)

畑土中のU-F相関が強かったことと併せて考えると、リン酸肥料中のU-238とFが共に野菜へ移行したと考えられた。

畑に投入された肥料中のU-238とF量は土壌中の濃度を増加させてはいないが、微量であっても水に溶け、植物に吸収されやすい可動態である。したがって、野菜中のU-238とFの濃度変動は肥料に起因するものと考えられる。

4 まとめ

① これまでの事業所の運転状況に異常はなく、周辺の未耕土および植物中のU-238,Ra-226,Fはいずれも蓄積傾向も見られないことから、UF₆、Ra-226などの漏えいがなかったことが確認できた。

② 畑地にはU-238及びFを含むリン酸肥料が高度成長期以降、多量に施肥されている。

推移図からは畑土にウランの蓄積傾向は見られなかったが、散布図と相関を検討することで、リン酸肥料による影響が示唆された。

このことは、リン酸肥料の製造工程でリン鉱石が酸性化処理されることにより、水に溶けやすい可動態U-238となるために、畑土中に可動態U-238とFが存在することを示している。

また、野菜にU-F相関があることは、投入されたU-238とFは微量であっても可動態である肥料中のU-238及びFが野菜に吸収されていることを示すものと考えられた。

③ 未耕土の結果はその地点本来の地質を表しているが、ウラン系列核種であるU-238とRa-226は相関があり、Fとは相関がないことが確認できた。

④ 未耕土で生育した樹葉はU-F相関よりもU-Ra相関が高く、未耕土と同じ傾向であった。

⑤ 事業所周辺の環境放射能監視測定において、特異値が時々発現するが、これまでは過去の測定範囲やUNSCEAR報告、施設の運転状況などを参考に評価してきた。

しかし、U-238やFが多少増加した場合には異常とは判断しにくい場合がある。そのような事態に際しては、平常時のU-238とRa-226およびFのデータの散布図に特異値をプロットして、平常時回帰関係からのずれを検討することは原因究明の一助となる。

謝辞

本論文をまとめるに際して、有益なご助言をいただきました放射線医学総合研究所の田上恵子博士に謝意を表します。

文 献

- 1) 田上恵子, 内田滋夫: U/Th比を用いたリン鉱石原料のリン酸肥料施用による農耕地土壌中ウラン増加割合の推定, RADIOISOTOPES, 55, 71-78, 2006
- 2) 独立行政法人放射線医学総合研究所監訳: 原子放射線の影響に関する国連科学委員会の総会に対する2000年報告書, 上, 161, 2002
- 3) S. J. CRONIN, V. MANOHARAN, M. J. HEDLEY, P. LOGANATHAN: Fluoride: A review of its fate, bioavailability, and risks of fluorosis in grazed-pasture systems in New Zealand, New Zealand Journal of Agricultural Research, 43, 295-321, 2000
- 4) 岡山環境保健センター編: 人形峠周辺の環境放射線等測定報告書(1980~2007)