

我が国における土壌-農作物間移行係数について

量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所 内田 滋夫

1. はじめに

原子炉を多く保有している我が国では、使用済み核燃料を再処理するにしても、直接処分するにしても、自国内での放射性廃棄物処分が必要である。再処理によって出てくる高レベル廃棄物や使用済み核燃料を安全に処分するための最も有望な方法として、地下深くに埋設する方法が提案されている（特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針、H27年5月22日閣議決定）。最終的には放射性廃棄物処分の安全評価において、将来に渡って人が受ける被ばく線量が十分低いことが説明できなければならない。超長期においては地下の廃棄物処分場から生物圏に放射性核種が到達する可能性がある。様々な移行経路が想定されているが、生物圏に到達した後の核種移行プロセスとこれによる被ばく経路についてもモデル化を行い、人間への影響を評価する必要がある。

これまで、我が国の状況を反映した生物圏における放射性核種の移行モデルが提案・開発されてきた¹⁾。このような線量評価を行う上で考慮される放射性核種は表1にリストしたようなものが含まれる。モデルに用いられているこれらの核種の環境移行パラメータのほとんどは、我が国独自のものではなく、欧米で得られた値が中心であった。しかし生物圏において、環境移行パラメータはその地域の環境や人間活動に大きく影響される。例えば、人々がどのような食品を摂取しているかということは、対象とする国や地域により異なる。したがって、放射性核種の主要な移行経路も当然異なることになる。図1に成人一人当たりの食品群別年間摂取量を示した。食品摂取のパターンは、欧米型とアジア型の2つに大別できる。アジア型の国は、穀類などの農作物の摂取量が多く、穀類の中でも米の消費が多い。一方、欧米型の国は、肉やミルクなど畜産物の摂取量が多く、穀類は小麦である。

また、日本は魚介類の摂取量が多いという特徴もある。このような点を考慮して放射性核種の人への主要な移行経路を決定し、重要な環境移行パラメータを取得していく必要がある。

さらに、環境移行パラメータの値は地域特性を反映している点である。すなわち、気候、土壌、栽培条件など、生育環境が異なっているため、同じ農産物であっても欧米の国で得られたパラメータ値がそのまま我が国で使えるとは限らない可能性がある。また、地域独自の農産物

表1 生物圏安全評価における重要核種の例

Radionuclide	Half-life (y)	Radionuclide	Half-life (y)
C-14	5,700	Tc-99	211,000
Cl-36	301,000	Sn-126	230,000
Se-79	295,000	I-129	15,700,000
Sr-90	28.8	Cs-135	2,300,000
Zr-93	1,530,000	Cs-137	30.2
Mo-93	4000	Pb-210	22.2
Nb-94	20,300	Ra, Th, U, Np, Pu, Am, Cm	

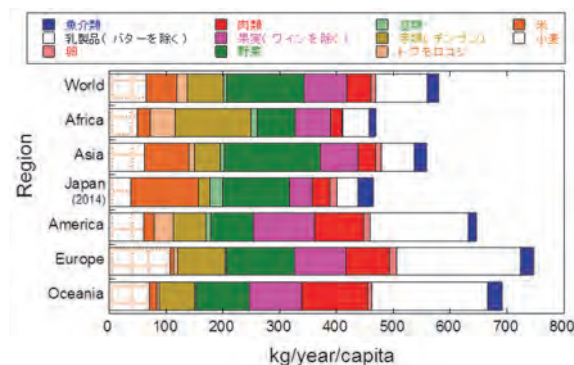


図1 食品群別摂取量 (20歳以上成人の年間摂取量) FAO統計による(2011年データ)。日本のデータは「2014年度国民健康・栄養調査」から年間当たりに換算。

が生産されているケースもある。したがって、欧米で得られている移行経路およびそのパラメータについて、我が国で適用できるかどうかを検討し、適用できないものについては、我が国において現実的な移行パラメータを整備しておくことが、我が国の放射性廃棄物処分に係わる安全評価を適切に行うために必要である。

放射線医学総合研究所では、このような背景の基に、以下に示すように、我が国における様々な環境移行パラメータ収集に関する調査・研究を行ってきた。

- (1) 土壌-農作物間移行係数 (TF) ²⁻⁵⁾
- (2) 土壌-土壌溶液間分配係数 (Kd) ⁶⁻¹²⁾
- (3) 沿岸域における海底土-海水間分配係数 (Kd) ¹³⁻¹⁵⁾
- (4) 沿岸域における海産物濃縮係数 (CR) ^{16,17)}
- (5) 生物圏環境移行パラメータ推定法開発 ¹⁸⁻²¹⁾

本調査・研究においては、様々な放射性廃棄物を考慮し、出来るだけ多くのデータを収集することにした。本報告では、紙数の関係で(1)の土壌-農作物間移行係数 (TF) の概要について記す。他の環境移行パラメータ等については、参考文献を参照されたい。

2. 土壌-農作物間移行係数 (TF) とは

移行係数 (TF) は、土壌中に存在する放射性核種がどの程度農作物 (可食部) に移行するかを予測するパラメータであり、農作物摂取に伴う被ばく線量予測を行う際、重要なパラメータの1つである。平衡状態における値で、次式によって表される ²²⁾。

$$TF = \frac{C_{crop}}{C_{soil}}$$

C_{crop} は農作物可食部中の放射性核種濃度 (Bq/kg-乾 [または生])、 C_{soil} は根圏域土壌中の濃度 (Bq/kg-乾) である。後述するように、我々のグループは天然に存在する元素にこの考え方を応用し、その元素濃度を用いて TF を求めている。なお、我々の調査・研究では、農作物中の濃度を乾燥重量当たりで求めている。その理由は、農作物中の水分含量は農作物の保存条件や収穫後の時間経過により異なるためであり、その結果、TF 値が変化する。しかし、農作物中の濃度を乾燥重量当たりで求めていると水分含有率に影響されずに TF を比較できる。ただし、

一般に摂取量として用いられる食物重量は、湿重量であるため、湿重量当たりで求めた TF の方が便利な場合もある。乾燥重量当たりで TF を報告する場合には、一緒に農作物中の水分含量を整理しておくが良い。

欧米諸国では、内陸地域に設置されている原子力施設が多く、そのため土壌-農作物間の核種移行パラメータに関する研究が精力的に進められてきた。わが国では、比較的限られた核種、農作物、地域についてのみ行われており ^{23,24)}、多くの核種および種々の農作物を対象にした全国調査は実施されてはいなかった。全国を対象にすることで、わが国の標準的な値を求めることが期待できる。近年では分析技術の進歩により、環境試料中の微量元素が比較的簡単に定量できるようになった。そこで、筆者のグループはその技術を用い、天然に存在する元素を指標として、全国を対象に実際の農耕地における TF 取得を進めてきた。

3. 試料の採取

本調査の重要なポイントは、わが国で広く消費される農作物を全国からまんべんなく採取する、という点である。特に米に着目したが、他にも、消費量の多いキャベツ、ハクサイ、ダイズ、ジャガイモ等をそれらの産地から採取することを目標とした。もちろん、土壌から農作物への TF を得ることが目的であるため、農作物可食部と収穫時の土壌 (作土層) を収集しなければならない。例えば水田から 30cm のコアを試料として抜いても、それは作土層を反映していない。通常、水田の作土層は 15-20cm であり、その下に心土がある。心土は水田に水を貯めつつ適度に水を地下に浸透させる機能があり、根圏域は心土を破壊することは無いためである。一方、畑では、作物に合わせて深耕することもある。通常、作土層は 20-30cm 程度であるが、水田のように心土はない。農地管理を良く知らないと、結局、作土層 (作物の根圏域) 以外の部分を採取することになり、その結果、異常値が出ることもあるので注意が必要である。

筆者らは平成 14 年度から 18 年度の 5 年間に水田土壌では 63 地点、畑土壌 79 地点、合計 142 地点、から土壌を採取した。また農作物では 150 試料 (米: 63 試料、米

以外の農作物：78 試料) を収集した。農作物は可食部が地上部と地下部を利用することもある(例えばダイコン)ことから、これらを2分割してそれぞれ葉菜類と根菜類に分類したため、試料数が農作物では増えている。試料を採取した地点(水田及び畑)を図2に示した。現在は、さらに気候変動を考慮したTFとして日本の北部と南部を対象に米などを収集しており、データの拡充を行っているところである。

採取した土壌および農作物の元素濃度分析は、試料を粉砕した後、硝酸や過塩素酸等の無機酸を加えてマイクロウェーブにより全分解を行い、その後 ICP-MS や ICP-OES により元素濃度をそれぞれ定量しTFを求めた。本調査では、濃度が低くこれまであまりデータが得られてなかった元素 (Se、As、Zr、Nb、I 等) についても、分析法の検討・改良を行い定量出来るようにした。分析法に関しては後述する。TF は、玄米で 53 元素、白米 50 元素、畑作物 53 元素について得られた。また、土壌 pH、塩基置換容量、活性 Al、活性 Fe、総炭素量等の関連分析データを含めると、総数としては、約 2 万点である。得られた TF の総数は、9 千以上にもなる。図3には測定対象元素とTFを求めた元素をまとめた。

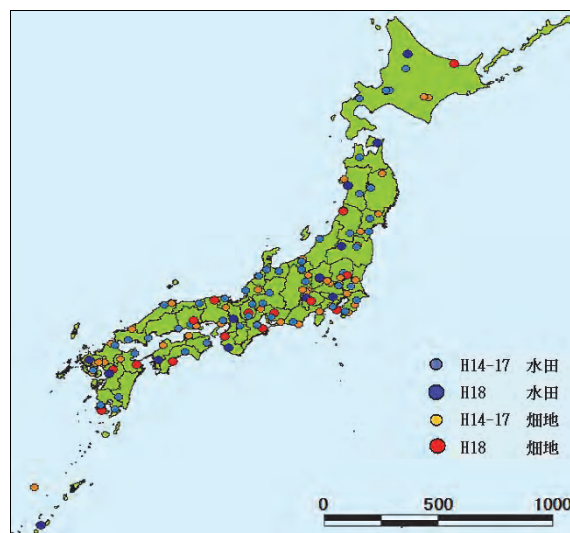


図2 農作物および土壌採取地点

4. 移行係数を求める前に：エイジング効果について

近年、IAEA では世界から専門家を集めて、放射性核種の陸上および淡水環境中移行パラメータ集を 2010 年に刊行した²²⁾ (以下 TRS-472 と記す)。筆者も参画したプロジェクトであるが、この TRS-472 では主に放射性核種のTFデータがまとめられてある。トレーサー実験(放射性核種を土壌に添加後、比較的短期間で栽培実験を実

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
H																	He
Li	Be											B	C	N	O	F	Ne
Li ⁺												Al	Si	NO ₃ ⁻		F ⁻	
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
Na ⁺	Mg ⁺											Al	Si	PO ₄ ²⁻	SO ₄ ²⁻	Cl ⁻	
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
K ⁺	Ca ⁺		Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br ⁻	
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
Rb	Sr		Zr	Nb	Mo		Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
Cs	Ba	*	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
Cs	Ba		Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
Fr	Ra	**	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Uun	Uuu	Unb						
*ランタノイド元素	La	Ce	Pr	Nd		Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	
**アクチノイド元素	Ac	Th	Pa	U		Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr	
				U													

図3 測定対象元素およびTFを導出した元素

施して得られた結果) や天然に存在する核種 (U、Th、Ra 等) に加え、チェルノブイリ事故後に得られた Cs および Sr のデータが多く取り込まれている。

注意しなければならないのは、トレーサー実験のデータである。トレーサーを土壌に添加してからすぐに植栽すると、添加トレーサーと土壌の接触が十分行われなため、平衡状態に達した状況に比べて、トレーサーが植物に吸収されやすい可給態で存在する割合が高く、一般に TF が高くなる。例えば Nisbet と Shaw²⁵⁾ がライシメーターを用いて 5 年間トレーサー実験を行った結果、Sr、Pu、Am の TF が年とともに下がったことが報告されている。これは事故で放出された放射性核種に関しても同じである。筆者らも福島第一原子力発電所事故後において、放射性 Cs について同様の現象を報告している²⁶⁾。例えば、放射線医学総合研究所 (千葉市) の敷地内の同じ場所において、フキノトウのサンプリングを毎年続けているのだが、その結果を図 4 に示す。2016 年 3 月で事故から丸 5 年が経過してもいまだに ¹³⁷Cs 濃度が徐々に下がっている事がわかる。ただし、2015-2016 の平均値ではほとんど変わっていないことから、直近 2 年だけ見れば、値はほぼ平衡に達しているといえる。

以上の結果から、平衡に達するまでには数年単位の時間経過が必要であることがわかる。したがって、長半減期核種については、短期間のトレーサー実験で求めたデータは、実環境中において得られるデータとは異なる可能性が高いことを念頭に置かなければならない。

5. アナログ元素の利用

本研究で考慮している長半減期核種については、天然に存在する安定元素と将来的には環境挙動が同様となるため、TF も類似すると考えられる。本調査では、グローバルフォールアウト ¹³⁷Cs の TF についても同時に取得し、安定 Cs のデータとの比較も行っている²⁷⁾。得られた結果を図 5 に示す。全体には安定 Cs の TF よりも ¹³⁷Cs の TF の方が高いが、その違いは、玄米、麦類、大豆、果菜類では 2-3、葉菜類や根菜類では 5-6 倍高い程度である。この結果は、超長期においては、安定同位体を使うことが妥当であることを示唆している。なお、TRS-472 のデ

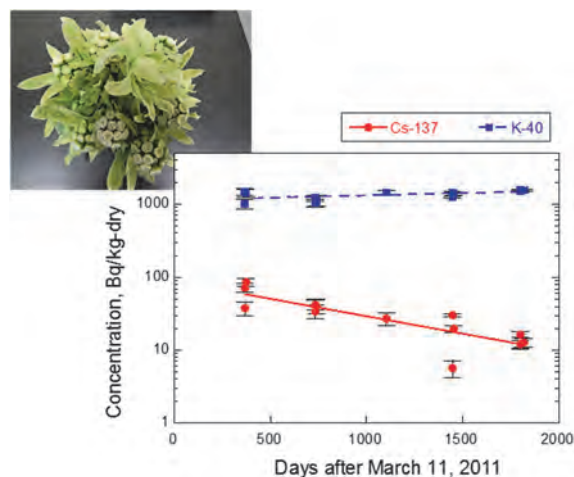


図 4 福島第一原発事故以降同じ場所で採取したフキノトウ中の ¹³⁷Cs 濃度の経年変化

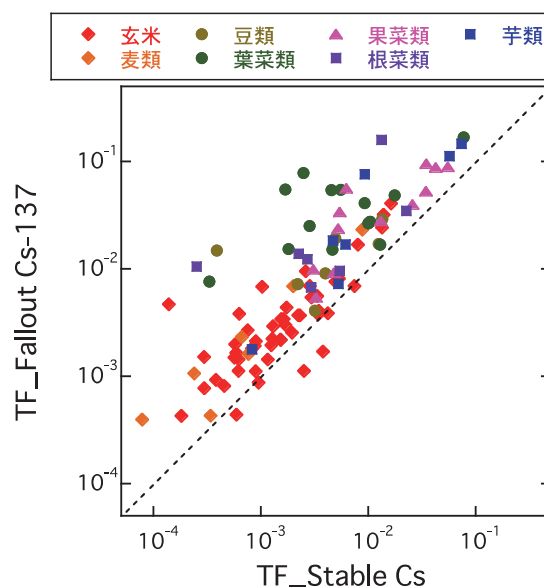


図 5 安定 Cs とフォールアウト Cs の TF の比較

ータと比較すると、ほとんどの作物群で TRS-472 の GM 値の方がわが国のグローバルフォールアウト ¹³⁷Cs データよりも高い。前述したように、TRS-472 ではトレーサー実験により得られた TF やチェルノブイリ事故により放出された放射性 Cs から求めた TF が沢山掲載されている。TRS-472 の TF データの収集背景情報を知らずに数値を用いると、超長期の被ばく線量評価は過大評価になるだろう。

このように、放射性核種の安定同位体を使う方法に加え、化学アナログを用いる方法も考えられる。例えば、重要核種の Ra について、その TF の情報を収集しようと

すると、植物中の ^{226}Ra の計測が必須である。しかし ^{226}Ra 濃度は極めて低く、放射化学的手法による分析が必要であることから、データが少ないのが現状である。筆者らは、 ^{226}Ra の分析と並行して同族元素の TF に着目し、このデータがどの程度 Ra に使えるか検討した¹⁹⁾。その結果を図6に示したが、Mg は全く関係性が得られなかったものの、Ca、Sr、Ba は Ra の TF と良い相関が得られ、 $\text{Ba} > \text{Sr} > \text{Ca}$ の順に Ra の TF と相関が高くなることが分かる。Ca と Sr は 1 桁以上値が異なるものの、Ba は比較的 Ra の TF に近いことがわかった。必ずしも一致はしないが Ra にとっては Ba が良い化学アナログになることを示している。

以上の結果は、安定元素を長半減期核種そのもののアナログとして、また、同族元素の中でも挙動が類似しているものを化学アナログとして利用できることを示唆している。このような情報を有していたので、筆者らが担当した TRS-472 の米への TF に関する節において、放射性核種の TF だけでなく、安定元素の TF の表も入れ込むことにした。

多くの元素を取り扱うことで分かってきたことは、TF は植物側の吸収にコントロールされる部分と土壌中における易動性の2つが影響している、ということである。古くは TF と土壌—土壌溶液分配係数 (Kd) に相関が見いだせるかのように思われていたがそれほど単純ではなく、特に必須元素に関連する放射性核種については、TF を Kd や土壌特性で説明することは困難である。

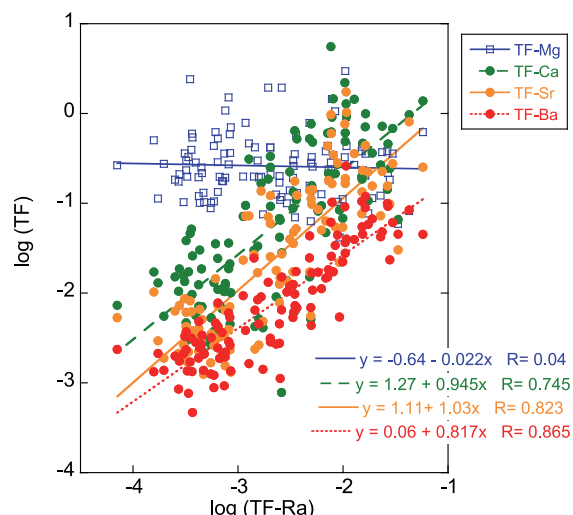


図6 Ra と同族元素 (Mg, Ca, Sr および Ba) の TF の比較

6. 安定元素による移行係数

上述した土壌 - 農作物セットについて、TF を算出した結果を図7および図8に示す。図7には、本調査で得られた玄米と小麦の53元素のTFデータについて比較するとともに、TRS-472に掲載されている Cereal のデータも示した。本研究で得られた玄米のUのTFは 3.9×10^{-5} (GM値) であるが、TRS-472 (穀物) では 6.2×10^{-3} であり、2桁も低い結果であった。Uだけではなく、 ^{137}Cs 、Th、Pb、Ra、Sr、Ce等のTFも、TRS-472の方が我々のTFよりも全体に高い傾向にあった。

本結果から、TF は元素毎に差が大きいのが本調査で得ら

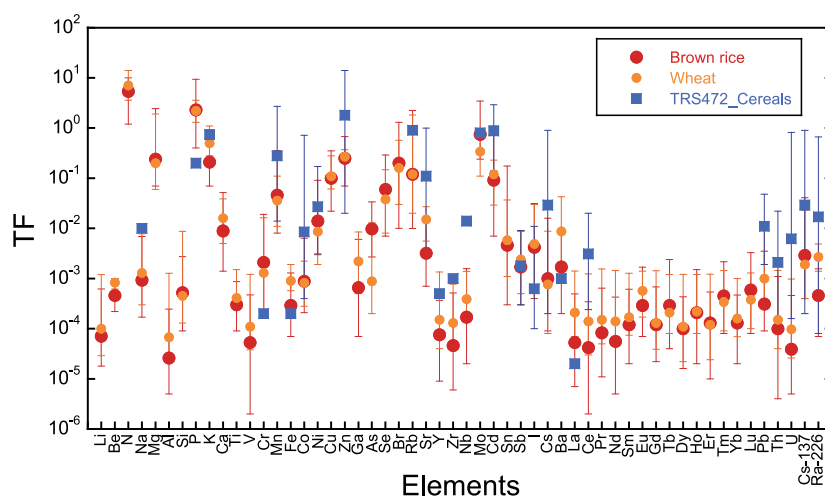


図7 玄米と小麦の TF と IAEA-TRS-472 データの比較 (範囲は最大—最小値を示す)。

れた小麦と玄米のTFは概ね一致していることが分かる。もう少し詳しく検討する必要があるが、例えば As のように土壌の酸化還元状態により土壌中の存在形態が異なる元素以外は水田でも畑土でも植物への移行はそれほど変わらない事を示唆していると思われる。

なお、TRS-472 の La と Ce の TF の値は大きく異なっていることが分かる。希土類元素は基本的に同様の TF を示すと期待されたが、トレーサー実験のデータを元にすると、このような考えにくいデータも散見されるようになる。より多くのデータを収集して、この違いが科学的に十分裏付けられるのかどうか検討する必要がある。残念ながら、我々のデータでも希土類元素の TF に凹凸が見られる点が少々気になるところである。恐らくこれは穀類中の希土類元素濃度が低いため、十分定量できていないことが影響していると考えられる。したがって、極低レベルの植物中希土類元素の定量法を検討する必要があり、まだまだ解決すべき点が多く残されていると思われる。

Zr と Nb については、我々の TF 値が IAEA の TF 値より 1-2 桁程低くなっている。Zr の場合は、土壌中の難溶性画分に多く存在している点がトレーサー実験と異なる因子であると考えられる。筆者らは、東北大学農学部山崎慎一先生に協力いただきエネルギー分散型 X 線分析法 (EDXRF) により非破壊で土壌試料中の Zr 分析を行った。ここでは示さないが、得られた結果を ICP-MS で測定した結果と比較すると、ほとんどの試料で ICP-MS の

結果の方が過小評価されていることがわかった。筆者らは EDXRF で得られた土壌中の全量を用いて TF を求めたが、そのため TF 値が小さくなり、TRS-472 でまとめられた結果との差が大きくなったと考えられる。ただし TRS-472 でとりまとめられたデータは数が少ないため十分な考察は出来ない。今後、データが蓄積されることが望まれる。

図 8 には作物の種類毎に TF をまとめた結果を示す。TF は葉菜類でやや高く、玄米が最も低い。乾物重ベースで示している点には注意が必要だが、本結果は、同じ元素であっても植物の部位毎に TF が異なり、その違いは 1-2 桁であることを示している。

以上の研究により、Cl および超ウラン元素以外の元素については、多くのデータが得られてきている。C に関しては、水稻を用いてトレーサー実験を行ったが、土壌に添加した C-14 がガスとして放出され、光合成によって水稻に吸収される事が分かったため、後述するように安定同位体を用いて TF を求めることにもトライしている⁴⁾。Cl および超ウラン元素に関しては、現在分析法開発²⁸⁾も含めて放医研で研究を進めている。

7. ヨウ素の移行係数

ヨウ素の分析は中性子放射化で行われていたが、近年では ICP-MS を用いる方法が広く用いられるようになってきた。筆者も ICP-MS を用いた安定ヨウ素分析の研究

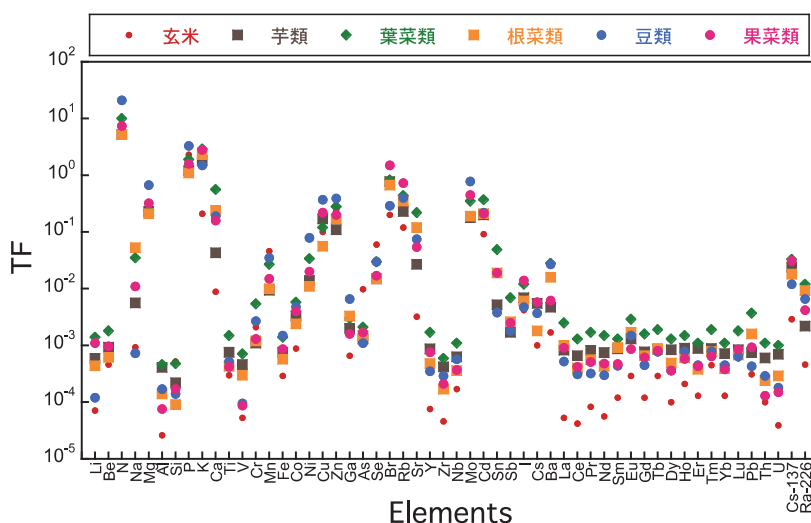


図 8 作物の種類別の移行係数の比較 (幾何平均値)

を行ってきた。ヨウ素の分析で問題なのは、酸性溶液にすると I_2 として揮散してしまうため、他の金属元素と同様の分析方法が使えない点である。高温で揮散する性質を利用する燃焼法は岩石試料中のヨウ素分析にも用いられているが、一度に多くの試料を測定するのに時間がかかる欠点を有する。

そこで水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) を植物や土壌試料に添加し、密閉条件下で加熱することで有機物を分解し、ヨウ素を溶出させて ICP-MS で定量する方法を開発した²⁹⁾。本法を用いると臭素も同時に測定することができ、一度に 30-40 試料を 1 日で前処理可能である。全て有機物である植物には適用できるが、土壌の分析については、全量測定できているか確認する必要があった。そこで、ヨウ素についても山崎慎一先生に協力いただき EDXRF により非破壊で全量分析を行った。その結果と我々が測定した値を比較した (図 9) が極めて良い一致が見られている³⁰⁾。したがって、本法でわが国の土壌中のヨウ素を測定できることがわかった。

得られた TF データについてはすでに報告している³¹⁾ ため、ここでは詳細を示さないが、例えば図 7 に示したように、我々の TF 値は放射性 I で得られた TRS-472 の値よりやや高い値であり、上述したようなエイジング効果による差が見られなかった。高めである理由として、わが国が島国であり、送風塩による海からのヨウ素供給が影響している可能性が考えられる。

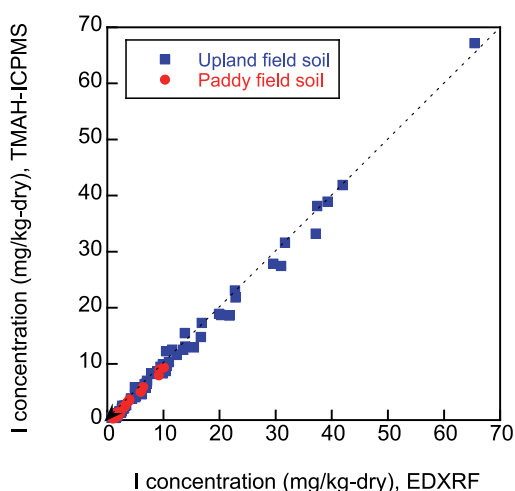


図 9 EDXRF と TMAH 法による土壌試料中ヨウ素分析結果の比較

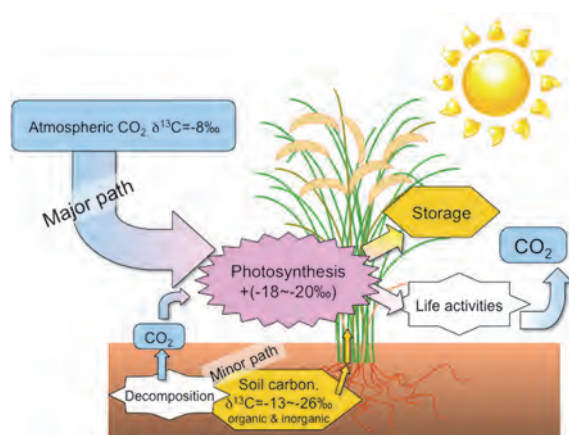


図 10 炭素同位体比に着目した植物の炭素利用サイクル

8. 炭素の移行係数の推定

すでに定義したように、TF は植物中濃度を土壌中濃度で割った値である。しかし、炭素についてはこれをあてはめることは不適當であることが容易に想像つく。植物体の炭素は大気由来で説明が行われるのが一般的である。一方、有機酸 (窒素源として) や無機態炭素として根から吸収されるものもある。植物全体から見るとその量は極めて少ないが、土壌から植物への ^{14}C の移行を評価する上で、その数値がどの程度であるのかを明らかにすることは重要である。これまでに本調査において ^{14}C トレーサー実験により TF を求めているが、実験室レベルではなく、実際のフィールドの値が評価できないか検討した。

ここでは C3 植物が光合成を行う際に $\delta^{13}C$ 値で -18 から -20‰ の同位体分別が起こるというメカニズムに着目した (図 10)。大気中の $\delta^{13}C$ 値は、現在約 -8‰ だが、植物を長期間栽培した土壌の $\delta^{13}C$ 値は、植物体の値を反映して -13 ~ -26‰ を示す。そのため、大気・土壌それぞれを起源とする CO_2 を基質として光合成を行った場合に、植物体の $\delta^{13}C$ 値に反映されるはずである。そこで、この差を利用して土壌寄与分を推定した。一次光合成産物である炭水化物が蓄積されている白米部分 63 試料と土壌を安定同位体比測定装置 (Isotope Ratio Mass Spectrometry, IRMS) で分析した。測定結果は予測通りであり、水田-白米の $\delta^{13}C$ 値は高い相関が得られず、また植物の $\delta^{13}C$ 実測値は -26.0 から -28.3‰ (平均 27.1 ±

0.5%) となり、全てが大気起源であったとしても充分説明できた。実測データからは土壤炭素が植物体へ移行する可能性が極めて低いことが示された。

次に統計的には可能と考えられる、植物体炭素への土壌由来炭素の最大寄与率を導出すると1.3%であった。この値と、土壌および白米中の炭素濃度より、乾物重ベースのTFは平均0.2(範囲:0.04-0.4)となった⁴⁾。単純に農作物/土壌の比ではTFが16になってしまうことを考えると、移行経路をきちんと考慮した検討が重要であることがわかる。ただし、我々が統計的に求めた炭素TFについては、最大可能な移行率を考慮しており、さらに経根吸収だけではなく土壌から放出されるCO₂を吸収する経路も含んでいるのでTFとしては大きめの値である。

9. あとがき

これまで放射線医学総合研究所で行ってきた環境移行パラメータ収集に関して、特に土壌-農作物間移行係数について述べてきた。前述したように、本調査では生物圏における様々な環境移行パラメータの収集とデータベース構築を行ってきたが、得られた技術やデータの波及効果は様々な分野に及ぶと期待される。

本調査で得られた移行パラメータ(土壌-農作物移行係数や土壌-土壌溶液分配係数など)を用いることにより、欧米のデータで行った安全評価よりも現実的な評価が可能である。東南アジア諸国においても、放射性廃棄物処分施設の建設が検討されているが、これらの国々においては、環境や食習慣がヨーロッパよりは日本の方が近いと、本調査で得られたデータベースを利用する方が現実的な評価が可能であると思われる。

一方、本調査で構築したデータベースは、放射性廃棄物地層処分の安全評価だけでなく、重金属など、他の汚染物質の環境挙動、農作物汚染予測に貢献できる。さらに、本調査で開発した環境試料中の極微量元素分析法は、原子力以外の分野でも活用されるため、それぞれの分野で新たなニーズが期待される。

現在、データベースを公開する準備を進めているところであり、できる限り早い段階で公開したいと考えている。

謝辞: 研究の一部は、資源エネルギー庁放射性廃棄物共通技術開発調査等委託費の予算で行われた。

参考文献

- 1) 核燃料サイクル開発機構: わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性-地層処分研究開発第2次取りまとめ- 分冊3, JNC TN1400 99-023 (1999) .
- 2) S. Uchida, et al.: Soil-to-plant transfer factors of stable elements and naturally occurring radionuclides: (1) Upland field crops collected in Japan, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 44, 628-640 (2007).
- 3) S. Uchida, et al.: Soil-to-plant transfer factors of stable elements and naturally occurring radionuclides: (2) Rice collected in Japan, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 44, 779-790 (2007).
- 4) 田上恵子,他: 炭素安定同位体自然存在比を用いた水稲による土壌起源炭素吸収率及び炭素移行係数の推定, *Radioisotopes*, 58, 641-648 (2009).
- 5) G. Yang, et al.: Soil-to-crop transfer factors of Te, *Chemosphere*, 111, 554-559 (2014).
- 6) H. Yasuda, et al.: Sorption of Mn, Co, Zn, Sr and Cs onto agricultural soils: statistical analysis on effects of soil properties, *Water, Air, and Soil Pollut.*, 83, 85-96 (1995).
- 7) Y. Nakamaru, et al.: Distribution coefficient of selenium in Japanese agricultural soils and effect of soil active-Al and active-Fe on selenium sorption behavior, *Chemosphere*, 58, 1347-1354 (2005).
- 8) 石川奈緒, 他: 放射性セシウムの水田土壌への収着挙動における粘土鉱物の影響, *Radioisotopes*, 56, 519-528 (2007).
- 9) Y. Nakamaru, S. Uchida: Distribution coefficients of tin (Sn) in Japanese agricultural soils, *J. Environ. Radioactiv.* 99, 1003-1010 (2008).
- 10) N. Kamei-Ishikawa, et al.: Distribution coefficients for ⁸⁵Sr and ¹³⁷Cs in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 277, 433-439 (2008).
- 11) N. Ishii, et al.: Partitioning of ¹⁴C into solid, liquid, and

- gas phases in various paddy soils in Japan, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 47, 238-243 (2010).
- 12) N. Ishikawa, et al.: Effect of biological activity due to different temperatures on iodide partitioning in solid, liquid, and gas phases in Japanese agricultural soils. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 295, 1763-1768 (2013).
- 13) 田上恵子,内田滋夫: 我が国の沿岸域における放射性核種の堆積物-海水分配係数—土壌から海水への放射性核種溶出率の推定—, *分析化学*, 62, 527-533 (2013).
- 14) H. Takata, et al.: A new approach to evaluate factors controlling elemental sediment-seawater distribution coefficients (Kd) in coastal regions, Japan, *Sci. Total Environ.*, 543, 315-325 (2016)
- 15) K. Yamamoto, et al.: Model estimation of ^{137}Cs concentration change with time in seawater and sediment around the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant site considering fast and slow reactions in the seawater-sediment systems, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 304, 867-881 (2015).
- 16) H. Takata et al.: Concentration ratios of stable elements for selected biota in Japanese estuarine areas, *Radiation and Environmental Biophysics*, 49, 591-601 (2010).
- 17) K. Tagami, S. Uchida: Marine and freshwater concentration ratios (CR_{water}): review of Japanese data. *J. Environ. Radioactiv.*, 126, 420-426 (2013).
- 18) H. Yasuda and S. Uchida.: Statistical Approach for the Estimation of Strontium Distribution Coefficient, *Environ. Sci. Technol.*, 27, 2467-2470 (1993).
- 19) K. Tagami, S. Uchida: Radium-226 transfer factor from soils to crops and its simple estimation method using uranium and barium concentrations, *Chemosphere*, 77, 105-114 (2009).
- 20) 石川奈緒,他: 農耕地土壌における放射性ニッケルの土壌-土壌溶液分配係数-統計的処理による分配係数推定の試み-, *日本原子力学会和文論文誌*, 8, 95-101 (2009).
- 21) 石川奈緒,他: 統計的手法を用いたストロンチウムの土壌-農作物移行係数の推定, *日本原子力学会和文論文誌*, 8, 313-319 (2009).
- 22) International Atomic Energy Agency: Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. *Technical Report Series No. 472*, IAEA (2006).
- 23) 駒村美佐子,津村昭人: 誘導結合プラズマ質量分析法による土壌から白米への放射性核種の移行係数算定. *Radioisotopes*, 43, 1-8 (1994).
- 24) H. Tsukada, Y. Nakamura: Transfer factors of 31 elements in several agricultural plants collected from 150 farm fields in Aomori, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 236, 123-131 (1998).
- 25) F. A. Nisbet, S. Shaw: Summary of a 5-year lysimeter study on the time-dependent transfer of ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am to crops from three contrasting soil types: 1. Transfer to the edible portion. *J. Environ. Radioactiv.*, 23, 1-17 (1994).
- 26) K. Tagami, S. Uchida: Effective half-lives of ^{137}Cs in giant butterbur and field horsetail, and the distribution differences of potassium and ^{137}Cs in aboveground tissue parts. *J. Environ. Radioactiv.*, 141, 138-145 (2015).
- 27) S. Uchida, K. Tagami: Soil-to-plant transfer factors of fallout ^{137}Cs and native ^{133}Cs in various crops collected in Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 273, 205-210 (2007).
- 28) 田上恵子,内田滋夫: アトグラムのプルトニウムを測る, *化学*, 71, 68-69 (2016).
- 29) K. Tagami, et al.: Determination of chlorine, bromine and iodine in plant samples by inductively coupled plasma-mass spectrometry after leaching with tetramethyl ammonium hydroxide under a mild temperature condition. *Anal. Chim. Acta*, 570, 88-92 (2006).
- 30) K. Tagami, et al.: Estimation of plant-unavailable iodine concentrations in agricultural fields. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 74, 1562-1567 (2010).
- 31) S. Uchida, K. Tagami: Iodine transfer from agricultural soils to edible part of crops. *Proc. Radiochim. Acta.*, 1, 279-283 (2011).