

ウラン鉱山に生育する  
植物群落の放射性元素の動態  
(博士研究員研究成果報告書)

2001年3月

核燃料サイクル開発機構  
人形峠環境技術センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒708-0698 岡山県苫田郡上齋原村1550番地  
核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター  
環境保全技術開発部 管理課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Co-ordination Section, Environmental Research and Development Division,  
Ningyo-Toge Environmental Engineering Center,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute,  
1550 Kamisaibara-son, Tomada-gun, Okayama-ken, 708-0698,  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001

ウラン鉱山に生育する植物群落の放射性元素の動態  
(博士研究員研究成果報告書)

志鷹 幸徳\*

要 旨

土壌から植物へのラジウム移行率の予測性を高めるために、同族元素である他のアルカリ土類元素との挙動の比較を行った。

まず、人形峠環境技術センター内に成立する3つのイネ科草本群落を対象に、ラジウム移行率を調べ、土壌から水への可溶性、植物による水からの吸収性、植物内での分配の各過程に分け解析した。各過程においてラジウムの挙動には他のアルカリ土類元素との類似性がみられた。さらに各元素の吸収性には可溶性画分のマグネシウムやカルシウム濃度と反比例していることが明らかになり、植物によるこれら栄養塩の吸収調節にラジウムの吸収が影響を受けていることが示唆された。

次に、ラジウム移行の種間差や地域間差を明らかにするために、4つの植生の異なる植物群落における12種の植物を対象にラジウム移行を調べた。その結果、植物のラジウム濃度には最大で60倍もの違いがあることが観察された。この違いは土壌のラジウムとカルシウムの濃度比の違いと、種のもつカルシウム濃度の違いを反映していることが明らかになった。このことから、ラジウム移行について土壌と植物が持つこれらの特性から分類できることが示唆された。

---

※ 環境保全技術開発部 環境研究グループ

# 目次

序章	0-1
1章 Uptake of $^{226}\text{Ra}$ by plants at an uranium mine and milling in Ningyo-Toge, Ningyo-Toge and the relationship with alkaline earth elements	1-1
Abstract	1-2
Introduction	1-3
Materials and Method	1-4
Results	1-5
Discussion	1-7
Conclusion	1-10
Acknowledgements	1-11
References	1-11
Table	1-14
Figure	1-18
2章 土壌から植物へのラジウム移行特性の種間差と地域間差	2-1
要旨	2-2
はじめに	2-3
地域と方法	2-3
結果	2-5
考察	2-7
結論	2-8
引用文献	2-8
表	2-10
図	2-13
3章 まとめと総合考察	3-1
引用文献	3-2
図	3-3

## 序章

人形峠環境技術センターはウランの採掘や精錬をすでに終了しているが、露天採掘場跡地や表土堆積場・鉱滓堆積場を保持し、これまで維持管理してきた。現在、これらの地区の環境マネジメントに関心が向けられ、生物への放射性元素の移行評価が課題となっている。本研究では、当センター構内や周辺の植物を対象に、天然放射性元素であるラジウムの移行について研究した結果を報告する。

ラジウムはその化学的性質から同属元素であるほかのアルカリ土類元素との挙動の類似性が指摘されている。そこで、1章ではセンター構内の鉱滓堆積場、露天採掘場跡地、表土堆積場のアシやススキの草本群落を対象に、ラジウムの土壌からの溶出、吸収、分配といった各移行過程において、ほかのアルカリ土類元素との比較という観点から植物によるラジウムの吸収を調べた。

ラジウムと同じアルカリ土類元素であり、植物にとって栄養塩でもあるカルシウムは、植物内の濃度が種毎に異なる。また、土壌のカルシウム濃度も地域ごとに変化する。この違いはラジウムの吸収にも影響を与えていることが考えられる。そこで、2章ではセンター構内の周辺保安林や構外の河川敷におけるさまざまな植物を対象に、植物によるラジウム吸収の種間差や地域間差について調べ、カルシウム吸収との関係を解析した。

3章では、これらの結果についてまとめと総合考察を行った。

# 1章

## Uptake of $^{226}\text{Ra}$ by plants at an uranium mine and milling in Ningyo-Toge and the relationship with alkaline earth elements

Yukinori Shitaka\*

*Environmental Research and Development Division, Ningyo-Toge Environmental Engineering Center of Japan Nuclear Cycle Development Institute, Kamisaibara 1550, Tomada 708-0698, Japan*

\*Tel: +81-44-2211; Fax: +81-44-2254; e-mail: [shitaka@ningyo.jnc.go.jp](mailto:shitaka@ningyo.jnc.go.jp) (Y. Shiaka)

**Abstract**

Relationships between  $^{226}\text{Ra}$  and other alkaline earth elements (Mg, Ca, Sr and Ba) were analysed in element availabilities for plants and their distributions within plant at three sites of Ningyo-toge uranium mine and milling area. The aim is to clarify the behavioural similarity of  $^{226}\text{Ra}$  with other elements in the soil-plant systems at sites with different soil origins. The behaviour of  $^{226}\text{Ra}$  was interacted with other elements in the processes of soil adsorption and desorption, plant absorption and allocation among organs. There were different selectivities among elements in each process. Plant uptake of Ba and  $^{226}\text{Ra}$  from soil was one order of magnitude lower than that of Mg, Ca and Sr at all sites. Discrimination of  $^{226}\text{Ra}$  against other elements was found in allocation within plant. Regulatory absorption was suggested for essential bio-elements such as Mg and Ca to keep their concentration in organ within narrow ranges.

**Keywords:** Absorption and allocation; Alkaline earth element; Ningyo-toge; Soil-plant system;  $^{226}\text{Ra}$ ; Uranium mine and milling

## Introduction

In the late 1980s, the uranium mining activity at Ningyo-Toge, Japan, was closed and discharge of tailings ceased. Recently, attention has been directed toward environmental management within and around the inactive uranium mines and the mill tailings retained in this area.  $^{226}\text{Ra}$  is a naturally occurring radionuclide found in tailings and dumps of waste from uranium mining. Plants have been observed to take up  $^{226}\text{Ra}$  present around their roots irrespective of their biological necessity, and hence plants provide one of pathways of radium migration in the terrestrial environment.

To estimate the plant uptake of radionuclides, concentration ratio (CR) expressed as the ratio of the radionuclide concentration in plant and in soil is widely used. In ten years ago, IAEA published a comprehensive review of the CR of radium (Simon & Ibrahim, 1990). The CRs of  $^{226}\text{Ra}$  were shown to vary more than two orders of magnitude. The CR is influenced by several factors affecting the availability of radium such as soil type, pH-level, content of soil organic matter, clay, other alkaline-earth elements, exchangeable calcium and potassium, and chemical forms (for review see McDowell-Boyer, Watson & Travis, 1980). Site-specific parameters should be taken into account for estimating the migration of the radionuclide.

Although many factors affect the uptake of radium, the behaviour is expected to be similar to that of alkaline earth elements due to the position in the periodic table. Comparisons of radium and calcium concentration in plant for several vegetables showed that the uptake of radium is related to the ability of plants to take up calcium (Kopp, Oestling & Burkart, 1989; Million, Srtain, Gonzalez & Carrier, 1994). High concentration of calcium and barium in soil reduces the uptake of  $^{226}\text{Ra}$  (Kopp & Oestling et al., 1989). The quantity of radium taken up from soil should depend on the ratio of  $\text{Ra}^{2+}/\text{Ca}^{2+}$  in the soil. The observed ratio [OR = (Ra/Ca in plants)/(Ra/Ca in soil)] has been documented to be less than unity in plants, indicating there is significant discrimination in the uptake of radium and calcium by plants (Kirchmann, Boulenger & Lafontaine, 1966; Bhujbal, D'Souza & Mistry, 1970; Sam and Eriksson, 1995). In contrast, studies of Sr in plant-soil system showed the Sr/Ca ratio in the plant and Sr/Ca ratio in the soil remained constant with a slight discrimination (Nisbet, Konoplev, Shaw, Lembrechts, Merckx & Smolders et al., 1993). Comparative data of radium with the akin elements such as Mg, Sr, and Ba are limited. Analysis of these elements would be useful to understand the behaviour of radium in a variety of vegetation with different soil characteristics.



The Ningyo-Toge mine and milling area possess various sites with soil of different origin, such as mill tailings, ore and natural soil. In the present study, the amounts of  $^{226}\text{Ra}$  and the chemical homologues (Mg, Ca, Sr and Ba) were determined for soils and plants in this area. Moreover, the distribution of  $^{226}\text{Ra}$  and related elements in plant organs and their seasonal changes were determined. Analysis was focused on the relationships between  $^{226}\text{Ra}$  and other elements in the process of plant uptake from soil and their allocation to organs within plants.

## Materials and methods

### *Sites and vegetations*

The uranium mine and mill operation of the Ningyo-Toge Environmental Engineering Center, Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC) is located in western Japan ( $35^{\circ} 18'\text{N}$ ,  $133^{\circ} 55'\text{E}$ ) at a hilly site with an elevation of 700m. In 1960 a pilot mill was established at Ningyo-toge for processing of uranium ore from nearby conventional mines. Mill tailings and residuals from acid leaching were neutralized by lime and dumped in the mill tailings pond. The pond had been covered with water and maintained. Openpit mining has been conducted since 1977. In 1987 uranium mining and milling in this area were closed. The openpit has been reclaimed by top-soiling of waste ore and granite soil about 7m depth. Overburden of the mine has been dumped beside the mine. These sites are dominated by perennial grasses: *Phragmites australis* (Cav.) Trin. Ex Steud. at the mill tailings pond and *Miscanthus sinensis* Anderss. at the covered openpit and the overburden dump.

### *Sample Collection and preparation*

Soils and plants in the mill tailings pond (MT), the covered openpit (CP), and the overburden dump (OD) were harvested. In each location, aboveground part of the plant (1-2kg) was harvested with five replicates in May, August and November of 1998 to study seasonal changes in elemental composition. Soil samples of about 1kg were collected in August of 1998 by a trowel from the major root zone areas (0-15cm) of the harvested plants. Plants were washed by tap water, and were separated into leaves, stems and fruits (flowers and fruits being combined). Soil samples were air dried and sieved (<2mm). Soluble fractions of the soil were extracted with 1:10 (w/v) distilled water for a week. Soils and plant samples were oven-dried at  $80^{\circ}\text{C}$  for over 48h, weighed, and then ground to

homogeneity. Dried samples of soil and plant (100-200g) were ashed in porcelain dishes placed in a muffle furnace (500°C).

#### *Chemical analysis*

For analysis of Mg, Ca, Sr and Ba, the ashed samples were digested with nitric acid and hydrofluoric acid in a Teflon™ beaker on a sand bath, and dissolved in 1% HNO<sub>3</sub> solution. The soil solution were filtered and adjusted to 1% HNO<sub>3</sub> solution. These samples were subjected to chemical analysis by ICP-AES (ICAP-577, Jarrell-ash, Japan).

For analysis of <sup>226</sup>Ra activity, the ashed samples were decomposed with Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> in Pt crucibles at 900°C. <sup>226</sup>Ra in the decomposed samples and the water samples of soil solution were precipitated in Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> solution, and were dissolved in 1% HCl solution. The activities of <sup>226</sup>Ra of these samples were estimated by radon emanation method.

### **Results**

#### *Elements in soil and plant*

The profile of <sup>226</sup>Ra and other elements composition in soil and the soil solution were different among sites (Table 1). MT soil contained lowest Mg and highest Ca. OD soil contained highest Mg, and lowest Ca. Activity of <sup>226</sup>Ra was highest in MT soil and lowest in the OD soil. Sr and Ba did not show differences in their concentration among soils. For the soluble fractions in soil, their concentrations did not reflect total concentration in soil. There was a tendency for higher content of elements in MT soil and lower content in CP soil. For plants, concentrations of Mg and Ca were less variable in comparison with their variability in soils (Table 1). The concentrations of Sr and Ba were also less variable among sites. In contrast, the <sup>226</sup>Ra concentration in plant was more variable. The concentration of <sup>226</sup>Ra in plant seems to increase proportionally with increasing <sup>226</sup>Ra in soil. For both soils and plants, there were twenty times of difference in the concentration of <sup>226</sup>Ra between MT and OD site.

#### *Relationship between soil and plant*

Concentration ratios of an element between plant and soil (CR) and observed ratios, for <sup>226</sup>Ra against other elements between plant and soil (OR) are given in Table 2. The CR of Mg and Ca was observed to vary among sites, and there were 6-7 times differences in the CRs between MT and OD sites. They were inversely correlated to their contents in soil (Table 1). The change in CR of Sr with sites

was similar to that of Ca. On the other hand, the CR of Ba and  $^{226}\text{Ra}$  were less variable with ranges between 0.05-0.09 and between 0.05-0.07, respectively. There were no significant differences in the CR of  $^{226}\text{Ra}$  among sites ( $P=0.75$ ). For all sites, the CR of Ba and  $^{226}\text{Ra}$  was lower than that of Mg, Ca and Sr. These differences in CR lead OR values less than unity except for Ba. The OR for  $^{226}\text{Ra}$  against Mg, Ca and Sr ranged between 0.05-0.27, 0.03-0.32 and 0.08-0.21, respectively, among sites. There was no clear discrimination between Ba and  $^{226}\text{Ra}$ . The OR for  $^{226}\text{Ra}$  against Ba was ranged from 0.6 to 1.4.

The CR can be expressed as the product of solubility (ratio of element in solution to element in total soil) and its absorbability ( $\text{CR}_{\text{solute}}$ : concentration ratio based on soluble fractions in soil). Table 3 shows the solubility and the  $\text{CR}_{\text{solute}}$  for each element at the three sites. For all elements, the solubility varied significantly with soils ( $P<0.001$ ) and was lowest in CP soil. The soils of MT and OD were observed to have similar value in the solubility except for Mg. Apparently, differences in soil type have influenced this partitioning in similar way among the alkaline earth elements. The  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of  $^{226}\text{Ra}$  at CP site was higher than that of MT and OD site. This trend was also observed for all other elements (Mg, Ca, Sr, and Ba). Counteracting pattern between the solubility and the  $\text{CR}_{\text{solute}}$  may explain the reason why the CR (based on total in soil) of  $^{226}\text{Ra}$  does not change proportionally with soil solubility.

The solubility was significantly different among elements ( $P<0.001$ ). The solubility of Ba and  $^{226}\text{Ra}$  was one order of magnitude lower than that of Ca and Sr for each site. The  $\text{CR}_{\text{solute}}$  was also significantly different among elements ( $P<0.001$ ). The  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of  $^{226}\text{Ra}$  was about 5 times lower than that of Mg, but not necessarily lower than that of Ca and Sr. At MT site,  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of  $^{226}\text{Ra}$  was found to be higher than that of Ca and Sr. Thus, the OR values of  $^{226}\text{Ra}$  less than unity, which derived from their lower CR (Table 2), was mainly explained by their lower solubility against Ca and Sr and by their lower absorbability against Mg.

#### *Distribution of elements in plant*

Fig. 1 shows the distribution of elements and their seasonal change in plant organ of *P. australis* and *M. sinensis* growing on MT and OD sites, respectively. For all elements, different organs had different concentrations. Except for Mg in *M. sinensis*, a decreasing order of concentration from leaves, fruits to stems was observed. Concentration of Ca, Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$ , except for Mg, in leaves of both plants increased from spring to autumn. The seasonal changes in concentrations of all elements in stems, were less and not significant ( $P>0.05$ ).

To compare the selectivity of  $^{226}\text{Ra}$  among organs relative to other alkaline earth elements, the ratio of  $^{226}\text{Ra}$  to other elements were calculated for each organ. The ratios in leaves, dead leaves and fruit were highly correlated with that in stems within and between species (Fig. 2). This high correlation demonstrates that the ratio in plant organs was strongly affected by the ratio of elements absorbed by plants. The 1:1 values of the ratios in stem were shown in the figures as the solid lines. For  $^{226}\text{Ra}/\text{Ca}$ ,  $^{226}\text{Ra}/\text{Sr}$  and  $^{226}\text{Ra}/\text{Ba}$ , plots of leaves were distributed near the solid lines, indicating that discriminations of these elements are similar between stem and leaves. On the other hand, the plots of dead leaves and fruits were slightly higher than those lines. Thus,  $^{226}\text{Ra}$  tend to accumulate in these organs rather than Ca, Sr and Ba for both plants. Mg differed from these elements in the relationship with  $^{226}\text{Ra}$ . For the ratio of  $^{226}\text{Ra}/\text{Mg}$ , the plot of leaves and of dead leaves were distributed higher than the solid line, and the plot of fruits was distributed near to the line.

Since the linear relationship of element distribution was given among organs, observed ratios within a plant (OR defined here as  $^{226}\text{Ra}/\text{M}$  in an organ divided by  $^{226}\text{Ra}/\text{M}$  in another organ, where the M is Mg, Ca, Sr or Ba) might well draw relative  $^{226}\text{Ra}$  selectivity against other elements among organs. The OR was calculated on stem bases as leaves/stems, dead leaves/stems and fruits/stems for each element. Irrespective of harvest time, the OR of leaves/stems and of dead leaves/stems did not vary significantly in each element ( $P < 0.05$ ). The ORs of  $^{226}\text{Ra}$  against Ca, Sr and Ba was not different between the species. In a comparison of plant species between *P. australis* and *M. sinensis*, significant difference was only seen for the  $^{226}\text{Ra}/\text{Mg}$  ratio in leaves/stems and fruits/stems ( $P < 0.05$ ). Although the OR was different among plant organs ( $P < 0.0001$ ) and among elements ( $P < 0.0001$ ), the OR of  $^{226}\text{Ra}/\text{Ca}$ ,  $^{226}\text{Ra}/\text{Sr}$  and  $^{226}\text{Ra}/\text{Ba}$  in each organ showed similar value (Table 4).

## Discussion

### *Influence of alkaline earth elements on the uptake of $^{226}\text{Ra}$ in plants*

Most studies found significantly elevated  $^{226}\text{Ra}$  levels in plants at or near mining and milling operations (Simon & Ibrahim, 1990). Such trend was also observed in this study. Concentration of  $^{226}\text{Ra}$  in plants increased proportionally with increasing  $^{226}\text{Ra}$  concentration in soil. The concentration ratios of  $^{226}\text{Ra}$  for two grass species in this area were similar to the values compiled by McDowell-Boyer and Watson et al. (1980; CR=0.09 for forage, hay and feed) and IAEA (1994; CR=0.08 for grass).

In this study, differences in CR of  $^{226}\text{Ra}$  among sites were not observed. This result does not favor a proportional change of the CR with different soil solubility. Indeed, the element in water solution, which only represents a part of available cation pool, may not represent the total available cation for plant uptake (e.g. Larcher, 1995). Exchangeable fraction of  $^{226}\text{Ra}$  in soil may well represent the availability within a limited kind of soil (Markose, Bhat & Pillai, 1993), though, it may not sufficiently explain in a several kinds of soil (Lima and Penna-Franca, 1988). In the case of this study, differences in concentrations of concurrent cations among soils may explain this disproportional relationship between the CR and the solubility. A number of studies have shown that high concentration of Ca in substrate suppresses radium uptake by plants (Taskaev, Ovchenkov, Aleksakhin & Shuktomova, 1977; Million, Sartain, Gonzalez & Carrier, 1994; Markose & Bhat et al., 1993; Sam & Eriksson, 1995). The presence of Ca also suppresses the uptake of Sr and Ba (Menzel, 1954; Wallace & Romney, 1971; Nisbet & Konoplev et al., 1993). In the present study, similar suppressions were also observed in  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of  $^{226}\text{Ra}$  at MT and OD sites, which have high concentration of Mg or Ca in soil solution.

Mg and Ca are essential nutrients for plant. Then, concentrations of these elements in plants are maintained at certain levels in various soil conditions (Table 2).  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of Mg and Ca tended to be higher in CP plants than in MT and OD plants, which compensates the lower content of these elements in the former soil. Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  are postulated to have no metabolic roles in plant. The change in  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of these elements was similar to that of Mg and Ca. This parallel change between  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  and that of Mg or Ca indicates that the regulation in uptake of nutrients proportionally influence on the uptake of these non-functional elements from soil substrate. Concurrent Sr and Ba also have larger replacing ability is to take-up  $^{226}\text{Ra}$  than Mg and Ca (Williams & Coleman, 1950; Kopp & Oestling et al., 1989). However, Sr and Ba concentration in substrates may not approach the value large enough to influence the plant uptake in natural environment (Table 1). Then, the main alkaline earth elements to limit  $^{226}\text{Ra}$  uptake by plant would be Mg or Ca in soil. Although the solubility of an element in soil is affected by many factors, the soil which has a high solubility of radium may also has high solubilities of the akin elements as shown in Table 3, which in turn reduces the absorption of radium. Therefore, the high solubility of  $^{226}\text{Ra}$  does not necessarily lead to high  $^{226}\text{Ra}$  transfer to plant.

At MT site, mill tailings and residuals from acid leaching had been dumped

after neutralization by lime ten years ago. The high concentration of Ca at this site should have some effect on the  $^{226}\text{Ra}$  uptake by plant. The  $^{226}\text{Ra}$  concentration in OD soil was similar to that in the agricultural field in the vicinity of the Ningyo-toge uranium site (Yunoki, Kataoka, Michiro, Sugiyama, Shimizu & Mori, 1993) ( $53\text{-}76 \text{ mBq g}^{-1}$ ), while the  $^{226}\text{Ra}$  concentration in plant growing on OD site was one order of magnitude higher than that in vegetables (spinach and Chinese cabbage) and grains (polished rice) from the agricultural field ( $0.14\text{-}0.54 \text{ mBq g}^{-1} \text{ dw}$ : recalculated from fresh weight bases data assuming dry weight content of fresh products = 10%). High fertilization and liming rates may explain the lower transfer of  $^{226}\text{Ra}$  to the plants in agricultural field.

#### *Distribution of $^{226}\text{Ra}$ in plants*

Higher  $^{226}\text{Ra}$  concentrations in leaves than in stems and fruits observed in this study were confirmed by several authors (Lima & Penna-Franca, 1988; Million & Sartain et al., 1994), though, contradict many studies which observed a decreasing gradient from stems to leaves (Simon & Ibrahim, 1990). An increase in  $^{226}\text{Ra}$  concentration in leaves from young to old has been observed for several plant types under different growing conditions (Popova & Vallejo, 1964; Simon & Ibrahim, 1990; Baeza, Paniagua, Rufo & Parandica, 1996). An increase of Sr in leaves with plant growth also has been observed (Bannai, Muramatsu & Yanagisawa, 1995). Kopp & Oestling et al. (1989) suggested that plants cannot fully discriminate between  $^{226}\text{Ra}$  and Ca in their transfer process. Ca does not move easily in the plant body, and tend to accumulate in the leaves with aging. This was not the case in Mg which has metabolically different functions with Ca and is easily redistributed from older to younger organs. It is reasonably supposed that the concentrations of Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  are positively correlated with Ca concentration in an organ. Million & Sartain et al. (1994) also found that large differences in plant  $^{226}\text{Ra}$  concentration were correlated strongly to Ca levels in plant than to in soil factors.

#### *Discrimination of $^{226}\text{Ra}$*

This study showed that alkaline earth elements are discriminated in each process of desorption from soil to water, absorption by plant and allocation among organs within a plant. In desorption process, the lower solubility of  $^{226}\text{Ra}$  and Ba than that of Ca and Sr was observed. Similar sizes of the ions in the pair of Sr and Ca ( $1.12$  and  $0.99\text{\AA}$ , respectively) and  $^{226}\text{Ra}$  and Ba ( $1.43$  and  $1.34\text{\AA}$ , respectively) may account for the similar behavior in each pair in soil (Taskayev

& Ovchenkov et al., 1977). Plant absorption and transfer of  $^{226}\text{Ra}$  has been documented to be lower than that of Ca (Kirchmann & Boulenger et al., 1966; Bhujbal & D'Souza et al., 1970; Sam & Erriksson, 1995). In the present experiment, however, the  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of  $^{226}\text{Ra}$  was higher than that of Ca in the plant at MT (Table 3). The observed ratio based on soil solution [ $\text{OR}=(\text{Ra}/\text{Ca}$  in plant)/( $\text{Ra}/\text{Ca}$  in soil solution)] in *P. australis* at MT was 1.76; *M. sinensis* at CP and OD had the ratio of 0.29 and 0.30, respectively. In the plant at MT, the  $\text{CR}_{\text{solute}}$  of Sr and Ba was also higher than that of Ca (Table 3). In this site, Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  showed high selectivity. This was in agreement with the results obtained by some studies showing discrimination in favour of Sr uptake when Ca concentration in soil solution exceeded the plants needs (Epstein & Leggett, 1954; Romney, Alexander, Rhoads & Larson, 1959; Roca & Vallejo, 1995). In the process of allocation within a plant, alkaline earth elements, such as Ca, Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  were found not to be discriminated between stems and leaves, whereas  $^{226}\text{Ra}$  tended to accumulate in dead leaves and fruits rather than in the vegetative organs. Sam and Eriksson (1995) showed that the transfer of  $^{226}\text{Ra}$  from vegetative to edible parts was lower than that of Ca on the average of several crops. However, their data also indicated that some crops could have higher translocation of  $^{226}\text{Ra}$  to edible parts. These differences in the selectivity of elements should be considered in the comparative study of plant species.

## Conclusions

The  $^{226}\text{Ra}$  uptake depended on the availability of the radionuclides in the soil and the selectivity of plant, which were both related to the element concentration in the soil solution. In this study, contrasting differences of element composition in soil were observed in relation to the concentrations of  $^{226}\text{Ra}$  and other alkaline earth elements and their solubilities. The soil, which has high solubility of  $^{226}\text{Ra}$ , also had high solubility of the chemical homologues. At high concentration of Mg and Ca in soil solution, a suppression of Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  uptake was observed, as a consequence of the regulatory uptake of Mg and Ca. Therefore, the high solubility of  $^{226}\text{Ra}$  does not necessarily lead to high  $^{226}\text{Ra}$  transfer to plant. There was a lower selectivity of Ba and  $^{226}\text{Ra}$  uptake over Mg, Ca and Sr uptake. This was explained by their lower solubility than the Ca and Sr solubility and their lower absorbability than the Mg absorbability.

Distribution of  $^{226}\text{Ra}$  in plants was correlated more to Ca rather than Mg. Concentrations of Ca, Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  in leaves increased from spring to autumn.

On the other hand, the selectivity of  $^{226}\text{Ra}$  against the chemical homologues in organ was constant throughout the plant growing period.

These results indicate that  $^{226}\text{Ra}$  uptake from soil to plant and its allocation among plant organs were correlated with the chemical homologues. The determination of the effect of concurrent elements on  $^{226}\text{Ra}$  uptake and their discrimination in each process of desorption, absorption and allocation could be useful for evaluating  $^{226}\text{Ra}$  behaviour in soil-plant system.

Concentration ratios of  $^{226}\text{Ra}$  at the studied sites in the Ningyo-Toge area were not different from those obtained by other authors. However, they were one order of magnitude higher than that in agricultural field nearby. Fertilization and liming in the agricultural field were assumed to explain the differences in concentration ratios between them.

### Acknowledgements

This work was supported by the fellowship of JNC (Japan Nuclear Cycle Development Institute). Facilities provided by Ningyo-Toge Environmental Engineering Center of JNC are gratefully acknowledged. The author thanks colleagues of Environmental Research and Development Group, Environmental Management Section and Environment and Safety Section of JNC for their help with the experimental work.

### Reference

- Baeza, A., Paniagua, J., Rufo, M., & Rarandica J. (1996). Bio-availability and transfer of natural radionuclides in a mediterranean ecosystem. *Applied Radiation and Isotopes*, 47, 939-945
- Bannai, T., Muramatsu, Y., & Yanagisawa, K.. (1995). Transfer factors of some selected radionuclides (radioactive Cs, Sr, Mn, Co and Zn) from soil to leaf vegetables. *Journal of Radiation Research*, 36, 143-154
- Bhujbal, B.M., D'Souza, T.J., & Mistry, K.B. (1970). Discrimination between radium and calcium in the soil-plant system. In *Radiation and Isotopes in Soil Studies and Plant Nutrition (Proceedings of a Symposium held at the University of Agricultural Sciences, Hebbal, Bangalore, 21-23 Dec. 1970)*. Department of Atomic Energy, India, (pp. 155-165)
- Epstein, E., & Leggett, J.E. (1954). The absorption of alkaline earth cations by barley roots: kinetics and mechanism. *American Journal of Botany*, 41, 785-791



- IAEA (1994). *Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments*, Technical reports series No. 364. Vienna, IAEA
- Kirchmann, R., Boulenger, R., & Lafontaine, A. (1966). Uptake of Ra-226 by crop plants. *Health Physics*, 12, 1805-1806
- Kopp, P., Oestling, O., & Burkart, W. (1989). Availability to and uptake by plants of radionuclides under different environmental conditions. *Toxicological and Environmental Chemistry*, 23, 53-63
- Larcher, W. (1995). *Physiological plant ecology 3rd ed.* Berlin: Springer
- Lima, V.T., & Penna-Franca, E. (1988). Uptake of endogenous and exogenous <sup>226</sup>Ra by vegetables from soils of a highly radioactive region. *Radiation Protection and Dosimetry*, 24, 123-126
- Markose, P.M., Bhat, I.S., & Pillai, K.C. (1993). Some characteristics of <sup>226</sup>Ra transfer from soil and uranium mill tailings to plant. *Journal of Environmental Radioactivity*, 21, 131-142
- McDowell-Boyer, L.M., Watson, A.P., & Travis, C.C. (1980). A review of parameters describing terrestrial food-chain transport of Pb-210 and Ra-226. *Nuclear Safety*, 21, 486-495
- Menzel, R.G. (1954). Competitive uptake by plants of potassium, rubidium, cesium, calcium, strontium, and barium from soils. *Soil Science*, 2, 79-85
- Million, J.B., Sartain, J.B., Gonzalez, R.X., & Carrier, III W.D. (1994). Radium-226 and Calcium uptake by crops grown in mixtures of sand and clay tailings from phosphate mining. *Journal of Environmental Quality*, 23, 671-676
- Nisbet, A.F., Konoplev, A.V., Shaw, G., Lembrechts, J.F., Merckx, R., Smolders, E., Vandecasteele, C.M., Lönsjö, H., Carini, F., & Burton, O. (1993). Application of fertilizers and ameliorants to reduce soil to plant transfer of radiocaesium and radiostrontium in the medium to long term - a summary. *The Science of the Total Environment*, 137, 173-182
- Popova, O.N., Kodaneva, R.P., Vavilov, P.P. (1964). Distribution in plants of radium absorbed from the soil. *Soviet Journal of Plant Physiology*, 11, 371-375
- Roca, M.C., & Vallejo, V.R. (1995). Effect of soil potassium and calcium on caesium and strontium uptake by plant roots. *Journal of Environmental Radioactivity*, 28, 141-159
- Romney, E.M., Alexander, G.V., Rhoads, W.A., & Larson, K.H. (1959). Influence of calcium on plant uptake of Sr-90 and stable strontium. *Soil Science*, 87,

- Sam, A.K., & Eriksson, Å. (1995). Radium-226 uptake by vegetation growth in western Sudan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 29, 27-38
- Simon S.L. & Ibrahim S.A (1990). Biological uptake of radium by terrestrial plants. In *The environmental Behaviour of Radium vol. 1*, Technical reports series No. 310. (pp. 545-599). Vienna, IAEA.
- Taskayev, A.I., Ovchenkov, V.Y., Aleksakhin, R.M. & Shuktomova, I.L. (1977) Uptake of Ra-226 by plants and change in its state in the soil-plant tops-litter fall system. *Soviet Soil Science*, 2, 79-85
- Wallace, A., & Romney, E.M. (1971). Some interactions of Ca, Sr, and Ba in plants. *Agronomy Journal*, 3, 245-248
- Williams, D.E., & Coleman, N.T. (1950). Cation exchange properties of plant root surfaces. *Plant and Soil*, 2, 243-256
- Yunoki, E., Kataoka, T., Michiro, K., Sugiyama, H., Shimizu, M., Mori, T., (1993). Activity concentrations of <sup>238</sup>U and <sup>226</sup>Ra in agricultural samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 174, 223-228

Table 1. Concentrations of Mg, Ca, Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  in soils, soluble fractions and plants harvested in August. Values in parentheses indicate standard error of mean ( $n=5$ ). (MT mill tailings pond, CP covered openpit, OD overburden dump)

Site		MT	CP	OD
Total in soil				
Mg	(ppm)	650 (222)	2907 (82)	2372 (228)
Ca	(ppm)	6120 (1500)	1269 (51)	397 (54)
Sr	(ppm)	13 (1)	10 (0)	8 (1)
Ba	(ppm)	283 (74)	157 (17)	230 (54)
$^{226}\text{Ra}$	( $10^{-3}\text{Bq/g}$ )	1420 (272)	167 (18)	58 (10)
Soluble in soil				
Mg	(ppm)	0.8 (0.1)	0.2 (0.0)	0.6 (0.1)
Ca	(ppm)	19.4 (5.7)	0.6 (0.1)	1.4 (0.3)
Sr	( $10^{-3}\text{ppm}$ )	35.3 (8.5)	5.8 (0.6)	16.3 (2.4)
Ba	( $10^{-3}\text{ppm}$ )	30.3 (8.9)	7.5 (0.4)	25.3 (4.6)
$^{226}\text{Ra}$	( $10^{-6}\text{Bq/g}$ )	363.4 (53.7)	14.3 (1.0)	19.3 (4.1)
Plant		<i>P. australis</i>	<i>M. sinensis</i>	<i>M. sinensis</i>
Mg	(ppm)	733 (32)	768 (39)	682 (89)
Ca	(ppm)	1629 (194)	1152 (59)	901 (105)
Sr	(ppm)	4.4 (1.6)	7.9 (0.6)	7.4 (0.8)
Ba	(ppm)	12.0 (0.9)	13.7 (0.8)	11.9 (0.9)
$^{226}\text{Ra}$	( $10^{-3}\text{Bq/g}$ )	72.4 (11.5)	8.5 (1.2)	3.7 (0.3)

Table 2. CR of each element and OR for  $^{226}\text{Ra}$  against other elements (defined as the ratio of  $^{226}\text{Ra}/\text{M}$  in plants to  $^{226}\text{Ra}/\text{M}$  in soil, where M represent Mg, Ca, Sr or Ba) in MT, CP and OD site. Mean and SE (in parentheses) are presented.

Site	MT	CP	OD
CR			
Mg	1.54 (0.33)	0.27 (0.02)	0.29 (0.05)
Ca	0.33 (0.06)	0.91 (0.06)	2.38 (0.34)
Sr	0.32 (0.03)	0.76 (0.08)	0.95 (0.11)
Ba	0.05 (0.02)	0.09 (0.01)	0.06 (0.02)
$^{226}\text{Ra}$	0.07 (0.03)	0.05 (0.01)	0.07 (0.01)
OR			
$^{226}\text{Ra}/\text{Mg}$	0.049 (0.014)	0.213 (0.047)	0.267 (0.060)
$^{226}\text{Ra}/\text{Ca}$	0.320 (0.154)	0.063 (0.015)	0.031 (0.005)
$^{226}\text{Ra}/\text{Sr}$	0.211 (0.070)	0.078 (0.020)	0.075 (0.010)
$^{226}\text{Ra}/\text{Ba}$	1.284 (0.301)	0.608 (0.120)	1.403 (0.396)

Table 3. Solubility (ratio of soluble fractions to totals in soil) and  $CR_{\text{solute}}$  (concentration ratio based on soluble fractions in soil) of Mg, Ca, Sr, Ba and  $^{226}\text{Ra}$  in MT, CP and OD site. Mean and SE (in parentheses) are presented.

Site	MT	CP	OD
<b>Solubility (%)</b>			
Mg	0.157 (0.033)	0.007 (0.001)	0.025 (0.005)
Ca	0.333 (0.054)	0.046 (0.005)	0.359 (0.071)
Sr	0.261 (0.045)	0.055 (0.006)	0.211 (0.037)
Ba	0.011 (0.002)	0.005 (0.000)	0.013 (0.003)
$^{226}\text{Ra}$	0.034 (0.011)	0.009 (0.001)	0.037 (0.011)
<b><math>CR_{\text{solute}}</math></b>			
Mg	993 (76)	3938 (555)	1229 (122)
Ca	119 (39)	2096 (217)	735 (121)
Sr	148 (43)	1402 (98)	482 (61)
Ba	578 (183)	1873 (194)	512 (71)
$^{226}\text{Ra}$	209 (29)	604 (98)	218 (32)

Table 4. Observed ratios (ratio of  $^{226}\text{Ra}/\text{M}$  in plants to  $^{226}\text{Ra}/\text{M}$  in soil, where M represent Mg, Ca, Sr or Ba) at MT, CP and OD site. Means and SE (in parentheses) are presented.

	MT		CP		OD	
OR(Ra/Mg)	0.049	(0.014)	0.213	(0.047)	0.267	(0.060)
OR(Ra/Ca)	0.320	(0.154)	0.063	(0.015)	0.031	(0.005)
OR(Ra/Sr)	0.211	(0.070)	0.078	(0.020)	0.075	(0.010)
OR(Ra/Ba)	1.284	(0.301)	0.608	(0.120)	1.403	(0.396)

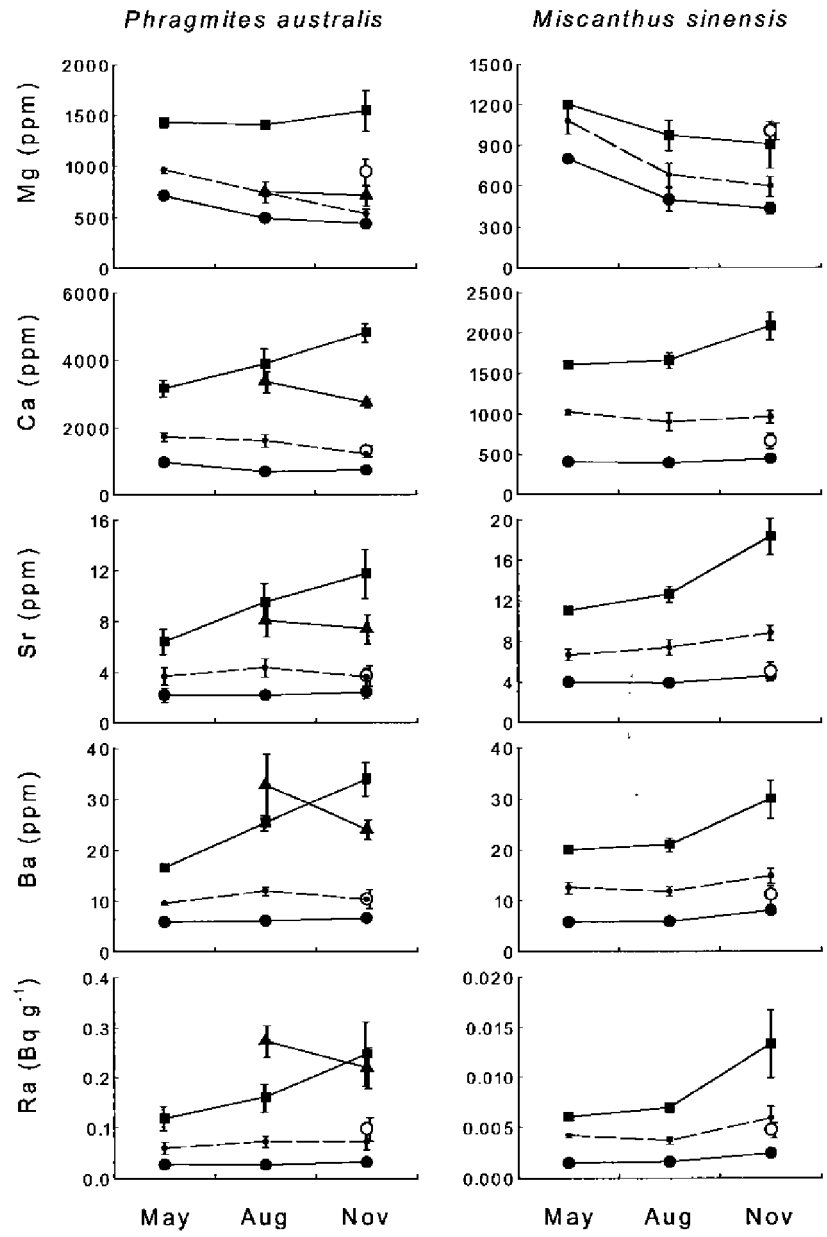


Fig. 1 Changes in mean concentration of elements (Mg, Ca, Sr, Ba and Ra) in organ (●roots, ■leaves, ▲dead leaves, ○fruits) and in whole plant (closed circle with dashed line) of *P. australis* and *M. sinensis* in MT and OD site, respectively. Vertical bar indicates  $\pm 1SE$ .

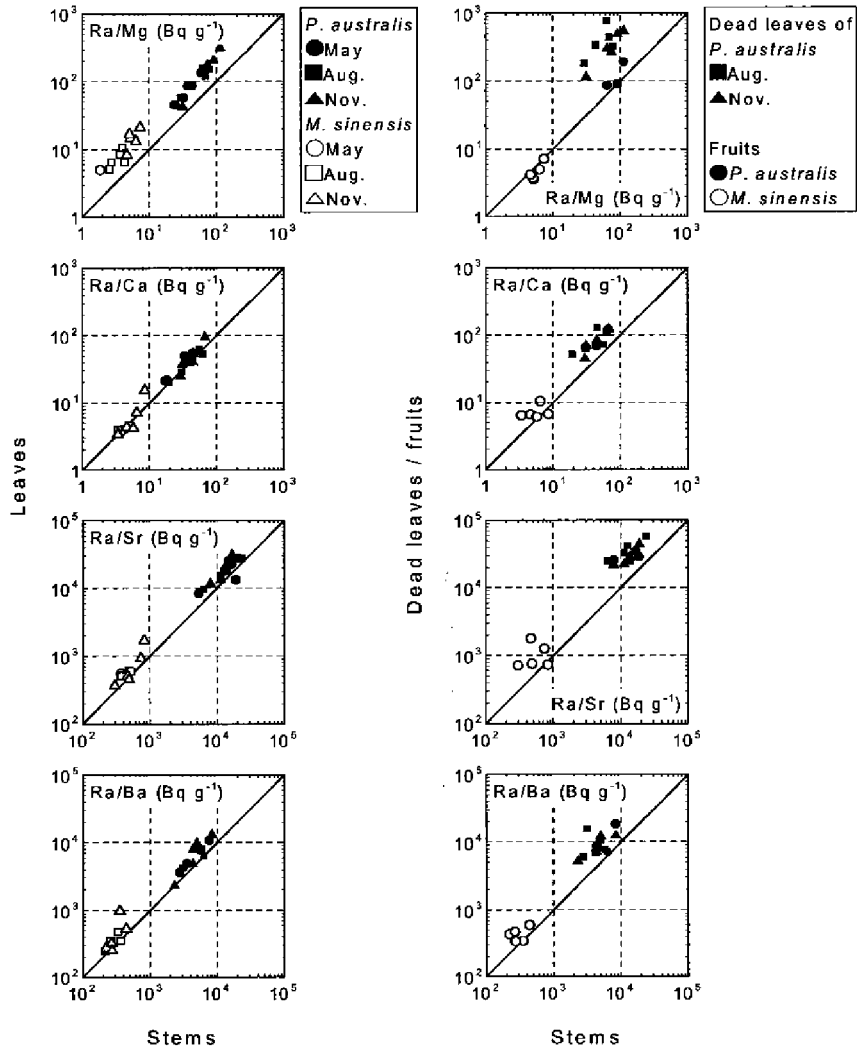


Fig. 2 Relationships of elemental ratio defined as  $^{226}\text{Ra}/\text{M}$ , where M represents Mg, Ca, Sr or Ba, among plant organs for *P. australis* and *M. sinensis*. The ratio in leaves (left column), and in dead leaves and fruits (right column) is plotted against the ratio in stems. Solid line in each figure represents the 1:1 value of the ratio in stems.



## 2章

### 土壌から植物へのラジウム移行特性の種間差と地域間差

志鷹 幸徳

人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部 環境研究グループ

## 要旨

植物によるラジウム吸収の種間差や地域間差についてカルシウムとの関係を調べるために、人形峠環境技術センター周辺の植生の異なる3つの林分と草本群落において、土壌と、そこに生育する主要な植物計12種を採取し、ラジウム濃度を分析した。土壌のラジウム濃度は調査地区間でほぼ同じであり有意な差はみられなかったが、植物のラジウム濃度は大きく変化し、桿や枝については、最も高かった植物と最も低かった植物との間に66倍の差がみられた。葉については、その差は12倍であった。また、同一地区内でも種毎にラジウム濃度は異なり、最大で桿枝において22倍の差がみられた。

各植物のラジウムの濃縮比(土壌に対する植物の元素濃度の比)はカルシウムの濃縮比と比例関係がみられ、両元素は類似した挙動を示していることが示唆された。しかし、カルシウムに対するラジウムの選択係数は1より低く、ラジウムはカルシウムに比べ植物へ移行しにくいことが明らかになった。

両元素間で得られた比例関係を用い、植物のラジウム濃度を土壌のラジウム・カルシウム比(土壌のラジウム濃度/カルシウム濃度)と植物のカルシウム濃度に分け解析した。土壌のラジウム・カルシウム比は調査地区間で9倍の違いがみられ、その違いは植物のラジウム濃度の地域間差を反映していた。また、植物種間のカルシウム濃度は桿枝、葉についてそれぞれ22倍、5倍の違いがみられ、植物のラジウム濃度の種間差を反映していた。これらのことから、人形峠環境技術センター周辺において、土壌のラジウム・カルシウム比と植物のカルシウム濃度はそれぞれ植物へのラジウム移行特性の地域間差と種間差を示すよい指標であると結論した。また、植物のカルシウム濃度は植物分類学上の属レベルでほぼ同じ値が得られ、ラジウムの植物への移行しやすさも属レベルで類似していることが示唆された。

## はじめに

人形峠環境技術センター構内の採掘場跡地や各堆積場にはアシやススキが優占する草原が成立しており、今後草刈りなどの人為的管理が行われなければ、森林に発達していくと予想される。センター構内に設置されている周辺保安林は採掘場跡地や堆積場の将来的な植生を示していると思われ、この森林の植生がどのような吸収特性を持つかを明らかにすることは、将来的な放射性元素の植生への移行を把握することに役立つと考えられる。

土壌から植物への放射性元素の移行特性は、一般に、植物と土壌の元素濃度の比で定義される CR (濃縮比) で表される。ウランの娘各種であるラジウムの CR はこれまでに多くの研究がなされているが、対象とする地域や種により xx から yy まで大きく変化する事が知られている。CR は土壌のイオン交換容量や水分条件、pH、有機物含量などの土壌環境や植物種といった様々な要因に依存している (Simon & Ibrahim, 1990)。そのため、様々な条件を含む野外環境においては CR を推定することは難しい。

しかし、ラジウムはその化学的性質の類似性から同じアルカリ土類元素であるカルシウムと環境中での挙動が類似していると考えられており (e.g. Simon and Ibrahim, 1987)、ラジウムの植物中の濃度がカルシウムの濃度と比例関係にあることが報告されている (Million et. al. 1994)。前章でも、アシやススキの植物内の元素分配にこのような比例関係が見られた。植物にとって必須元素であるカルシウムは植物中で常にある濃度範囲に調節されており、土壌中のカルシウム濃度による影響は受けにくい。植物中のカルシウム濃度は植物種によって異なり、一般にイネ科の植物で低い事が知られている (e.g. 山崎ら, 1993)。よって、植物へのラジウム移行の地域差や植物間差はカルシウムの移行の違いを反映していることが期待される。

そこで、本研究では、センター周辺の野生植物を対象に、植物へのラジウム移行についてカルシウム移行との比較を試みた。センター周辺に成立する3つの森林と、河原のアシ群落において土壌と植物を採取し、カルシウムとラジウムの移行比の相関を調べた。

## 地域と方法

人形峠環境技術センターはウランの採掘、製錬施設として利用されてきた。センター構内には露天採掘場跡地や表土堆積場・鉍滓堆積場がある。露天採掘場跡地や表土堆積場は埋め立てられ、ススキ群落が成立している。鉍滓堆積場は常に冠水状態に置かれているためアシ群落が成立している。センター周辺部には周辺保安林が設けてある。当地域は岡山県北部に位置し、標高700m、温帯に属し、ブナ林の発達する地域であるが、30年ほど前までは薪炭林や植林地、スキー場などとして利用されており、周辺保安林にはコナラ林やクレーミズナラ林などの二次林、アカマツの植林地

が存在する。また、当センターは岡山県自然公園地域指定地内にあり、氷ノ山・後山・那岐山国定公園にも隣接しているなど、その周囲を広大な森林に囲まれている。

調査地域として、周辺保安林に成立する植生の異なる3つの林分 P1, P2, P3を選んだ(図1)。また、構外にある吉井川河川敷(上斎原村)の草本群落も調査対象にくわえた(P4)。相対胸高断面積による各林分の優占種は、P1がコナラ、P2はアカマツ、P3はクリ・ミズナラである。P4はアシの純群落である。これら4地域から土壌と、そこに生育する主要な植物計12種を採取した。表1に各採取地域の種構成と採取植物種を示す。採取は1999年7月27日から30日にかけて行った。土壌は各地区から5カ所ずつ、A層・B層に分け採取した。P1、P2、P3のA層はどれも約20cmの厚さであった。P4は砂地であり砂礫層が60cm以上あったため20cmの深さまでの砂礫層を採取した。植物は葉と桿枝に分け採取した。

### 分析

採取した土壌と植物試料は80℃で48時間以上乾燥し、秤量後、500℃で灰化した。カルシウム濃度は、灰化試料約1gをフッ酸+王水で分解し、1%硝酸溶液に調整した後、ICP-AESを用いて分析した。ラジウム濃度は、灰化試料約1gをアルカリ熔融法により分解し、ラドン・エマネーション法で<sup>226</sup>Raを分析した。

### 計算

濃縮比 CR は土壌の元素濃度に対する植物の元素濃度の比で示される。ここでは、植物による塩類吸収が最も活発な土壌層と考えられるA層に対する植物の元素濃度を CR として計算した。カルシウムとラジウムについて、それぞれCRを計算し、次式でように両 CR 値の相関を調べた。

$$CR_{Ra} = a \cdot CR_{Ca} \quad \text{式1}$$

ここで、 $CR_{Ra}$ と $CR_{Ca}$ はそれぞれラジウムとカルシウムの濃縮比を示す。また、 $a$ はカルシウムに対するラジウムの選択性を表す係数(以下、ラジウム選択係数とする)である。

式1から植物中のラジウム濃度 ( $[Ra]_{pl}$ ) は次のように表すことができる。

$$[Ra]_{pl} = a \cdot [Ca]_{pl} \cdot \frac{[Ra]_{soil}}{[Ca]_{soil}} \quad \text{式2}$$

ここで、 $[Ca]_{pl}$ は植物中のカルシウム濃度、 $[Ra]_{soil}$ と $[Ca]_{soil}$ はそれぞれ土壌中のラジ

ウム濃度とカルシウム濃度である。式2は、 $[Ra]_{pl}$  が植物側の要因である $[Ca]_{pl}$  と土壌側の要因である  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  に分けられることを意味する。この式を用いて、 $[Ra]_{pl}$  に対する $[Ca]_{pl}$ と $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$ による影響を解析した。

## 結果

### 土壌・植物のラジウム濃度と濃縮比

土壌A・B層のラジウム濃度を表2に示す。各土壌層ともP1のラジウム濃度がほかの地区に比べて高い傾向を示した。しかし、土壌A層では地区間の差が有意ではなく、土壌B層ではP1のみ有意な違いがみられた( $P<0.05$ )。土壌B層は土壌A層に比べラジウム濃度が、P1では高くP2,3 では低かったがそれぞれ有意な差はみられなかった。

一方、植物のラジウム濃度は地区間で大きく変化した(表3)。各地区の主要構成種のラジウム濃度を比較すると地区間で有意な違いがあり(葉・枝ともに  $P<0.0001$ )、P1のコナラやP3のクリ・ミズナラに比べ、P2のアカマツやP4のアシで低い傾向が見られた。桿枝について種毎にみると、最も高かったのはP1のヤマウルシで、最も低かったP4のアシと比較して66倍であった。同一地区内でも種によってラジウム濃度は変化し、P1内のチマキザサとヤマウルシでその差が大きく22倍の違いが見られた。葉のラジウム濃度は枝の場合に比べ植物間差が小さいが、全体で12倍の違いがみられた。このように、植物のラジウム濃度は種間差が大きい。また、同一種でも調査地区によって違いが見られ、ミズナラやクロモジをP1とP3で比較すると、P1の方が大きかった。

植物のラジウム濃度は土壌に比べて低く、そのため  $CR_{Ra}$ (ラジウムの濃縮比)は1より小さかった(表3)。 $CR_{Ra}$ (ラジウムの濃縮比)も各地区の主要構成種間で有意な差がみられ(葉・桿枝ともに  $P<0.0001$ )、P1のコナラやP3のクリ・ミズナラに比べ、P2のアカマツやP4のアシで低かった。桿枝について  $CR_{Ra}$  をみると、最も低かったP4のアシと最も高かったP1のヤマウルシでは42倍異なっており、同一地区内ではP1でチマキザサとヤマウルシの間に22倍の違いが見られた。葉では桿枝に比べ  $CR_{Ra}$  の差が小さいが、調査対象全体で4倍の違いがみられた。このように、植物へのラジウムの移行は植物種や調査地区によって大きく異なることがわかる。

### ラジウムとカルシウムの濃縮比の相関

ラジウムとカルシウムの土壌から植物への移行の関係を調べるために、両元素のCRについてその相関をみた。図2に  $CR_{Ra}$  と  $CR_{Ca}$  の関係を示す。枝・葉ともに  $CR_{Ca}$  に対する  $CR_{Ra}$  の相関は有意であった。また、Y切片の0からの変動は有意ではなかったため、この関係を式1に当てはめ、枝・葉それぞれについて次に示す回帰式が得られた。

桿枝： $y = 0.075 x$  ( $R^2=0.71$ ) ( $P<0.01$ )

葉： $y = 0.039 x$  ( $R^2=0.44$ ) ( $P<0.01$ )

$CR_{Ca}$  は桿枝についてみるとP4のアシの 0.09 からP1のヤマウルシの 3.39 まで38倍の違いが見られた。葉について  $CR_{Ca}$  をみると、P2のアカマツの 0.36 からP1のヤマウルシの 3.92 まで11倍の違いが見られた。このことは、 $CR_{Ca}$  は種や地域により大きく異なり、その違いが  $CR_{Ra}$  に影響を与えていることを示唆している。

ラジウム選択係数  $a$  (式1) の値は枝、葉ともに1より小さく、ラジウムがカルシウムに比べ土壌から植物へ移行しにくい傾向がみられた。この選択係数は桿枝に比べて葉で低く、ラジウムはカルシウムに比べて葉に移行しにくいことがわかる。

### 植物のカルシウム濃度と土壌のラジウム:カルシウム比

式1の回帰により得られたラジウム選択係数を用い、式2から  $[Ra]_{pl}$  (植物のラジウム濃度) を計算した。その計算値は図3に示すように実測値をよく近似していることがわかる。植物毎に見ると、計算値はP4のアシの葉の1/4から2倍の間で実測値との間に差がみられた。

式2は  $[Ca]_{pl}$  (植物のカルシウム濃度) や  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  (土壌のラジウムとカルシウム濃度の比) が大きくなるほど  $[Ra]_{pl}$  (植物のラジウム濃度) が大きくなることを意味する。各植物の  $[Ra]_{pl}$  がどちらの要因の影響を受けているかを明らかにするために、 $[Ca]_{pl}$  と  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  の分布をみた (図4)。  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  はP1が最も高く次いでP3, P2, P4の順に低くなり、P1とP4で9倍の違いがみられた。この違いは主に  $[Ca]_{soil}$  が土壌間で異なるためであった。  $[Ca]_{pl}$  は桿枝・葉ともにチマキザサがもっとも低く、  $[Ca]_{pl}$  がもっとも高かった植物との間にそれぞれ22倍と5倍の差が見られた。

この分布図から、各植物の  $[Ra]_{pl}$  について以下のことがいえる。P1のチマキザサで低かったのは  $[Ca]_{pl}$  の低さが影響した。P2のアカマツやP4のアシの  $[Ra]_{pl}$  が低かったのは  $[Ca]_{pl}$  と  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  の両方の低さが影響した。ミズナラやクロモジの  $[Ca]_{pl}$  はP1とP3でほぼ同じであり、これらの種の  $[Ra]_{pl}$  がP3で低かったのは  $[Ra]_{soil}/[Ca]_{soil}$  の低さが影響した。このように、各植物のラジウム濃度は、それぞれの植物が持つ固有のカルシウム濃度と生育する土壌のラジウム・カルシウム比の組み合わせによって説明されることがわかる。

$[Ca]_{pl}$  は植物分類群の科あるいは属レベルで類似しており、桿枝についてはアシやササのようなイネ科では低く ( $<1\text{mg g}^{-1}$ )、ブナ科 (コナラ、ミズナラ、クリ) やカエデ科 (オオモミジ、ウリハダカエデ) では高かった ( $>4\text{ mg g}^{-1}$ )。葉では、ブナ科やカエデ科で6~7、イネ科は  $6\text{mg g}^{-1}$  以下であった。  $[Ra]_{pl}$  もイネ科に比べブナ科やカエデ科が高い傾向がみられた。

その他の種では、ヤマウルシは $[Ca]_{pl}$ が枝・葉ともに高く $7\sim 9\text{mg g}^{-1}$ であった。アカマツは枝・葉ともに低く $3\text{mg g}^{-1}$ 程度であった。イヌツゲやクロモジは枝では低い( $2\sim 4\text{mg g}^{-1}$ )、葉では高かった( $8\sim 9\text{mg g}^{-1}$ )。ここで、クロモジの葉は $[Ca]_{pl}$ が高かったが、 $[Ra]_{pl}$ はP1, P3どちらもほかの種に比べ必ずしも高くはなかった(表1)。これは、この種の葉のラジウム選択係数がほかの種に比べ低かったからと考えられる(図2b)。逆にヤマウルシでは、選択係数 $a$ が高いため(図2a, b)、 $[Ra]_{pl}$ は図3のプロットから予想されるラジウム濃度よりも大きかった。

## 考察

今回の研究では植物全体で、 $CR_{Ra}$ (ラジウムの濃縮比)と $CR_{Ca}$ (カルシウムの濃縮比)の間には比例関係がみられた(図2)。この関係から、植物によるラジウムの吸収について、植物の種特性である植物中のカルシウム濃度と地域特性である土壌のラジウム・カルシウム比に分けて解析することができた(式2、図3)。

$CR_{Ra}$ と $CR_{Ca}$ の比例関係から得られるラジウム選択係数( $a$ )は1以下であり、多くの植物について、ラジウムがカルシウムに比べて土壌から植物へ移行しにくいことを示している。この選択性の低さはカルシウムに比べてラジウムが土壌から溶けだしにくいことや(前章)、植物に吸収されにくいことにより生ずるものと思われる(Sam and Eriksson, 1995; 前章)。

## 植物のカルシウム濃度

カルシウムは必須元素であり、植物体内の元素濃度がある一定の濃度範囲になるように植物に吸収されている。そのため、土壌中の元素濃度の影響は受けにくい。一般に植物中のカルシウム濃度は、双子葉植物に比べ単子葉植物で低いのが特徴である(e.g. 山崎ら, 1993)。今回の研究ではアシ、チマキザサ、チゴユリが単子葉植物であり、どれもカルシウム濃度が低い傾向が得られた。他の植物種でもカルシウム濃度は大きく異なっていたが、植物分類学上同じ科に属するものは同レベルのカルシウム濃度を持っていた。このことから、系統学上の分類が植物のラジウム移行特性の種間差を知る上で役立つことが期待される。

## 土壌のラジウム・カルシウム比

Marple (1980)は土壌中のカルシウム濃度が高いほど植物によるラジウム吸収が低いことを示している。今回の結果でも、植物によるラジウム吸収が土壌のラジウム・カルシウム比に影響を受けていることが示唆された。一方で、Kalin and Sharma (1982)は休鉱山の石灰が添加された鉱滓において植物へのラジウム移行を調べ、鉱滓中のカルシウム濃度と植物(ガマ)によるラジウム吸収には明確な関係はみられないことを報告している。また、Million et. al. (1994)が6種の作物を用いて行った実験では、土

壤への燐石膏の添加は植物によるラジウム吸収に影響を与えなかった。これらのことは、カルシウム添加による土壌中のラジウム・カルシウム比の変化が単純に植物によるラジウム吸収に影響するわけではなく、その化学形態などほかの要因にも左右されることを示唆していると思われる。しかし、自然環境のような、ラジウムやカルシウムの挙動が安定した状態では、ラジウム・カルシウム比は土壌特性を表すよい指標であると考えられる。

## 結論

異なる植生の比較において、土壌のラジウム濃度は調査地区間でほぼ同レベルの値であったが、植物のラジウム濃度は植物種や生育地により変化した。この変化は、植物間のカルシウム濃度の違いと生育地間の土壌のラジウム:カルシウム比の違いを反映していた。

植物のカルシウム濃度や、土壌のラジウム・カルシウム比はそれぞれ種間、地区間で大きく異なっていた。このことから、これら2つの要因が植物によるラジウム吸収の種特性、地域特性を示す重要な指標であると考えられた。

## 引用文献

Karlin M and Sharma HD (1982) Radium-226 and lead-210 uptake in *Typha latifolia* from inactive uranium mill tailings in Canada. in Environmental migration of long-lived radionuclides, IAEA, Vienna, 247-262

Marple ML (1980) Ra-226 in vegetation and substrates at inactive uranium mill sites. Report in LA-8183-T, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, NM (1980)

Million JB, Sartain JB, Gonzalez RX and Carrier III WD (1994) Radium-226 and calcium uptake by crops grown in mixtures of sand and clay tailings from phosphate mining. *J. Environmental Quality*, 23, 671-676

Simon SL and Ibrahim SA (1987) The plant concentration ratio for calcium, radium, lead and polonium: evidence for non-linearity with reference to substrate cocentration. *J. Environmental Radioactivity*, 5,



123-142

Simon SL and Ibrahim SA (1990) Biological uptake of radium by terrestrial plants. in The environmental behaviour of radium vol. 1, Technical reports series No. 310. (pp. 545-599). Vienna, IAEA.

山崎耕宇、杉山達夫、高橋栄一、茅野充夫、但野利秋、麻生昇平 (1993) 植物栄養学、朝倉書店

表1 各調査地区の種組成。○印は採取した植物を示す。nは試料数を表す。

P1 植物種	n	P2 植物種	n	P3 植物種	n	P4 植物種
アカマツ		○ アカマツ	5	アカマツ		○ アシ
アセビ		クロモジ		○ ウリハダカエデ	3	
○ イヌツゲ	3	タニウツギ		オオカメノキ		
ウリハダカエデ		ヤマウルシ		○ クリ	3	
オオカメノキ		リョウブ		○ クロモジ	3	
○ オオモミジ	3			コシアブラ		
○ クロモジ	3			コナラ		
コシアブラ				タニウツギ		
○ コナラ	5			ミズキ		
スギ				○ ミズナラ	3	
タニウツギ				ミヤマガマズミ		
○ チゴユリ	1			ヤマウルシ		
○ チマキザサ	3			ヤマザクラ		
ツノハシバミ				ヤマボウシ		
ナナカマド						
ナワシログミ						
ハウチワカエデ						
○ ミズナラ	3					
ミヤマザクラ						
ヤマウルシ						
ヤマボウシ						
リョウブ						

\*チゴユリ、チマキザサ、アシを除き高さ1.5m以上の木本を対象にした。

表2 土壌のラジウム濃度 (mBq g<sup>-1</sup>dw)

	P1	P2	P3	P4
土壌A層	65.7	46.9	47.2	41.6
土壌B層	78.1	30.3	36.8	

表3 植物のラジウム濃度と濃縮比

	ラジウム濃度 (mBq g <sup>-1</sup> dw)		濃縮比	
	幹or桿	葉	幹or桿	葉
P1				
コナラ	13.2	7.2	0.20	0.11
ミズナラ	10.1	7.0	0.15	0.11
オオモミジ	10.6	5.4	0.16	0.08
チゴユリ		5.2		0.08
クロモジ	3.5	5.7	0.05	0.09
チマキザサ	1.2	2.9	0.02	0.04
ヤマウルシ	26.6	18.2	0.41	0.28
イヌツゲ	6.8	12.3	0.10	0.19
P2				
アカマツ	1.5	1.5	0.03	0.03
P3				
ミズナラ	4.9	4.4	0.10	0.09
ウリハダカエデ	6.6	3.3	0.14	0.07
クロモジ	2.2	2.8	0.05	0.06
クリ	6.3	4.6	0.13	0.10
P4				
アシ	0.4	2.6	0.01	0.06

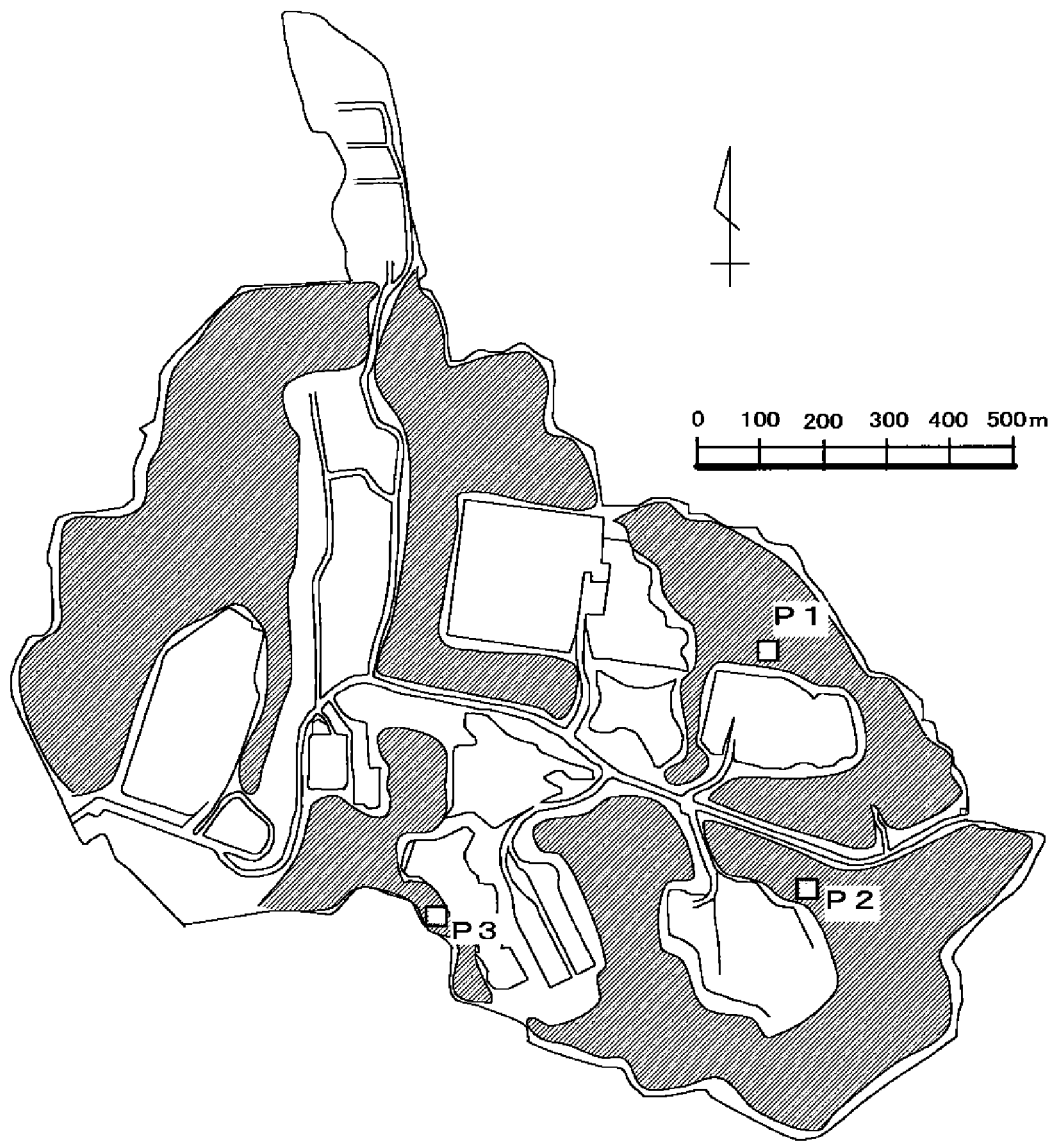


図1 人形峠環境技術センター構内図。斜線は周辺保安林を表す。P1、P2、P3は調査区を示す。

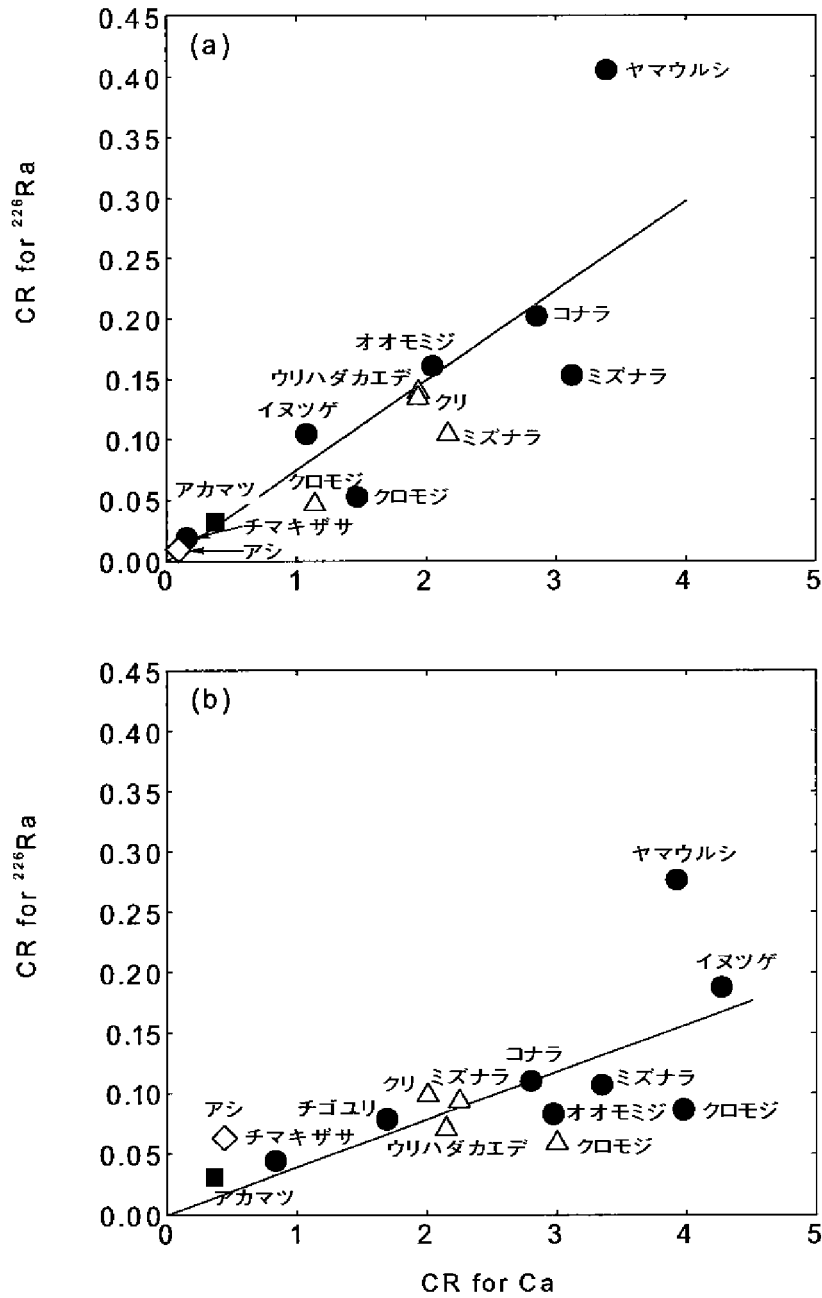


図2 カルシウムとラジウムのCR(濃縮比)の関係。aは桿枝について、bは葉について示す。●、■、△、◇はそれぞれ調査区 P1, P2, P3, P4を表す。

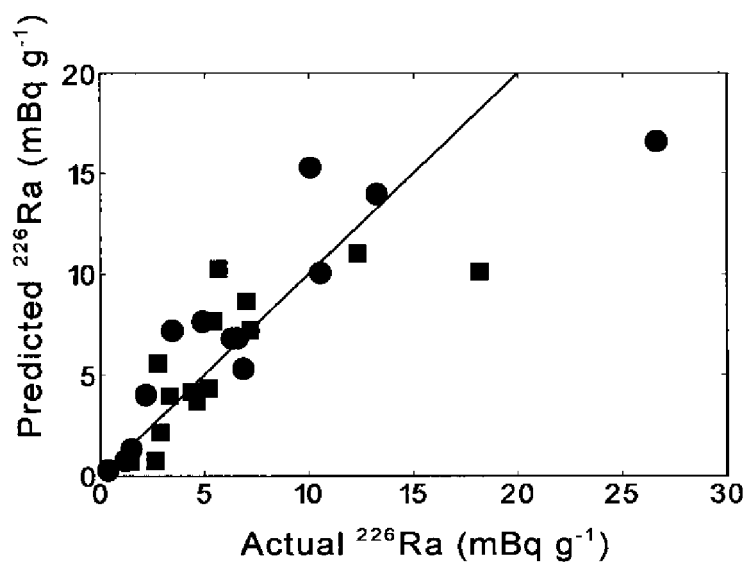


図2 植物のラジウム濃度の実測値と計算値の関係。●と■はそれぞれ各植物の桿枝と葉を表す。

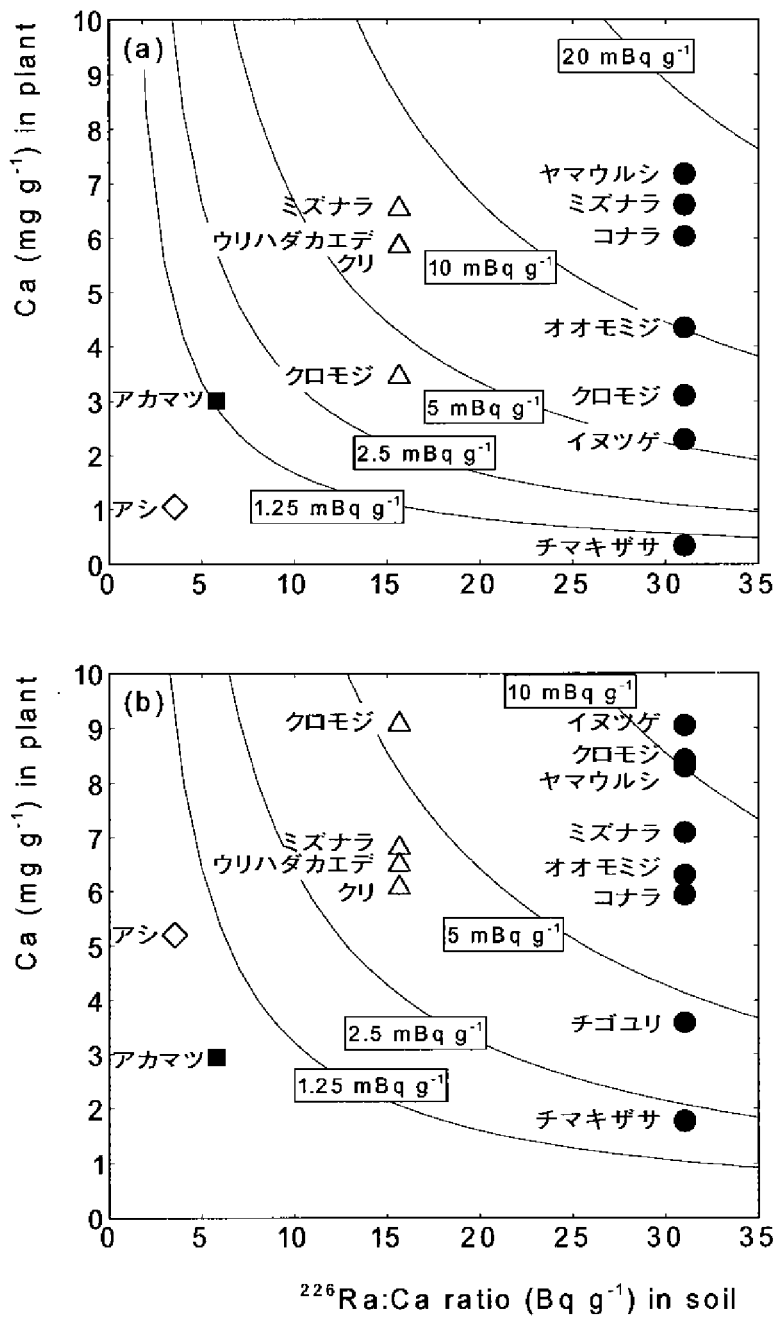


図3 各調査区における土壌のラジウム・カルシウム比と植物のカルシウム濃度。曲線は植物の計算により導いたラジウム濃度の等高線。●、■、△、◇はそれぞれ調査区 P1, P2, P3, P4を表す。



### 3章 まとめと総合考察

本研究では、ラジウムの土壌から植物への移行をテーマに、人形峠環境技術センター構内・構外の植物群落について解析を行った。1章では、センター構内の鉍滓堆積場(MT)、露天採掘場跡地(CP)、表土堆積場(OD)のアシやススキの草本群落について、ラジウムの土壌からの溶出、吸収、分配といった各移行過程において、ほかのアルカリ土類元素との比較という観点から植物によるラジウムの吸収を調べた。この研究では、土壌のラジウム溶出性は必ずしも植物へのラジウムの移行しやすさを反映しないことを示し、カルシウムやマグネシウムといった土壌に共存する元素がラジウム移行に与えている影響について評価することができた。2章ではセンター構内の周辺保安林(P1, P2, P3)や構外の河川敷(P4)のさまざまな植物を対象に、ラジウム吸収の種間差や地域間差について調べ、その差がそれぞれ、植物のカルシウム濃度と土壌のラジウム・カルシウム比の差を反映していることが明らかになった。この結果を、鉍滓堆積場や露天採掘場跡地、表土堆積場に当てはめることによってこれら地域の現状把握に役立つと考えられる。

センター構内の露天採掘場跡地、表土堆積場に成立するススキ群落は定期的な草刈りなどの管理が行われなければ森林への遷移が進み、将来的には周辺保安林で見られるようなコナラ林やクレーミズナラ林あるいはアカマツ林になるものと推定される。また、鉍滓堆積場は現在冠水状態におかれているためアシ群落が成立しているが、乾燥化・覆土などの処置がなされれば同様の森林に遷移するものと思われる。そこで、本章では露天採掘場跡地や表土堆積場、鉍滓堆積場について、今後、これらの地域が森林に遷移した場合の植物によるラジウム吸収に与える影響について考察する。

2章で明らかになったように、植物のラジウム濃度は土壌のラジウム・カルシウム比が高いほど増加する。また、ラジウムの濃縮比は土壌のカルシウム濃度が低いほど高くなる。鉍滓堆積場や露天採掘場跡地、表土堆積場の土壌のカルシウム濃度は、周辺保安林P1, P2, P3や河川敷P4に比べて低い。このことは、鉍滓堆積場や露天採掘場跡地そして表土堆積場の土壌は、周辺保安林や河川敷といった自然の地域に比べてラジウムが植物へ移行しやすい特性を持っていることを表していると思われる。実際、鉍滓堆積場はP4に比べて土壌のカルシウム濃度は半分であり(鉍滓堆積場では6.1、P4では11.8mg g<sup>-1</sup>)、一方で、そこに生育するアシにおけるラジウムの濃縮比は2倍であった(桿では鉍滓堆積場が0.019、P4が0.01。葉では鉍滓堆積場が0.113、P4が0.06)。また、表土堆積場とP4を比較すると、土壌のラジウム濃度はほぼ同じ値であるが、表土堆積場のススキはP4のアシに比べカルシウム濃度が低いにも関わらず、そのラジウム濃度は高かった。

ススキやアシはイネ科でありカルシウム濃度が低いことから、ラジウムの吸収能は他

の植物に比べて低い。このように、鉱滓堆積場や露天採掘場跡地、表土堆積場が、将来的に別の植生に移り変わった場合には、さらに植物によるラジウムの吸収が増えると考えられる。しかし、これらの土壌は現在、未発達であり、森林への遷移により植物遺体(落葉落枝)が蓄積し、土壌層が発達すると考えられる。植物は主に土壌表層から塩を吸収するため、土壌表層の環境がどのように変化するかを把握することが重要である。Rusanova (1964)は北方タイガ地帯の4種の異なる土壌について、土壌表層の腐植層にラジウムが蓄積しやすく、深くなるほどラジウム濃度が低下することを報告している。また、牧草地についても同様な結果が得られている(Taskaev et. al. ;1977)。一方で、人形峠周辺の各森林ではA層とB層の間に明確なラジウム濃度の違いはみられなかった(2章・表2)。このことは、土壌や気候、植生などの違いで、必ずしもラジウムが土壌表層に蓄積するわけではないことを意味していると思われる。鉱滓堆積場や露天採掘場跡地、表土堆積場に今後どのような土壌が発達し、土壌表層へのラジウム蓄積が起こるのかどうかは、今後さらに研究する必要があると考えられる。

植物は、土壌から様々な元素を吸収し、それらを再び土壌に還元するという物質循環を行っている。1章、2章でともに観察されたように、ラジウムがカルシウムに比べて吸収されにくいという性質は、この物質循環を通して、土壌表層のラジウム・カルシウム比を低下させるという作用を持っていると考えられる。このことから、植物によるラジウム吸収が年月を減るに従って減少していくことが期待される。周辺保安林での観察結果では、確かに、植物から土壌への移行経路である植物の落葉落枝のラジウム・カルシウム濃度は土壌のそれに較べて低かった(表1)。しかし、土壌A層のラジウム・カルシウム濃度は土壌B層に比べて必ずしも低くはなく、反対に高い地区もみられた。土壌からの元素の溶脱による下層への移行といった影響も考えられ、土壌-植物系における物質循環が土壌表層のラジウム・カルシウム比がにどのような影響を及ぼすのか、土壌層間の物資移行も考慮に入れて調べる必要があると考えられる。

## 引用文献

Rusanova GV (1964) Behaviour of radium and calcium in the soil-plant system. Soviet Soil Science, 3, 275-280

Taskaev AI, Ovchenkov Vya, Aleksakhin RM and Shuktomova II (1977) Uptake of Ra226 by plants and change in its state in the soil-plant top-litterfall system. Pochvovedeniye, 2, 42-48

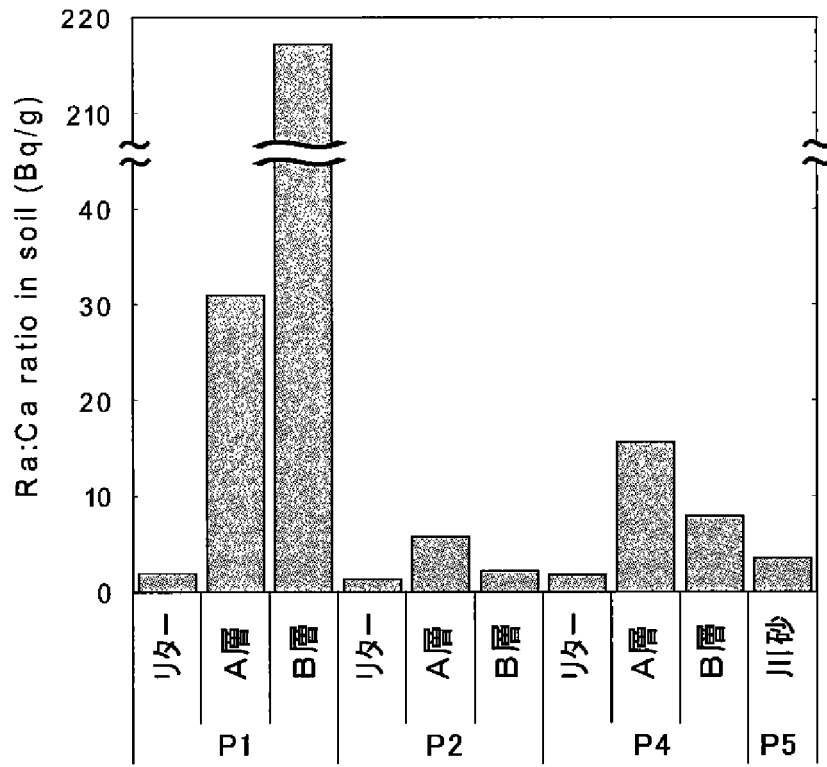


図1 リター（落葉落枝）と土壌A層B層のラジウム・カルシウム比（ラジウム濃度／カルシウム濃度）