

# 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

津 村 昭 人・駒 村 美佐子・小 林 宏 信

(1983年10月26日受理)

核分裂生成物のうち、半減期が長く生物学的に最も危険視されている $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の農業生産過程における挙動を解明し、その農作物・土壌の放射能汚染対策に資する知見を得るためトレーサ法により両核種の土壌及び土壌—水稻系における挙動を検討し、次の結果を得た。

土壌中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の存在形態は、土壌と粘土鉱物の種類により著しく異なり、一般に $^{90}\text{Sr}$ では水溶性と置換態、 $^{137}\text{Cs}$ では固定態の占める割合が大きいことを認めた。また、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の存在形態に影響を及ぼす物理・化学的諸条件を明らかにした。

土壌—水稻系（間接汚染経路）における $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の挙動を追跡し、両核種の吸収率、玄米移行率、玄米濃縮係数は土壌間だけでなく核種間で差異のあること、水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収量は土壌中の両核種の置換態量を反映する等の結果を得た。一方、水稻に対する $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収抑制についても論じた。

放射性降下物の直接汚染経路として知られている水稻の葉面、基部及び穎花からの放射性ストロンチウムとセシウムのとり込みとそれらの子実への移行を実証し、その移行量は $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr}$ の傾向にあることが判明した。

以上の結果をもとにして、放射能汚染調査で得られた情報や結果との対比により未解明のいくつかの問題点を抽出して検討し、特に、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の少量降下期の白米汚染は主に間接汚染によるが、多量降下期の白米汚染は間接・直接汚染の複合汚染からなることを結論づけた。

## 目 次

I 緒 論	58	定	76
II 土壌中における $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の挙動	58	11 土壌薄層クロマトグラフィーによる土壌と 粘土鉱物の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着力の簡易迅速 判定法	78
1 はじめに	58	12 ま と め	81
2 土壌中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の抽出法の検討	58	III 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ による間接汚染とその対策	82
3 土壌及び粘土鉱物による $^{137}\text{Cs}$ とKの固定	61	1 はじめに	82
4 土壌による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定に及ぼ すカチオン添加の影響	63	2 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収とその抑制	83
5 土壌及び粘土鉱物の酸化処理が $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定に及ぼす影響	67	3 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収に及ぼす共存 イオンの影響	89
6 土壌反応が $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の固定に及ぼす影響	68	4 土壌の種類と水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収	91
7 各種有機物による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定	72	5 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収の経年変化	94
8 土壌による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の固定に及ぼすたん 水処理の影響	73	6 ま と め	96
9 土壌中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の雨水による溶脱	74	IV 水稻の放射性ストロンチウムとセシウムによる 直接汚染	97
10 土壌粒子の大小と $^{90}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固			

1 はじめに	97
2 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水稻基部吸収	97
3 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水稻葉面からの吸収と玄米汚染	99
4 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ による水稻穎花汚染	101
5 まとめ	101

## I 緒 論

1945年に核爆発実験が開始され、1965年現在、核爆発実験の爆発総計は511 MTで、そのうち核分裂物質生成量は193 MTでその大部分は1961～1962年に地球上に放出されたものである<sup>29)</sup>。その後、小規模ではあるが核爆発実験が続けられ、現在なお多量の核分裂生成物が地球上に蓄積しており、これらが人類に対する放射能の汚染源となっている。

核分裂生成物のうち、半減期が長く人体に対する影響が大きいとされている $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の土壌—植物系における挙動を把握することは、環境衛生の立場からのみならず、今後原子力の平和利用の進展に伴ってますます増大することが予想される放射性廃棄物問題とも関連して重要である。

我国の放射能汚染調査は農学、医学、地球物理学等の分野で核爆発実験開始直後開始され、その一環として本研究所においても、昭和32年より放射性降下物(fall out)による土壌及び米の汚染、特に $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  濃度の調査を行い現在に至っている。その結果、核爆発実験の影響を直接強く受けたと考えられる時期に生産された白米中の $^{137}\text{Cs}$  対 $^{90}\text{Sr}$  濃度比は約10:1<sup>44), 61), 76)</sup>、核爆発実験の影響をほとんど受けていない最近の白米中の $^{137}\text{Cs}$  対 $^{90}\text{Sr}$  濃度比は約5:1<sup>62)</sup>と報告されており、いずれも放射性降下物中での比、 $^{137}\text{Cs}$  2.5: $^{90}\text{Sr}$  1<sup>58)</sup>を大きく上回っている。また、土壌及び白米中の $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  濃度についても著しい地域差のあることが認められている<sup>62), 63), 72)</sup>。

このような白米、水田土壌を対象とした汚染調査データを解析して必要な情報知見を把握し汚染対策に資する場合に、土壌—水稻系における $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の挙動を解明しておくことは極めて重要なことである。

本研究は以上のような背景で1962年から1971年にかけてアイソトープトレーサ法により土壌及び土壌—水稻系における $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の挙動の解明を行ったもので、I. 土壌中における $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の挙動、II. 水稻の $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  による間接汚染(経根吸収による汚染)とその対策、

V 総合考察	102
VI 摘 要	104
謝 辞	106
引用文献	106
Summary	111

III. 水稻の $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  による直接汚染の3部から構成されている。これらの研究の大半はすでに学会等で発表<sup>34) ~38), 47), 48), 99), 100), 101)</sup>されたものであるが、ここに総括したうえ報告する。

## II 土壌中における $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の挙動

### 1 はじめに

農耕地に降下した $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  は一旦土壌に保持され、吸着力の弱い形態のものは降雨水や灌漑水により作物根圏外へ溶脱し、吸着力の強い形態のものはそのまま根圏土壌中に長く残留し、作物に吸収され易い置換態のものと吸収され難い非置換態(固定態)に変化し作物の汚染源となる。

作物中の $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  含量は、それらの土壌中の置換態量を反映するという報告<sup>8), 14), 67), 94), 105)</sup>から、白米中の $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  の含量も土壌中に存在する両核種の存在形態(水溶性、置換・固定態)に影響されることが考えられる。

本章では、土壌中における $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の存在形態の把握ならびに存在形態に影響を及ぼす土壌の物理、化学的諸条件を明らかにし、放射能汚染対策や放射能汚染調査データの解析に資するに必要な基礎的知見を得ることを目的として実験を行った。

### 2 土壌中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の抽出法の検討

土壌中の $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  の抽出法として、WHO/FAO Joint Report<sup>22)</sup>によれば、6 N 塩酸、水酸化ナトリウム・炭酸ナトリウム融解法が、また我国では、科学技術庁の公定法として1 M—中性酢酸アンモニウム(以後の実験で抽出液又は展開剤として使用されているが、これを単に酢酸アンモニウムと記する)及び水酸化ナトリウム・塩酸抽出法が採用されている<sup>27), 28)</sup>。

酢酸アンモニウム抽出法は植物の可給態 $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  の量を推定する目的で使用され、本法により抽出した $^{90}\text{Sr}$  及び $^{137}\text{Cs}$  を置換態 $^{90}\text{Sr}$  及び置換態 $^{137}\text{Cs}$  と称している。一方、水酸化ナトリウム・塩酸抽出法は $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の全量を抽出することを目的としている。

表-1 供試土壌の理化学的性質

供試 土壌・粘土鉱物名	pH (H <sub>2</sub> O)	腐植 (%)	CEC*	置 換 性*			粒径組成 (2 mm以下) (%)			
				Ca	Mg	K	2 ~ 0.5	0.5 ~0.073	0.073 ~0.01	0.01mm 以下
高 田 土 壌	4.60	4.2	29.0	9.6	4.3	0.31	2.6	10.7	50.0	36.7
甲 府 土 壌	5.25	4.1	13.5	9.8	4.9	0.30	8.1	23.4	48.7	19.8
盛 岡 土 壌	6.00	12.6	26.0	12.8	2.8	0.40	9.3	39.9	42.0	8.8
砂 土	6.20	0.11	3.8	1.4	0.46	0.03	35.0	62.9	2.1	
西ヶ原土壌	6.90	3.7	28.0	26.6	2.5	0.53	—	—	—	
モンモリロナイト	9.6		80.5	21.8	10.3	1.16				
カオリナイト	4.8		4.8	0.8	0.2	0.14				
アロフェン	5.3		19.5	0.8	0.2	0.09				
カオリン**	8.2		—	—	—	—				

\* me / 100g

\*\* 試薬用(天然含水ケイ酸アルミニウム、JIS K 8 7 4 6)

土壌中の全  $^{90}\text{Sr}$ ・ $^{137}\text{Cs}$  抽出法は、1974年以前は 6 N 冷塩酸法が公定法として採用されていたが、抽出率が低い欠点があるために現在では水酸化ナトリウム・塩酸法に切替られている。しかし本法は実験操作が煩雑で、緊急時やルーティンワークの抽出法として必ずしも適当な方法とはいえないと考えられる。

本実験は、各種抽出法による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の抽出率を比較検討し、簡易迅速な全  $^{90}\text{Sr}$ ・ $^{137}\text{Cs}$  の抽出法をみい出すために行ったものである。

### (1) 供試土壌の理化学的性質

実験に供した土壌及び粘土鉱物の理化学的性質を表-1に示した。これらのうち、高田、甲府及び盛岡土壌の性質は次のとおりである<sup>69), 70)</sup>。高田土壌(主要粘土鉱物：モンモリロナイト)はグライ土で土性は Lic, 粘土含量は約40%である。盛岡土壌(主要粘土鉱物：アロフェン)は多湿黒ボク土で土性は FSL, 腐植含量が著しく高いが粘土含量はわずか5%である。甲府土壌は灰色低地土で土性は L, 粘土含量は上記両土壌の間となっている。

### (2) 実験方法

#### (a) $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の分析法

無担体の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の混合溶液(本研究に使用した  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  はすべて塩化物である)に  $\text{Ca}^{2+}$  15 mg を加え、塩酸性条件下で 0.1 g のリンモリブデン酸アンモニウムを加えて充分攪拌したのち、ガラス濾過器に円形濾紙をそうてんし、吸引濾過して、 $^{137}\text{Cs}$  をリンモリブデン酸アンモニウムとの共沈により濾紙上に集め

た<sup>28), 42), 43)</sup>。一方、濾液は水で約 50 ml とし、加熱後酢酸アンモニウム及び蓚酸アンモニウムを加え、メチルレッドを滴下したのち、水酸化アンモニウムで中和し  $^{90}\text{Sr}$  と Ca を蓚酸塩として沈殿させ<sup>27), 41), 42)</sup>たのち、加熱熟成して上記方法により濾別した。得られた  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の両沈殿の放射能を GM カウンターにより測定した。

#### (b) $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の土壌への吸着

風乾土壌 5 g を遠沈管にとり、無担保の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  のそれぞれ 2 nCi を同時に蒸留水 12 ml と共に加え(二重標識)、1 時間振とう後 1 夜静置した。両核種の土壌への吸着・固定を促進するためこの遠沈管を 60°C の乾燥器に入れて土壌を乾燥したのち、室内に 1 ヶ月間静置した。

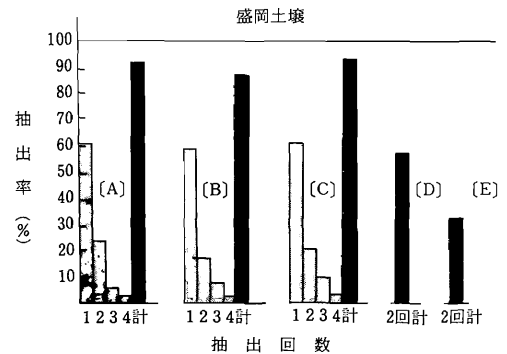
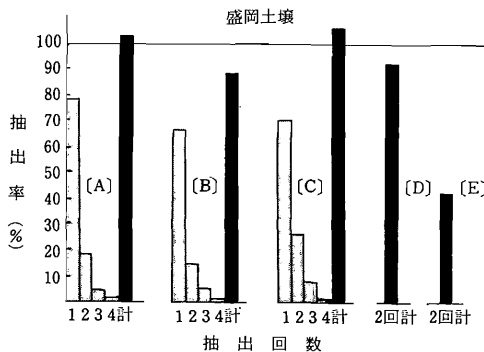
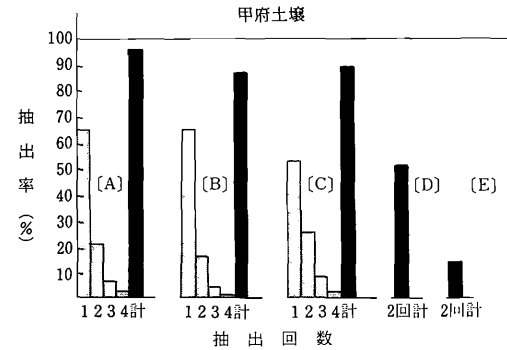
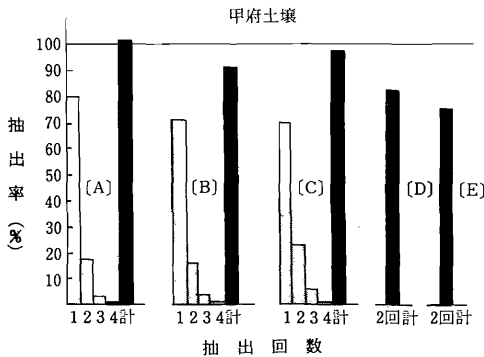
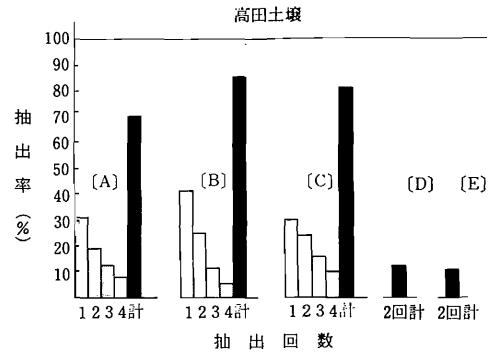
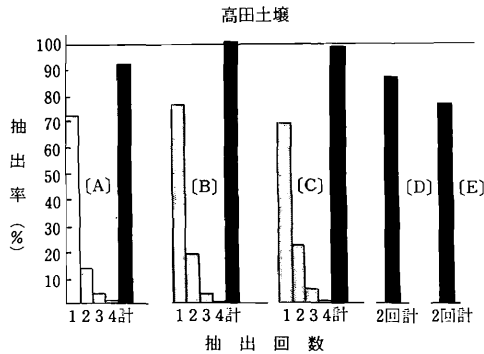
#### (c) 抽出方法

酢酸アンモニウム及び 6 N 冷塩酸抽出法：上記(b)で処理した遠沈管に各抽出液 15 ml を別々に加え、1 時間振とう後 1 夜静置して遠心分離し上澄液を集めた。この操作をさらに 1 回くり返し上澄液を含量した。

6 N 熱塩酸、6 N 熱硝酸及び熱王水による連続抽出法：上記(b)で処理した遠沈管に各抽出液 15 ml を別々に添加し、これを 50 ml のピーカに移し 15 分間煮沸後遠沈管に戻し遠心分離して上澄液を集めた。この操作をさらに 3 回くり返した。各抽出液につき硅酸分離を行ったのち上記分析法により両核種を分離し測定した。本実験は 3 連で行った。

### (3) 結果及び考察

#### (a) $^{90}\text{Sr}$ の抽出率

図-1 各種抽出法による土壌添加<sup>90</sup>Srの抽出率

(A):熱王水抽出 (B):熱硝酸抽出 (C):熱塩酸抽出  
(D):冷塩酸抽出 (E):酢酸アンモニウム抽出

図-2 各種抽出法による土壌添加<sup>137</sup>Csの抽出率

(A):熱王水抽出 (B):熱硝酸抽出 (C):熱塩酸抽出  
(D):冷塩酸抽出 (E):酢酸アンモニウム抽出

添加<sup>90</sup>Srの抽出率は土壌により異なるが、王水、6 Nの硝酸及び塩酸の熱抽出法でそれぞれ90~105%を示した(図-1)。各抽出法とも2回の抽出操作により90%以上の高い抽出率を示し、第4回目の抽出操作では抽出率は極めて低く1~2%程度の値であった。冷塩酸抽出法による抽出率は80~90%で上記抽出法より低い値を示した。酢酸アンモニウム抽出法による抽出率は、高田、甲府両土壌では約75%と高く、盛岡土壌では約40%と低い値を示した。以上の結果から、土壌の全<sup>90</sup>Srの簡易迅速抽出法として熱塩酸4連続抽出法が適することが示され、6 N冷塩酸抽出法は全<sup>90</sup>Sr抽出法としては

不適当であることなどが確認された。

放射性Srの土壌への吸着は、有機物含量の少ない土壌では主として粘土鉱物のイオン交換反応による<sup>23)</sup>が、有機物含量の高い土壌の場合、有機物との複合体形成による吸着が多くなるといわれている<sup>1), 23), 24), 50), 59), 60)</sup>。酢酸アンモニウム抽出の場合、高田、甲府両土壌で比較的高抽出率を示したのは、<sup>90</sup>Srがこれらの土壌と主にイオン交換的に吸着しているためと考えられるが、盛岡土壌では腐植含量が著しく高く、上述のような複合体形成により難溶化するため抽出率が低いと推察される。

(b) <sup>137</sup>Csの抽出率

$^{137}\text{Cs}$  の抽出率は上記 4 連続熱塩酸抽出法で約 90 % と  $^{90}\text{Sr}$  の抽出率に比較してやや低く、冷塩酸抽出法では 15 ~ 60 %, 酢酸アンモニウム抽出法では 10 ~ 35 % とそれぞれ低い値を示した (図—2)。土壌別に検討すれば、盛岡土壌及び甲府土壌の場合、4 連続熱塩酸抽出法で共に 90 % 以上の高抽出率を認めたが、高田土壌ではこれらの土壌より低い率を示した。図—2 に示した高田土壌の抽出回数と抽出率の関係から、 $^{137}\text{Cs}$  の全量を抽出する場合、これらの 4 連続熱塩酸抽出法でもなお不十分で、さらに抽出回数を増やす必要がある。高田土壌で他の 2 土壌に比較して (特に冷塩酸法で) 抽出率が低いのは、土壌に含まれている粘土鉱物組成の違いに起因するものと考えられる。

我国における放射能汚染調査では、土壌中の全  $^{137}\text{Cs}$  分析に水酸化ナトリウム・塩酸抽出法が公定法として採用されている。この方法では水酸化ナトリウム・炭酸ナトリウム融解法に近い抽出率が得られているが、土壌中の  $^{137}\text{Cs}$  を完全に抽出することは困難と考えられる。土壌の全  $^{137}\text{Cs}$  分析にはアスペクトル分析法の適用が望ましいことを山県ら<sup>105)</sup>は指摘しているが、この方法では低  $^{137}\text{Cs}$  含量の土壌では測定誤差が大きくなるので、土壌の全  $^{137}\text{Cs}$  測定法として化学分析法に頼らざるを得なくなる。本トレーサ研究において熱塩酸 4 連続抽出法により土壌に添加した  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  のうち、それぞれ約 100 % と 90 ~ 95 % 相当分が抽出されることを認めた。本抽出法は、 $^{137}\text{Cs}$  の抽出率が公定法よりやや劣ると考えられるが、簡易迅速な方法であるうえ抽出後の化学分離も容易であるため、土壌の全  $^{90}\text{Sr} \cdot ^{137}\text{Cs}$  抽出法の簡便法として実用的と考えられる。

### 3 土壌及び粘土鉱物による $^{137}\text{Cs}$ と K の固定

土壌中における  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の挙動を把握する研究の一環として、代表的土壌及び粘土鉱物を各数種選びこれらによる  $^{137}\text{Cs}$  と K の吸着・固定能を調べた。

#### (1) 実験方法

(a) 表—1 に示した土壌 (2 mm 以下) 及び粘土鉱物各 5 g を遠沈管にとり、無担体の  $^{137}\text{Cs}$  (無担体区) と Cs 担体 0.25 me を含む  $^{137}\text{Cs}$  (担体区) を各 30 nCi (液量 30 ml) 加えた。一方、K の場合、5 g の土壌及び粘土鉱物に 0.25 me の K (塩化物) を 30 ml の水と共に添加した (K 添加区)。これら各遠沈管を 1 時間振とう後 1 夜静置し、遠心分離して得られた上澄液を水溶性とした。水抽出残渣に酢酸アンモニウム 30 ml を添加して、5 分

間振とう後遠心分離して上澄液を集め、さらにこの操作を 2 回くり返して得られた上澄液を含量したものと水溶性画分を合計して置換態画分とした。固定態画分は添加量より置換態量を減じて求めた。K の固定量の算出に当っては土壌と粘土鉱物の有する置換態 K 量の補正を行った。

(b) 土壌及び粘土鉱物による  $^{137}\text{Cs}$  の固定能の高低を検討するため、実験方法(a)で吸着させた無担体区の土壌と粘土鉱物を 70 °C で 48 時間乾燥後、1 N 硝酸 60 ml を加え 10 分間煮沸したのち遠心分離して上澄液を集めた。この操作をさらに 5 回くり返し、得られた上澄液を含量して  $^{137}\text{Cs}$  量を求めた。

(c)  $^{137}\text{Cs}$  の測定は II—2 の方法に従い、K の定量は炎光法によった。本実験は 3 連で行った。

#### (2) 結果と考察

##### (a) 土壌及び粘土鉱物による $^{137}\text{Cs}$ と K の固定

土壌中の水溶性、置換態及び固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合 (表—2) はそれぞれ添加量の 0.2 ~ 0.7 %, 40 ~ 46 % 及び 54 ~ 60 % で、これらの値は土壌間で大きい差はみられなかった。

粘土鉱物中の水溶性  $^{137}\text{Cs}$  の割合は、モンモリロナイトで 0.5 % と土壌の場合とほぼ同じであったが、カオリナイトとアロフェンでは土壌の場合より約 10 倍高い値を示した。モンモリロナイト、アロフェン及びカオリナイトの固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合はそれぞれ添加量に対して 55.8 %, 20.6 % 及び 0.9 % の値を示し、粘土鉱物の種類により著しい開きのあることが認められた。

次に、担体区と無担体区との比較を試みると (表—3)、担体区の水溶性  $^{137}\text{Cs}$  の割合はモンモリロナイトを除き、いずれの土壌及び粘土鉱物でも無担体区に比較して著しく高く、また置換態  $^{137}\text{Cs}$  の割合も担体区で大巾に増加していることが認められた。カオリナイトに吸着された  $^{137}\text{Cs}$  は、担体添加の有無にかかわらずほとんど全部が置換態で占められていた。土壌及び粘土鉱物での固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合は、担体添加により一般的に低下した。これは担体添加による希釈や置換作用によるものと理解される。

土壌及び粘土鉱物中における固定態  $^{137}\text{Cs}$  と K の割合の比較結果を表—4 に示した。土壌と粘土鉱物いずれの場合も固定態画分の大きさは  $^{137}\text{Cs} > \text{K}$  で、Cs は K に比較して固定され易い傾向がうかがわれた。

土壌による  $^{137}\text{Cs}$  の固定に関する既往の研究<sup>8), 10), 25), 67), 68), 79), 89), 91)</sup>によれば、固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合は土壌の種類

表一 2 土壌及び粘土鉱物による $^{137}\text{Cs}$ の固定(無担体)

土壌及び粘土鉱物	水 溶 性		置 換 態		固 定 態	
	cpm	%	cpm	%	cpm	%
高 田 土 壌	28	0.2	5968	45.9	7052	54.1
甲 府 土 壌	43	0.3	5172	39.8	7852	60.2
盛 岡 土 壌	95	0.7	5562	42.8	7464	57.2
モンモリロナイト	67	0.5	5748	44.2	7270	55.8
カオリナイト	790	6.1	12880	99.1	141	0.9
アロフェン	560	4.3	10320	79.4	2704	20.6

表一 3 土壌及び粘土鉱物による $^{137}\text{Cs}$ の固定(無担体・担体添加の比較) (%)

土壌及び粘土鉱物	水 溶 性		置 換 態		固 定 態	
	無 担 体	担体添加	無 担 体	担体添加	無 担 体	担体添加
高 田 土 壌	0.2	14.5	45.9	90.2	54.1	9.8
甲 府 土 壌	0.3	30.4	39.8	94.8	60.2	5.2
盛 岡 土 壌	0.7	38.4	42.8	97.2	57.2	2.8
モンモリロナイト	0.5	1.3	44.2	60.2	55.8	39.8
カオリナイト	6.1	73.2	99.1	95.8	0.9	4.2
アロフェン	4.3	45.4	79.4	93.2	20.6	6.8

表一 4 土壌及び粘土鉱物による $^{137}\text{Cs}$ とKの固定(%) (担体添加区)\*

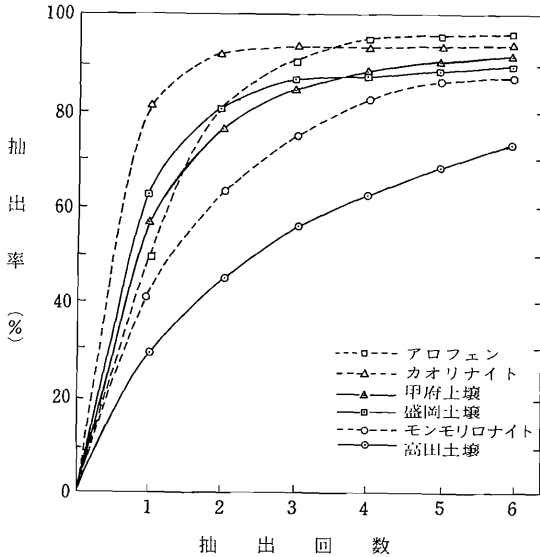
土壌及び粘土鉱物	水 溶 性		置 換 態		固 定 態	
	$^{137}\text{Cs}$	K	$^{137}\text{Cs}$	K	$^{137}\text{Cs}$	K
高 田 土 壌	14.5	44	90.2	101	9.8	—1
甲 府 土 壌	30.4	50	94.8	98	5.2	2
盛 岡 土 壌	38.4	49	97.2	103	2.8	—3
モンモリロナイト	1.3	9	61.5	84	39.8	16
カオリナイト	73.2	73	95.8	96	4.2	4
アロフェン	45.4	46	93.2	99	6.8	1

\* 担体添加量: Cs, Kともに0.25me/5g土壌・粘土鉱物

や実験条件により極端に異なり, 11~96%の範囲であることが示されている。Nishita ら<sup>68)</sup>が行った実験(無担体)では, 投与量の50~70%が固定態で占められており, 本実験でもこれに近い数値が得られている。固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合はモンモリロナイトがアロフェンよりも著しく高く, カオリナイトでは極めて低いことが本実験で認められた。Shulz ら<sup>91)</sup>は無担体の $^{137}\text{Cs}$ を粘土鉱物に添加しその固定割合を調べた結果, パーミキュライト(96%)>クロライト(68%)>イライト(36%)>>カオリナイト(12%)の順位であることを示している。また, Nishita ら<sup>68)</sup>はベントナイトはカオリナイトより $^{137}\text{Cs}$ の吸着性が高いことを指摘している。このように

2:1型の粘土鉱物が1:1型の粘土鉱物より $^{137}\text{Cs}$ を多く固定することは, その結晶構造の違いによるものと考えられている。しかし Sawhney<sup>88)</sup>は $\text{Cs}^+$ が $10\text{Å}$ の層間をもった粘土鉱物に選択的に吸着されることを否定し, Tamura ら<sup>92)</sup>は $10\text{Å}$ 格子間隔をもたないカオリナイトが(CEC当りのmeで比較した場合)K飽和ベントナイトより $\text{Cs}^+$ を多く吸着することを報告している。また微量の $^{137}\text{Cs}$ は雲母表面上の元素との沈殿により固定されることも述べられている<sup>91)</sup>。なお,  $^{137}\text{Cs}$ の固定機構についての考察は後述する。

本実験で, Kの固定がモンモリロナイトを除き認められず, また固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合に明白な土壌間差異がみ



図—3 土壌及び粘土鉱物添加 $^{137}\text{Cs}$ の連続抽出による抽出率の変化 (IN硝酸連続抽出法)

られなかったことは、Volk<sup>[102]</sup>やRaneyら<sup>[79]</sup>が述べているように、土壌と粘土鉱物に両元素を添加したのち、静置するとか乾燥・湿潤処理等を行うことなく直に抽出を行ったためと考えられる。

#### (b) 土壌及び粘土鉱物による $^{137}\text{Cs}$ 吸着能の差異

土壌に固定された $^{137}\text{Cs}$ は、その粘土鉱物の結晶構造を破壊するような処理をしなければ抽出され難いことが一般的に知られている。このため、熱硝酸連続抽出法<sup>[54]</sup>を採用し、 $^{137}\text{Cs}$ の抽出状況を調べ、抽出率が高い値を示す土壌や粘土鉱物ほど $^{137}\text{Cs}$ の吸着能が弱いものと判定した。6回連続抽出による $^{137}\text{Cs}$ の抽出率は、カオリナイト、アロフェン、甲府土壌及び盛岡土壌では90%以上の高い値を、またモンモリロナイト及び高田土壌ではそれぞれ85%及び75%とやや低い値を示した。したがって、 $^{137}\text{Cs}$ の吸着能の順位は粘土鉱物ではカオリナイト<アロフェン<モンモリロナイト、土壌では盛岡土壌<甲府土壌<高田土壌であることが示された(図—3)。高田土壌が強い $^{137}\text{Cs}$ 吸着能を示す理由は、本土壌の主要構成粘土鉱物がモンモリロナイトであり、逆に盛岡土壌が弱い $^{137}\text{Cs}$ の吸着能を示すのは、その主要粘土鉱物がアロフェンであるためと解される。

### 4 土壌による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定に及ぼすカチオン添加の影響

$^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ の土壌による吸着現象はイオン交換反応による部分が多いと考えられており、土壌中に存在する

カチオンの種類と量はこれら核種の吸着・固定に大きく影響を及ぼすことが知られている<sup>[13], [32]</sup>。

ここでは、土壌による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定に及ぼす各種カチオン添加の影響を検討した。

#### (1) 実験方法

(a) 供試土壌：表—1に示した高田、甲府及び盛岡土壌(風乾後2mmの篩を通した)。

(b) 実験条件：土壌5gを30ml容遠沈管にとり、これに9種のカチオン(塩化物)をそれぞれ0.25及び0.50 meの2段階で15mlの蒸留水とともに添加し、10℃の密栓湛水条件下に50日間静置してから、無担体の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水溶液を各10 nCi同時に添加し、1時間振とうしたのち1夜静置した。遠心分離で得られた上澄液を水溶性画分とし、残渣に酢酸アンモニウム溶液15mlを加え5分間振とう後遠心分離により上澄液を分離し、さらにこの操作を2回くり返して得られた上澄液を含量し、II—3の方法に従って置換態及び固定態画分を求めた。

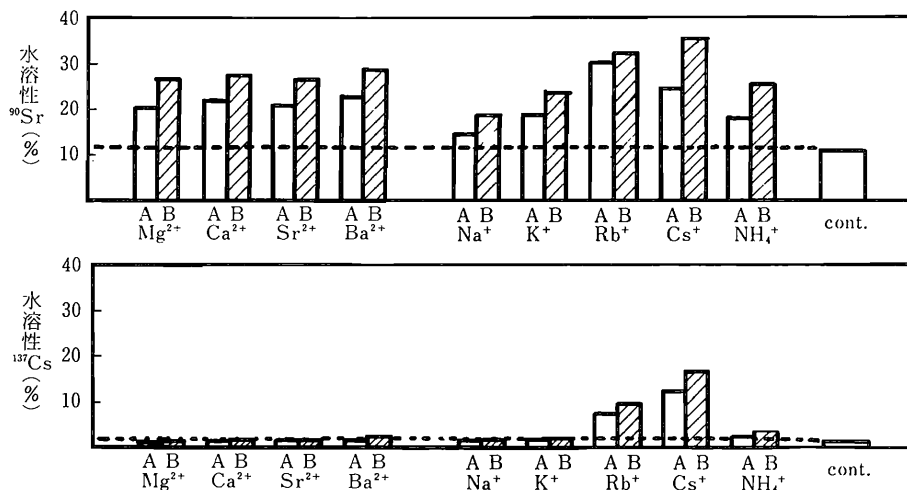
$^{137}\text{Cs}$ の放射能は、添加塩として $\text{Rb}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 及び $\text{Cs}^+$ を多量添加したため、前述のリンモリブデン酸アンモニウムのかわりに塩化白金酸セシウムとして分離測定した。 $^{90}\text{Sr}$ の放射能測定は前述の蔞酸塩法に従って行った。処理条件により両核種とも得られた沈殿重量が異なるので、測定値はそれぞれ自己吸収曲線により補正した。添加した $\text{Rb}^+$ には自然放射性 $^{87}\text{Rb}$ が含まれているが、本実験の場合、その影響は無視できるほど小さかった。本実験は3連で行った。

#### (2) 結果

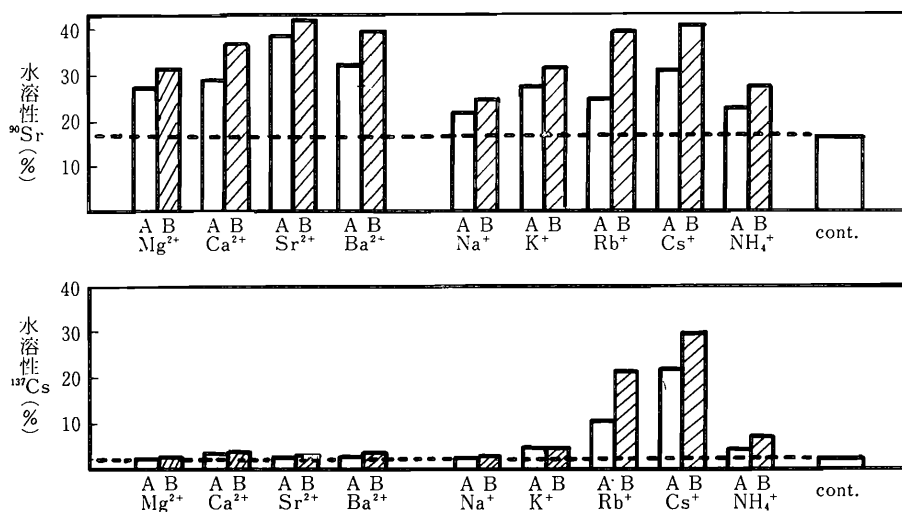
(a) 各種カチオンの添加が水溶性 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合に及ぼす影響

水溶性 $^{90}\text{Sr}$ の割合の増加に及ぼすカチオン添加の影響は、高田土壌では $\text{Cs}^+ > \text{Rb}^+ > \text{Mg}^{2+} \approx \text{Ca}^{2+} \approx \text{Sr}^{2+} \approx \text{Ba}^{2+} \approx \text{K}^+ \approx \text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{Cont.}$ (対照)、甲府土壌では $\text{Sr}^{2+} \approx \text{Cs}^+ \approx \text{Rb}^+ \approx \text{Ca}^{2+} \approx \text{Ba}^{2+} > \text{Mg}^{2+} \approx \text{K}^+ \approx \text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{Cont.}$ 、盛岡土壌では $\text{Ca}^{2+} \approx \text{Sr}^{2+} \approx \text{Ba}^{2+} \geq \text{NH}_4^+ > \text{Mg}^{2+} \approx \text{Na}^+ \approx \text{K}^+ \approx \text{Rb}^+ \approx \text{Cs}^+ \geq \text{Cont.}$ の順で、土壌の種類によりやや異なることが認められた(図—4, 5)。盛岡土壌の水溶性 $^{90}\text{Sr}$ の割合は10~20%(図—6)と前2土壌の20~40%より低い値を示しており、盛岡土壌の $^{90}\text{Sr}$ の吸着能が高いこと及び水溶性 $^{90}\text{Sr}$ の割合に及ぼすカチオン添加の影響の小さいことが認められた。

一方、水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合は水溶性 $^{90}\text{Sr}$ のそれに比較

図-4 各種カチオン添加による水溶性 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の変化(高田土壌)

A : 0.25me添加 □  
 B : 0.50me添加 ▨

図-5 各種カチオン添加による水溶性 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の変化(甲府土壌)

A : 0.25me添加 □  
 B : 0.50me添加 ▨

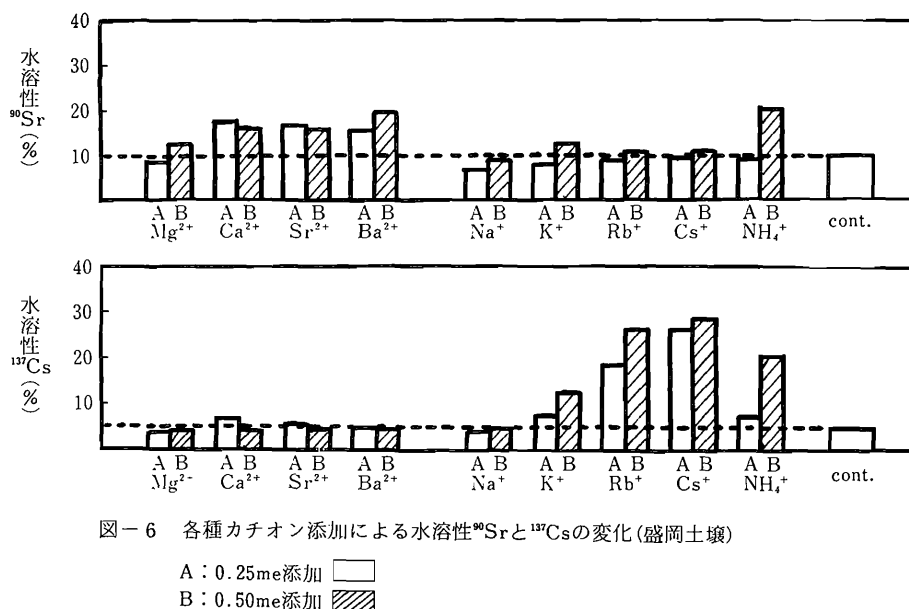
して著しく低いことが示された(図-4~6)。高田、甲府土壌の水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合は対照区に比較して $\text{Cs}^{+}$ 、 $\text{Rb}^{+}$ 添加で顕著に増加し、 $\text{NH}_4^{+}$ 添加でわずかに増加したが、 $\text{K}^{+}$ 添加ではほとんど変化がなく、さらにその他のカチオン添加によっても影響を受けないことが示された。盛岡土壌の場合、前2土壌とやや異なった様相を呈し、 $\text{Cs}^{+}$ や $\text{Rb}^{+}$ の添加だけでなく、 $\text{K}^{+}$ や $\text{NH}_4^{+}$ の添加(0.5 me)によっても水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合はかなり増加

し、また置換態 $^{137}\text{Cs}$ に占める水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合も多いことが認められた(図省略)。これらの事実から、盛岡土壌は高田土壌や甲府土壌に比較して、 $^{137}\text{Cs}$ の吸着能が小であるものと推定される。

(b) 各種カチオンの添加が置換・固定態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合に及ぼす影響

固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合は、鉍質土壌である高田、甲府土壌では同族の $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Ba}^{2+}$ の添加だけでなく、他の



図-6 各種カチオン添加による水溶性 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の変化(盛岡土壌)

A : 0.25me添加 (white bar)  
 B : 0.50me添加 (hatched bar)

カチオン添加によっても低下し、腐植質の盛岡土壌では、Ba $^{2+}$ 、Ca $^{2+}$ 、Sr $^{2+}$ の添加によりやや低下する傾向がみられたが、他のカチオン添加によっては変化しないことが認められた(図-7~9)。土壌別に固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合を比較すれば、盛岡土壌>高田土壌>甲府土壌の順で、土壌の種類によって固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合に大きな差異のあることが認められた。 $^{137}\text{Cs}$ の固定に及ぼすカチオン添加の影響は、各土壌共通にCs $^{+}$ とRb $^{+}$ で強く現われたのに対し、K $^{+}$ ではほとんど認められなかった(図-7~9)。土壌別に固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合を対照区を例にとり検討すれば、高田土壌(65%)>甲府土壌(55%)>盛岡土壌(30%)の順であることが示された。このように固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合に大きな土壌間差異が生ずるのは、土壌を構成している粘土鉱物組成及び腐植含量の違いに起因しているものと考えられる。

### (3) 考 察

$^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の固定に及ぼすカチオン添加の影響を検討した結果、 $^{137}\text{Cs}$ の固定抑制効果の順位は、

高田土壌：Rb $^{+}$ ≒Cs $^{+}$ ≫NH $_4^{+}$ >K $^{+}$ >Ba $^{2+}$ ≒Sr $^{2+}$ ≒Na $^{+}$ ≒Ca $^{2+}$ ≒Mg $^{2+}$ ≥Cont.

甲府土壌：Rb $^{+}$ ≒Cs $^{+}$ ≫NH $_4^{+}$ >K $^{+}$ >Mg $^{2+}$ ≒Ca $^{2+}$ ≒Sr $^{2+}$ ≒Ba $^{2+}$ ≒Na $^{+}$ ≒Cont.

盛岡土壌：Rb $^{+}$ ≒Cs $^{+}$ ≫NH $_4^{+}$ >Mg $^{2+}$ ≒Ca $^{2+}$ ≒Sr $^{2+}$ ≒Ba $^{2+}$ ≒Na $^{+}$ ≒K $^{+}$ ≥Cont.

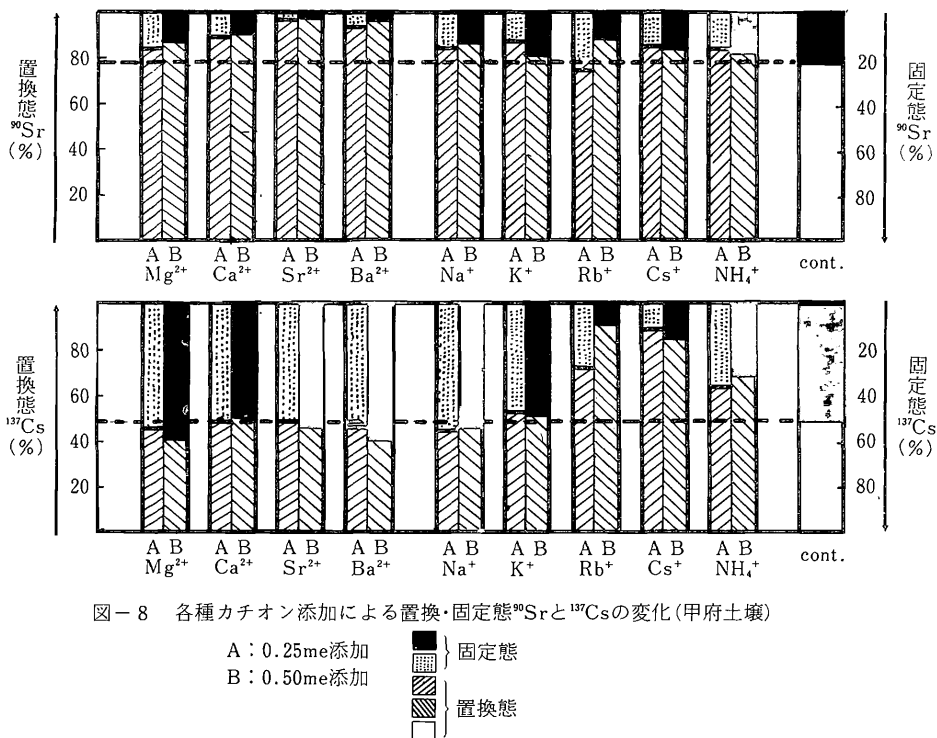
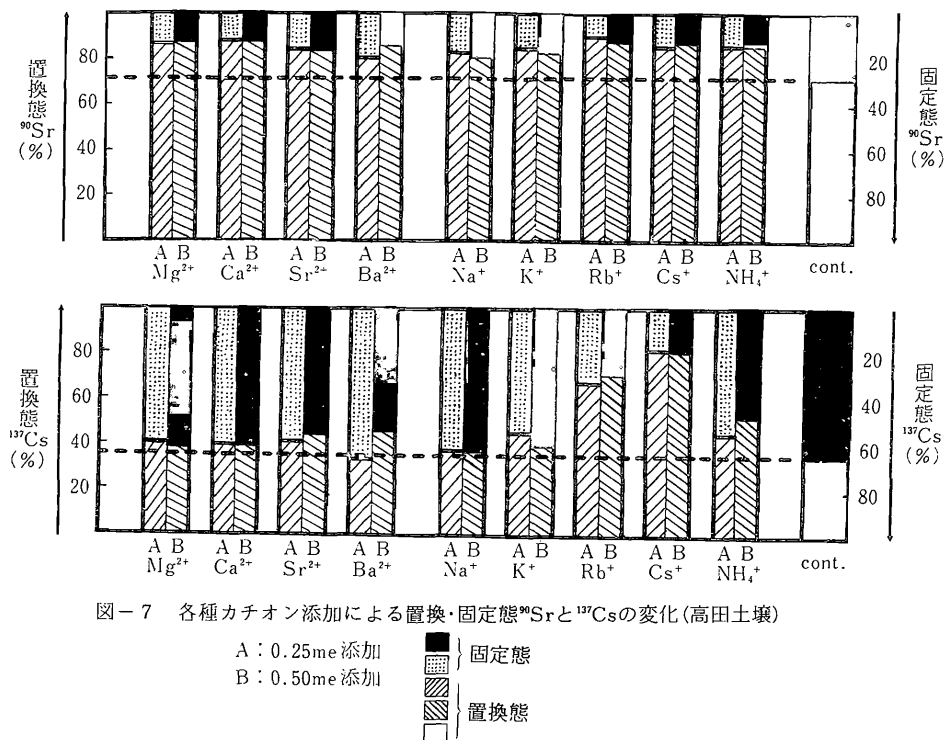
のように総括された。3土壌ともRb $^{+}$ とCs $^{+}$ の添加効

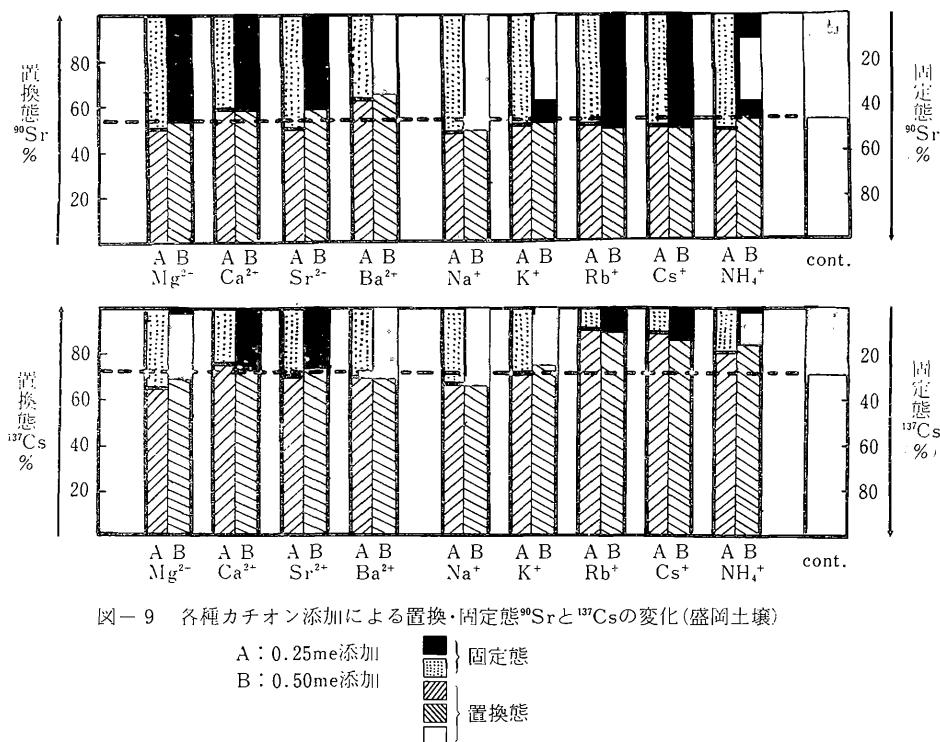
果が著しく大であったが、Kの $^{137}\text{Cs}$ 固定に及ぼす添加効果が極めて小さいことは特筆に値する。固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は、K $^{+}$ 添加によりほとんど影響を受けないが、NH $_4^{+}$ 添加によりかなり低下した。土壌の固定態 $^{137}\text{Cs}$ が減少すれば、置換態 $^{137}\text{Cs}$ が増加することになるので、作物による $^{137}\text{Cs}$ の吸収量が増えることが予想される。これに関連して天正ら<sup>97)</sup>は、無担体で添加した $^{137}\text{Cs}$ の水稻による吸収量は、Kを添加した場合よりもRb $^{+}$ やNH $_4^{+}$ を添加した場合の方が多いことを報告している。

$^{137}\text{Cs}$ の固定の考え方を $^{90}\text{Sr}$ にそのまま適用するのは必ずしも適切であるとは思えないが、酢酸アンモニウムにより抽出されない非置換態画分を固定態 $^{90}\text{Sr}$ とする報告<sup>31), 46), 68)</sup>があり、本研究もこれらの方法に従った。固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合は固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合より低いことをNishitaら<sup>68)</sup>は認めている。本実験の場合、核種の固定態の割合は鉱質2土壌では $^{90}\text{Sr}$ が $^{137}\text{Cs}$ より低く、腐植質の盛岡土壌ではこれと逆の傾向を示した。盛岡土壌で固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合が高いのは、本土壌は腐植含量が著しく高いため、前述したように $^{90}\text{Sr}$ と腐植酸との複合体形成による固定部分が増加したことによると考えられ、このことはII-7の結果からも支持される。 $^{90}\text{Sr}$ 固定抑制に及ぼすカチオン添加の影響の大きさの順位は、

高田土壌：NH $_4^{+}$ ≒Cs $^{+}$ ≒Rb $^{+}$ ≒K $^{+}$ ≒Na $^{+}$ ≒Ba $^{2+}$ ≒Sr $^{2+}$ ≒Ca $^{2+}$ ≒Mg $^{2+}$ >Cont.

甲府土壌：Ba $^{2+}$ ≒Sr $^{2+}$ >Ca $^{2+}$ >Mg $^{2+}$ ≒Na $^{+}$ ≒K $^{+}$ ≒Rb $^{+}$ ≒Cs $^{+}$ ≒NH $_4^{+}$ >Cont.



図-9 各種カチオン添加による置換・固定態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の変化(盛岡土壌)

A: 0.25me添加

B: 0.50me添加

固定態

置換態

置換態

盛岡土壌:  $\text{Ba}^{2+} > \text{Ca}^{2+} \approx \text{Sr}^{2+} > \text{Mg}^{2+} \approx \text{Na}^+ \approx \text{K}^+ \approx \text{Rb}^+ \approx \text{Cs}^+ \approx \text{NH}_4^+ \approx \text{Cont.}$

となり、甲府、盛岡土壌にSrの同族元素を添加すると $^{90}\text{Sr}$ の固定は抑制されたが、高田土壌ではこのような抑制効果は明らかでなかった。このように、 $^{90}\text{Sr}$ は $^{137}\text{Cs}$ と比較して固定量そのものが少い傾向にあるため、カチオン添加の影響が現われにくいものと考えられる。

## 5 土壌及び粘土鉱物の酸化処理が $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定に及ぼす影響

今までの実験結果から、盛岡土壌は $^{90}\text{Sr}$ を強く吸着し、その固定態の割合が他の土壌に比較して高いことを指摘した。この原因の1つに、本土壌の高腐植含量が考えられる。この点を明らかにするため、酸化処理により有機物を分解した土壌と無処理土壌とによる $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定につき比較検討するため次の実験を行った。

### (1) 実験方法

(a) 供試土壌及び粘土鉱物：表-1に示した土壌(2mm以下)と粘土鉱物。

(b) 処理条件、①加熱処理：上記土壌及び粘土鉱物を磁製皿にとり、電気炉により500℃で3時間処理した。

②過酸化水素水処理：上記土壌及び粘土鉱物各20gを

ピーカにとり、6%の過酸化水素水60mlを最初に添加し、加熱しながら有機物を分解し、以後30%の過酸化水素水を適宜加えながら、この操作を6~7回くり返し有機物を十分に分解した。

(c)  $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の添加及び抽出法：処理、無処理の各土壌と粘土鉱物2gにそれぞれ蒸留水10mlを加えた後(モンモリロナイトの場合は30ml)、II-4の方法により $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ を添加、抽出して水溶性、置換態及び固定態の各画分をそれぞれ求めた。本実験は3連で行った。

### (2) 結果及び考察

#### (a) 土壌及び粘土鉱物の酸化処理によるpH変化

土壌と粘土鉱物の酸化処理後、それらのpH変化を検討した結果(図-10)、土壌pHは酸化処理により上昇し、特に盛岡土壌の加熱処理でこの傾向が著しいこと、粘土鉱物では土壌の場合ほど明瞭なpH変化が示されなかったが、アロフェンとカオリンの過酸化水素水処理によりやや上昇すること等が認められた。

#### (b) 土壌と粘土鉱物の酸化処理が水溶性 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合に及ぼす影響

図-11に示したとおり、水溶性 $^{90}\text{Sr}$ の割合は加熱処理により著しい増加を示した(モンモリロナイトを除く)

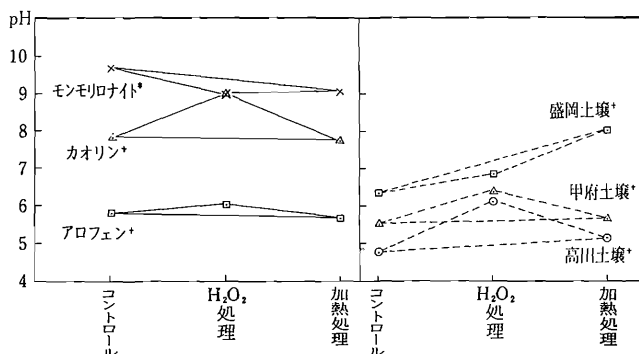
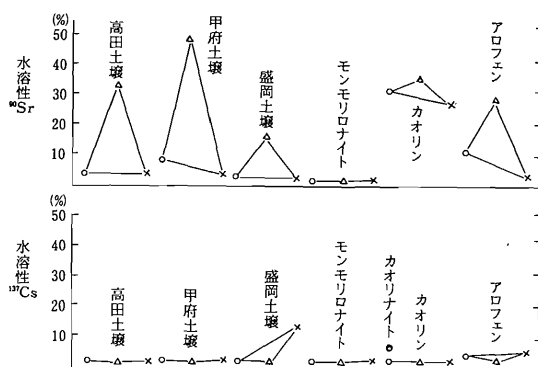
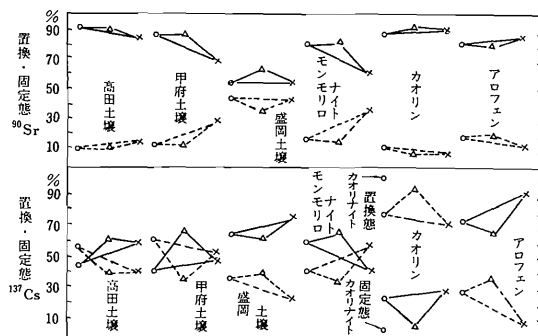


図-10 土壌・粘土鉱物の酸化処理とpHの関係

\*粘土鉱物:水=1:8 (2g:16ml)

\*土壌, 粘土鉱物:水=1:4 (5g:20ml)

図-11 土壌及び粘土鉱物の酸化処理が  
水溶性<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの割合に及ぼす影響○対照区 △加熱処理区 ×H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>処理区図-12 土壌の酸化処理が置換・固定態<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの  
割合に及ぼす影響

——置換態 ○コントロール  
 .....固定態 △加熱処理  
 ×H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>処理

のに対し、過酸化水素水処理によっては変化がみられなかった。一方、水溶性<sup>137</sup>Csの割合は両処理による影響を受けないことが認められた(盛岡土壌の過酸化水素水処理を除く)。

(c) 土壌と粘土鉱物の酸化処理が置換・固定態<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの割合に及ぼす影響

過酸化水素水処理を施すことにより、固定態<sup>90</sup>Srの割合は盛岡土壌で若干低下し、モンモリロナイトでやや増加する傾向が示されたが、他の土壌と粘土鉱物ではその影響は明らかでなかった。一方、加熱処理により、盛岡土壌ではpHがかなり上昇したにもかかわらず、固定態<sup>90</sup>Srの割合が低下する傾向がみられたが(pH上昇による固定態画分の減少分を考慮に入れば、固定態<sup>90</sup>Srの割合はさらに低下すると推定される)、他の土壌や粘土鉱物では固定態<sup>90</sup>Srの割合に変化が認められなかった。これらの結果から、酸化処理を施した3土壌のうち、盛岡土壌で固定態<sup>90</sup>Srの割合が下がる傾向のあることを認め、本土壌の高腐植含量が<sup>90</sup>Srの固定に影響を及ぼしているとは判断される。土壌有機物が<sup>90</sup>Srの固定に関与していることは、既報<sup>1)</sup>、<sup>23)</sup>、<sup>24)</sup>、<sup>32)</sup>、<sup>50)</sup>、<sup>60)</sup>及びⅡ-7の結果から明らかである。

固定態<sup>137</sup>Csの割合は、加熱処理により高田、甲府土壌及びモンモリロナイトでは低下し、それ以外の土壌と粘土鉱物では一定の傾向を示さないが、過酸化水素水処理により土壌と粘土鉱物ともに低下することが認められた(図-12)。これらの現象は、土壌有機物の分解、土壌pHの変化、粘土鉱物の結晶構造の崩壊等によるものと考えられるが今後さらに詳細な検討が必要である。

## 6 土壌反応が<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの固定に及ぼす影響

土壌の<sup>90</sup>Srや<sup>137</sup>Csの吸着能は土壌の種類のほか、土壌のpHに影響されることが知られている<sup>51)</sup>、<sup>80)</sup>。

本実験は、pHを変化させた土壌及び粘土鉱物に添加した<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの存在形態を検討するため行った。

## (1) 実験方法

(a) 供試土壌と粘土鉱物：表—1に示した土壌（2 mm以下）と粘土鉱物。

(b) 土壌と粘土鉱物のpH処理：土壌20 g当り1 N塩酸又は1 N水酸化ナトリウムを0.5, 1.0, 2.0 meの各3段階で、カオリン及びアロフェン20 g当り0.1 N塩酸又は0.1 N水酸化ナトリウムを0.05, 0.1, 0.2, 0.5 meの各4段階で、モンモリロナイト20 g当り0.1 N塩酸を0.5, 1.0 me又は0.1 N水酸化ナトリウムを0.5 meの3段階でそれぞれ蒸留水とともに添加し、十分に攪拌したのち乾燥し、土壌は1年間、粘土鉱物は35日間室内保存したうえ実験に供した。

(c) pHの測定：土壌と粘土鉱物各2 gに水10 ml（モンモリロナイトは30 ml）を加え、充分攪拌し、20分間静置後ガラス電極で測定した。pH処理後のpHを図—13~18に、また酢酸アンモニウム抽出時のpHのうち、第1回目抽出時の結果を図—13~18に、第3回目抽出時の結果を図—14, 15（酢酸アンモニウム添加後のpHのうち高い方）にそれぞれ示した。

(d)  $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の添加、抽出法：Ⅱ—4の方法に準じて、上記pH処理後室内保存した土壌と粘土鉱物に $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 両核種を添加したのち、水溶性、置換態及び固定態画分を求めた。ただし抽出条件は土壌と粘土鉱物各2 g：酢酸アンモニウム10 mlとした（モンモリロナイトは2 g：30 ml）。本実験は3連で行った。

## (2) 結果及び考察

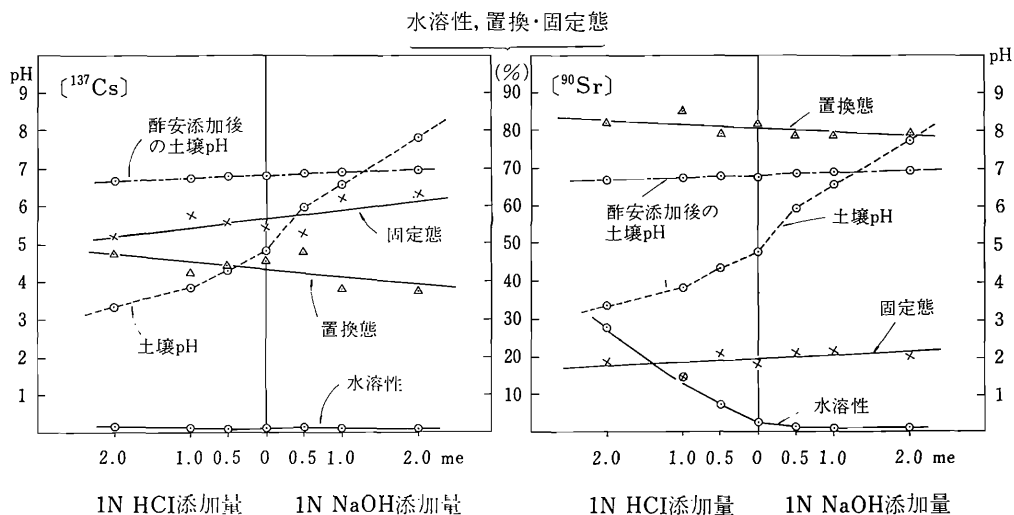
pH緩衝能は、土壌では盛岡土壌>高田土壌>甲府土

壌、粘土鉱物ではモンモリロナイト>アロフェン>カオリンの順であることがそれぞれ示された（図—13~18）。

水溶性 $^{90}\text{Sr}$ の割合は土壌及び粘土鉱物のpHの低下と共に増加し（モンモリロナイトを除く）、特に甲府土壌、アロフェン、カオリンでこの傾向が顕著に認められた（図—13~18）。固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合は高田、盛岡土壌及び粘土鉱物でpHの影響をあまり受けなかったのに対し甲府土壌では、アルカリ性になるにつれて増加する傾向が示された。

水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合は高田、甲府土壌でpHの影響を受けなかったが、盛岡土壌ではpHの低下に伴い増加している（図—13~15）。アロフェンの場合、水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合はpHの影響を強く受けpH 5附近で増加しはじめ、これより酸性になるにつれてさらに増加し、pH 4では25%に達したが、モンモリロナイトとカオリンではこのような傾向は認められなかった（図—16~18）。これらの結果から、水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合は水溶性 $^{90}\text{Sr}$ のそれと比較して土壌や粘土鉱物のpHによる影響を受け難いことが判明した。また固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は、土壌及び粘土鉱物（モンモリロナイトを除く）が酸性に傾くにつれて低下し、アルカリ性になるに従って増加することが明らかとなった。

本実験で、土壌pHの調整に多量の水酸化ナトリウムを使用したので、 $\text{Na}^+$ が両核種の固定に影響を及ぼした可能性が考えられるが、 $\text{Na}^+$ の土壌への添加はむしろ両核種の固定態画分を減少させるというⅡ—4の実験結果から、水酸化ナトリウムの添加が両核種の固定態の割合を増加させた原因は、pHの上昇に起因しているものと



図—13 土壌反応が $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の固定に及ぼす影響(高田土壌)

解される。 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の土壤吸着にpHが関与することが一般的に認められており<sup>32), 80), 94)</sup>, アルカリ土壤は酸性土壤よりも $^{137}\text{Cs}$ の固定力の強いことが報告されている。しかし川瀬<sup>30)</sup>は, $^{90}\text{Sr}$ の固定に及ぼす酸添加の影響

の小さいことを述べている。本実験の場合, 固定態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合は土壤と粘土鉱物のpHの上昇に伴い増加し, 低下と共に低くなることが認められ, この傾向は特に $^{137}\text{Cs}$ で顕著に示された。

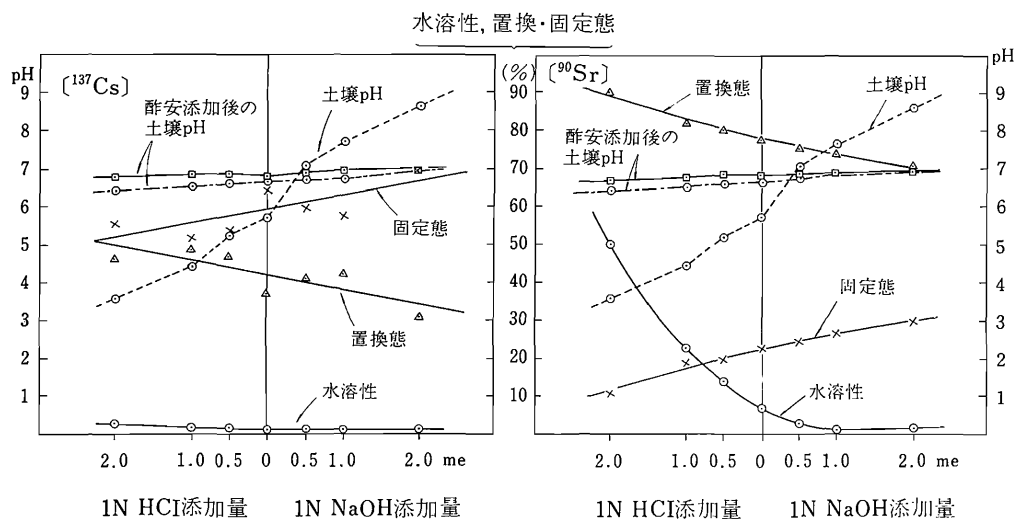


図-14 土壤反応が $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の固定に及ぼす影響(甲府土壤)

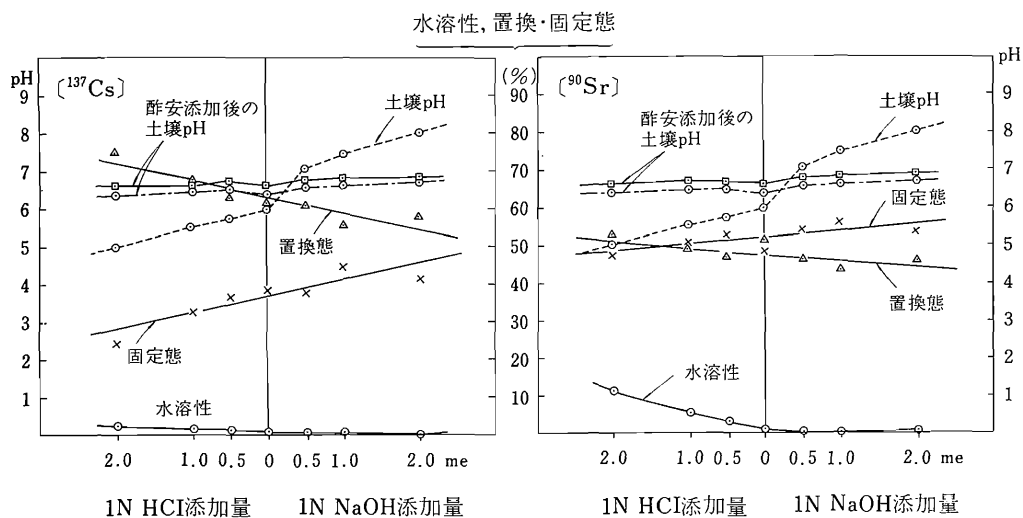


図-15 土壤反応が $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の固定に及ぼす影響(盛岡土壤)

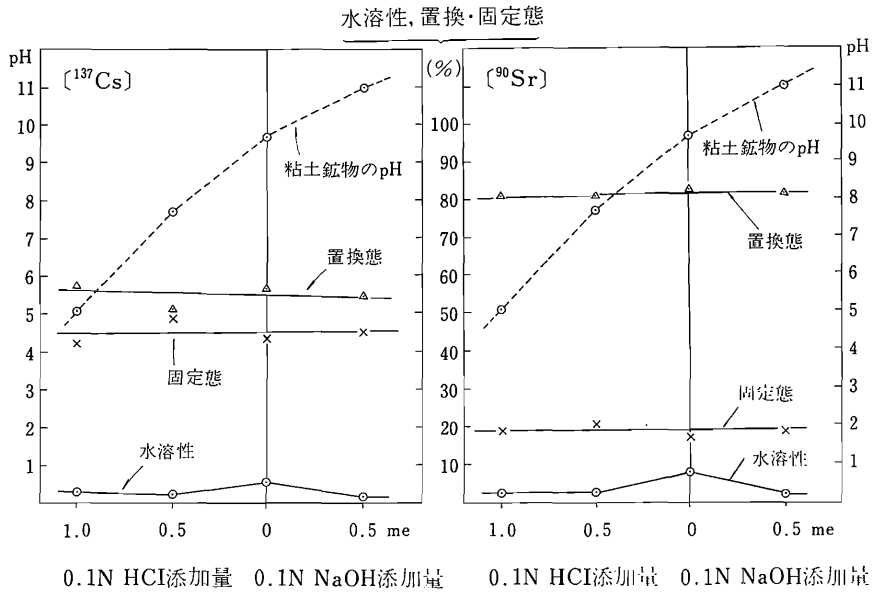


図-16 土壌反応が $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の固定に及ぼす影響(モンモリロナイト)

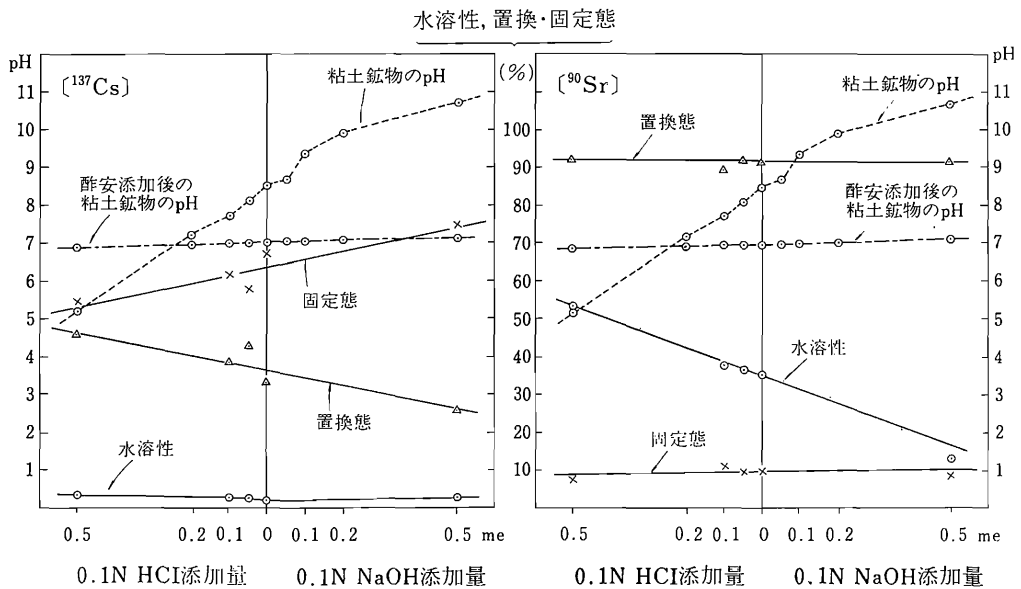
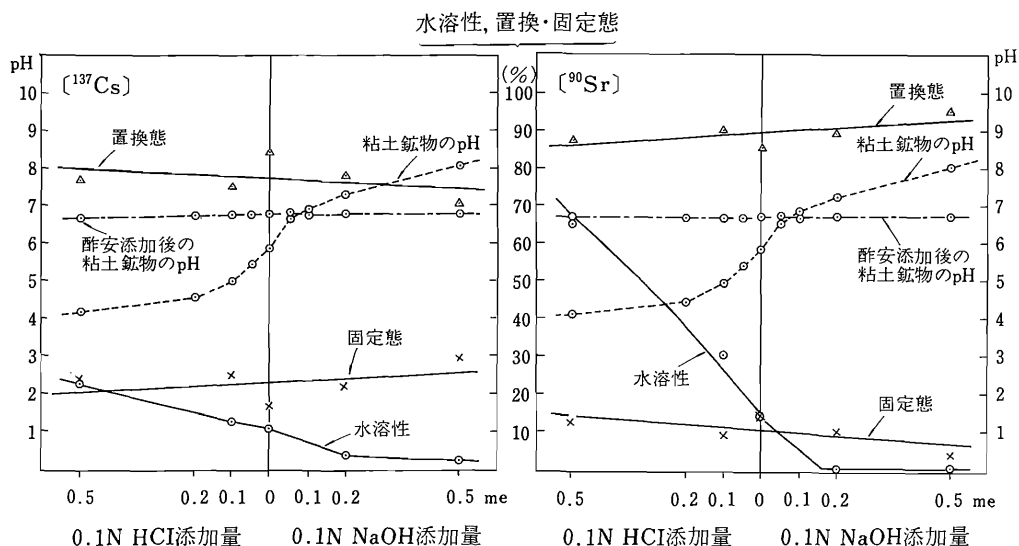


図-17 土壌反応が $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の固定に及ぼす影響(カオリン)



## 7 各種有機物による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定

腐植含量の高い土壌は前述したごとく一般的に固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合も高いといわれるが、この点を確めるため、土壌有機物の近似物として表—5に示した各種有機物を供試し、これらによる $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定につき高田土壌との対比により検討した。

### (1) 実験方法

#### (a) 供試有機物

- ① 風乾稲わら：水稻わらを0.5 mm以下に細粉した。
- ② 麦完熟堆肥：中～完熟の小麦わら堆肥を一定量とり、約25℃の湿潤条件下で2ヵ月間腐熟を促し、黒褐色になったものを風乾後0.5 mm以下に細粉した。
- ③ アルカリリグニン：試薬80% lignine (Alkaline)

粉末。

④ 腐植酸：秋田火山灰表土を水酸化ナトリウム溶液で抽出し、硫酸で沈殿させて集めたものである。この腐植のpHは2.5と低かったので、蒸留水でさらに8回洗浄したものを供試した。

(b)  $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の添加及び抽出法：Ⅱ—4で述べた方法に準じて $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ を有機物に吸着させたのち、水溶性、置換態及び固定態の各画分に分画した。ただし抽出条件は有機物2 gに対し水又は酢酸アンモニウム溶液20 mlを使用した。本実験は3連で行った。

### (2) 結果及び考察

表—5に実験供試時と酢酸アンモニウム抽出時における供試試料のpHをそれぞれ示した。酢酸アンモニウム抽出時のpHは、腐植酸で5.84と弱酸性を示したが他の試料はほぼ中性であった。

表—5 各種有機物による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定

実験材料	pH		$^{90}\text{Sr}$			$^{137}\text{Cs}$		
	A*	B*	水溶性	置換態	固定態	水溶性	置換態	固定態
風乾稲わら	5.05	6.70	14.2%	58.0%	42.0%	34.1%	67.9%	32.1%
麦完熟堆肥	8.30	7.10	4.8	63.4	36.6	8.0	54.0	46.0
アルカリリグニン	9.10	7.31	2.7	70.1	29.9	12.2	68.8	31.2
腐植酸	2.80	5.84	3.1	17.1	82.9	0.7	48.1	51.9
高田土壌	4.80	6.75	2.6	72.4	27.6	0.3	42.3	57.7

\* 実験供試時のpH

\*\* 酢酸アンモニウム添加後のpH



水溶性  $^{90}\text{Sr}$  の割合は、風乾稲わらで14.2%と高く、他の試料は2.7~4.8%と高田土壌と同程度の低い値を示した。固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合は、どの有機物でも高田土壌(27.6%)より高く、特に腐植酸では82.9%にも達している。

水溶性  $^{137}\text{Cs}$  の割合は風乾稲わらで著しく高く、アルカリリグニンがこれにつき、腐植酸と高田土壌ではともに極めて低いことが示された。一方、固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合はどの有機物でも高田土壌より低いことが認められた(表—5)。

以上の結果から、供試したどの有機物でも両核種を  $^{90}\text{Sr} > ^{137}\text{Cs}$  の傾向で多く固定することが示され、土壌による両核種の固定量のうち、土壌有機物の占める割合は土壌の種類によっては(たとえば盛岡土壌による  $^{90}\text{Sr}$  固定)かなり大きいものと推定される。

## 8 土壌による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の固定に及ぼすたん水処理の影響

水稻による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量を検討する場合、たん水下水における土壌中の両核種の挙動を知る必要がある。土壌をたん水すると特定の土壌微生物の作用が活発となり、 $\text{NH}_4^+$  が放出されるので固定された  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  を置換遊離する可能性があると考えられる。ここでは、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を吸着した非滅菌土壌を2段階の温度条件下でたん水処理し、それらの吸着・固定につき滅菌土壌で同じように処理したものと比較検討した。

## (1) 実験方法

高田土壌 5 g に無担体の  $^{90}\text{Sr}$  10 nCi と  $^{137}\text{Cs}$  5 nCi を同時に加え、蒸留水で液量を30 ml としたのち充分攪拌し、1時間振とう後1夜静置し、無処理区はただちに、温度処理区はそれぞれ5℃と30℃の恒温器に入れ、1, 2, 4週間静置をしたのち、II—4の方法に従って水溶性、置換態及び固定態画分をそれぞれ求めた。一方、土壌微生物の影響を除くため、上述の土壌につき、オートクレーブで滅菌した土壌を用いて同様の実験を行った。本実験は2連で行った。

## (2) 結果及び考察

水溶性  $^{90}\text{Sr}$  の割合は、低温処理区と無処理区間で差がなく投与量の2.5~3.1%の範囲であったのに対し、高温処理区では無処理区に比較して著しく増加し(表—6)、この増加傾向は処理期間が長いほど顕著であることが示された。低温処理区の固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合は、処理期間が短い場合は無処理区と差がなく、処理時間が長くなると下がる傾向が示された。一方、高温処理区の固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合は、1, 2週間処理で無処理区よりも増加したが、4週間処理では逆に無処理区よりやや低下することが認められた(表—6)。 $^{90}\text{Sr}$  の固定は、低温よりも高温で促進される傾向を示し、いったん固定された  $^{90}\text{Sr}$  は長期間静置すると減少することを認めた。その理由は、たん水に伴って生成された  $\text{NH}_4^+$  が固定された  $^{90}\text{Sr}$  の放出を促したためと推定される。

表—6 たん水土壌の  $^{90}\text{Sr}$  固定に及ぼす温度の影響

$^{90}\text{Sr}$ の形態	無処理区 (%)	低温処理区 (%)			高温処理区 (%)		
		1週間	2週間	4週間	1週間	2週間	4週間
水溶性	2.7	2.5	3.1	3.1	9.8	13.1	15.5
置換態	90.7	91.0	90.7	98.0	86.4	84.3	94.4
固定態	9.3	9.0	9.3	2.0	13.6	15.7	5.6

表—7 たん水土壌の  $^{137}\text{Cs}$  固定に及ぼす温度の影響

$^{137}\text{Cs}$ の形態	無処理区 (%)	低温処理区 (%)			高温処理区 (%)		
		1週間	2週間	4週間	1週間	2週間	4週間
水溶性	0.2	0.1	0.1	0.2	0.5	0.9	0.8
置換態	51.9	47.5	45.5	40.3	28.7	23.9	20.3
固定態	48.1	52.5	54.5	59.7	71.3	76.1	79.7

表一 8 たん水土壤の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ 固定に及ぼす滅菌処理の影響

$^{90}\text{Sr}, ^{137}\text{Cs}$ の 形 態	$^{90}\text{Sr}$ (%)				$^{137}\text{Cs}$ (%)			
	低 温 区		高 温 区		低 温 区		高 温 区	
	非滅菌土壤	滅菌土壤	非滅菌土壤	滅菌土壤	非滅菌土壤	滅菌土壤	非滅菌土壤	滅菌土壤
水 溶 性	3.1	3.8	15.5	3.9	0.2	0.3	0.8	0.3
置 換 態	98.0	91.6	94.4	90.6	40.3	29.2	20.3	32.8
固 定 態	2.0	8.4	5.6	9.4	59.7	70.8	79.7	67.2

水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合(表一7)は、低温処理区と高温処理区間で差異が認められなかったが、固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は高温処理区>低温処理区>無処理区の順で、処理期間が長いほど増加することが認められた。これらの結果から、土壤に投与された $^{137}\text{Cs}$ は速やかに固定され、その固定量は経時的に増加する傾向が示された。同様の結果は山県ら<sup>105)</sup>によっても認められている。

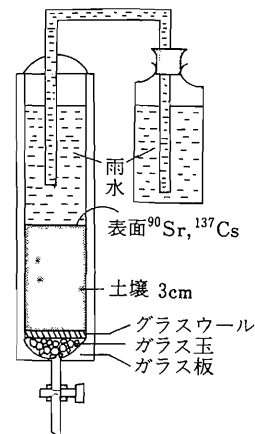
つぎに滅菌処理土壤と非滅菌処理土壤(4週間処理)の間で $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定状況につき調べる(表一8)。滅菌処理により固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合は増加する傾向を示したが、固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合の変化は明らかでなかった。土壤を滅菌すると、土壤有機物の無機化が抑制されて、 $\text{NH}_4^+$ の生成が少なくなることが一般的に知られている。また、II-4の実験で、土壤中の $^{137}\text{Cs}$ は $\text{NH}_4^+$ の添加で固定が抑制されることを認めている。したがって、滅菌処理土壤では非滅菌処理土壤よりも固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合が高くなると予想されたが、本実験結果からはむしろ逆の結果が得られた。この点についてはさらに詳細な検討が必要であるが、低温処理区や滅菌処理区のような $\text{NH}_4^+$ の生成が極めて少いと推定される土壤と、 $\text{NH}_4^+$ の生成がかなり多いと考えられる高温処理区土壤との間で固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合に明瞭な差異が認められないという本実験結果から類推して、水田圃場で夏季高温期に $^{137}\text{Cs}$ が置換遊離する量はそれほど多くないものと推測される。

## 9 土壤中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の雨水による溶脱

地表に降下し、土壤中に取り込まれた放射性核種は自然条件下で溶脱をうけるが、その際下層への移動速度は核種により、また土壤により差のあることが報告されている<sup>13), 72), 73), 105)</sup>。

ここでは、数種類の土壤を用い、雨水による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の下層への移動をモデル実験により追跡した。

供試土壤として、表一1の高田、甲府、盛岡、西ヶ原の各土壤及び砂土を用いた(2 mm以下)。図一19に示した直径3.1 cmのガラス製半円形カラムに上記各土壤を3 cmの高さに充填し、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の混液(無担体の両核種を雨水により希釈)0.5 ml(各約1.5  $\mu\text{Ci}$ )を土壤表面に添加吸着させ、3日間21℃の常温下に静置してから、各土壤カラムに表一9に示した雨水2000 mlを、自然流速下(表一10)及び流速一定条件下(1.6 cm/hr)でそれぞれ通過させた(5333 mm雨量相当)のち、土壤表面から0~5, 5~10, 10~20, 20~30 mmの4層に区分採取し、II-4の方法に準じて土壤中の両核種の放射能を測定した。一方、直径15 cm、高さ23 cmの大型ガラスカラムに盛岡、西ヶ原土壤及び砂土をそれぞれ9 cmの高さに詰め、蒸留水を加えて水深0.5 cmのたん水状態にした各土壤に上記 $^{90}\text{Sr}$ ・ $^{137}\text{Cs}$ 混液を各10  $\mu\text{Ci}$ 加え、表面水を自然蒸発させて両核種の表面吸着をはかった。これらのカラムを2月~8月の7ヵ月間屋外に置き、表面より0~2 cm, 2~4 cm, 4~9 cmの各層に分けて放射能を測定した。なおこの期間の降雨量は1260 mmで、これは東京の1年間の降水量に近い値である。

図一19  $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の溶脱実験方法

### (1) 実験方法

## (2) 結果及び考察

小型土壌カラムからの雨水の自然流下速度は表—10に示したように、砂土では410 cm/hrと極めて速く、高田土壌では1.6 cm/hrと最も遅かった。

表—9 雨水の無機成分

Ca	1.56 ppm
Mg	0.26 〃
Na	0.23 〃
K	1.50 〃
(pH 4.4)	

1966年2月～4月間降雨(東京都北区西ヶ原旧農技研で採水した)

表—10 自然流下速度

土 壌 名	cm / hr	ml / hr
甲 府 土 壌	3.25	12.2
盛 岡 土 壌	4.90	18.4
西ヶ原土壌	5.22	19.6
高 田 土 壌	1.60	6.0
砂 土	410	1538

$^{90}\text{Sr}$ の土層内残留状況を表—11に示した(砂土は土層別に区分できなかったので溶脱量のみ調べた)。流下処理後表層0～10 mmの層位に残留する $^{90}\text{Sr}$ の割合は、盛

岡土壌(88%) ≥ 西ヶ原土壌(86%) > 高田土壌(66%) > 甲府土壌(30%)の関係を示し、土層内残留分布に土壌間差異が認められた。また、流下速度を一定にした実験でもこれとほぼ同様の結果が得られた。次に、大型土壌カラムでの実験結果を表—12に示した。表層2 cmに分布する $^{90}\text{Sr}$ の割合は、西ヶ原土壌で約91%、砂土で約61%と上記小型カラム実験結果と同様に土壌間差異が認められた。両溶脱実験結果から、 $^{90}\text{Sr}$ の下層への移動量は盛岡土壌 ≒ 西ヶ原土壌 > 高田土壌・甲府土壌の関係が示され、盛岡土壌と西ヶ原土壌で $^{90}\text{Sr}$ の移動量が少いのは、本土壌による $^{90}\text{Sr}$ の吸着力が強いためであると判断される。

一方、 $^{137}\text{Cs}$ は $^{90}\text{Sr}$ とかなり異なった移動様相を呈し(表—11, 12)、小型カラム実験では各土壌とも表層0～5 mmの層位に95%以上残留し(盛岡土壌を除く)、この浸透条件下でもほとんど下層へ移動しないことが判明した。このことは大型カラム実験での結果からも支持される。盛岡土壌で $^{137}\text{Cs}$ の溶脱量が多いことは、 $^{137}\text{Cs}$ の吸着力が他の土壌にくらべて小さいという前述の結果と矛盾しないものと思われる。

次に、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ のカラム層位からの溶脱量について検討する。小型カラム実験で、2000 mlの雨水を通過させた時の溶脱率(溶脱量/添加量×100)は、 $^{137}\text{Cs}$ では各土壌とも1%以下(砂土は1.6%)と小さいのに対

表—11 土壌中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の土層内残留分布割合(%)

土壌名	層 位	自 然 流 下		流下速度コントロール	
		$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
高田土壌	0 ～ 5 mm	24.3	96.8	32.6	98.5
	5 ～ 10	41.5	2.7	42.3	1.3
	10 ～ 20	29.7	0.5	21.1	0.2
	20 ～ 30	4.5	0.0	4.0	0.0
甲府土壌	0 ～ 5	3.7	95.5	6.3	94.1
	5 ～ 10	26.9	2.9	22.2	5.0
	10 ～ 20	44.7	1.4	41.1	0.6
	20 ～ 30	24.7	0.2	30.4	0.3
盛岡土壌	0 ～ 5	17.8	71.9	28.6	85.4
	5 ～ 10	70.3	26.5	60.1	14.0
	10 ～ 20	10.4	1.4	10.0	0.5
	20 ～ 30	1.5	0.2	1.3	0.1
西ヶ原土壌	0 ～ 5	37.6	97.9	37.8	97.7
	5 ～ 10	47.6	1.8	49.8	2.1
	10 ～ 20	13.5	0.3	12.1	0.2
	20 ～ 30	1.3	0.0	0.3	0.0

して、 $^{90}\text{Sr}$  では砂土 (約46%) > 甲府土壌 (約20%) > 高田土壌 (約2%) > 西ヶ原土壌 (約0.8%) > 盛岡土壌 (約0.02%) の順となり、土壌間差異の極めて大きいことが示された。

表一12 自然環境条件下での土壌中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の土層内残留分布割合 (%)

土壌名	層 位	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
砂	0 ~ 2 cm	62.8%	95.0%
	2 ~ 4	35.4	4.7
	4 ~ 9	1.8	0.3
土	計	100	100
西ヶ原土壌	0 ~ 2	90.8	94.5
	2 ~ 4	9.2	5.5
	4 ~ 9	0.0	0.0
	計	100	100
盛岡土壌	0 ~ 2	66.2	90.0
	2 ~ 4	31.8	9.6
	4 ~ 9	2.0	0.4
	計	100	100

$^{137}\text{Cs}$  が  $^{90}\text{Sr}$  よりも下層へ移動し難いことは Miller ら<sup>56)</sup>の人工雨水による溶脱実験や東京の未耕地における両核種の土層別分布調査結果<sup>71)~73), 105)</sup>と一致する。一方、水田の土層別  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の分布調査例はほとんどないが、水田土壌中の両核種はたん水による激しい浸透作用を受けるため、未耕地や畑土壌中の両核種よりも溶脱量が多くなることが本実験結果から示唆された。この点に関連して小林<sup>39)</sup>は、水田作土中の  $^{90}\text{Sr}$  は畑作土中の  $^{90}\text{Sr}$  より溶脱速度が早いことを認めている。

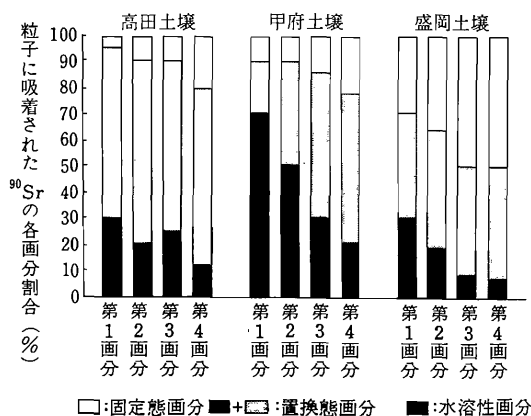
## 10 土壌粒子の大小と $^{90}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の吸着・固定

土壌中の固定態  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の割合は、土壌を構成する粘土鉱物の種類、腐植含量、土壌反応、共存イオンの種類と量等により影響されることを既に言及した。本実験は土壌を粒径別に分画し、各画分による両核種の吸着・固定能について検討した。

### (1) 実験方法

#### (a) 土壌の粒径別分画

表一1に示した風乾土壌 (2 mm 以下) を、0.5及び0.073 mm の篩で2~0.5 mm (第1画分) 及び0.5~0.073 mm (第2画分) に篩別した。0.073 mm 以下の粒



図一20 土壌粒子の大きさと置換・固定態 $^{90}\text{Sr}$

第1画分 粒径2~0.5mm  
 " 2 " " 0.5~0.073mm  
 " 3 " " 0.073~0.01mm  
 " 4 " " 0.01mm以下

子は沈降法で0.073~0.01 mm (第3画分) 及び0.01 mm 以下 (第4画分) に分画した。

#### (b) 土壌粒子への $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着

各画分5 gに蒸留水30 mlとともに $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ を添加し、II-4の方法に従って水溶性、置換態及び固定態画分を求めた。本実験は2連で行った。

### (2) 結果及び考察

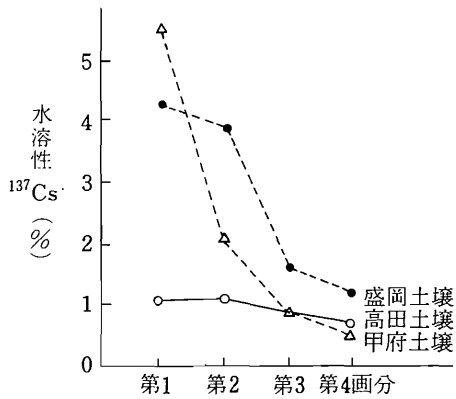
#### (a) 各種土壌の粒径分布

表一1からわかるように、高田土壌は粒径の小さい画分に、盛岡土壌は粒径の大きい画分にそれぞれ多く分布し、甲府土壌ではこれら土壌の中間的な分布を示した。

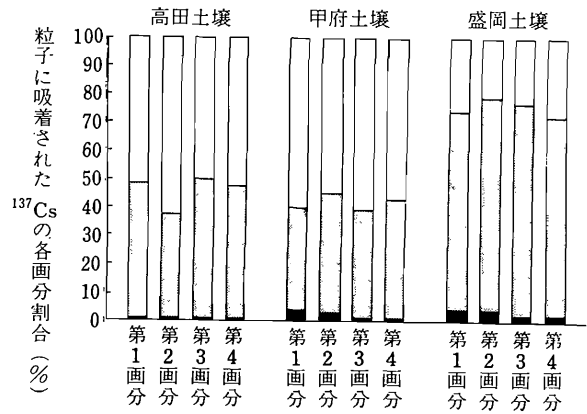
#### (b) 土壌粒子の大小と水溶性、置換・固定態 $^{90}\text{Sr}$

各画分の水溶性  $^{90}\text{Sr}$  の割合は、土壌の種類により異なり、どの画分でも甲府土壌で高く高田、盛岡土壌で低いことが示された (図一20)。各土壌とも粒子が大きくなるほど水溶性  $^{90}\text{Sr}$  の割合は増加し、特に甲府土壌でこの傾向が強く現われ、第1画分の水溶性  $^{90}\text{Sr}$  の割合は投与量の70%にも達した。第1画分で水溶性  $^{90}\text{Sr}$  の割合が高いのは粒子の表面積が小さいためと推定される。II-9の溶脱実験において、砂土で  $^{90}\text{Sr}$  の溶脱量が多かったのは、本実験結果より類推してその粒径の大きいことに起因するものと思われる。

固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合は図一20に示すとおり各土壌とも粒径が小さくなるほど多くなる傾向が示され、たとえば、高田土壌では第1画分で5.7%、第2画分で11.8%、第3画分で9.2%、第4画分で16.8%それぞれ認められた。また、固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合を同じ粒径画分で比較した場合、

図-21 土壌粒子の大きさと水溶性 $^{137}\text{Cs}$ 

第1画分 粒径 2~0.5mm  
 " 2 " " 0.5~0.073mm  
 " 3 " " 0.073~0.01mm  
 " 4 " " 0.01mm以下



□:固定態画分 □+■:置換態画分 ■:水溶性画分

図-22 土壌粒子の大きさと置換・固定態 $^{137}\text{Cs}$ 

第1画分 粒径 2~0.5mm  
 " 2 " " 0.5~0.073mm  
 " 3 " " 0.073~0.01mm  
 " 4 " " 0.01mm以下

表-13 土壌粒径の大小と $^{90}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の吸着

粒径	区 分		$^{90}\text{Sr}$			$^{137}\text{Cs}$		
			土 壤 名			土 壤 名		
			高 田	甲 府	盛 岡	高 田	甲 府	盛 岡
2	水 溶 性 (A)	cpm	4486	9962	4496	147	764	579
	酢 安 抽 出 1 回 目	cpm	6564	1927	3250	3705	3534	5614
	" 2 回 目	cpm	1753	487	1523	1842	853	2428
	" 3 回 目	cpm	594	210	758	766	340	1215
	酢安抽出(1~3回目)計(B)	cpm	8911	2624	5531	6312	4727	9257
	置 換 態 : (A)+(B)	cpm	13397	12586	10027	6460	5491	9836
0.5	A / (A)+(B)	%	2.3	13.9	5.9	33.5	79.2	44.0
0.5	水 溶 性 (A)	cpm	2963	6787	2345	163	286	518
	酢 安 抽 出 1 回 目	cpm	7661	4333	3913	3142	4084	6573
	" 2 回 目	cpm	1421	1196	1594	1147	740	2910
	" 3 回 目	cpm	481	341	892	819	443	1211
	酢安抽出(1~3回目)計(B)	cpm	9563	5870	6399	5108	5267	10037
	置 換 態 : (A)+(B)	cpm	12526	12657	8744	5271	5553	10555
0.073	A / (A)+(B)	%	3.1	5.2	4.9	23.7	53.6	26.8
0.073	水 溶 性 (A)	cpm	3315	4335	932	138	140	225
	酢 安 抽 出 1 回 目	cpm	7868	5663	3259	4098	2506	5830
	" 2 回 目	cpm	1373	1438	1856	1722	1505	2863
	" 3 回 目	cpm	331	563	1013	964	774	1419
	酢安抽出(1~3回目)計(B)	cpm	9572	7664	6128	6784	4785	10112
	置 換 態 : (A)+(B)	cpm	12887	11999	7060	6922	4925	10337
0.01	A / (A)+(B)	%	2.0	2.8	2.2	25.7	36.1	13.2
0.01 mm 以 下	水 溶 性 (A)	cpm	1748	2578	709	108	96	159
	酢 安 抽 出 1 回 目	cpm	7942	6147	3353	2841	2886	5455
	" 2 回 目	cpm	1685	1711	1865	2038	1512	2645
	" 3 回 目	cpm	441	709	1172	916	761	1123
	酢安抽出(1~3回目)計(B)	cpm	10068	8567	6390	5435	5159	9223
	置 換 態 : (A)+(B)	cpm	11816	11145	7099	5903	5255	9382
	A / (A)+(B)	%	1.8	1.8	1.7	14.8	23.1	10.0

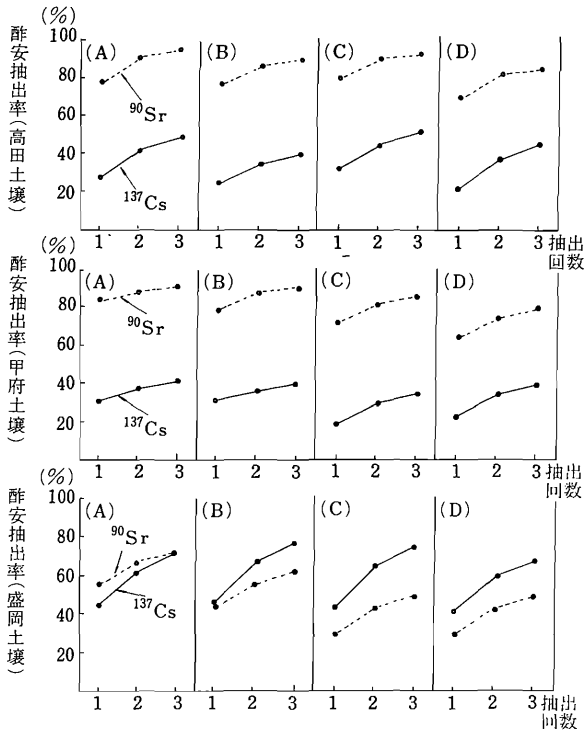


図-23 土壤粒径別の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の酢酸アンモニウム抽出率

(A):第1画分 (B):第2画分 (C):第3画分 (D):第4画分  
(2~0.5mm) (0.5~0.073mm) (0.073~0.01mm) (0.01mm以下)

著しい土壤間差異がみられた。一方、置換態 $^{90}\text{Sr}$ に占める水溶性 $^{90}\text{Sr}$ の割合(表-13)は、各土壤とも粒径が小さいほど減少する傾向が示された。このように土壤粒子の小さいものほど $^{90}\text{Sr}$ の吸着力が強いことは図-23の抽出率と抽出回数との関係からも支持され、同様の結果はEvans<sup>9)</sup>も認めている。

#### (c) 土壤粒子の大小と水溶性、置換・固定態 $^{137}\text{Cs}$

$^{90}\text{Sr}$ の場合と同様に、水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合は第1画分(1.1~5.5%)>第2画分(1.2~3.8%)>第3画分(1.0~1.6%)>第4画分(0.7~1.2%)と粒径が小さくなるほど減少することが示され、核種の吸着力は各画分とも $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr}$ の関係にあることが確認された(図-21)。一方、土壤粒子の大きさと置換・固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合との間に一定の傾向は示されなかった(図-22)。すなわち、固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は、各画分とも高田、甲府両土壤で50~60%、盛岡土壤で20~30%となり、粒径の違いよりも土壤間差異の方が強く現われた。しかし、置換態 $^{137}\text{Cs}$ に占める水溶性 $^{137}\text{Cs}$ の割合(表-13)は、粒子の小さくなるほど低下しており、このことは小さい粒子の方が大きい粒子よりも $^{137}\text{Cs}$ の吸着力が強いことを示す

ものである。

### 11 土壤薄層クロマトグラフィーによる土壤と粘土鉱物の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着力の簡易迅速判定法

土壤中に存在する $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ のうち、作物が吸収する主要形態は置換態のものと考えられ、固定態のものは容易に利用できないことが報告されている<sup>14), 67), 90), 94)</sup>。両核種による作物汚染の程度を推定する場合に、土壤中の置換態量を簡易迅速に把握する必要があると考えられる。

一方、核爆発実験等により放出された $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ が飲料水系に混入した場合、これらの除去が要求される。除去剤としてイオン交換樹脂<sup>17)</sup>、粘土鉱物及び土壤が有力な資材として活用されている<sup>104)</sup>が、これら資材の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着力を簡単に判定することにより実用的除去資材の選択が可能であると考えられる。

本実験は、土壤や粘土鉱物の薄層上に吸着した $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ を溶媒で展開させ、それらの易動性から置換態量あるいは吸着力を簡易迅速に判定する手法を検討したものであり、このような手法で土壤による $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ の吸着力を調べた例はないようである。

#### (1) 実験方法

蒸留水50 mlに土壤又はカオリナイト13 g、シリカゲルH 15 g、スターチ 2 gを加えよく混合し、ガラス板上に0.5 mmの薄層を作製した。105℃で1時間乾燥後、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ をキャピラリーで別々にスポットし、下記の展開剤で展開させた。展開終了後プレートを加熱乾燥しオートラジオグラムの作製に供した。検討した展開剤は次のとおりである。

- ①0.5 N 塩酸
- ②酢酸アンモニウム
- ③エタノール100:濃塩酸 4
- ④エタノール50:2 M 酢酸アンモニウム50
- ⑤エタノール100:濃塩酸 8:水100
- ⑥エタノール200:濃塩酸 8:水100

#### (2) 結果及び考察

検討した展開剤のうち、エタノール系の展開剤③~⑥は、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の展開能力が著しく弱いこと(写真-1)や展開に長時間(15 cmの展開に6~8時間)を要する等の理由から、本実験目的には適さないことが明らかとなったので、以下の実験には展開剤①と②を使用するこ

とにした。展開剤①は土壌や粘土鉱物による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着力を、展開剤②は土壌や粘土鉱物中の両核種の置換態量を知る目的でそれぞれ使用した。

カオリナイトに吸着した $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ を展開剤①(写真-2)と②(写真-3)で展開した結果、 $^{90}\text{Sr}$ は $^{137}\text{Cs}$ に比較して大きく移動することが認められた( $^{90}\text{Y}$ は $^{90}\text{Sr}$ の娘核種で参考までに示した)。一方、カオリナイトによる $^{137}\text{Cs}$ の吸着力は高田土壌や甲府土壌にくらべて弱いことが $^{137}\text{Cs}$ のプレート上での移動量から示されたが、このことは前述の酢酸アンモニウム抽出法で得た結果と一致している。

土壌を展開剤②で展開することにより(写真-

4, 5, 8, 10, 12),  $^{90}\text{Sr}$ の大部分がフロント近くまで移動することが示された(盛岡土壌を除く)。したがって、これら土壌による $^{90}\text{Sr}$ の固定はほとんどみられなかったことになるので、本薄層法と酢酸アンモニウム抽出法の間で $^{90}\text{Sr}$ の固定量に差異が生じたことになる。この理由は両実験における物理、化学的条件の違いによるものと考えられるが今後の検討を要する。また展開剤②で土壌を展開すると、 $^{137}\text{Cs}$ のスポットが2個検出され、原点のスポットを固定態、移動したスポットを置換態と判定した。両者の量的関係は鉱質の高田、甲府土壌及び砂土では固定態 $\gg$ 置換態、腐植質の盛岡土壌では固定態 $\approx$ 置換態の傾向を示し、薄層法と酢酸アンモニウム抽出法で

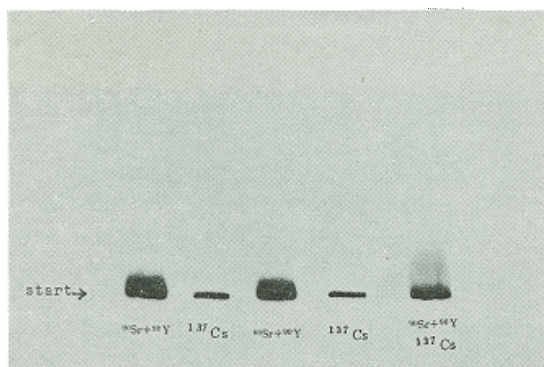


写真-1 一次元薄層クロマトグラフィーによるカオリナイトの $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 吸着・固定能  
展開剤:エタノール100:濃塩酸4, 展開時間: 6時間, 分離後1日目のオートラジオグラム

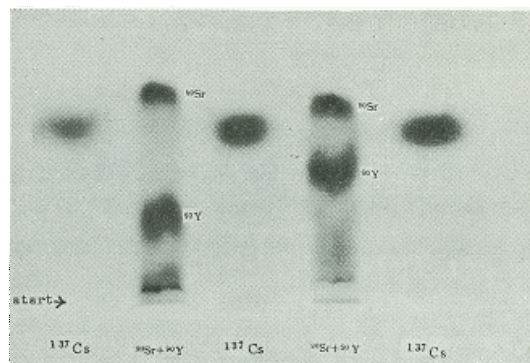


写真-3 一次元薄層クロマトグラフィーによるカオリナイトの $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 吸着・固定能  
展開剤:酢酸アンモニウム, 展開時間: 4時間(約12cm展開), 分離後1日目のオートラジオグラム

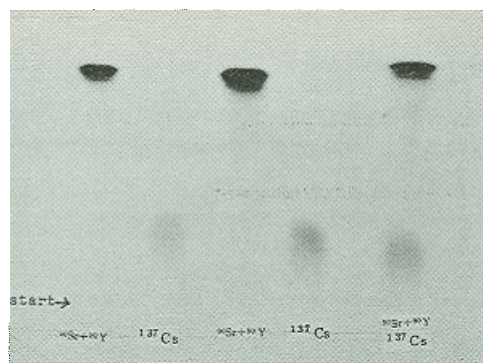


写真-2 一次元薄層クロマトグラフィーによるカオリナイトの $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 吸着・固定能  
展開剤: 0.5N塩酸, 展開時間: 3時間(展開距離約12cm), 分離後1日目のオートラジオグラム

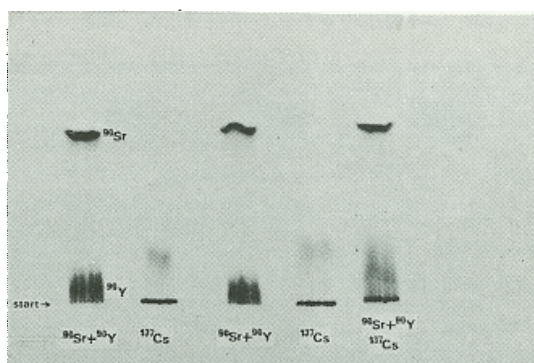


写真-4 一次元薄層クロマトグラフィーによる高田土壌の $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 吸着・固定能  
展開剤:酢酸アンモニウム, 展開時間: 45時間, 分離後1日目のオートラジオグラム



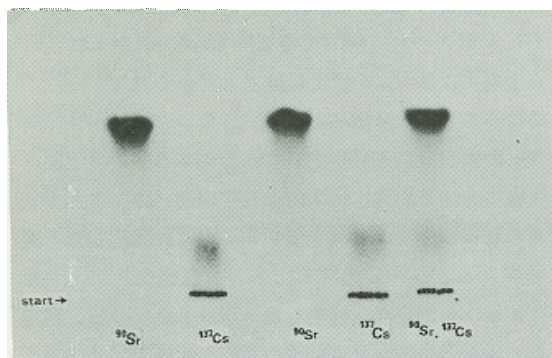


写真-5 一次元薄層クロマトグラフィーによる高田  
土壌の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：酢酸アンモニウム, 展開時間:45分  
間,  $^{90}\text{Y}$ 減衰後のオートラジオグラム

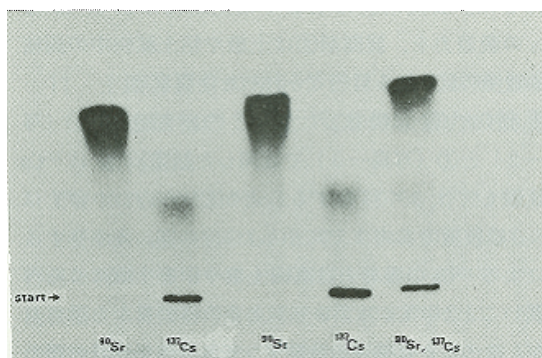


写真-8 一次元薄層クロマトグラフィーによる甲府  
土壌の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：酢酸アンモニウム, 展開時間:35分  
間,  $^{90}\text{Y}$ 減衰後のオートラジオグラム

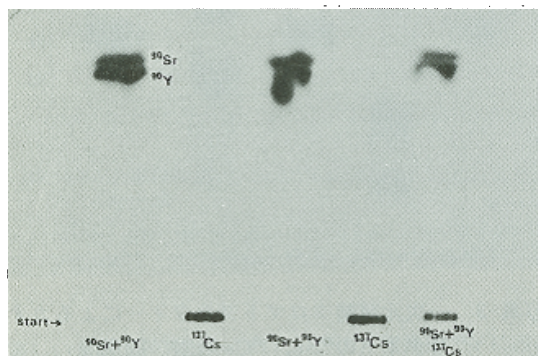


写真-6 一次元薄層クロマトグラフィーによる高田  
土壌の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：0.5N塩酸, 展開時間:40分間, 分離  
後1日目のオートラジオグラム

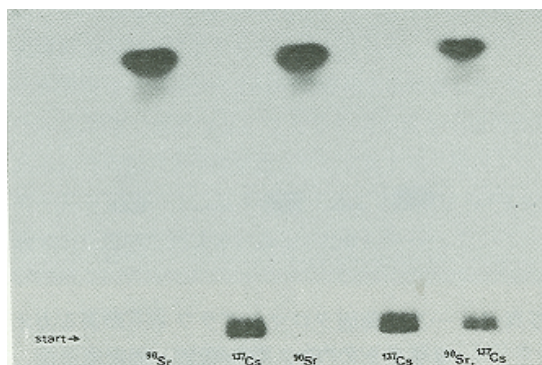


写真-9 一次元薄層クロマトグラフィーによる甲府  
土壌の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：0.5N塩酸, 展開時間:35分間,  $^{90}\text{Y}$ 減  
衰後のオートラジオグラム

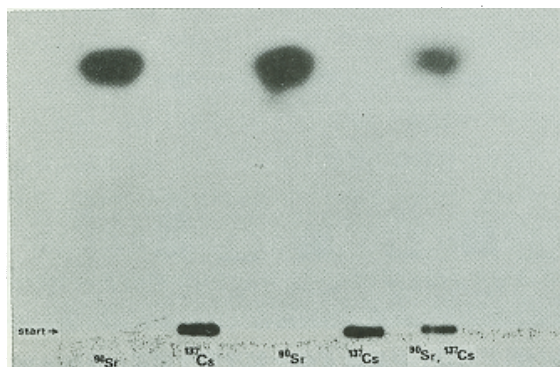


写真-7 一次元薄層クロマトグラフィーによる高田  
土壌の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：0.5N塩酸, 展開時間:40分間,  $^{90}\text{Y}$ 減  
衰後のオートラジオグラム

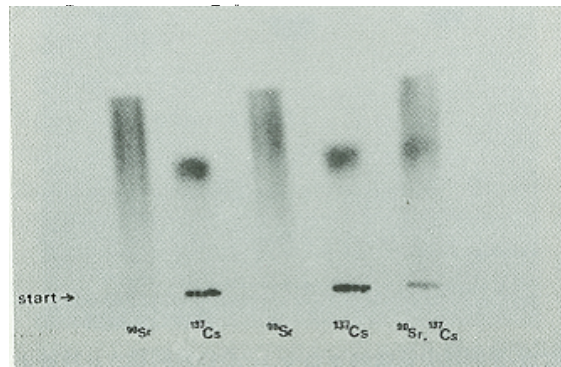


写真-10 一次元薄層クロマトグラフィーによる盛岡  
土壌の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：酢酸アンモニウム, 展開時間:25分  
間,  $^{90}\text{Y}$ 減衰後のオートラジオグラム



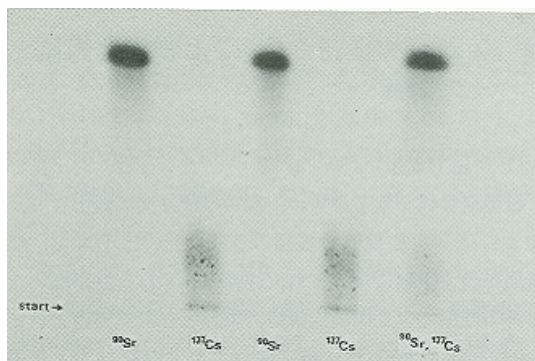


写真-11 一次元薄層クロマトグラフィーによる盛岡土壌の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：0.5N塩酸, 展開時間:30分間,  $^{90}\text{Y}$ 減衰後のオートラジオグラム

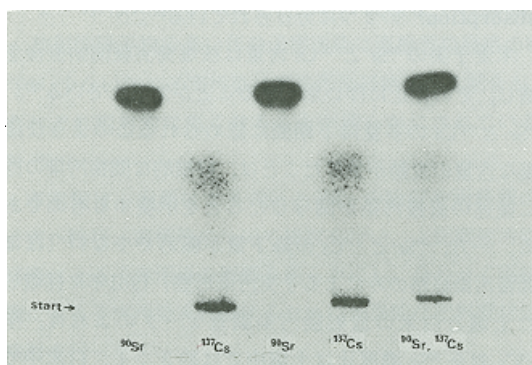


写真-12 一次元薄層クロマトグラフィーによる砂土の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：酢酸アンモニウム, 展開時間:25分間,  $^{90}\text{Y}$ 減衰後のオートラジオグラム

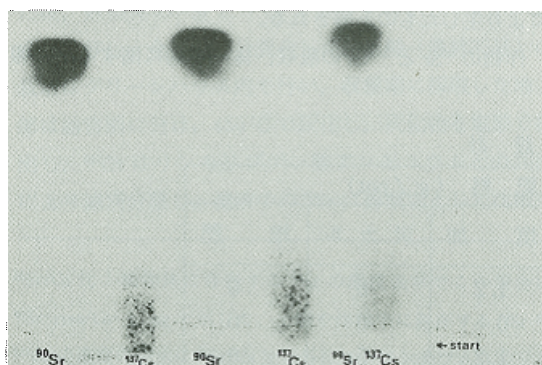


写真-13 一次元薄層クロマトグラフィーによる砂土の $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着・固定能  
展開剤：0.5N塩酸, 展開時間:20分間,  $^{90}\text{Y}$ 減衰後のオートラジオグラム

類似の結果が得られた。

一方、土壌を展開剤①で展開した結果（写真一6, 7, 9, 11, 13), 鉍質の3土壌は盛岡土壌とは逆に $^{90}\text{Sr}$ の吸着力が弱いのにに対し $^{137}\text{Cs}$ の吸着力の極めて強いことが示された。この結果は酢酸アンモニウム抽出法で得られた結果と一致する。

以上のことから、薄層クロマトグラフ法は酢酸アンモニウム抽出法に比較して簡易に土壌や粘土鉍物中の置換態 $^{137}\text{Cs}$ の量の把握（置換態 $^{90}\text{Sr}$ についてはさらに検討を要す）ならびにそれらによる $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸着力の強弱を判定できる実用的な方法と考えられる。しかし、本法は、半定量的な方法であるので将来は、デンスリトメータやクロマトスキャンナ等々の適用による定量化を検討すべきである。

## 12 まとめ

農業生産環境における放射性核種の行動を把握し、放射能汚染対策ならびに放射能汚染調査結果の解析に必要な知見を得るため、土壌と粘土鉍物中の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の挙動を検討した。得られた結果は次のように要約される。

(1) 土壌中の $^{90}\text{Sr}$ は熱王水, 6 N 熱塩酸, 6 N 熱硝酸による4連続抽出法で90~105%, 6 N 冷塩酸抽出法で80~90%, 1 M-中性酢酸アンモニウム抽出法で40~75%それぞれ抽出された。一方, $^{137}\text{Cs}$ の抽出率は6 N 熱塩酸4連続抽出法で90%以上と高い値を示したが, 6 N 冷塩酸法では15~60%, 1 M-中性酢酸アンモニウム抽出法では10~35%とともに低い値を示した。したがって、土壌中の全 $^{90}\text{Sr}$ ・ $^{137}\text{Cs}$ 抽出には6 N 熱塩酸4連続抽出法が簡便法として適するものと判断された。

(2) 土壌と粘土鉍物における固定態Kと $^{137}\text{Cs}$ の割合を調べた。土壌に無担体で添加した $^{137}\text{Cs}$ の40~46%は置換態で占められ、置換態 $^{137}\text{Cs}$ の割合の土壌間差異は比較的小さかった。しかし粘土鉍物の置換態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は0.9~55.8%の幅を示し、その種類により極端に変化することが判明した。また、土壌にCs担体を添加することにより置換態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は著しく増加すること、 $^{137}\text{Cs}$ はKよりも固定され易い傾向にあることがそれぞれ明らかにされた。

(3) 土壌による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の固定に及ぼす共存イオンの影響の大きさを検討した。 $^{90}\text{Sr}$ に対する影響の大きさの順位は $\text{Ba}^{2+} \approx \text{Sr}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ \approx \text{K}^+ \approx \text{Mg}^{2+} \approx \text{Na}^+ \approx \text{Rb}^+ \approx \text{Cs}^+$ ,  $^{137}\text{Cs}$ では $\text{Rb}^+ \approx \text{Cs}^+ \gg \text{NH}_4^+ > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+} \approx \text{Ca}^{2+} \approx \text{Sr}^{2+} \approx \text{Ba}^{2+} \approx \text{Na}^+$ の傾向をそれぞれ示した。また、土壌別に両核種の固定態の割合を調べてみれば、

$^{90}\text{Sr}$  では盛岡土壌>高田土壌>甲府土壌,  $^{137}\text{Cs}$  では高田土壌>甲府土壌>盛岡土壌の関係にあることがそれぞれ示された。

(4) 酸化処理により土壌と粘土鉱物の核種固定力は,  $^{137}\text{Cs}$  で低下し,  $^{90}\text{Sr}$  では高田, 甲府両土壌で影響がはっきりしなかったが盛岡土壌で低下することが認められた。

(5) 土壌に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を投与した場合, 土壌の pH が低いほど置換態の両核種は  $^{137}\text{Cs}$ > $^{90}\text{Sr}$  の傾向で増加することが示された。

(6) 土壌有機物の近似物として数種の有機物を供試し, 固定態  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の割合を高田土壌と比較検討した。固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合は腐植酸>高田土壌, 固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合は腐植酸≒高田土壌の傾向をそれぞれ認め, 腐植酸による  $^{90}\text{Sr}$  の固定能の高いことが明らかにされた。

(7) 固定態  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の割合は, 土壌のたん水処理 (30℃) により増加する傾向を示し, 特に, 固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合はその処理期間の長いほど増加することが認められた。

(8) 土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  は  $^{137}\text{Cs}$  に比較して雨水や灌漑水により溶脱され易いことが確認された。また, 土壌の種類により両核種の溶脱量に差異のあることが示された。

(9) 固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合は, 土壌の粒径が小さいほど増加したが, 固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合はどの粒径画分でもほぼ同じであることがわかった。

(10) 土壌や粘土鉱物による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸着力を簡易迅速に判定する方法として, 土壌・粘土鉱物薄層クロマトグラフ法を検討した結果, 1 M 酢酸アンモニウムと0.5 N 塩酸で展開することにより判定可能であることが示された。

### Ⅲ 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ による間接汚染とその対策

#### 1 はじめに

核爆発実験や原子炉等の不測の事故に伴い放出され, 地表に降下する放射性核種のうち,  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  は, 半減期が長く土壌に吸着され, 作物体への移行性が高いこと等の理由により環境放射能汚染源として重要視されている。 $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  が作物に吸収される経路は, ①作物の地上部からとり込まれる直接汚染 (Direct contamination) 経路と, ②作物の根から吸収される間接汚染 (Indirect contamination) 経路の2種類があり, ①はさらに葉面汚染 (Foliar contamination), 花汚染 (Floral contamination) と基部吸収 (Plant-base absorption) の3つに分けられている<sup>13)</sup>。

米麦子実の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  含量は核爆発実験開始直後急増し, その停止に伴い急減することが知られている<sup>73)</sup>。 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の多量降下期間に認められるこのような極端な含量の変動が生じたことは, 経根的な間接汚染の他に後述の直接汚染が関与したことを示唆するものである。一方,  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の降下量が極めて少ない (ほぼ間接汚染経路のみによる子実汚染形態) 1981年に採取した土壌と白米の放射能汚染調査データによれば, 全  $^{137}\text{Cs}$  対全  $^{90}\text{Sr}$  濃度比は土壌中では約3:1, 白米中では約5:1であることが論ぜられている<sup>62)</sup>。このように両核種が土壌と白米で濃度比に差異が生じたことは, 間接汚染, すなわち, 土壌—水稻 (白米) 系において  $^{137}\text{Cs}$  は  $^{90}\text{Sr}$  よりも濃縮され易いことを意味し, この濃縮率の差は吸収や移行過程における両核種の挙動の違いにより生じたものと解される。

作物の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収, 体内挙動に関する研究報

表—14 施肥設計

処 理 区	添 加 肥 料 (g / pot)				
	塩 安	リン酸 1 ナトリウム	塩 加	炭 カ ル	堆 肥
対 照 区	2.1	2.9	1.2	0	0
一 K 区	2.1	2.9	0	0	0
炭 カ ル 5 g 区	2.1	2.9	1.2	5	0
炭 カ ル 10 g 区	2.1	2.9	1.2	10	0
炭 カ ル 30 g 区	2.1	2.9	1.2	30	0
堆 肥 100 g 区	2.1	2.9	1.2	0	100
堆 肥 300 g 区	2.1	2.9	1.2	0	300

告は多数あるが、実験条件、供試作物の種類等により得られた結果は必ずしも一致しているとはいえない。たとえば、各種作物による吸収率<sup>94)</sup>は、放射性 Sr で 0.17～8.7 % (稲では 0.19～1.66 %), 放射性 Cs で 0.01～1.2 % (稲では 0.03～1.2 %) と核種間のみならず同一核種でも作物の種類、実験条件等により著しく異なることが指摘されている。

本章では、日本人の主食として重要な位置を占めている白米の放射能汚染対策に資するとともに、放射能汚染調査結果で示された白米汚染 ( $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$ ) の機構を説明するのに必要な基礎資料を得るため、水稻による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収と体内挙動、水稻に対する  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収抑制、水稻による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量と土壌中における両核種の存在形態との関連等につき検討した。

## 2 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収とその抑制

放射性降下物の多い年の子実汚染は直接汚染経路の寄与が、少ない年の子実汚染は間接汚染経路による割合が、それぞれ相対的に高くなることが明らかにされている<sup>39), 74)</sup>。

本実験は、水稻による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収や両核種の子実へ移行・蓄積等について検討を行い、上記間接汚染経路による子実汚染の影響を明らかにし、合わせて両核種による子実汚染を軽減するために効果的な肥料資材の検討を行った。

### (1) 実験方法

5000分の1アールポットに荒川沖積土(未耕地で土性は C. L, pH (H<sub>2</sub>O) 6.1, CEC 14.0 me) 3 kg を充填し、表—14に示した設計に従って施肥し、たん水して攪拌した後、無担体の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の混液を各ポットに  $10 \mu\text{Ci}$  ずつ投与し、全体を充分混合した。水稻(農林35号)の栽培はグリーンハウス内で行い、収穫期に採取した地上部は器官別に分け、450℃で灰化し、灰化物を塩酸で抽出し、 $^{137}\text{Cs}$  はリンモリブデン酸アンモニウムとの共沈により濾別分離し、濾液中の  $^{90}\text{Sr}$  は蓚酸塩として沈殿を

$^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比：植物体に存在する  $^{90}\text{Sr}$  の濃度表示でこの場合は  $^{90}\text{Sr} \cdot \text{cpm}/\text{Ca} \cdot 1 \text{ mg}$  で示した。土壌や作物中に存在する  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  の濃度の表示に  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比以外にストロンチウムユニット (S. U. =  $^{90}\text{Sr} \cdot \text{pCi}/\text{Ca} \cdot 1 \text{ g}$ ) やセシウムユニット (C. U. =  $^{137}\text{Cs} \cdot \text{pCi}/\text{K} \cdot 1 \text{ g}$ ) がある。

O. R. (D. F.)：作物体の  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  / 培地中の  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  ( $^{137}\text{Cs}$  と K の場合は作物体の  $^{137}\text{Cs}/\text{K}$  / 培地中の  $^{137}\text{Cs}/\text{K}$ )

得、それぞれの放射能を 4  $\pi$  ローバックガスフローカウンターで測定した。Ca の分析は EDTA 法によって行った。特に、玄米、白米の Ca 分析には、妨害イオンとしてのリン酸をイオン交換樹脂で除去したものを供試した。K はテトラフェニールボロン-硝酸銀容量法によって定量した。本実験は2連で行った。

### (2) 結果及び考察

#### (a) 水稻の Ca と $^{90}\text{Sr}$ の濃度とその体内分布

収量調査結果を表—15に示した。乾物重と玄米重は K 無施用区(以下—K 区と略記)が最高を示し、堆肥300 g 区で最も劣り、その他の区はほとんど差異が認められなかった。—K 区で高収量を示したことは、無加里栽培によるためと推定される茎数増が反映したためと考えられる。堆肥300 g 区では土壌環元が強まり生育抑制が生じたため収量低下をきたしたものと推察される。

稲体器官別の Ca 濃度の順位は(表—16)、各処理区とも下位葉>上位葉>糠÷粳から・稈>玄米>白米の傾向を示し、また処理区間別にみると炭酸カルシウムの施用区が他の区より高い傾向を示した。一方、稲体各器官の  $^{90}\text{Sr}$  濃度(表—17)も Ca 濃度と類似の傾向を示した。Sr と Ca が稲体内で類似の挙動を示すことは既報の研究結果<sup>95), 96)</sup>からも支持されるが、厳密には Ca と  $^{90}\text{Sr}$  の稲体内挙動には差がみられ、 $^{90}\text{Sr}$  が Ca よりも子実へ多量に蓄積することが認められた。

Ca と  $^{90}\text{Sr}$  の体内挙動の差異を調べるための一助として、 $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比<sup>脚注)</sup>を求めたところ、表—18の結果が得られた。玄米の  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比を基準にとり100とすれば、白米の  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比は64となり、両元素は子実内で異なった挙動をとったことになる。稈と葉の  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比は玄米の  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比の約2倍となり、これら茎葉部における  $^{90}\text{Sr}$  の集積が Ca に比較して多いことが確認された。

植物根による  $^{90}\text{Sr}$  や Ca の吸収の選択性を調べるために用いられている O. R. (Observed Ratio) <sup>脚注)</sup> あるいは D. F. (Discrimination Factor 又は Distribution Factor) は一般に 0.8～1.2 であり、両元素間に著しい選択吸収は認められない<sup>85), 90), 94)</sup>が、植物体内での Sr と Ca の移行・分布には差異があることが知られている<sup>51), 53)</sup>。本実験で子実部が他の器官より低い  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比を示したことは、水・陸稲で得られた研究結果<sup>85), 96)</sup>と一致している。

Ca と  $^{90}\text{Sr}$  の器官別分布割合を図—24, 25にそれぞれ示した。Ca の分布割合は白米へはわずか1%以下であるが、下位葉身へは40%以上となり、器官により極端

表-15 各種肥料添加処理水稻の生育調査

処 理 区	乾 物 重	玄 米 重	粃 重	有効茎数	下 位 葉 身 重	下 位 葉 鞘 重	上 位 葉 身 重	上 位 葉 鞘 重	稈 重	粃がら重
	(g)	(g)	(g)	(本)	(g)	(g)	(g)	(g)	(g)	(g)
対 照 区	32.36	10.91	13.94	11.5	4.59	2.90	3.45	3.08	4.40	3.30
一 K 区	40.66	14.30	17.46	18.0	7.43	4.22	3.33	3.37	4.85	3.16
炭カル5g区	31.63	11.71	14.33	10.5	5.05	2.80	2.85	2.75	3.85	2.62
炭カル10g区	32.43	11.32	13.95	11.5	5.33	3.25	3.10	2.75	4.05	2.63
炭カル30g区	35.94	13.80	16.85	13.5	5.28	2.73	3.48	3.14	4.46	3.05
堆肥100g区	32.49	10.65	13.42	11.0	6.08	3.54	2.99	2.66	3.80	2.77
堆肥300g区	24.42	9.34	11.39	8.0	3.25	2.18	2.40	2.10	3.10	2.05

表-16 水稻体各器官のCa濃度に及ぼす各種肥料添加の影響

処理区	対 照 区	一 K 区	炭カル5g区	炭カル10g区	炭カル30g区	堆 肥100g区	堆 肥300g区
器官	mgCa/g 指 数	mgCa/g 指 数	mgCa/g 指 数	mgCa/g 指 数	mgCa/g 指 数	mgCa/g 指 数	mgCa/g 指 数
玄 米	0.140 100	0.144 100	0.151 100	0.135 100	0.127 100	0.121 100	0.116 100
白 米	0.057 41	0.051 35	0.054 36	0.054 40	0.052 41	0.055 45	0.052 45
糠	0.887 634	0.976 678	1.024 678	0.864 640	0.797 628	0.720 595	0.692 597
粃がら	0.83 593	1.02 708	0.96 636	0.87 644	1.03 811	0.87 719	0.83 716
稈	0.50 357	0.60 417	0.52 344	0.48 356	0.65 512	0.45 372	0.50 431
上位葉身	3.05 2180	3.61 2510	4.05 2680	3.65 2700	4.05 3190	1.89 1560	3.10 2670
下位葉身	6.0 4290	6.0 4170	7.1 4700	7.5 5560	6.7 5280	4.1 3390	5.50 4740
上位葉鞘	0.83 593	0.78 542	1.00 662	1.04 770	0.99 780	0.65 537	0.84 724
下位葉鞘	4.3 3070	3.8 2640	5.2 3440	5.6 4150	3.2 2520	5.0 4130	4.4 3790

表-17 水稻体各器官の $^{90}\text{Sr}$ 濃度に及ぼす各種肥料添加の影響

処理区	対 照 区	一 K 区	炭カル5g区	炭カル10g区	炭カル30g区	堆 肥100g区	堆 肥300g区
器官	cpm/g 指 数	cpm/g 指 数	cpm/g 指 数	cpm/g 指 数	cpm/g 指 数	cpm/g 指 数	cpm/g 指 数
玄 米	67 100	56 100	42 100	47 100	50 100	65 100	63 100
白 米	174 26	145 26	145 35	11.4 24	10.6 21	15.1 23	19.3 31
糠	509 760	424 757	290 690	368 783	405 810	510 785	456 724
粃がら	443 661	491 877	318 757	334 711	266 532	435 669	378 600
稈	648 967	630 1125	714 1700	647 1377	560 1120	675 1038	825 1310
上位葉身	2518 3758	3373 6023	2095 4988	2171 4619	1692 3384	2210 3400	2430 3857
下位葉身	4463 6661	5279 9426	3889 9259	5797 12334	3297 6594	3931 6047	5612 8907
上位葉鞘	849 1267	945 1688	898 2138	895 1862	648 1286	819 1260	1162 1844
下位葉鞘	4516 6740	2807 5012	5710 13598	5303 11282	2323 4646	4139 6367	7014 11333

表-18 水稻体各器官の $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ 比に及ぼす各種肥料添加の影響

処理区	対 照 区	一 K 区	炭カル5g区	炭カル10g区	炭カル30g区	堆 肥100g区	堆 肥300g区
器官	cpm/mgCa 指 数	cpm/mgCa 指 数	cpm/mgCa 指 数	cpm/mgCa 指 数	cpm/mgCa 指 数	cpm/mgCa 指 数	cpm/mgCa 指 数
玄 米	479 100	389 100	278 100	348 100	394 100	537 100	543 100
白 米	305 63.7	284 73.0	269 96.8	211 60.6	204 51.8	275 51.2	371 68.3
糠	574 119.8	434 111.6	283 101.4	426 122.4	508 128.9	708 131.8	659 121.4
粃がら	534 111.5	481 123.7	331 119.1	384 110.3	258 65.5	500 93.1	455 83.8
稈	1296 270.6	1050 269.9	1373 493.9	1348 387.4	862 218.8	1500 279.3	1650 303.9
上位葉身	826 172.4	934 240.1	517 186.0	595 171.0	418 106.1	1169 217.7	784 144.4
下位葉身	744 155.3	884 226.2	548 197.1	773 222.1	492 124.9	959 178.6	1020 187.8
上位葉鞘	1023 213.6	1212 311.6	898 323.0	841 241.7	650 165.0	1260 234.6	1383 254.7
下位葉鞘	1050 219.2	739 190.0	1098 395.0	947 272.1	726 184.3	828 154.2	1594 293.6

表—19 各種肥料添加処理水稻による $^{90}\text{Sr}$ の吸収及び玄米への濃縮

処 理 区	地上部全放射能 / pot	吸収率	同 指 数	玄米放射能 / g	玄米移行率	玄米濃縮係数
対 照 区	49646 <sup>cpm</sup>	0.62 <sup>%</sup>	100	67 <sup>cpm</sup>	1.46 <sup>%</sup>	$2.49 \times 10^{-2}$
炭カル5g区	48243	0.60	96.8	42	1.02	$1.56 \times 10^{-2}$
炭カル10g区	61613	0.76	122.6	47	0.86	$1.75 \times 10^{-2}$
炭カル30g区	36593	0.45	72.6	50	1.91	$1.86 \times 10^{-2}$
堆肥100g区	51742	0.64	103.2	65	1.32	$2.42 \times 10^{-2}$
堆肥300g区	45723	0.57	91.9	63	1.29	$2.34 \times 10^{-2}$
— K 区	71048	0.88	141.9	56	1.12	$2.08 \times 10^{-2}$

全投与量： $8.07 \times 10^6 \text{cpm} / \text{pot}$ 

に異なることが認められた。 $^{90}\text{Sr}$ はCaと類似の器官別分布割合を示しているが、白米への分布割合は前述の低 $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ 比を反映して、 $^{90}\text{Sr}$ がCaよりも小さい（約半分）ことが判明した。 $^{90}\text{Sr}$ がCaに比較して子実部に少く、わらに多く集積していることは、わらを飼料に用いる場合、 $^{90}\text{Sr}$ の牛乳への移行量が問題となり、この面からの監視もまた放射能汚染対策上重要である。

#### (b) 水稻の $^{90}\text{Sr}$ 吸収に対する各種肥料の抑制効果

$^{90}\text{Sr}$ の実用的な吸収抑制剤と考えられる炭酸カルシウムの投与効果を図—26、表—17にそれぞれ示した。玄米と地上部各器官の $^{90}\text{Sr}$ 濃度から、炭酸カルシウムの投与は $^{90}\text{Sr}$ の吸収抑制に効果があることが認められた。 $^{90}\text{Sr}$ の吸収率が炭酸カルシウム10g区で対照区より高いのは（表—19）、本処理区の下位葉身が（2連のうち的一方）直接ポットから $^{90}\text{Sr}$ により汚染されたためと考えられる。一方、堆肥投与は $^{90}\text{Sr}$ の吸収量に影響を及ぼさないことが示された。 $^{90}\text{Sr}$ の吸収抑制剤としてカルシウム資材と客土剤が一般的に使用され、両資材とも水稻による $^{90}\text{Sr}$ の吸収量を減少させることが認められており、特にベントナイトと大谷石が効果的であることが報告されている<sup>57), 107)</sup>。また、麻生ら<sup>1)</sup>はニトロフミン酸ナトリウムを土壌に加えると、水稻による $^{90}\text{Sr}$ の吸収が減少することを述べている。稲以外の作物では石灰や堆肥施用の吸収抑制効果が高いという報告もなされている<sup>16), 49), 83), 84)</sup>。

#### (c) 水稻による $^{90}\text{Sr}$ の吸収率，玄米移行率，玄米濃縮係数

水稻の $^{90}\text{Sr}$ 吸収率（表—19）は0.45～0.88%と処理間

差異は少く、炭酸カルシウム30g区で0.45%と最低を示した。

各種作物による $^{90}\text{Sr}$ の吸収率をみると、大麦で0.17%、菜豆で8.7%と植物の種類により極端に異なることが知られている<sup>82)</sup>。天正ら<sup>96)</sup>の研究結果によれば、水稻による $^{90}\text{Sr}$ の吸収率は約0.8%であることが示されており、本研究で得られた値はこれよりやや低いといえる。

$^{90}\text{Sr}$ の玄米移行率<sup>97)</sup>（表—19）は0.86～1.91%で、これは $^{137}\text{Cs}$ の玄米移行率の約1/10に相当するものである。

子実中の $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ の濃度を推定する場合、玄米濃縮係数<sup>98)</sup>を算出しておくことと便利であるので<sup>43)</sup>、表—19に $^{90}\text{Sr}$ の玄米濃縮係数<sup>99)</sup>を示しておいた。この係数を用いれば、土壌中の $^{90}\text{Sr}$ 濃度を知ることによりそこに栽培されている水稻子実の $^{90}\text{Sr}$ 濃度を推定することが可能である。本実験で得られた $^{90}\text{Sr}$ の玄米濃縮係数は、放射能汚染調査データを解析して算出した $^{90}\text{Sr}$ の玄米濃縮係数（置換態 $^{90}\text{Sr}$ から算出）と類似であることが示されている<sup>77)</sup>。一方、玄米で求めた $^{90}\text{Sr}$ 濃縮係数は、大豆子実で求めた $^{90}\text{Sr}$ 濃縮係数 $6.1 \sim 6.8 \times 10^{-2}$ の約1/3であることを認めている<sup>78)</sup>。

#### (d) 水稻のKと $^{137}\text{Cs}$ の濃度とその体内分布

稲体のK濃度に及ぼす各種肥料添加の影響を表—20に示した。—K区では葉、特に下位葉のK濃度が低く、K欠乏状態で生育したものと推察された。その他の処理区では、対照区とK濃度に変動が認められなかった。稲体内のK濃度は、白米<玄米<粃がら≒葉鞘<葉身<稈≒糠の順であるが、Caに比較して各器官かなり均一であることが示された。 $^{137}\text{Cs}$ についてもこのような関係がみられるが（表—21）、 $^{137}\text{Cs}$ がKよりも相対的に子実部で高濃度を示したことは特記に値する。処理区別に体内の $^{137}\text{Cs}$ 濃度を検討したところ、—K区>>対照区

玄米移行率：1ポット当りの玄米放射能／1ポット当りの地上部全放射能

玄米濃縮係数：玄米1g当りの放射能／土壌1g当りの放射能

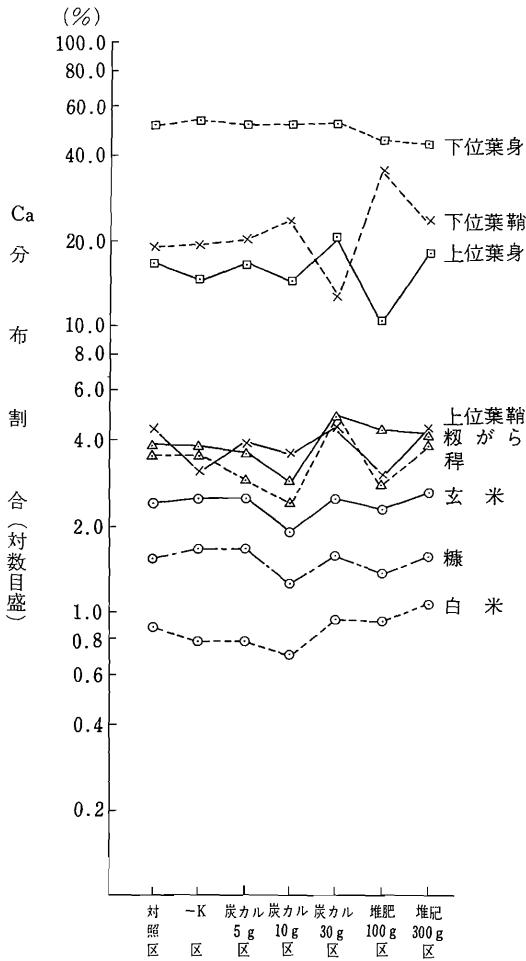


図-24 水稻各器官のCa分布に及ぼす各種肥料添加の影響

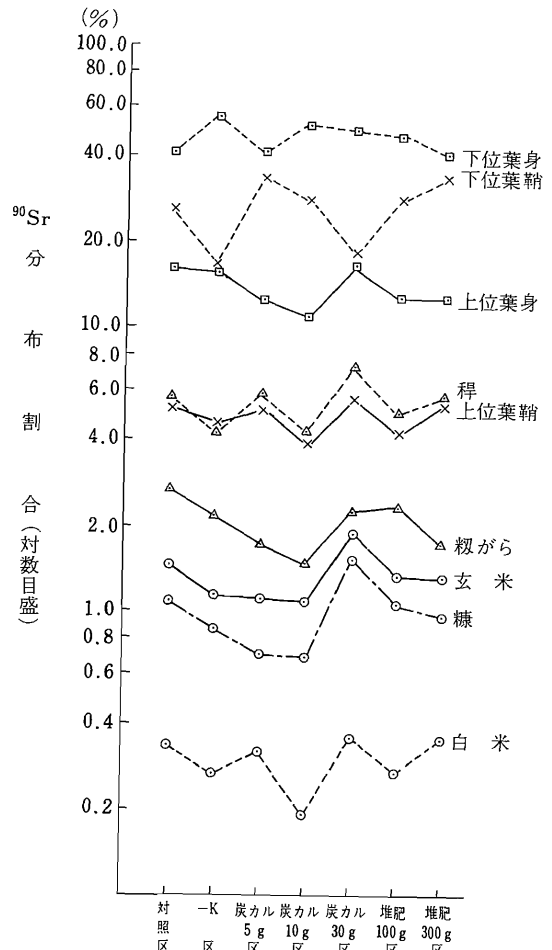


図-25 水稻各器官の<sup>90</sup>Sr分布に及ぼす各種肥料添加の影響

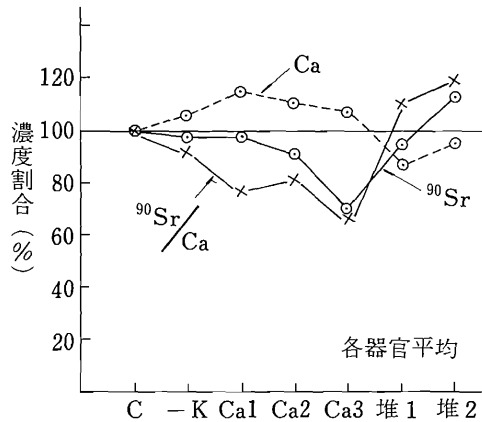
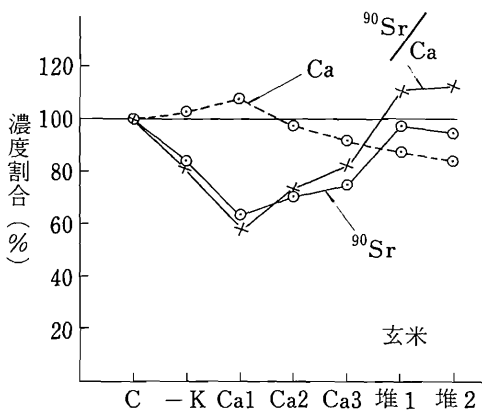


図-26 水稻の<sup>90</sup>Sr吸収に対する各種肥料の抑制効果

C:対照区, -K:-K区, Ca1:炭カル5g区  
Ca2:炭カル10g区, Ca3:炭カル30g区, 堆1:堆肥100g区  
堆2:堆肥300g区

表-20 水稻体各器官のK濃度に及ぼす各種肥料添加の影響

処理区 器官	対 照 区		一 K 区		炭カル5g区		炭カル10g区		炭カル30g区		堆 肥100g区		堆 肥300g区	
	mgk/g	指 数	mgk/g	指 数	mgk/g	指 数	mgk/g	指 数	mgk/g	指 数	mgk/g	指 数	mgk/g	指 数
玄 米	4.23	100	4.20	100	3.52	100	3.52	100	3.79	100	3.74	100	4.06	100
白 米	1.21	28.6	1.21	28.8	1.12	31.8	1.10	31.3	1.14	30.1	1.23	32.9	0.93	22.9
糠	31.38	742	31.14	741	24.85	706	25.28	718	27.65	730	25.68	687	32.22	794
籾 が ら	15.10	357	14.56	347	14.86	422	13.02	370	14.95	395	18.50	495	16.37	403
稈	30.79	728	35.41	843	33.26	945	31.28	889	34.55	912	33.79	904	39.29	968
上位葉身	18.03	426	15.27	364	19.09	542	19.48	553	18.25	482	17.42	466	20.04	494
下位葉身	18.64	441	10.92	260	18.84	535	18.96	539	19.92	526	17.45	520	17.35	427
上位葉鞘	15.54	367	14.08	335	16.81	478	17.33	492	16.69	440	14.00	374	20.82	513
下位葉鞘	16.45	389	8.11	193	19.70	560	20.14	572	20.23	534	17.77	475	18.38	453

表-21 水稻体各器官の $^{137}\text{Cs}$ 濃度に及ぼす各種肥料添加の影響

処理区 器官	対 照 区		一 K 区		炭カル5g区		炭カル10g区		炭カル30g区		堆 肥100g区		堆 肥300g区	
	cpm/g	指 数	cpm/g	指 数	cpm/g	指 数	cpm/g	指 数	cpm/g	指 数	cpm/g	指 数	cpm/g	指 数
玄 米	57	100	488	100	47	100	56	100	59	100	28	100	12	100
白 米	18.4	32	152	31	17.4	37	18.1	32	19.5	33	11.9	43	8.3	69
糠	405	711	3517	721	304	648	398	711	410	695	168	600	45	375
籾 が ら	99	174	928	190	88	187	85	152	89	151	52	186	28	233
稈	110	193	1324	271	112	238	109	195	121	205	31	111	37	308
上位葉身	61	107	670	137	73	155	85	152	76	129	27	96	18	150
下位葉身	306	537	2672	548	342	728	330	589	268	454	105	375	83	692
上位葉鞘	169	296	1484	304	129	274	178	318	138	234	61	218	36	300
下位葉鞘	141	247	1647	338	181	385	177	316	155	263	84	300	99	825

表-22 水稻体各器官の $^{137}\text{Cs}/\text{K}$ 比に及ぼす各種肥料添加の影響

処理区 器官	対 照 区		一 K 区		炭カル5g区		炭カル10g区		炭カル30g区		堆 肥100g区		堆 肥300g区	
	cpm/mgk	指 数	cpm/mgk	指 数	cpm/mgk	指 数	cpm/mgk	指 数	cpm/mgk	指 数	cpm/mgk	指 数	cpm/mgk	指 数
玄 米	13.5	100	116.2	100	13.4	100	15.9	100	15.6	100	7.5	100	3.0	100
白 米	15.2	112.6	125.6	108.1	16.0	119.4	16.5	103.8	17.1	109.6	9.7	129.3	8.9	296.7
糠	12.9	95.6	112.9	97.2	12.2	91.0	15.7	98.7	14.8	94.9	6.5	86.7	1.4	46.7
籾 が ら	6.6	48.9	63.7	54.8	5.9	44.0	6.5	40.9	6.0	38.5	2.8	37.3	1.7	56.7
稈	3.6	26.7	37.4	32.2	3.4	25.4	3.5	22.0	3.5	22.4	0.92	12.3	0.94	31.3
上位葉身	3.4	25.2	43.9	37.8	3.8	28.4	4.4	27.7	4.2	26.9	1.6	21.3	0.90	30.0
下位葉身	16.4	121.5	244.7	210.6	18.2	135.8	17.4	109.4	13.5	86.5	5.4	72.0	4.8	160.0
上位葉鞘	10.9	80.7	105.4	90.7	7.7	57.5	10.3	64.8	8.3	53.2	4.4	58.7	1.7	56.7
下位葉鞘	8.6	63.7	203.1	174.8	9.2	68.7	8.8	55.3	7.7	49.4	4.7	62.7	5.4	180.0

表-23 各種肥料添加処理水稻による $^{137}\text{Cs}$ の吸収及び玄米への濃縮

処 理 区	地上部全放射能 / pot	吸収率	同 指 数	玄米放射能 / g	玄米移行率	玄米濃縮係数
対 照 区	3973 <sup>cpm</sup>	0.065 <sup>%</sup>	100	57 <sup>cpm</sup>	15.68 <sup>%</sup>	$2.78 \times 10^{-2}$
一 K 区	50454	0.820	1262	488	13.85	$2.38 \times 10^{-1}$
炭カル5g区	3996	0.065	100	47	13.51	$2.29 \times 10^{-2}$
炭カル10g区	4394	0.072	111	56	14.27	$2.73 \times 10^{-2}$
炭カル30g区	4131	0.067	103	59	19.61	$2.88 \times 10^{-2}$
堆肥100g区	1731	0.028	43	28	17.10	$1.36 \times 10^{-2}$
堆肥300g区	891	0.015	23	12	12.57	$0.59 \times 10^{-2}$

全投与量： $6.15 \times 10^6 \text{cpm/pot}$

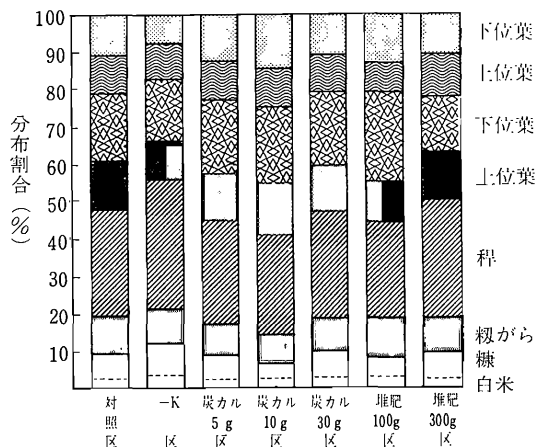


図-27 水稻各器官のK分布に及ぼす各種肥料添加の影響

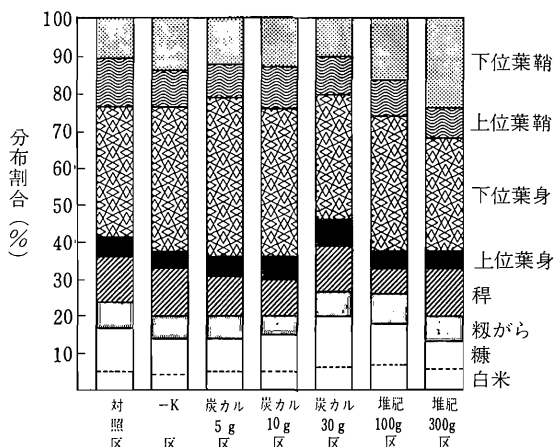


図-28 水稻各器官の $^{137}\text{Cs}$ 分布に及ぼす各種肥料添加の影響

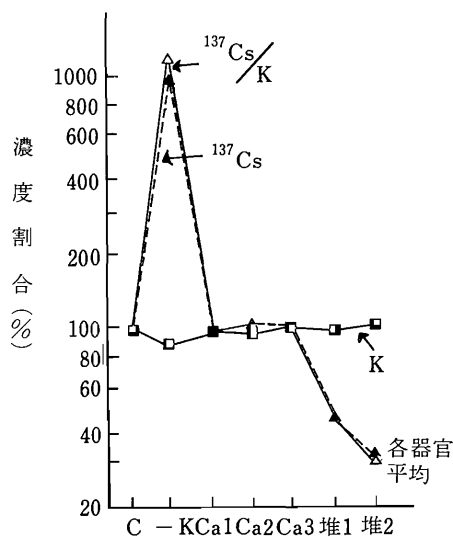
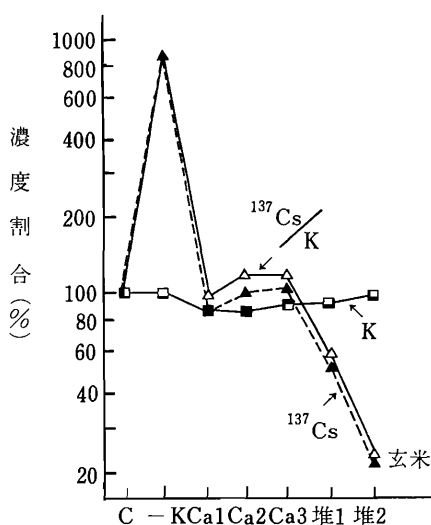


図-29 水稻の $^{137}\text{Cs}$ 吸収に対する各種肥料の抑制効果

C:対照区, -K:-K区, Ca1:炭カル5g区  
Ca2:炭カル10g区, Ca3:炭カル30g区, 堆1:堆肥100g区  
堆2:堆肥300g

≡炭酸カルシウム投与区>堆肥区の順となる傾向が示された。

つぎに,  $^{137}\text{Cs}$  と K の体内挙動を検討する前に, 両元素の O. R. 値を調べた。水耕法による作物の K, Rb, Cs 吸収実験で, Collader<sup>5)</sup>は3元素間で選択吸収がほとんどみられないことを述べている。しかし Middleton ら<sup>26)</sup>は  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{42}\text{K}$  の間で選択吸収を認め, 両元素の O. R. 値は0.2~0.6であることを報告している。一方, 土壌を培地とした実験では,  $^{137}\text{Cs}$  と K の O. R. 値は水稻で0.03であることが示されている<sup>95)</sup>。土壌培地でこのような低い

O. R. 値が観察されるのは,  $^{137}\text{Cs}$  が K より土壌に固定され易い結果, 水稻による  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量が減少するためと解される。

$^{137}\text{Cs}$  と K の体内挙動の違いを検討するため  $^{137}\text{Cs}/\text{K}$  比の算出を試みた(表-22)。 $^{137}\text{Cs}/\text{K}$  比は, 一般に子実, 特に白米で他の器官より高いことが認められたが, 天正ら<sup>95)</sup>も同様の結果を得ている。 $^{137}\text{Cs}/\text{K}$  比は  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  比と異なり, 作物の種類や栽培条件により強く影響を受けることが報告されている<sup>11)</sup>。この原因は作物体内の  $^{137}\text{Cs}$  と K 濃度が  $^{90}\text{Sr}$  や Ca の濃度に比較して変動し易いため



と考えられる。

K の器官別分布割合 (図—27) は、各区とも稈>下位葉身>上位葉身=下位葉鞘=上位葉鞘>根がら>糠>白米,  $^{137}\text{Cs}$  のそれ (図—28) は、下位葉身>上位葉鞘=稈=下位葉鞘>糠>根がら・上位葉身・白米の傾向をそれぞれ示した。

#### (e) 水稻に対する $^{137}\text{Cs}$ の吸収抑制

$^{137}\text{Cs}$  の水稻に対する吸収抑制効果を K 施用区, K 無施用区, 堆肥100 g 区, 堆肥300 g 区及び石灰施用区間で比較した結果 (図—29, 表—23), —K 区の  $^{137}\text{Cs}$  濃度と  $^{137}\text{Cs}$  吸収率は対照区より約10倍高く, K 施用が  $^{137}\text{Cs}$  の吸収抑制に極めて効果的であることが示された。K 施用が,  $^{137}\text{Cs}$  吸収抑制に効果があることはⅢ—3の実験結果からも支持される。また K の施用が  $^{137}\text{Cs}$  の吸収を減少させるという報告が多数なされている<sup>8), 12), 15), 20), 52), 64—67), 97), 107)</sup>。したがって、現在のところ  $^{137}\text{Cs}$  の吸収抑制剤として加里肥料が最適と考えられているが、大谷石、セメントダストも有効であると報告されている<sup>32), 107)</sup>。一方、堆肥施用区で  $^{137}\text{Cs}$  の吸収抑制効果が高かったことは、堆肥中に含まれている K の影響によるものと考えられる。しかし、有機物施用は植物中の  $^{137}\text{Cs}$  含量を高めるとい報告<sup>3)</sup>もあり、この点については今後さらに検討をする必要がある。

#### (f) 水稻による $^{137}\text{Cs}$ の吸収率, 玄米移行率, 玄米濃縮係数

水稻による  $^{137}\text{Cs}$  の吸収率, 玄米移行率, 玄米濃縮係数を  $^{90}\text{Sr}$  の例にならって算出し、表—23に示した。玄米移行率に処理間差は認められないが、吸収率と玄米濃縮係数は—K 区が対照区にくらべて著しく高いことが注目される。作物による  $^{137}\text{Cs}$  吸収率は作物や土壌の種類、施肥条件等により変化し易いため一定しないが、0.01～2 % 程度であることが知られている。稲では天正ら<sup>95)</sup>によると陸稲で0.03～0.05 %, 水稻で0.5～1.2 % の範囲であることが報告されている。また、著者らの別の実験 (Ⅲ—5) によれば、水稻による  $^{137}\text{Cs}$  の吸収率は0.03 %～1.4 % と土壌の種類,  $^{137}\text{Cs}$  添加後の経過年数, 施肥条件により著しく異なることが認められている。水稻による  $^{137}\text{Cs}$  の吸収率が天正らの報告値よりも本実験で得られた値が低くなったのは、土壌の種類, 施肥法及びたん水条件の違い等によるものと考えられる。吸収率と同様に、玄米濃縮係数も処理条件により著しく変化し一定しないが、対照区では約  $2.78 \times 10^{-2}$  程度となりⅢ—4の実験で求めた値よりやや小さいことが示された。一方、玄米と大豆子実の  $^{137}\text{Cs}$  濃縮係数はほぼ等しいこ

とが認められている<sup>78)</sup>。

以上の本実験結果から、一般に水稻による  $^{90}\text{Sr}$  の吸収率は  $^{137}\text{Cs}$  の吸収率よりも高いが玄米移行率が  $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr}$  の関係にあるため、玄米濃縮係数は  $^{137}\text{Cs}$  の方が  $^{90}\text{Sr}$  より大きくなることが明らかとなった。

### 3 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収に及ぼす共存イオンの影響

水稻による放射性核種の吸収抑制資材として、 $^{90}\text{Sr}$  には炭酸カルシウム,  $^{137}\text{Cs}$  には加里肥料の施用がそれぞれ効果的であることを土耕実験で認めた。土壌を培地とした場合、カチオンの添加が固定された  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の一部を置換態化させる等のため、水稻による両核種の吸収に対するカチオン添加効果の発現は複雑となる。ここでは、水耕培地を使用し、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収に及ぼす各種カチオン添加の影響を検討することにした。

表—24 供試水稻の生育調査(乾物)

g/Plant

処 理 名	葉 身	葉 鞘	根
対 照 区	0.435	0.293	0.185
$\text{NH}_4\text{Cl}$ 1 ⊛	0.455	0.280	0.175
〃 2 ⊛	0.540	0.340	0.225
〃 3 ⊛	0.505	0.310	0.200
$\text{NaCl}$ 1	0.460	0.300	0.175
〃 2	0.455	0.290	0.160
〃 3	0.510	0.305	0.185
$\text{KCl}$ 1	0.530	0.335	0.240
〃 2	0.500	0.330	0.215
〃 3	0.535	0.330	0.205
$\text{MgCl}_2$ 1	0.510	0.290	0.195
〃 2	0.480	0.320	0.170
〃 3	0.510	0.330	0.210
$\text{CaCl}_2$ 1	0.460	0.285	0.190
〃 2	0.435	0.265	0.165
〃 3	0.515	0.315	0.215
$\text{SrCl}_2$ 1	0.440	0.260	0.150
〃 2	0.390	0.230	0.140
〃 3	0.525	0.330	0.200
$\text{BaCl}_2$ 1	0.520	0.305	0.175
〃 2	0.480	0.305	0.165
〃 3	0.555	0.330	0.200

⊛ 1 : 0.063    2 : 0.125    3 : 0.250 me

表-25 各種塩添加による水稻の $^{90}\text{Sr}$ 吸収抑制

添加塩及び 添加量 (me)		葉 身		葉 鞘		根	
		cpm/50mg	対 照 区 との比※	cpm/50mg	対 照 区 との比※	cpm/50mg	対 照 区 との比※
$\text{Ba}^{2+}$	0.063	1686	0.555	4150	0.248	6329	0.182
	0.125	846	0.279	1729	0.103	4215	0.121
	0.250	320	0.105	800	0.048	3477	0.100
$\text{Sr}^{2+}$	0.063	1625	0.535	2871	0.171	6143	0.177
	0.125	996	0.328	2169	0.129	4687	0.135
	0.250	673	0.222	1392	0.083	3124	0.090
$\text{Ca}^{2+}$	0.063	1170	0.385	3235	0.193	8625	0.248
	0.125	831	0.274	2269	0.135	5665	0.163
	0.250	457	0.151	1478	0.088	4121	0.118
$\text{Mg}^{2+}$	0.063	3698	1.218	10409	0.621	18813	0.541
	0.125	2699	0.889	5574	0.333	13933	0.400
	0.250	1798	0.592	4259	0.254	9047	0.260
$\text{K}^{+}$	0.063	2575	0.848	6801	0.406	18618	0.535
	0.125	1951	0.642	8349	0.498	17015	0.489
	0.250	1705	0.561	6483	0.387	16846	0.484
$\text{Na}^{+}$	0.063	3654	1.203	6332	0.378	33178	0.953
	0.125	3053	1.005	13470	0.804	29489	0.847
	0.250	4294	1.414	11533	0.688	22688	0.652
$\text{NH}_4^{+}$	0.063	356	0.117	1741	0.104	9760	0.281
	0.125	302	0.099	1750	0.104	6013	0.173
	0.250	343	0.113	1817	0.108	5922	0.170

※対照区を1とした値

## (1) 実験方法

実験1  $^{90}\text{Sr}$ 吸収に及ぼす共存イオンの影響

水稻（農林29号）を5月17日播種，6月26日水耕栽培に移し，8月12日に実験に供した。この間，N 20 ppm ( $\text{NH}_4\text{NO}_3$ )， $\text{P}_2\text{O}_5$  10 ppm ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ )， $\text{K}_2\text{O}$  20 ppm ( $\text{K}_2\text{SO}_4$ ， $\text{KH}_2\text{PO}_4$ )， $\text{Fe}_2\text{O}_3$  3 ppm (EDTA 鉄) の組成の培養液を用いて5ℓ容の黒色ガラスポットで水耕育苗した。

$^{90}\text{Sr}$ の吸収抑制処理用として，上記水稻を500 ml 容褐色ポリビンに2本移し下記の処理条件下で，27時間 $^{90}\text{Sr}$ の吸収を行わせ，処理後根部を水道水で洗い，熱風乾燥後放射能の測定に供した。処理時の共存イオンとして， $\text{Na}^{+}$ ， $\text{K}^{+}$ ， $\text{NH}_4^{+}$ ， $\text{Mg}^{2+}$ ， $\text{Ca}^{2+}$ ， $\text{Sr}^{2+}$ 及び $\text{Ba}^{2+}$ の7種類を，それぞれ塩化物として0.063，0.125，0.250 me/500 ml 蒸留水の割合で投与した。各容器に無担体の $^{90}\text{Sr}$ を2  $\mu\text{Ci}$  あて加えたのち，処理液のpHを5.4に調節した。

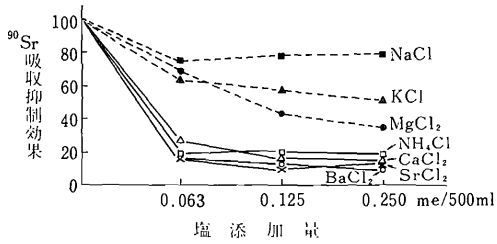
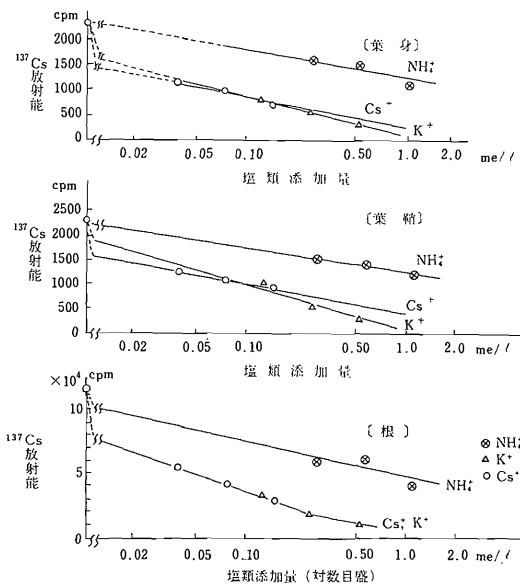
実験2  $^{137}\text{Cs}$ 吸収に及ぼす共存イオンの影響

実験1で栽培した水稻を1ℓ容の褐色ポリビン（水道水1ℓ，pH5.4， $^{137}\text{Cs}$  5  $\mu\text{Ci}$ ）に移し下記条件により $^{137}\text{Cs}$ の吸収処理を行った。処理時の共存イオン濃度は $\text{K}^{+}$ ， $\text{NH}_4^{+}$ 及び $\text{Cs}^{+}$ （共に塩化物）をそれぞれ5，10及び20 ppmとした。処理は29時間行い，試料採取と放射能測定は実験1に準じて行った。本実験は2連で行った。

## (2) 結果及び考察

(a)  $^{90}\text{Sr}$ の吸収に及ぼす共存イオンの影響

実験終了時の乾物重を表-24に，各種イオン添加による $^{90}\text{Sr}$ 吸収抑制効果を図-30に，器官別 $^{90}\text{Sr}$ 吸収量を表-25にそれぞれ示した。 $^{90}\text{Sr}$ と同族元素である $\text{Ba}^{2+}$ ， $\text{Sr}^{2+}$ ， $\text{Ca}^{2+}$ の0.063 me 添加区で $^{90}\text{Sr}$ の著しい吸収抑制効果が現われたが（ $^{90}\text{Sr}$ 吸収量は対照区の約20%），これらの区では添加量を増すことによりその吸収量はさら

図—30 水稻の $^{90}\text{Sr}$ 吸収に及ぼす各種塩添加の影響 (稲体全体)図—31 水稻の $^{137}\text{Cs}$ 吸収に及ぼす各種塩添加の影響

に減少する傾向が認められた。ここで特記されるのは  $\text{NH}_4^+$  も上記 3 アルカリ土類金属に近い吸収抑制効果を示したことである。また、 $^{90}\text{Sr}$  の吸収量は  $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  の添加によってもかなり減少したが、 $\text{Na}^+$  添加の場合あまり変化しないことが認められた。

#### (b) $^{137}\text{Cs}$ の吸収に及ぼす共存イオンの影響

水稻による  $^{137}\text{Cs}$  の吸収に及ぼす  $\text{K}^+$ 、 $\text{Cs}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$  添加の影響を検討した結果 (共存イオンの濃度を me に換算し図—31 に示した)、 $\text{K}^+$  は  $\text{Cs}^+$  と同程度の高い  $^{137}\text{Cs}$  吸収抑制効果を示し、 $\text{NH}_4^+$  もまた  $^{137}\text{Cs}$  の吸収に抑制的であることが認められたが、 $\text{Cs}^+$  や  $\text{K}^+$  の抑制効果ほど高くないことが判明した。また各イオンとも添加量を増やすと  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量は減少し、その影響は  $^{90}\text{Sr}$  の場合より強く現われることが示された。

Handly ら<sup>18)</sup>は、大麦による無担体  $^{137}\text{Cs}$  の吸収に対し、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Rb}^+$  は抑制的に作用し、1 l 当り 0.01

me の  $\text{K}^+$ 、 $\text{Rb}^+$  及び 0.03 me の  $\text{NH}_4^+$  の添加で  $^{137}\text{Cs}$  の吸収が 50 % 抑制されることを述べている。また、 $\text{Cs}$  の吸収に対し、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Rb}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$  が拮抗的に働くことは水耕実験で確かめられている<sup>21), 4), 21), 98)</sup>。しかし、土耕実験の場合、 $\text{NH}_4^+$  の添加は水稻による  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量を増加させることを天正ら<sup>97)</sup>は認めその理由として、 $\text{NH}_4^+$  添加による土壌中の固定態  $^{137}\text{Cs}$  の一部置換遊離化をあげている。なお、II—4 の実験において、土壌に  $\text{NH}_4^+$  を加用することにより固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合が減少することを認めている。これらの結果から、作物による  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量は培地に添加した  $\text{NH}_4^+$  の固定態  $^{137}\text{Cs}$  の置換態化作用と吸収抑制作用の強さに著しく影響されるものと判断される。

## 4 土壌の種類と水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収

放射能汚染調査データによると、白米の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  濃度に著しい地域差のあることが示されている。その理由の 1 つとして土壌の種類によって水稻による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量に差異が生ずることが考えられる。

本実験は、水稻による  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の吸収量と土壌中の置換態両核種の割合との関連を明らかにしようとしたものである。

### (1) 実験方法

供試土壌として、腐植含量の著しく高い盛岡土壌、粘土含量や CEC の高い高田土壌、CEC の小さい砂質の甲府土壌及び砂土の 4 種類を選んだ (表—1)。

5000 分 1 アールのポットにこれらの土壌を 2.2 kg ずつ詰め、各ポットに硫酸アンモニウム 3.0 g、過磷酸石灰 10.0 g 及び塩化加里 1.2 g を施用した。ただし、砂土のみに酸性白土 50 g と EDTA 鉄 0.5 g を併用した。各ポットに  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を 20  $\mu\text{Ci}$  ずつ同時に添加し、たん水後十分に攪拌してから、水稻 (農林 29 号) を 6 日 24 日に移植し、以後普通栽培を続け、10 月 16 日に収穫した。これら水稻を各器官に分割し、III—2 の方法に従って  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の放射能を測定した。栽培跡地土壌の置換・固定態両核種の割合は II—4 の方法で求めた。本実験は 2 連で行った。

### (2) 結果及び考察

表—26 に水稻の収量調査結果を示した。土壌の種類により収量に差異がみられ、玄米重の順位は甲府≒盛岡土壌 > 高田土壌 > 砂土の傾向を示した。

水稻の $^{90}\text{Sr}$ 吸収量は甲府土壌で最も多く、盛岡、高田土壌がこれにつき、砂土では地上部の生育量の小さいことを反映し最も少いことが示された(表—27)。器官別の $^{90}\text{Sr}$ の分布割合は、土壌間で差異がみられずほぼ一定で、葉に約89%, 玄米に約2%, 籾がらと稈に約9%の値を示し、Ⅲ—2の実験結果とほぼ同様の傾向を示した(表—27)。

$^{137}\text{Cs}$ の吸収量(表—28)の順位は $^{90}\text{Sr}$ の場合と異なり、盛岡土壌>甲府土壌>高田土壌≒砂土の傾向を示し、土壌間差異が大であることが認められた。 $^{137}\text{Cs}$ の器官別分布割合をみると、玄米に約20%, その他の器官に約80%分布し、 $^{90}\text{Sr}$ の場合と異なり子実部に多く集積することがⅢ—2の結果と同様に認められた。

$^{90}\text{Sr}$ の体内濃度(表—29)の順位は各器官とも砂土>甲府土壌>高田土壌>盛岡土壌の傾向を示し、これら土壌の置換態 $^{90}\text{Sr}$ の割合の大小(表—31)を反映した土壌間差異を示した。盛岡土壌で栽培した水稻の $^{90}\text{Sr}$ 濃度が最も低いのは、本土壌の置換態 $^{90}\text{Sr}$ の割合が他の土壌にくらべて著しく低い(表—31, Ⅱ—4, 5, 6, 10)ためと推定される。器官別に $^{90}\text{Sr}$ の濃度を比較すれば、玄米<茎葉の関係にあることが本土耕実験によっても確認された。 $^{137}\text{Cs}$ の体内濃度(表—30)は、盛岡土壌>砂土≒甲府土壌>高田土壌の順に低くなり、各土壌の置換態

$^{137}\text{Cs}$ の割合とよく対応していることが認められた。

吸収率は $^{90}\text{Sr}$ では0.34~0.59%と土壌間差異が比較的小さく(表—31),  $^{137}\text{Cs}$ では0.13~1.35%と土壌間差異が大であることを認めた(表—32)。

$^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の玄米移行率は、土壌間差異を反映せず、前者で2.1~2.4%, 後者で21~23%となり、Ⅲ—2の実験結果とほぼ同じであることが示された。

玄米濃縮係数は、 $^{90}\text{Sr}$ では $1.01 \sim 1.89 \times 10^{-2}$ の値をとり土壌の種類による差異は少ないが(表—31),  $^{137}\text{Cs}$ では $2.8 \times 10^{-1} \sim 3.7 \times 10^{-2}$ の値を示し、土壌間差異の大きいことが認められた(表—32)。またこれらの濃縮係数は荒川沖積土で得られた濃縮係数(Ⅲ—2)に近い値である。

以上の結果から、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ による子実汚染の程度は、土壌中の両核種の存在形態に影響されるものと解される。すなわち、置換態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合が低下し、一方、固定態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合が増加するほど子実中の両核種の濃度は低下する傾向を示す。このことに関連して著者の1人小林<sup>39), 40)</sup>は、土壌中の置換態 $^{90}\text{Sr}$ 濃度と玄米の $^{90}\text{Sr}$ 濃度の間に高い正の相関があることを指摘している。なお、両核種の存在形態と作物汚染の関係は総合考察で述べる。

表—26 各種土壌で栽培した水稻の収量調査

(乾物g/pot)

土 壌 名	上位葉身	上位葉鞘	下位葉身	下位葉鞘	稈	玄 米	籾 が ら	合 計
高 田 土 壌	4.17	3.67	6.43	3.21	4.61	18.93	3.99	45.01
甲 府 土 壌	5.31	4.27	7.42	3.84	5.68	24.64	5.39	56.55
盛 岡 土 壌	5.53	4.92	9.28	5.17	5.23	21.77	5.03	56.93
砂 土	2.70	2.18	2.71	1.74	2.53	8.43	1.86	22.15

表—27 各種土壌で生育した水稻の $^{90}\text{Sr}$ 吸収量

器 官	盛 岡 土 壌		高 田 土 壌		甲 府 土 壌		砂 土	
	cpm/pot	比 率	cpm/pot	比 率	cpm/pot	比 率	cpm/pot	比 率
玄 米	827	2.1	757	2.2	1183	2.4	599	2.2
籾 が ら	1650	4.3	1764	5.0	2404	5.0	1306	4.7
稈	2103	5.4	1872	5.4	3368	7.0	2042	7.4
上位葉身	8666	22.3	8056	23.0	11013	22.7	7617	27.6
上位葉鞘	2076	5.4	1930	5.5	2524	5.2	2017	7.3
下位葉身	20416	52.6	18165	51.9	24360	50.3	10214	37.0
下位葉鞘	3056	7.9	2459	7.0	3575	7.4	3826	13.8
合 計	38794	100	35003	100	48427	100	27621	100

器 官	盛 岡 土 壤		高 田 土 壤		甲 府 土 壤		砂 土	
	cpm/pot	比 率	cpm/pot	比 率	cpm/pot	比 率	cpm/pot	比 率
玄 米	16698	20.8	1912	20.8	4140	21.8	1770	23.0
粃 が ら	4970	6.2	834	9.1	1186	6.3	571	7.4
稈	11004	13.7	1355	14.7	2982	15.7	1235	16.1
上位葉身	9556	11.9	1293	14.1	2358	12.4	1150	15.0
上位葉鞘	5373	6.7	708	7.7	1422	7.5	685	8.9
下位葉身	25965	32.3	2167	23.6	5038	26.6	1599	20.8
下位葉鞘	6706	8.4	921	10.0	1847	9.7	677	8.8
合 計	80272	100	9190	100	18973	100	7687	100

[illegible][illegible]

表—31 各種土壌で生育した水稻の $^{90}\text{Sr}$ の吸収率, 玄米移行率, 玄米濃縮係数

土 壌 名	収穫跡土 壌の置換 態 $^{90}\text{Sr}$ (%)	地上部全放 射能/pot (cpm)	吸収率 (%)	同 指 数	玄米放射能 / pot (cpm)	玄米移行率 (%)	玄米放射 能/g (cpm)	玄 米 濃 縮 係 数
盛岡土壌	51	38794	0.47	100	827	2.13	38	$1.01 \times 10^{-2}$
高田土壌	70	35003	0.42	89	757	2.16	40	$1.07 \times 10^{-2}$
甲府土壌	75	48427	0.59	126	1183	2.11	48	$1.28 \times 10^{-2}$
砂 土	84	27621	0.34	72	599	2.17	71	$1.89 \times 10^{-2}$

表—32 各種土壌で生育した水稻の $^{137}\text{Cs}$ の吸収率, 玄米移行率, 玄米濃縮係数

土 壌 名	収穫跡土 壌の置換 態 $^{137}\text{Cs}$ (%)	地上部全放 射能/pot (cpm)	吸収率 (%)	同 指 数	玄米放射能 / pot (cpm)	玄米移行率 (%)	玄米放射 能/g (cpm)	玄 米 濃 縮 係 数
盛岡土壌	61	80272	1.35	100	16698	20.8	767	$2.8 \times 10^{-1}$
高田土壌	35	9190	0.15	0.11	1912	20.8	101	$3.7 \times 10^{-2}$
甲府土壌	42	18973	0.32	0.24	4140	21.8	168	$6.2 \times 10^{-2}$
砂 土	59	7687	0.13	0.10	1770	23.0	210	$7.8 \times 10^{-2}$

## 5 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収の経年変化

土壌に添加した $\text{K}^+$ と $^{137}\text{Cs}^+$ の固定量は経時的に増加し, 乾燥・湿潤をくり返すと固定が促進されることが報告されている<sup>10), 79), 90), 105)</sup>。このような置換態から固定態への漸進的な変化は $^{90}\text{Sr}$ でも一部認められている<sup>96)</sup>。土壌中の置換態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合が経時的に低下すれば, 水稻による両核種の吸収量も経年的に減少することが考えられる。

本実験は, 土壌に吸着された $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水稻による経年的な吸収率, 玄米濃縮係数の変化等につき検討を試みたものである。

### (1) 実験方法

Ⅲ—4の実験で供試した第1年目のポットを収穫したのち, そのまま次年度の水稻の移植まで乾燥状態で保存して第2年目の移植前に耕起し, 第1年目と同様の施肥を行い, たん水後に移植し, 収穫期に試料を採取して, これを第2年目の試料とした。第2年目の収穫が終ったポットは, 同様に第3年目の実験に供した。なお, 第2年目以降は, 砂土区に酸性白土とEDTA鉄を併用しなかった。本実験は2連で行った。

### (2) 結果及び考察

3ヵ年間の収穫調査結果を表—33にまとめて表示した。玄米収量は甲府, 高田土壌で高く, 盛岡土壌がこれらにつき, 砂土で最も低く, またその経年変化は, 砂土

を除いて第1年目>第2・3年目の傾向がみられた。

$^{90}\text{Sr}$ の吸収率(4土壌の平均)は第1年目0.45%, 第2年目0.31%, 第3年目0.25%と経年的に減少することが認められた(表—34)。砂土で $^{90}\text{Sr}$ の吸収率が最も低いのはその生育量が小さいためで, 本区的水稻の $^{90}\text{Sr}$ 濃度は吸収率とは逆に最も高い値を示している(表—35)。 $^{137}\text{Cs}$ の吸収率(4土壌の平均)は第1年目0.49%, 第2年目0.13%, 第3年目0.08%と経年的に減少するが, その減少率は $^{90}\text{Sr}$ より大きい値を示した(表—34)。本実験で,  $^{137}\text{Cs}$ の吸収率が経年的に減少したことは, 経時的な固定量の増加を反映したものと考えられる。

$^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の稲体内濃度, 玄米移行率, 玄米濃縮係数も吸収率と同様に, 経年的に減少することが認められた(表—35, 36, 37)。

両核種の玄米と茎葉部への分布状況(表—38)をみると,  $^{90}\text{Sr}$ では茎葉部に98~99%, 玄米に1~2%,  $^{137}\text{Cs}$ では茎葉部に78~86%, 玄米14~22%分布することが示された。また, これら分布割合の年次変動は認められなかった。

つぎに, 子実中での $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の存在状況につき検討する。玄米を90%の歩留りで精白した時の $^{90}\text{Sr}$ の白米と糠への配分比は24:76( $^{137}\text{Cs}$ では29:71)となり, 放射能汚染調査で得られた $^{90}\text{Sr}$ 降下量の多い1976年産玄米についての配分比<sup>39)</sup>, 約21:79, に近い比を示した。一方,  $^{90}\text{Sr}$ 降下量の多い1959年産玄米についての配分比は約5:95<sup>39)</sup>と算出され, 本実験で得られた比と極端に

異なることが示された。このように  $^{90}\text{Sr}$  降下量の異なる に入れる必要があり、この点については後述することに  
年次間で、 $^{90}\text{Sr}$  が白米と糠で異なる分布を示すことは、 する。

$^{90}\text{Sr}$  による水稻の汚染経路として、直接汚染経路を考慮

表-33 水稻収量の経年的変化(乾物 g/pot)

土 壤 名	第 1 年 目				第 2 年 目				第 3 年 目			
	全 重	わら重	粃 重	玄米重	全 重	わら重	粃 重	玄米重	全 重	わら重	粃 重	玄米重
盛岡土壌	56.9	30.1	26.8	21.8	38.6	25.1	13.5	10.7	31.0	18.4	12.6	9.9
高田土壌	45.0	22.1	22.9	18.9	45.0	25.0	20.0	16.0	36.8	18.5	18.3	14.4
甲府土壌	56.6	26.6	30.0	24.6	44.8	26.4	18.4	14.7	37.6	20.8	16.8	13.3
砂 土	22.2	11.9	10.3	8.4	26.8	16.8	10.0	7.9	25.0	13.8	11.2	8.8

表-34 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収率の経年変化(%)

土 壤 名	$^{90}\text{Sr}$				$^{137}\text{Cs}$			
	第1年目	第2年目	第3年目	計	第1年目	第2年目	第3年目	計
盛岡土壌	0.47	0.31	0.24	1.02	1.35	0.291	0.172	1.81 <sub>3</sub>
高田土壌	0.42	0.36	0.28	1.06	0.15	0.037	0.032	0.21 <sub>9</sub>
甲府土壌	0.57	0.32	0.29	1.18	0.32	0.079	0.073	0.47 <sub>2</sub>
砂 土	0.34	0.26	0.20	0.80	0.13	0.103	0.040	0.27 <sub>3</sub>
平 均	0.45	0.31	0.25	—	0.49	0.128	0.079	—

表-35 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ 濃度の経年変化 (cpm/わら, 玄米1g)

土 壤 名	$^{90}\text{Sr}$ (わら)			$^{137}\text{Cs}$ (わら)			$^{90}\text{Sr}$ (玄米)			$^{137}\text{Cs}$ (玄米)		
	第1年目	第2年目	第3年目	第1年目	第2年目	第3年目	第1年目	第2年目	第3年目	第1年目	第2年目	第3年目
盛岡土壌	1080	912	932	1811	551	412	38	22	23	767	183	153
高田土壌	1312	1017	1001	279	65	69	40	23	28	101	21	23
甲府土壌	1476	872	985	464	129	140	48	18	21	168	54	73
砂 土	1958	1136	1018	429	277	117	71	24	24	210	112	58

表-36 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の玄米移行率とその経年変化(%)

土 壤 名	$^{90}\text{Sr}$				$^{137}\text{Cs}$			
	第1年目	第2年目	第3年目	平 均	第1年目	第2年目	第3年目	平 均
盛岡土壌	2.13	0.92	1.15	1.40	20.8	11.3	14.8	15.6
高田土壌	2.16	1.23	1.77	1.72	20.8	15.1	17.6	17.8
甲府土壌	2.44	1.00	1.15	1.53	21.8	17.0	22.2	20.3
砂 土	2.17	0.88	1.26	1.44	23.0	14.5	21.2	19.6
平 均	2.23	1.01	1.33	1.52	21.6	14.5	19.0	18.3

表-37 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の玄米濃縮係数の経年変化

土 壤 名	$^{90}\text{Sr}$			$^{137}\text{Cs}$		
	第 1 年 目	第 2 年 目	第 3 年 目	第 1 年 目	第 2 年 目	第 3 年 目
盛岡土壌	$1.01 \times 10^{-2}$	$0.58 \times 10^{-2}$	$0.61 \times 10^{-2}$	$2.84 \times 10^{-2}$	$6.76 \times 10^{-2}$	$5.66 \times 10^{-2}$
高田土壌	$1.07 \times 10^{-2}$	$0.61 \times 10^{-2}$	$0.75 \times 10^{-2}$	$3.73 \times 10^{-2}$	$0.78 \times 10^{-2}$	$0.85 \times 10^{-2}$
甲府土壌	$1.28 \times 10^{-2}$	$0.48 \times 10^{-2}$	$0.56 \times 10^{-2}$	$6.21 \times 10^{-2}$	$2.00 \times 10^{-2}$	$2.70 \times 10^{-2}$
砂 土	$1.89 \times 10^{-2}$	$0.64 \times 10^{-2}$	$0.64 \times 10^{-2}$	$7.76 \times 10^{-2}$	$4.14 \times 10^{-2}$	$2.14 \times 10^{-2}$
平 均	$1.31 \times 10^{-2}$	$0.58 \times 10^{-2}$	$0.64 \times 10^{-2}$	$1.15 \times 10^{-2}$	$3.42 \times 10^{-2}$	$2.84 \times 10^{-2}$

表-38  $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の玄米, わらへの分布割合 (%)

土 壤 名	部 位	$^{90}\text{Sr}$			$^{137}\text{Cs}$		
		第 1 年 目	第 2 年 目	第 3 年 目	第 1 年 目	第 2 年 目	第 3 年 目
盛岡土壌	玄 米	2.1	0.9	1.2	20.8	11.3	14.8
	わ ら	97.9	99.1	98.8	79.2	88.7	85.2
高田土壌	玄 米	2.2	1.2	1.8	20.8	15.1	17.6
	わ ら	97.8	98.8	98.2	79.2	84.9	82.4
甲府土壌	玄 米	2.4	1.0	1.2	21.8	17.0	22.2
	わ ら	97.6	99.0	98.8	78.2	83.0	77.8
砂 土	玄 米	2.2	0.9	1.3	23.0	14.5	21.2
	わ ら	97.8	99.1	98.7	77.0	85.5	78.8
平 均	玄 米	2.2	1.0	1.3	21.6	14.5	19.0
	わ ら	97.8	99.0	98.7	78.4	85.5	81.0

## 6 まとめ

$^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の経根的な(間接汚染経路)吸収, 吸収抑制, 体内挙動, 玄米への濃縮等につき水稻を対象として検討した結果を要約する。

(1)  $^{90}\text{Sr}$ とCaの稲体内の分布割合は類似しており, 両元素とも茎葉部に大部分分布し, 子実への分布割合は1.5~2%と少ないことが明らかにされた。しかし, 体内の $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ 比は一定ではなく, 茎葉部より子実部が低い。ため, 両元素に体内挙動の差異があることが判明した。 $^{90}\text{Sr}$ の吸収率は0.45~0.88%, 玄米移行率は0.86~1.91%, 玄米濃縮係数は $1.56 \times 10^{-2}$ ~ $2.49 \times 10^{-2}$ の範囲であることが示された。

一方,  $^{137}\text{Cs}$ とKは稲体内で類似の挙動を示したが,  $^{137}\text{Cs}$ はKよりも子実部へ濃縮され易いことが体内の $^{137}\text{Cs}/\text{K}$ 比の検討結果から明らかとなった。 $^{137}\text{Cs}$ の吸収率, 玄米移行率及び玄米濃縮係数はそれぞれ0.015~0.82%, 12~20%及び $2.4 \times 10^{-1}$ ~ $0.59 \times 10^{-2}$ であることが示された。

(2) 水稻(土耕)に対する $^{90}\text{Sr}$ の吸収抑制に炭酸カル

シウムの施用,  $^{137}\text{Cs}$ の吸収抑制には塩化加里, 堆肥の施用がそれぞれ効果的であることが明らかにされた。一方, 水稻の水耕実験から,  $^{90}\text{Sr}$ では $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{NH}_4^+$ の添加が,  $^{137}\text{Cs}$ では $\text{Cs}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ の添加がそれぞれ吸収抑制効果の高いことが示された。

(3) 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収量は土壌の種類により異なるが, 特に $^{137}\text{Cs}$ でこのことが顕著に認められた。また, 水稻による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収量は, 土壌中の置換態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の割合の大小を反映することが認められた。

(4) 水稻(土耕)による $^{90}\text{Sr}$ の吸収率は, 第1年目0.45%, 第2年目0.31%, 第3年目0.25%,  $^{137}\text{Cs}$ の吸収率は, 第1年目0.49%, 第2年目0.13%, 第3年目0.08%とともに経年的に減少し, その理由として土壌による経時的な両核種の置換態割合の低下をあげることができ



#### Ⅳ 水稻の放射性ストロンチウムとセシウムによる直接汚染

##### 1 はじめに

作物の直接汚染経路は、すでに述べたように、次の3つが知られている。(1)葉面汚染は放射性降下物が葉に附着したり、そこから吸収されるもので、葉菜類、牧草で一般的に知られている汚染形態である。(2)花汚染は主に稲、麦等の開花期に放射性物質が降下（とくに巨大粒子のような強放射能粒子）した場合に重要視される。(3)基部吸収は土壌表面に附着した放射性降下物を作物の基部からとり込むもので、たん水状態下にある水稻基部から、土壌表面や田面水中の放射性核種を吸収するものは、この汚染経路に属すると考えられる。

放射能汚染調査結果によれば、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の降下量の多い年の水稻子実汚染は間接汚染経路だけでは説明が不充分であり、直接汚染経路からの寄与の多いことが推定されている<sup>39), 74)</sup>。

本章では、水稻の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  による直接汚染がどの程度であるかトレーサ法により検討した。

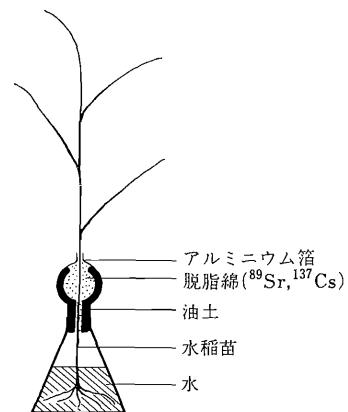
##### 2 $^{89}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水稻基部吸収

水稻で基部吸収が問題となるのは田面水中の  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  を葉鞘・茎からとり込む場合と考えられる。ここでは、水稻葉鞘に  $^{89}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を投与し、これらの核種がどのくらい吸収され、また移行するかモデル実験によ

り検討した。

##### (1) 実験方法

水稻基部に無担体の  $^{89}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$ （各  $20\mu\text{Ci}/\text{個体}$ ）を含んだ水飽和状態の脱脂綿を巻きつけ、図—32に示す方法により蒸発を防ぐためアルミ箔で脱脂綿をカバーしつつ室温で5時間吸収処理を行った。処理後稲体は直ちに乾燥し、Ⅲ—2の方法に準じて放射能を測定した。別に  $^{89}\text{Sr}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  の単独処理区を上記方法に従って作り、処理後オートラジオグラムを作成した。なお、参考のため  $^{89}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を水耕法で経根的に5時間吸収させ（ $^{89}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  各  $2\mu\text{Ci}/\text{個体}$ ）基部吸収との対比を試みた。



図—32 水稻基部吸収の方法

表—39 水稻基部より吸収した  $^{89}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の葉位別葉身、葉鞘及び根への分布割合

葉位及び器官		$^{89}\text{Sr}$		$^{137}\text{Cs}$	
		cpm	%	cpm	%
第5葉	葉身	133	0.2	5210	6.9
	葉鞘*	50490	70.2	34160	45.3
第6葉	葉身	50	0.1	5320	7.1
	葉鞘*	21030	29.2	20440	27.2
第7葉	葉身	3	0.0	813	1.1
	葉鞘	22	0.0	3183	4.2
第8葉	葉身	6	0.0	716	1.0
	葉鞘	1	0.0	161	0.2
根		222	0.3	5290	7.0
計		71957	100	75293	100

\* 処理部位

表—40 経根吸収した $^{89}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の葉位別葉身、葉鞘及び根への分布割合

葉位及び器官		$^{89}\text{Sr}$		$^{137}\text{Cs}$	
		cpm	%	cpm	%
第 5 葉	葉 身	483	2.5	1676	1.2
	葉 鞘	471	2.4	5553	3.8
第 6 葉	葉 身	326	1.7	3447	2.4
	葉 鞘	468	2.4	3190	2.2
第 7 葉	葉 身	326	1.7	4863	3.4
	葉 鞘	422	2.2	4017	2.8
第 8 葉	葉 身	53	0.3	1066	0.7
	葉 鞘	152	0.8	426	0.3
根 *		16573	86.0	120800	83.2
計		19274	100.0	145038	100.0

\*処理部位

## (2) 結果及び考察

表—39に $^{89}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の基部吸収の結果を示した。第5及び第6葉鞘に処理した場合には、 $^{89}\text{Sr}$ は処理部位に全稲体中の99.4%が存在し、残部0.6%のうち、第5、6葉身に0.3%、根に0.3%移行し、第7、8葉への移

行量は僅少であった。一方、 $^{137}\text{Cs}$ は $^{89}\text{Sr}$ と著しく分布様相を異にし、処理葉鞘に72.5%、第5、6葉身に約7%、根に7%分布し、さらに第7、8葉にもかなりの移行していることを認めた。これらの知見はオートラジオグラムの結果(写真—14)からも支持される。

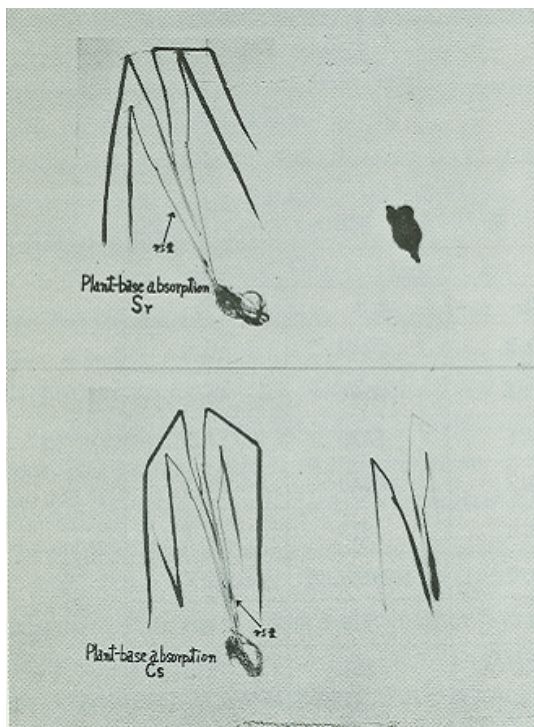


写真-14 水稻基部からの $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の吸収  
左: 稲体標本, 右: 同オートラジオグラム

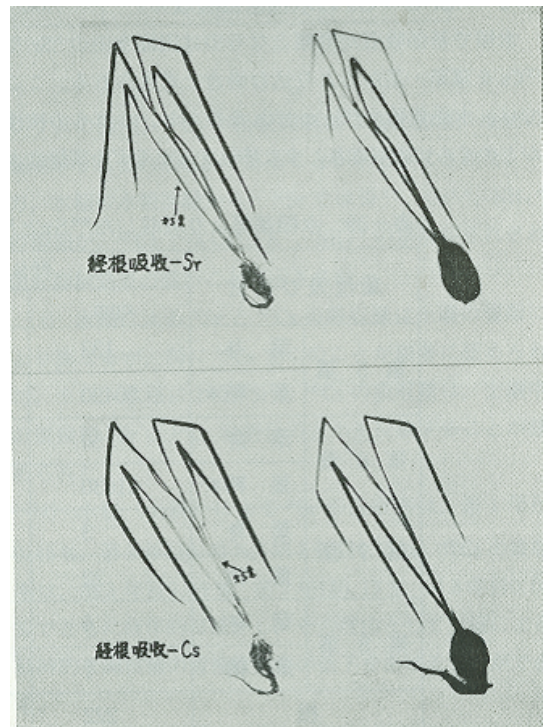


写真-15 水稻根による $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の吸収  
左: 稲体標本, 右: 同オートラジオグラム

以上の結果から、基部から  $^{89}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を吸収させた場合、子実中の放射能強度は、 $^{137}\text{Cs} > ^{89}\text{Sr}$  の関係にあることが推定される。

一方、水耕栽培した水稻による  $^{89}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の経根的吸収・分布は基部吸収で得られた結果と異なる様相を呈した（表—40、写真—15）。すなわち、経根吸収の場合、両核種とも地上部各器官にかなり均一に分布しているが、特に  $^{89}\text{Sr}$  は若い葉よりも古い葉に多く集積していることがうかがわれた。

### 3 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水稻葉面からの吸収と玄米汚染

$^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  が水稻のどの生育時期に葉面からとり込まれた場合に、子実汚染への寄与が最も大きくなるか調べるため本実験を行った。

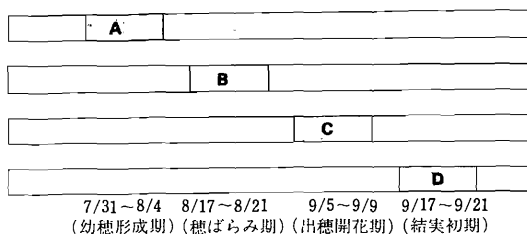
#### (1) 実験方法

水稻をポットで土耕栽培し、図—33に示した生育各期に、上位2枚の葉身を試験管中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  混合液に

表—41 水稻葉面より吸収した  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の器官別濃縮係数

処理 時期	器 官 ・ 部 位		D. C. F (1日当)	
			$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
B	第 16 葉	葉 身	$1.9 \times 10^{-5}$	$6.1 \times 10^{-3}$
		葉 鞘	$1.0 \times 10^{-5}$	$3.7 \times 10^{-3}$
	第 15 葉	葉 身*	$1.0 \times 10^{-2}$	$2.6 \times 10^{-2}$
		葉 鞘	$2.3 \times 10^{-5}$	$5.2 \times 10^{-3}$
	第 14 葉	葉 身*	$9.3 \times 10^{-3}$	$3.7 \times 10^{-2}$
		葉 鞘	$1.6 \times 10^{-5}$	$6.0 \times 10^{-3}$
	第 13 葉	葉 身	$4.2 \times 10^{-5}$	$1.3 \times 10^{-3}$
		葉 鞘	$4.5 \times 10^{-5}$	$1.6 \times 10^{-3}$
C	稈		$1.1 \times 10^{-6}$	$8.1 \times 10^{-3}$
	籾 殻		$2.7 \times 10^{-6}$	$4.2 \times 10^{-3}$
	玄 米		$1.6 \times 10^{-7}$	$3.3 \times 10^{-3}$
	第 16 葉	葉 身*	$5.7 \times 10^{-3}$	$1.7 \times 10^{-2}$
		葉 鞘	$1.0 \times 10^{-5}$	$6.7 \times 10^{-3}$
	第 15 葉	葉 身*	$4.2 \times 10^{-3}$	$2.4 \times 10^{-2}$
		葉 鞘	$6.8 \times 10^{-6}$	$3.6 \times 10^{-3}$
D	第 14 葉	葉 身	$1.3 \times 10^{-5}$	$1.1 \times 10^{-3}$
		葉 鞘	$1.4 \times 10^{-6}$	$1.1 \times 10^{-3}$
	第 13 葉	葉 身	$1.1 \times 10^{-5}$	$1.7 \times 10^{-3}$
		葉 鞘	$6.7 \times 10^{-6}$	$8.3 \times 10^{-4}$
	稈		$1.5 \times 10^{-6}$	$1.1 \times 10^{-2}$
	籾 殻		$8.1 \times 10^{-6}$	$5.2 \times 10^{-3}$
	玄 米		$1.4 \times 10^{-7}$	$3.1 \times 10^{-3}$
D	第 16 葉	葉 身*	$6.6 \times 10^{-3}$	$3.6 \times 10^{-2}$
		葉 鞘	$6.8 \times 10^{-7}$	$8.4 \times 10^{-3}$
	第 15 葉	葉 身*	$9.3 \times 10^{-3}$	$3.8 \times 10^{-2}$
		葉 鞘	$4.0 \times 10^{-5}$	$7.1 \times 10^{-3}$
	第 14 葉	葉 身	$3.3 \times 10^{-6}$	$2.0 \times 10^{-3}$
		葉 鞘	$1.1 \times 10^{-6}$	$4.5 \times 10^{-4}$
	第 13 葉	葉 身	$2.9 \times 10^{-6}$	$5.4 \times 10^{-4}$
		葉 鞘	$4.1 \times 10^{-7}$	$3.7 \times 10^{-4}$
D	稈		$1.1 \times 10^{-6}$	$1.3 \times 10^{-2}$
	籾 殻		$4.4 \times 10^{-6}$	$7.1 \times 10^{-3}$
	玄 米		$5.5 \times 10^{-7}$	$3.6 \times 10^{-3}$
	根		$8.2 \times 10^{-8}$	$7.1 \times 10^{-4}$

\*処理葉身

図-33 水稻葉身による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収処理時期

投与量  $\left( \begin{array}{l} ^{90}\text{Sr}: 45\mu\text{Ci}/\text{試験管, 約40ml} \\ ^{137}\text{Cs}: 10\mu\text{Ci}/\text{試験管, 約40ml} \end{array} \right)$

4日間浸漬した。処理後浸漬部位を切断して栽培を続け、子実の完熟後に収穫した。各部位を $450^\circ\text{C}$ で灰化し、Ⅲ-2の方法に従って $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ を分離測定した。 $^{90}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ のそれぞれについて植物器官1g当りの放射能と浸漬液1g当りの放射能の比を取りこれを浸漬日数1日当りに換算して“1日当り部分濃縮係数”(Differential Concentration Factor, 以下本文ではD. C. F.と略記する)を求めた。本実験は2連で行った。

## (2) 結果及び考察

各処理時期(幼穂形成期を除く)における $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ のD. C. F.を器官別に求め表-41に示した。処理部位のD. C. F.は核種間で大きな差がなかったが処理葉の葉鞘や処理後に新しく生じた葉、稈、玄米、白米などの器官においては $^{137}\text{Cs}$ のD. C. F.が $^{90}\text{Sr}$ のD. C. F.より著しく大きく、粃がらがやや特殊であるのを除けば処理部位に近い器官では数百倍、遠い器官では数万倍の差を示し、核種の体内移動度は $^{90}\text{Sr}$ より $^{137}\text{Cs}$ が極めて大であることが確認された。葉で吸収された $^{137}\text{Cs}$ が $^{90}\text{Sr}$ に比較して移動し易いことはMiddletonも認めている<sup>55)</sup>。また坂口<sup>87)</sup>は短期間の実験で菜豆に塗布した $^{89}\text{Sr}$ と $^{45}\text{Ca}$ は共に移動しないことを報告している。表-42に子実部分の両核種のD. C. F.を示した。各処理時期とも $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ のD. C. F.に約一万倍の差が認められ、この差は水耕栽培した水稻の経根吸収実験で算出した差<sup>43)</sup>より大きく現われた。玄米における $^{137}\text{Cs}$ のD. C. F.は穂ばらみ期、出穂開花期及び結実初期で約 $3 \times 10^{-3}$ と幼穂形成期の $7 \times 10^{-4}$ より高く、生育中・後半に葉面から吸収され

表-42 水稻葉面より吸収した $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の子実濃縮係数 $^{90}\text{Sr}$ 玄米

処理時間	玄米1g 1日当 cpm	玄米 (D. C. F)
A	< 0.63	< $1 \times 10^{-7}$
B	< 1.9	< $3 \times 10^{-7}$
C	< 1.9	< $3 \times 10^{-7}$
D	$5.4 \pm 1.8$	$(7 \pm 3) \times 10^{-7}$

 $^{137}\text{Cs}$ 玄米

処理時間	玄米1g 1日当 cpm	玄米 (D. C. F)
A	$330 \pm 24$	$(7 \pm 0.5) \times 10^{-4}$
B	$1430 \pm 270$	$(29 \pm 6) \times 10^{-4}$
C	$1380 \pm 140$	$(28 \pm 3) \times 10^{-4}$
D	$1400 \pm 320$	$(28 \pm 7) \times 10^{-4}$

 $^{137}\text{Cs}$ 白米

処理時間	白米1g 1日当 cpm	白米 (D. C. F)
A	$166 \pm 11$	$(3.4 \pm 0.2) \times 10^{-4}$
B	$576 \pm 129$	$(12 \pm 3) \times 10^{-4}$
C	$622 \pm 107$	$(13 \pm 2) \times 10^{-4}$
D	$590 \pm 84$	$(12 \pm 2) \times 10^{-4}$

た  $^{137}\text{Cs}$  の玄米への濃縮の著しいことが明らかとなった。一方、 $^{90}\text{Sr}$  の D. C. F. は結実初期>穂ばらみ期≒出穂開花期>幼穂形成期の傾向を示し、生育後半に吸収された  $^{90}\text{Sr}$  の子実汚染への寄与が大であり、同様の結果が水耕栽培した水稻による経根吸収実験で得られている<sup>43)</sup>。葉面吸収実験で得られた  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の D. C. F. は葉身の一部で算出した値であり、経根吸収実験で求めた値より小さいが、葉身全体に換算した場合、この値はさらに大きくなるものと考えられる。

#### 4 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ による水稻穎花汚染

直接汚染経路としての穎花汚染は開花中に放射性降下物が降下した場合に最も重要になると考えられる。

本実験は開花中の穎花に添加した  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  により、玄米がどの程度汚染されるか検討したものである。

##### (1) 実験方法

5000分の1 a ポットで土耕栽培した水稻の開花期（9月8日）に、開花中の特定の穎花に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の液を別々に約0.1  $\mu\text{Ci}$  ずつキャピラリーで投与した後（図—34）栽培を続け、完熟期に収穫し、玄米と粳がらに分け G. M カウンターでそれらの放射能を測定した。

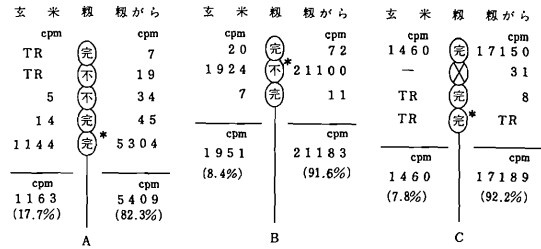


図—34 穎花への  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の投与方法

##### (2) 結果及び考察

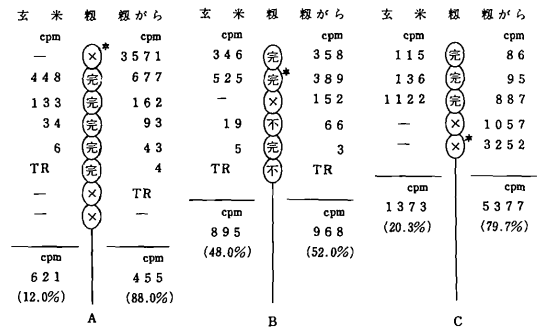
$^{90}\text{Sr}$  による穎花汚染の状況を図—35に示した。処理穎から無処理穎への  $^{90}\text{Sr}$  の移行量は極めて少く、稔実した粳の中における  $^{90}\text{Sr}$  の分布割合は処理及び無処理粳ともに粳がら80～90%，玄米10～20%となり、玄米への移行量が少いことが認められた。また  $^{90}\text{Sr}$  の穎間の移行量は  $^{137}\text{Cs}$  の場合と同様に処理部位から下位よりも上位の方向に多く認められた。

$^{137}\text{Cs}$  の粳における分布割合は、処理及び無処理粳の平均で粳がら52%～88%，玄米12～48%となり、 $^{90}\text{Sr}$  の場合に比較して処理間で大きい差を示した。また、 $^{137}\text{Cs}$  の処理穎から無処理穎への移行量は  $^{90}\text{Sr}$  の場合に比べて著しく多いことが認められた（図—36）。



図—35  $^{90}\text{Sr}$  の水稻穎花汚染

完：完全粒 不：不完全粒 ×：不稔粒  
\*： $^{90}\text{Sr}$  処理粒



図—36  $^{137}\text{Cs}$  の水稻穎花汚染

完：完全粒 不：不完全粒 ×：不稔粒  
\*： $^{137}\text{Cs}$  処理粒

以上の結果から、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  が穎花からとり込まれた場合、子実中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は  $^{90}\text{Sr}$  濃度より高くなることや子実中の両核種の濃度は葉や基部からとり込まれた場合よりも高くなることが明らかとなった。これらの知見は、穎に直接  $^{89}\text{Sr}$  を撒布した場合は葉面塗布の場合より白米の  $^{89}\text{Sr}$  濃度が高くなるという飯村らの結果<sup>19)</sup>からも支持される。

#### 5 まとめ

水稻の直接汚染について、基部、葉面及び穎花の経路別に放射性ストロンチウムとセシウムを投与して検討した結果、両元素はどの汚染経路によってもとり込まれ、子実汚染源となることが明らかにされた。

基部（葉鞘）に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を投与すると、体内にとり込まれた  $^{137}\text{Cs}$  は他の器官へ容易に移行するが、 $^{90}\text{Sr}$  は大部分移動せず投与部に残留していることが確認された。

葉面に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を同時に投与して吸収させた場合の玄米中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、 $^{90}\text{Sr}$  濃度より著しく高くなった。また、 $^{137}\text{Cs}$  は体内の移動が容易なため、生育の比較的初期にとり込まれても子実へ多量移行するが、 $^{90}\text{Sr}$  では体内移動が小さいため、生育後半にとり込まれた場

合はど子実汚染への寄与が大きくなることが認められた。

開花中の穎花から  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  をとり込ませた場合、両核種とも子実へ  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$  の傾向で移行し、子実中の両核種の濃度は、葉面や基部からとり込ませた場合よりも著しく高くなることが示唆された。

## V 総 合 考 察

人工核種のうち、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  は半減期が長く、食物連鎖を経て人体に入った場合最も危険視されている核種であるため、これらの土壌-植物系における挙動を解明することは放射能汚染対策上極めて重要である。また、我国の土壌や米麦中の放射能汚染調査データによると、(1)白米の  $^{137}\text{Cs}$  対  $^{90}\text{Sr}$  濃度比は、地表降下物や土壌中のそれらの濃度比をそれぞれ大きく上回ること、(2)土壌と白米中の両核種の含量にそれぞれ著しい差異が認められること、(3)土壌表層の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は  $^{90}\text{Sr}$  濃度よりもかなり高い値を維持していること等が指摘され、これらの原因究明が要望されている。

本章では、放射能汚染調査データで示された上記(1)~(3)の原因を、本トレーサ実験により得られた知見を基にして明らかにし、さらに、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  による土壌・水稲汚染全般についても検討を試みた。

### 1 土壌中における $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の挙動

土壌に吸着された水溶性や置換態の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  は、雨水により溶脱される主要形態と考えられる。土壌中に存在する  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  は、未耕地では雨水により、また耕地では雨水、灌漑水によりそれぞれ下層へ溶脱される。これらの溶脱作用は、雨水及び灌漑水中に溶存するカチオンとの交換反応により起るものと考えられる。 $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  の溶脱は蒸留水ではほとんどみられないが、雨水に含まれている程度の  $\text{KCl}$ 、 $\text{CaCl}_2$  (0.005 N) 溶液や灌

漑水で認められている<sup>7), 56)</sup>。本研究でも雨水で溶脱されることが認められ、それらの溶脱量は雨水の流下速度にほとんど影響されないことが認められた。

最近の放射能汚染調査によれば、表層から20 cm (作土層) の乾土 1 kg 当の  $^{90}\text{Sr}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  濃度はそれぞれ平均で207 pCi 及び642 pCi であることが報告されており<sup>62)</sup>、また耕地及び未耕地の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の垂直分布調査結果<sup>32), 45), 63), 71-73), 105), 106)</sup>によれば、 $^{137}\text{Cs}$  は  $^{90}\text{Sr}$  に比較して表層に存在する割合がかなり高いことが示されている。土壌中の  $^{137}\text{Cs}$  対  $^{90}\text{Sr}$  濃度比が両核種の地表への降下物の濃度比よりも高く、表層に多くの  $^{137}\text{Cs}$  が蓄積している理由は、両核種の雨水や灌漑水による溶脱量が  $^{90}\text{Sr} \gg ^{137}\text{Cs}$  であることによるもので、このような溶脱量の差は土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の存在形態の違い (置換態  $^{90}\text{Sr}$  の割合 > 置換態  $^{137}\text{Cs}$  の割合) を反映しているものと解される。

次に、土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  濃度に著しい地域差のあることが放射能汚染調査で明らかにされているが、この原因を、土壌の種類による両核種の存在形態の差異との関連により検討した。表-43に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を添加した場合の土壌と粘土鉱物中の両核種の存在形態を一括して表示した。置換態  $^{90}\text{Sr}$  の割合は、盛岡土壌 < 高田・甲府土壌、置換態  $^{137}\text{Cs}$  の割合は、高田・甲府土壌 > 盛岡土壌の傾向をそれぞれ示し、これらの土壌では置換態の割合が高いほど雨水による溶脱量が多くなる傾向が認められた。このことから、土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  濃度に地域差の生じた一因として、土壌中の両核種の存在形態の違いをあげることができる。

土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の存在形態を把握する場合、両核種の土壌への固定現象について理解する必要がある。 $^{90}\text{Sr}$  の土壌による固定機構として、土壌粒子との化学結合、特に腐植酸等土壌有機物との複合体形成に伴う不溶化を挙げることができる<sup>1), 23), 24), 33), 50), 60)</sup>。本研究でも腐植酸で固定態  $^{90}\text{Sr}$  の割合が高かったことから、このよ

表-43 土壌及び粘土鉱物中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の存在形態 (%)

土壌・粘土鉱物名	水溶性 $^{90}\text{Sr}$	水溶性 $^{137}\text{Cs}$	置換態 $^{90}\text{Sr}$	置換態 $^{137}\text{Cs}$	固定態 $^{90}\text{Sr}$	固定態 $^{137}\text{Cs}$
高 田 土 壌	3~11	0.2~2	70~90	40~50	10~30	50~60
甲 府 土 壌	6~16	0.3~2	80~90	50~60	10~20	40~50
盛 岡 土 壌	3~10	0.7~5	50~60	45~70	40~50	30~55
モンモリロナイト	2~7	0.5~7	80	40~60	20	40~60
カオリナイト	—	6~7	90	90~100	10	0~10
アロフェン	10~15	4~10	85~90	75~85	10~15	15~25

うな結合様式による固定部分が自然界にかなり存在するものと推定される。 $^{137}\text{Cs}$ の固定機構については、Kでよく知られている2:1型鉱物の層間域の重要性が主張されている<sup>92)</sup>。本研究でも1:1型のカオリナイトの固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は、2:1型のモンモリロナイトの固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合より低く、上記固定機構の存在を示唆する結果が得られている(表—43)。高田土壌の固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合が他の土壌の固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合より高い理由は、本土壌の主要粘土鉱物がモンモリロナイトであるためであり、盛岡土壌の固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合が低いのは、本土壌の主要イオン交換体がアロフェンと腐植から構成されているためと考えられる<sup>103)</sup>。一方、極微量のCsが雲母表面で沈殿する結合様式も示唆されている<sup>91)</sup>。また天正ら<sup>98)</sup>は土壌コロイドにはCs(1.69 Å)のように比較的大きい半径の陽イオンのみを吸収保持できる特異的吸収基(Specific site)が存在するが、その吸収容量は極めて小さいことを論じている。このように無担体 $^{137}\text{Cs}$ の土壌による固定機構は複雑で不明な点が多く、今後さらに検討する必要がある。

土壌に加えられた $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ は短時間に吸着され、一部はさらに漸次非置換態に変化し固定されることが知られており、この固定化は $^{137}\text{Cs}$ で顕著に認められることが天正ら<sup>96)</sup>、山県ら<sup>105)</sup>により述べられており、本研究でも同様の結果を得ている。このことは土壌中の置換態の $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ 含量が経時的に減少することを示唆しており、本研究で水稻による $^{137}\text{Cs}$ の吸収率が経年的に減少したことは、置換態 $^{137}\text{Cs}$ の経時的な減少によるものと解される。固定化が進む期間は各種条件で異なるが、1年以上の長期にわたることが山県ら<sup>106)</sup>及び本研究結果から推定される。

土壌による $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の固定量は共存するカチオンの種類と量に影響される。II-4の実験で土壌の固定態 $^{90}\text{Sr}$ の割合は、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{Ba}^{2+}$ の添加で、また、固定態 $^{137}\text{Cs}$ の割合は $\text{Rb}^{+}$ 、 $\text{Cs}^{+}$ 、 $\text{NH}_4^{+}$ の添加でそれぞれ低下する反面、置換態 $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ の割合が増加し、その結果として水稻による両核種の吸収量も増加することが示唆された。たとえば、本研究で水稻の土耕試験と水耕試験の間で $^{90}\text{Sr}$ の吸収抑制に対するCa添加効果が異

なった(水耕試験>土耕試験)のはこのためと考えられる。一方、水稻の土耕試験で、 $^{137}\text{Cs}$ の吸収抑制に対して $\text{K}^{+}$ の添加効果が著しく大きかったことは、K添加による置換態 $^{137}\text{Cs}$ の増加効果が極めて小さいため、水耕栽培でみられるように添加した $\text{K}^{+}$ が拮抗的に作用し、 $^{137}\text{Cs}$ の吸収に抑制的に働いたためと推定される。天正ら<sup>97)</sup>は、土壌に $\text{NH}_4^{+}$ 、 $\text{Rb}^{+}$ を添加することにより水稻による $^{137}\text{Cs}$ の吸収量が増加することを報じている。これは、 $\text{NH}_4^{+}$ や $\text{Rb}^{+}$ を添加することにより土壌中の置換態 $^{137}\text{Cs}$ の量が増加し、それに伴って水稻による $^{137}\text{Cs}$ の吸収量が $\text{Rb}^{+}$ や $\text{NH}_4^{+}$ の $^{137}\text{Cs}$ 吸収抑制量を上回って増加したことによるものと推測される。

次に、本研究結果から示された土壌中の置換態 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の存在割合に影響を及ぼす因子を列挙する。

$^{90}\text{Sr}$ : 土壌反応, 共存イオンの種類と量, 腐植含量, 土壌粒径

$^{137}\text{Cs}$ : 粘土鉱物の種類, 土壌反応, 共存イオンの種類と量,  $^{137}\text{Cs}$ 添加後の経過日数, 酸化処理, たん水処理, 乾燥・湿潤の反復

土壌中における $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の存在形態は、土壌の諸反応により常に変化するものと推定されるので、上記諸因子を適当に制御すれば、両核種による土壌・子実汚染の軽減をはかることが可能であると考えられる。

## 2 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ 汚染

放射能汚染調査で、 $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の多量降下期(たとえば1964年)に生産された白米の $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の濃度比は約10:1、それらの少量降下期(たとえば1981年)に生産された白米の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の濃度比は約5:1と、地表へ降下した両核種の濃度比(約2.5:1)及び土壌中の濃度比(1981年, 約3:1)を大きく上回って白米に $^{137}\text{Cs}$ が濃縮されていることが報告されている<sup>44), 61), 62), 72)</sup>。両核種の子実への濃縮機構を解明するため、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水稻による間接汚染経路としての経根吸収と直接汚染経路としての葉面吸収、基部吸収及び穎花汚染について検討した。

表—44に、 $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の水稻による吸収率、玄米移行率及び玄米濃縮係数をまとめて表示した。 $^{137}\text{Cs}$ の吸

表—44 水稻の $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の吸収率, 玄米移行率, 玄米濃縮係数

核種名	吸 収 率	玄 米 移 行 率	玄 米 濃 縮 係 数
$^{90}\text{Sr}$	0.20~0.88 %	0.86~ 2.44 %	$0.48 \times 10^{-2} \sim 2.49 \times 10^{-2}$
$^{137}\text{Cs}$	0.032~1.35 %	11.3 ~23.0 %	$0.59 \times 10^{-2} \sim 2.8 \times 10^{-1}$

収率は盛岡土壌を除けば  $^{90}\text{Sr}$  の約半分と低い、玄米移行率は  $^{137}\text{Cs}$  が  $^{90}\text{Sr}$  より約10倍高いため結局両核種の玄米濃縮係数は  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$  となり、白米ではこの差がさらに大となることが認められた。

この  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の玄米濃縮係数を用いて、上記放射能汚染調査で得られた白米の汚染経路について検討を試みた。 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の少量降下期間のうち、1981年産白米の  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の濃度比を同年に採取した土壌中の  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の濃度比で除して得た値は1.7となった。このことは、 $^{137}\text{Cs}$  が水稻により吸収され白米へ移行する過程において、 $^{90}\text{Sr}$  より1.7倍濃縮されたことを意味している。この程度の濃縮の差異は、本経根吸収実験で得られた両核種の玄米濃縮係数の違い ( $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$ ) から説明可能である。つまり、少量降下期の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  による白米汚染は、ほぼ間接汚染経路のみによって生じたものと判断される。

一方、1964年(多量降下期)に生産された白米の  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の濃度比を、同年に採取した土壌中の  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の濃度比で除して得た値は約8.3となり著しく高いことが示された。したがって、多量降下期の白米汚染は間接汚染よりも直接汚染の占める割合が大きいのと考えられる。直接汚染経路のうち、葉面吸収に由来する玄米の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は  $^{90}\text{Sr}$  濃度の約1万倍高く、また基部吸収による両核種のとり込み量や体内移動は  $^{137}\text{Cs} \gg ^{90}\text{Sr}$  の関係にあり、さらに穎花から玄米へとり込まれた  $^{137}\text{Cs}$  濃度は  $^{90}\text{Sr}$  濃度より高いことがそれぞれ本研究で解明されている。これらの結果から、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の多量降下期に生産された白米の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が  $^{90}\text{Sr}$  濃度に比較して著しく高くなった理由は、間接汚染で示された白米の両核種の濃度差、 $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$  が直接汚染により著しく大きくなったためと説明できる。このことは小林<sup>39), 74)</sup>が、放射能汚染調査結果を解析し、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の多量降下期の水稻子実汚染には、直接汚染の寄与が間接汚染の寄与より大きいと推定した結果と一致している。

放射能汚染調査データによると、白米の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  濃度に大きな地域差が認められている<sup>62), 75)</sup>。その理由として、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の降下量や降水量の地域的な差異等も考えられるが、土壌の種類による両核種の置換態量の多少をあげることができる。たとえば、1969年盛岡産白米の  $^{90}\text{Sr}$  濃度は1.2 pCi/kgと全国平均値1.6 pCi/kgより低い、同白米の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は67 pCi/kgと全国で最高値を示している<sup>75)</sup>。この核種の濃度間差は土耕実験(Ⅲ-4, 5)で実証されたように、盛岡土壌では置換態  $^{90}\text{Sr}$  の割合が低くて、置換態  $^{137}\text{Cs}$  の割合が高いことを

反映しているものと解される。一般に、作物が土壌中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を吸収する量は、それらの土壌中の存在形態(置換態量)に影響される<sup>8), 14), 39), 67), 81), 94), 105)</sup>ので、両核種の置換態量を把握することにより、そこに栽培された作物の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  による汚染をある程度推定することが可能となる。

## VI 摘 要

環境中に放出された人工核種のうち、生物学的に最も危険視されている  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の農業生産過程における挙動を解明し、その農作物・農耕地土壌の放射能汚染の対策に資する基礎的知見を得るため、トレーサ法により両核種の土壌中及び土壌—水稻系における行動を追跡した。

また、本研究で得られた成果をもとにして、放射能汚染調査により得られた情報や結果のうち、特に主要な問題点につき解析的資料を得るとともに検討を試みた。

本研究により得られた結果は次のように要約される。

### 1 土壌中における $^{90}\text{Sr}$ と $^{137}\text{Cs}$ の挙動について

土壌及び粘土鉱物中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の挙動を検討した結果の概要は次のとおりである。

(1) 土壌中の全  $^{90}\text{Sr}$ ・ $^{137}\text{Cs}$  の簡易迅速抽出法としての6 N 熱塩酸4連続抽出法による土壌からの  $^{90}\text{Sr}$  抽出率は90~105%,  $^{137}\text{Cs}$  の抽出率は90%以上の値をそれぞれ示した。本法は現在ルーティンワークとして使用されている塩酸—水酸化ナトリウム抽出法に近い抽出率を示すので、簡便法として適用しうるものと解される。一方、6 N 冷塩酸抽出法では  $^{90}\text{Sr}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  ともに高い抽出率を得るのは困難であった。

(2) 土壌及び粘土鉱物中における  $^{137}\text{Cs}$  と K の挙動を比較した結果、 $^{137}\text{Cs}$  は K と異なり固定され易く、また土壌に Cs 担体を添加すると固定態  $^{137}\text{Cs}$  の割合は著しく低下することが認められた。

(3) 土壌と粘土鉱物に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を投与し、両核種の存在形態(水溶性、置換・固定態)を調べた結果、一般に固定態の割合は  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$  の傾向を示すこと、また、固定態の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の割合は土壌や粘土鉱物の種類により異なることがそれぞれ認められた。

(4)  $^{90}\text{Sr}$  固定に及ぼす共存イオンの影響は、一般に  $\text{Ba}^{2+} \rightleftharpoons \text{Sr}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ \rightleftharpoons \text{K}^+ \rightleftharpoons \text{Mg}^{2+} \rightleftharpoons \text{Na}^+ \rightleftharpoons \text{Rb}^+ \rightleftharpoons \text{Cs}^+$  の傾向を示し、また  $^{137}\text{Cs}$  固定に及ぼす共存イオンの影



響は  $Rb^+ \approx Cs^+ \gg NH_4^+ > K^+ > Mg^{2+} \approx Ca^{2+} \approx Sr^{2+} \approx Ba^{2+} \approx Na^+$  の関係にあることが認められた。土壌別に固定態  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の割合をみると、 $^{90}Sr$  は盛岡土壌  $\gg$  高田土壌  $>$  甲府土壌、 $^{137}Cs$  は高田土壌  $>$  甲府土壌  $>$  盛岡土壌の傾向をそれぞれ示した。

(5)  $^{90}Sr$  の固定に及ぼす土壌有機物の影響を検討した結果、土壌を酸化処理することにより固定態  $^{90}Sr$  の割合が低下する傾向にあること、腐植酸による  $^{90}Sr$  の固定量は高田土壌による  $^{90}Sr$  の固定量より多いことがそれぞれ認められ、 $^{90}Sr$  の固定に土壌有機物が密接に関与していることが明らかとなった。これらの結果から、盛岡土壌が  $^{90}Sr$  を多く固定するのは、本土壌の腐植含量が著しく高いことによるためと考えられる。

(6)  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の固定に及ぼす土壌 pH の影響を調べた結果、その pH が高いほどそれらの固定態の割合は増加する傾向にあることが判明した。

(7)  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  を土壌に加え、30℃でたん水処理すると、固定態  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の割合は増加する傾向を示すが、たん水期間が長くなると固定された  $^{90}Sr$  の一部は置換遊離するのに対し、固定態  $^{137}Cs$  の割合はさらに増加することが示された。

(8) 土壌中の  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  は雨水の浸透作用により溶脱を受けるが、特に  $^{90}Sr$  は  $^{137}Cs$  にくらべて溶脱され易く、また、それらの溶脱量も土壌間で異なることが認められた。

(9) 各種土壌を粒径別に分画し、得られた土壌粒子について置換態の  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の割合を調べた結果、 $^{90}Sr$  では粒径の大きい画分ほど増加するが、 $^{137}Cs$  では各粒径画分ともほぼ同じであることが明らかにされた。砂土による  $^{90}Sr$  の溶脱量が多いという結果(8)は、土壌の粒径の大きいことを反映したものと解される。

(10) 土壌及び粘土鉱物による  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の吸着力を簡易迅速に判定する方法として、土壌・粘土鉱物薄層クロマトグラフ法を検討した。その結果、薄層上にスポットした  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  を 1 M—中性酢酸アンモニウムと 0.5 N 塩酸で展開することにより、 $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  吸着力の判定が可能であることが示された。

## 2 水稻による $^{90}Sr$ と $^{137}Cs$ の吸収と吸収抑制について

水稻による  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の経根的吸収(間接汚染経路)、体内移動、玄米への濃縮等について検討し、あわせて両核種の吸収抑制方法の検索を試み次の結果が得られた。

(1)  $^{90}Sr$  と Ca の稲体内での挙動は類似しており、と

もに子実部への移行量は 1.5~2.0% と少いが、体内の  $^{90}Sr/Ca$  比は一定ではなく、茎葉部に比較して子実部が低いことなど両元素の体内挙動に差異のあることが認められた。 $^{90}Sr$  の吸収率は 0.45~0.88%，玄米移行率(1ポット当玄米放射能/1ポット当地上部全放射能)は 0.86~1.91%，玄米濃縮係数(玄米 1 g 当  $^{90}Sr \cdot \text{cpm}$ /土壌 1 g 当  $^{90}Sr \cdot \text{cpm}$ )は  $1.56 \times 10^{-2} \sim 2.49 \times 10^{-2}$  であることが示された。

(2)  $^{137}Cs$  と K は稲体内で類似の挙動を示すが、体内の  $^{137}Cs/K$  比から  $^{137}Cs$  は K にくらべて子実部へ蓄積され易く、両元素の体内挙動に差異のあることが明らかにされた。 $^{137}Cs$  の吸収率は 0.015~0.82%，玄米移行率は 12~20%，玄米濃縮係数は  $2.4 \times 10^{-1} \sim 0.59 \times 10^{-2}$  の範囲であることがそれぞれ示された。

(3)  $^{90}Sr$  の吸収抑制には土耕試験の水稻では炭酸カルシウムの投与が、水耕試験の水稻では  $Sr^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ 、 $NH_4^+$  の添加が、一方、 $^{137}Cs$  の吸収抑制には土耕試験の水稻では塩化加里、堆肥の施用が、水耕試験の水稻では  $Cs^+$ 、 $K^+$ 、 $NH_4^+$  の添加が共にそれぞれ効果的であることが明らかにされた。

(4) 水稻による  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の吸収量は、土壌中の置換態  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の割合の大小に影響されることが認められた。たとえば、盛岡土壌で栽培した水稻の  $^{137}Cs$  吸収量が高田土壌で栽培した水稻の  $^{137}Cs$  吸収量に比較して約 10 倍高かったのは、置換態  $^{137}Cs$  の割合が盛岡土壌  $\gg$  高田土壌の関係にあることを反映したためと解される。

(5) 水稻による  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の吸収率が経年的に減少する 1 因として、土壌中の置換態  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  の経時的な減少をあげることができる。

## 3 水稻の $^{90}Sr$ と $^{137}Cs$ による直接汚染について

水稻の直接汚染経路としての葉面汚染、基部吸収及び穎花汚染について放射性 Sr と Cs を使い検討した。結果は次のとおりである。

(1) 水稻基部(葉鞘)から  $^{90}Sr$  と  $^{137}Cs$  はともに吸収されるが、体内移動に著しい核種間差異( $^{137}Cs \gg ^{90}Sr$ )のあることが認められた。

(2)  $^{137}Cs$  と  $^{90}Sr$  を、同時に 4 生育時期の水稻葉面に投与し吸収させた場合の玄米中の両者の濃度比は、各生育時期とも約 10000:1 を示した。 $^{137}Cs$  は生育の比較的初期にとり込まれても子実へ容易に移行するが、 $^{90}Sr$  は体内移動が小さいため、生育後半にとり込まれた場合、子実汚染への寄与が大きくなることが確認された。

(3)  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を開花中の穎花から吸収させた場合は、葉面や基部から吸収させた場合よりも水稻子実中の両核種の濃度は著しく高くなることが認められた。

(4) 以上の結果から、放射性 Sr と Cs は、水稻の基部、葉面及び穎花からとり込まれ、 $\text{Cs} \gg \text{Sr}$  の傾向で子実を汚染することが明らかにされた。

#### 4 放射能汚染調査結果の解析について

我国の土壌、米麦の放射能汚染調査は1957年より本研究所で開始され現在に至っている。この調査結果のうち、主要な3点を抽出し、本研究結果をもとにして原因の究明を試みた結果は次のとおりである。

(1)  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の少量降下期に生産された白米の  $^{137}\text{Cs}$  対  $^{90}\text{Sr}$  濃度比が地表へ降下した両核種の濃度比及び土壌中の濃度比より高い理由は、経根吸収実験で示された両核種の玄米濃縮係数の違い、 $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$  から説明できる（主として間接経路による白米汚染）。一方、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の多量降下期に生産された白米の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が  $^{90}\text{Sr}$  より著しく高い（約10倍）のは、上記間接汚染で生じた白米の濃度傾向、 $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$  が直接汚染により強められたためである（間接経路と直接経路による白米の複合汚染）。

(2) 土壌及び白米中の  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  濃度に地域差が認められる理由として、両核種の地表への降下量や降水量の地域的な差異のほか、土壌の種類による両核種の吸着・固定力の違いをあげることができる。

(3) 土壌表層の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が  $^{90}\text{Sr}$  濃度に比較して高いのは、土壌による  $^{137}\text{Cs}$  の吸着力が  $^{90}\text{Sr}$  の吸着力よりも強いことを反映したためと判断される。

#### 謝 辞

本研究は科学技術庁の放射能調査研究費により行われ、農業技術研究所作物栄養科前アイソトープ研究室長小平 潔氏（現足利工業大学教授）の御指導を賜った。東北農業試験場、北陸農業試験場及び山梨県農業試験場から実験用土壌の提供をしていただいた。

農業技術研究所土壌第1科渡辺 裕室長には粘土鉱物の提供及び土壌の分画法の指導を、同土壌第3科山田 裕室長には腐植酸の提供をそれぞれ受けた。同じく土壌第1科山本克己氏からは有益な御助言をいただいた。

本論文をとりまとめるにあたり農業技術研究所作物栄養科藤沼善亮科長から激励をいただいた。

これらの方々に対し深く感謝の意を表します。

#### 引用文献

- 1) 麻生末雄, 武長 宏 (1968) : フミン酸の肥効発現に関する研究 (第5報), 水稻根の  $^{89}\text{Sr}$  吸収に及ぼすニトロフミン酸ナトリウムの影響. 土肥誌, **39**, 558—564.
- 2) Bange, G. G. J. and Overstreet, R. (1960) : Some observations on absorption of cesium by excised barley roots. *Plant Physiol.*, **35**, 605—608.
- 3) Barber, D. A. (1964) : Influence of soil organic matter on the entry of cesium-137 into plants. *Nat.*, **204**, 1326—1327.
- 4) Cline, J. F. and Hungate, F. P. (1960) : Accumulation of potassium, cesium-137 and rubidium-86 in bean plants grown in nutrient solution. *Plant Physiol.*, **35**, 826—829.
- 5) Collander, R. (1941) : Selective absorption of cations by higher plants. *Plant physiol.*, **16**, 691—720.
- 6) Comar, C. L., Russel, R. S. and Wasserman, R. H. (1957) : Strontium-calcium movement from soil to man. *Sci.*, **126**, 485—492.
- 7) Essington, E. H. and Nishita, H. (1966) : Effect of chelates on the movement of fission products through soil columns. *Plant and Soil*, **XXIV**, 1—23.
- 8) Evans, E. J. and Dekker, A. J. (1966) : Plant uptake of Cs-137 from nine Canadian soils. *Can. J. Soil Sci.*, **46**, 167—176.
- 9) Evans, E. J. and Dekker, A. J. (1966) : Fixation and release of Cs-137 in soils and soil separates. *Can. J. Soil Sci.*, **46**, 217—222.
- 10) Evans, E. J. and Dekker, A. J. (1969) : The fixation and plant recovery of Cs-137. *Soil Sci.*, **107**, 175—180.
- 11) Evans, E. J. and Dekker, A. J. (1968) : Comparative Cs-137 content of agricultural crops grown in a contaminated soil. *Can. J. Plant Sci.*, **48**, 183—188.
- 12) Evans, E. J. and Dekker, A. J. (1966) : The effect of soil organic matter content on the Cs-137 concentration in crops. *Can. J. Soil Sci.*, **47**, 7—13.
- 13) FAO Expert Committee, Rome (1960) : Radioactive materials in food and agriculture. FAO Atomic Energy Series No. 2, 35—65.
- 14) Fuller, W. H., Hardcastle, J. E., Hannapel, R. J. and Bosma, S. (1966) : Calcium-45 and strontium-89

- movement in soils and uptake by barley plants as affected by  $\text{Ca}(\text{Ac})_2$  and  $\text{Sr}(\text{Ac})_2$  treatment of the soil. *Soil Sci.*, **101**, 472–482.
- 15) Fowler, E. B. and Christenson, C. W. (1959) : Factors affecting uptake of radioactive cesium by lettuce, grass and alfalfa. *J. Agric. Food Chem.*, **7**, 847–849.
- 16) Haghir, F. and Sayre, J. D. (1961) :  $^{90}\text{Sr}$  uptake by plants as influenced by soil types and liming. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **25**, 120–123.
- 17) Haghir, F. and Merva, G. E. (1964) : A decontamination device for the removal of radioactive strontium from water. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **28**, 132.
- 18) Handly, R. and Overstreet, R. (1961) : Effect of various cations upon absorption of carrier-free cesium. *Plant Physiol.*, **36**, 66–69.
- 19) 飯村康二, 石山誠一, 江川友治 (1958) : 土壌及び農作物における放射性 Strontium の集積 (第3報), 水稻における Strontium-90 吸収と移動. 土肥要旨集, No. 4, 24.
- 20) Jackson, W. A., Craig, D. and Lugd, H. M. (1965) : Effects of various cations on cesium uptake from soils and clay suspensions. *Soil Sci.*, **99**, 345–353.
- 21) Jackson, W. A., Lugo, H. M. and Craig, D. (1966) : Cesium uptake from dilute solutions by young wheat seedlings as affected by selected cations. *Plant Soil*, **XXIV**, 34–52.
- 22) Joint WHO/FAO Expert Committee (1959) : Methods of radiochemical analysis, world health organization technical report series No. 173, 41–47.
- 23) Juo, A. S. R. and Barber, S. A. (1970) : The retention of strontium by soils as influenced by pH, organic matter and saturation cations. *Soil Sci.*, **109**, 143–148.
- 24) Juo, A. S. R. and Barber, S. A. (1969) : Reaction of strontium with humic acid. *Soil Sci.*, **108**, 89–94.
- 25) Kaddah, M. T. (1968) : Cesium and rubidium fixation in vermiculite and hydrobiotite. *Soil Sci.*, **106**, 67–72.
- 26) Middleton, L. J., Handley, R. and Overstreet, R. (1960) : Relative uptake and translocation of potassium and cesium in barley. *Plant Physiol.*, **35**, 913–918.
- 27) 科学技術庁 (1974) : 放射性ストロンチウム分析法.
- 28) 科学技術庁 (1976) : 放射性セシウム分析法.
- 29) 葛城幸雄 (1965) : 日本における Cs-137 および Sr-90 降下について (1). 日本気象学会機関紙“天気”, **12**, 323–328.
- 30) 川瀬金次郎, 横山栄造, 松本泰彦 (1965) : 放射性 Sr の土壌中における行動について (その7), 一異なる濃度の酸及び各種石灰塩を添加したときの  $^{89}\text{Sr}$  の存在状況一. 土肥要旨集, No. 11, 71.
- 31) 川瀬金次郎, 馬場昂, 横山栄造, 長柄秀男 (1958) : 新潟県各種土壌中における  $^{90}\text{Sr}$  の存在状況について, 北陸地方農作物の人工放射能汚染に関する研究 (第3報). 土肥要旨集, No. 4, 24.
- 32) 川瀬金次郎 (1971) : 植物地層圏の放射能汚染, 環境と放射能. 193–332, 東海大学出版会.
- 33) Kinniburgh, D. G., Syers, J. K. and Jackson, M. L. (1975) : Specific adsorption of trace amounts of calcium and strontium by hydrous oxides of iron and aluminium. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **39**, 464–470.
- 34) 小林宏信, 津村昭人, 石川美佐子, 小平 潔 (1966) : 土壌及び粘土鉱物による Cs-137 及び K の固定について. 土肥要旨集, No. 12, 148.
- 35) 小林宏信, 津村昭人, 石川美佐子 (1966) : 土壌による Sr-90, Cs-137 の固定に及ぼす温度処理の影響. 土肥要旨集, No. 12, 149.
- 36) 小林宏信, 津村昭人, 石川美佐子 (1967) : 土壌中における Sr-90, Cs-137 の行動について (第3報), 土壌中における Sr-90 と Cs-137 の雨水による溶脱について. 土肥要旨集, No. 13, 17.
- 37) 小林宏信, 津村昭人, 石川美佐子 (1968) : 土壌中における Sr-90 と Cs-137 の行動について (第4報), 一各種カチオン添加の影響について一. 土肥要旨集, No. 14, 13.
- 38) 小林宏信, 津村昭人, 石川美佐子 (1969) : 土壌中における Sr-90 と Cs-137 の行動について (第5報), 一有機物および燃焼,  $\text{H}_2\text{O}_2$  処理, pH 変化した土壌, 粘土鉱物による Sr-90, Cs-137 の固定一. 土肥要旨集, No. 15, 13.
- 39) 小林宏信 (1979) : 土壌・作物中の放射性物質の汚染とその動き. 土壌汚染の機構と解析, 一環境科学特論一, 276–312, 産業図書.
- 40) 小林宏信 (1979) : 放射性物質の植物による吸収. 第6回放医研環境セミナー, 放射性物質による陸圏の汚染と線量推定の諸問題報告集, 136–153, 放医研.
- 41) Kodaira, K. and Shinohara, R. (1965) : Simultaneous radiochemical determination of  $^{89}\text{Sr}$  and  $^{45}\text{Ca}$  by oxalic

- precipitation method. *Radioisot.*, **14**, 78–82.
- 42) Kodaira, K. and Tsumura, A. (1972) : Cross contamination in simultaneous radiochemical determination of Sr and Cs. *Radioisot.*, **21**, 659–663.
  - 43) Kodaira, K., Tsumura, A. and Kobayashi, H. (1973) : Uptake of radioactive strontium and cesium in rice plant (1), Accumulation of Sr and Cs in rice grains through roots. *J. Radiat. Res.*, **14**, 31–39.
  - 44) Kodaira, K. (1964) : Radioactive contamination of rice in Japan, with reference to  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  content in rice until 1962, *J. Radiat. Res.*, **5**, 1–4.
  - 45) Kodaira, K., Kato, M. and Ishikawa, M. (1973) : Radiochemical analysis of  $^{210}\text{Pb}$ , as well as distribution of  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in soil profiles. *Radioisot.*, **22**, 17–23.
  - 46) 小平 潔 (1965) : 雨水・土壌系におけるカルシウムとストロンチウムの行動の研究. 農技研報告 B, No. 15, 59–89.
  - 47) 小平 潔, 津村昭人 (1965) : 放射性 Sr, Cs の子実への濃縮について, 一葉面吸収による子実への濃縮一. 土肥要旨集, No. 11, 12.
  - 48) 小平 潔, 津村昭人 (1965) : 水稻による放射性 Sr, Cs の Plant-base absorption について, 土肥要旨集, No. 11, 11.
  - 49) Kvaratskhelia, N. T. and Arnautov, G. N. (1967) : Uptake of radiostrontium by grain crops from the soils of the Georgian SSR. *Sov. Soil Sci.*, No. 3, 378–383.
  - 50) Lannunziata, M. F. and Fuller, W. H. (1967) : The chelation and movement of  $\text{Sr}^{89}$ – $\text{Sr}^{90}$ ( $\text{Y}^{90}$ ) in a calcareous soil. *Soil Sci.*, **105**, 313–319.
  - 51) McHenry, J. R. (1958) : Ion–exchange properties of strontium in a calcareous soil. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **22**, 514–518.
  - 52) Menzel, R. G. (1954) : Competitive uptake by plants of potassium, rubidium, cesium and calcium, strontium, barium from soils. *Soil Sci.*, **77**, 419–425.
  - 53) Menzel, R. G. and Heald, W. R. (1955) : Distribution of potassium, rubidium, cesium, calcium, and strontium within plants grown in nutrient solution. *Soil Sci.*, **80**, 287–294.
  - 54) Metson, A. J., Arbuckle, R. H. and Saunders, M. L. (1965) : The potassium–supplying power of New Zealand soils as determined by a modified normal–nitric acid method. Sixième congrès de la science du sol (Paris), Vol. B, 619–627.
  - 55) Middleton, L. J. (1958) : Absorption and translocation of strontium and cesium by plant from foliar sprays. *Nat.*, **181**, 1300–1303.
  - 56) Miller, J. R. and Reitemeier, R. F. (1963) : The leaching of radiostrontium and radiocesium through soils. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **27**, 141–144.
  - 57) 三井進午, 葉 可霖, 米沢茂人, 天正 清 (1962) : 水稻の放射性ストロンチウム吸収に対するカルシウム材等の抑制効果. 土肥誌, **33**, 227–230.
  - 58) Miyake, Y., Saruhashi, K., Katsuragi, Y. and Kanazawa, T. (1961) : Deposition of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  in Tokyo. *Papers in Meteorology and Geophysics*, **12**, 180–181.
  - 59) Mortensen, J. L. (1963) : Complexing of metals by soil organic matter. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **27**, 179–186.
  - 60) Mortensen, J. L. and Marcusin, E. C. (1963) : Fission product–soil organic matter complexes. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **27**, 653–656.
  - 61) National Institute of Radiological Sciences (1963) : Strontium–90 and cesium–137 in rice and wheat. Radioactivity Survey Data in Japan, No. 1, 7–8.
  - 62) National Institute of Radiological Sciences (1981) : Strontium–90 and cesium–137 in rice. Radioactivity Survey Data in Japan, No. 59.
  - 63) 日本分析化学研究所 (1968) : ストロンチウム–90 地表蓄積量に関する対策研究, 放射能調査対策研究成果報告.
  - 64) Nishita, H., Hang, R. M. and Hamiltier, M. (1968) : Influence of minerals on  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  uptake by bean plants. *Soil Sci.*, **105**, 237–243.
  - 65) Nishita, H., Romny, E. M., Alexander, G. V. and Larson, K. H. (1960) : Influence of K and Cs on release of Cs–137 from three soils. *Soil Sci.*, **89**, 167–176.
  - 66) Nishita, H., Dixon, D. and Larson, K. H. (1962) : Accumulation of Cs and K and growth of bean plants in nutrient solution and soils. *Plant Soil*, **17**, 221–242.
  - 67) Nishita, H., Steen, A. J. and Larson, K. H. (1958) : Release of  $\text{Sr}^{90}$  and  $\text{Cs}^{137}$  from Vina loam upon prolonged cropping. *Soil Sci.*, **86**, 195–201.
  - 68) Nishita, H., Kowalewsky, B. W., Steen, A. J. and Larson, K. H. (1965) : Fixation and extractability of

- fission products contaminating various soils and clays: I. Sr90, Y91, Ru106, Cs137 and Ce144. *Soil Sci.*, **81**, 317—326.
- 69) 農技研土壌第3科 (1967)：水田試験圃場，断面形態，理化学分析成績および土壌統分類。
- 70) 農技研土壌第1科 (1978)：昭和52年度試験研究成績の概要。
- 71) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1965)：昭和39年度農林省関係放射能調査研究年報，21—22。
- 72) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1966)：昭和40年度農林省関係放射能調査研究年報，1—21。
- 73) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1967)：昭和41年度農林省関係放射能調査研究年報，22。
- 74) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1970)：昭和44年度農林省関係放射能調査研究年報，1—37。
- 75) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1972)：昭和46年度農林省関係放射能調査研究年報，11—22。
- 76) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1971)：昭和45年度農林省関係放射能調査研究年報，1—9。
- 77) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1974)：昭和48年度農林省関係放射能調査研究年報，1—15。
- 78) 農林省農林水産技術会議事務局編 (1976)：昭和50年度農林省関係放射能調査研究年報，6—9。
- 79) Raney, W. A. and Hoover, C. D. (1946)：The release of artificially fixed potassium from a kaolinitic and a montmorillonitic soil. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **11**, 231—237.
- 80) Rhodes, D. W. (1957)：The effect of pH on the uptake of radioactive isotopes from solution by a soil. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **21**, 389—392.
- 81) Roberts, H. JR. and Menzel, R. G. (1961)：Availability of exchangeable and nonexchangeable strontium—90 to plants. *J. Agric. Food Chem.*, **9**, 95—98.
- 82) Romney, E. M., Neel, J. W., Nishita, H., Olafson, J. H. and Larson, K. H. (1957)：Plant uptake of Sr90, Y91, Ru106, Cs137 and Ce144 from soils. *Soil Sci.*, **83**, 369—376.
- 83) Romney, E. M., Alexander, G. V., Nishita, H. and Larson, K. H. (1961)：Influence of Ca and Sr amendments on <sup>90</sup>Sr uptake by ladino clover upon prolonged cropping. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **25**, 299—301.
- 84) Romney, E. M., Alexander, G. V., Rhoads, W. A. and Larson, K. H. (1959)：Influence of calcium on plant uptake of Sr90 and stable strontium. *Soil Sci.*, **87**, 160—165.
- 85) 坂口孝司 (1964)：水稻体内におけるストロンチウムおよびカルシウムの行動，作物のストロンチウム吸収とその分布 (第5報)。土肥誌，**35**，203—205。
- 86) 坂口孝司，葛西善三郎，奥田 東 (1958)：水稻の生育各期に吸収されたストロンチウムのゆくえ。土肥誌，**29**，397—398。
- 87) 坂口孝司 (1964)：各種植物におけるストロンチウム，カルシウムの吸収，移動，作物のストロンチウム吸収とその分布 (第6報)。土肥誌，**35**，206—209。
- 88) Sawhney, B. L. (1967)：Cesium sorption in relation to lattice spacing and cation exchange capacity of biotite. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **31**, 181—183.
- 89) Sawhney, B. L., Jackson, M. L. and Corey, R. B. (1964)：Sorption and fixation of microquantities of cesium by clay minerals：effect of saturating cations. *Proc. Soil Sci. Soc. Am.*, **28**, 183—186.
- 90) Russell, R. S. (1963)：The extent and consequences of the uptake by plants of radioactive nuclides. *Annu. Rev. Plant Physiol.*, **14**, 271—294.
- 91) Shulz, R. K., Overstreet, R. and Barshad, I. (1960)：On the soil chemistry of cesium 137. *Soil Sci.*, **89**, 16—27.
- 92) Tamura, T. and Jacobs, D. G. (1960)：Structural implications in cesium sorption. *Health Phys.* **2**, 391—398.
- 93) Tensho, K., Yeh, K. and Mitsui, S. (1959)：The uptake of strontium—90 and calcium by lowland and upland rice from soil, and their distribution in the plants. *Soil Plant Food*, **5**, 1—9.
- 94) 天正 清 (1959)：土壌植物系における核分裂生成物の行動—特にSrとCsについて—。土肥誌，**29**，515—520。
- 95) 天正 清，葉 可霖，三井進午 (1959)：水稻及び陸稻による土壌よりの<sup>137</sup>Cs及びKの吸収と作物体内の分布。土肥誌，**30**，253—258。
- 96) 天正 清，葉 可霖，三井進午 (1959)：水稻及び陸稻による土壌よりの<sup>90</sup>Sr及びCaの吸収と作物体内の分布。土肥誌，**30**，83—89。
- 97) Tensho, K., Yeh, K. and Mitsui, S. (1961)：The uptake of strontium and cesium by plants from soil with special reference to the unusual cesium uptake by lowland rice and its mechanism. *Soil Plant Food*, **6**, 176—183。

- 98) 天正 清, 葉 可霖, 三井進午 (1961): 水稻による特異的セシウム吸収の機構. 土肥誌, **32**, 140—144.
- 99) 津村昭人, 小林宏信, 石川美佐子 (1969): 農作物の放射能汚染の解析的研究 (第10報), 一水稻による Sr-90 の吸収抑制とその体内挙動との関係一. 土肥要旨集, No. 16, 64.
- 100) 津村昭人, 駒村美佐子, 小林宏信 (1981): 土壌薄層クロマトグラフィによる土壌の  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  吸着能の簡易迅速判定法について. 放射能調査研究成果発表会論文抄録集, No. 23, 145—147.
- 101) 津村昭人, 駒村美佐子, 小林宏信 (1975): 放射能汚染機構の解析研究 (その5), 土壌の種類と玄米の  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  汚染. 放射能調査研究成果発表会論文抄録集, No. 17, 32—35.
- 102) Volk, N. J. (1934): The fixation of potash in difficultly available form in soils. *Soil Sci.*, **37**, 267—285.
- 103) 和田光史 (1981): 土壌粘土によるイオンの交換・吸着反応, 土壌の吸着現象—基礎と応用—. 日本土壌肥料学会編, 5—57, 博友社.
- 104) 山田芳雄, 宮口尹男, 梅根美千子 (1958): 植物, 土壌系を用いた放射性物質除去に関する研究 (第1報). 土肥要旨集, No. 4, 25.
- 105) Yamagata, N., Kodaira, K. and Matsuda, S. (1965): Cesium-137 in Japanese soil and rice. *J. Radiat. Res.*, **6**, 32—44.
- 106) 山県 登 (1982): 尾瀬ヶ原の地球化学. 生物科学, **34**, 32—35.
- 107) 米沢茂人, 三井進午 (1964): 農作物の各種鉱滓類及び加里肥料による  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  の吸収抑制効果. 土肥要旨集, No. 10, 114.

# Behavior of Radioactive Sr and Cs in Soils and Soil—plant Systems

Akito TSUMURA, Misako KOMAMURA and Hironobu KOBAYASHI

## Summary

Biologically,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  are regarded as the most dangerous of the artificial nuclides emitted into the environment. To elucidate their behavior during the agricultural production process, and to obtain fundamental knowledge for establishing a countermeasure against radioactive contamination of agricultural products and farmland soil, we examined the behavior of these nuclides in the soil and in soil—paddy rice system by the tracer method.

Also, the major problems found by the survey of radioactive contamination of soils and rice plants were analyzed based on the results obtained in this study. The results obtained are summarized below.

### 1. The behavior of $^{90}\text{Sr}$ and $^{137}\text{Cs}$ in soil

The results of the experiments on the behavior of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the soils and clay minerals were as follows.

1) The extraction efficiency obtained by a continuous extraction method with hot 6N hydrochloric acid, as a simple and rapid method for extracting the total  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the soils, was 90–105% for  $^{90}\text{Sr}$  and more than 90% for  $^{137}\text{Cs}$ , respectively. This method showed an extraction efficiency close to that of the hydrochloric acid–sodium hydroxide extraction method which is used routinely, and was considered to be applicable as a convenient method. On the other hand, it was difficult to obtain a high extraction rate with the cold 6N hydrochloric acid extraction method.

2) Comparison between the behavior of  $^{137}\text{Cs}$  and K in the soils and clay minerals showed that  $^{137}\text{Cs}$  differs from K in that it was easily fixed. The amount of  $^{137}\text{Cs}$  fixed was found to decrease with the addition of a Cs carrier to the soil.

3) The chemical forms of the nuclides  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  (water soluble, exchangeable and fixed forms), after they were applied to soils and clay minerals, were examined. The amount of nuclide fixed showed the general tendency of  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$ , and the amount of both nuclides fixed was found to differ with the kind of soil and clay mineral.

4) The effect of coexisting ions on the fixation of  $^{90}\text{Sr}$  showed the general tendency of  $\text{Ba}^{2+} \approx \text{Sr}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{NH}_4^+ \approx \text{K}^+ \approx \text{Mg}^{2+} \approx \text{Na}^+ \approx \text{Rb}^+ \approx \text{Cs}^+$ , and the effect of coexisting ions on  $^{137}\text{Cs}$  fixation tended to show the relationship of  $\text{Rb}^+ \approx \text{Cs}^+ \gg \text{NH}_4^+ > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+} \approx \text{Ca}^{2+} \approx \text{Sr}^{2+} \approx \text{Ba}^{2+} \approx \text{Na}^+$ . The amount fixed to soil from various districts was in the order of Morioka soil  $\gg$  Takada soil  $>$  Kofu soil for  $^{90}\text{Sr}$ , and Takada soil  $>$  Kofu soil  $>$  Morioka soil for  $^{137}\text{Cs}$ .

5) The effect of soil organic matter on fixation of  $^{90}\text{Sr}$  was examined. The amount of  $^{90}\text{Sr}$  fixed tended to decrease with oxidizing treatment of soil, and the amount of  $^{90}\text{Sr}$  fixed by humic acid was larger than that fixed by Takada soil, which clearly showed that the organic matter in soil was closely related to the fixation of  $^{90}\text{Sr}$ . Judging from these results, the Morioka soil was considered to fix more  $^{90}\text{Sr}$ , because of the extremely high content of humus in that soil.

6) The effect of soil pH on the fixation of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  was examined. The lower the pH, the more the exchangeable forms tended to be produced.

7)  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were added to soil and incubated under a waterlogged condition at  $30^{\circ}\text{C}$ . The amount of these nuclides fixed increased during the incubation, but during a prolonged period of incubation a part of the  $^{90}\text{Sr}$  that had been fixed was exchanged and released, whereas the amount of  $^{137}\text{Cs}$  fixed continued to increase.

8)  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  in soil were easily leached by the penetration of rain water.  $^{90}\text{Sr}$  was more easily leached than  $^{137}\text{Cs}$  and the amount of both nuclides leached differed with the soils.

9) The various soils were fractionated according to particle size, and the amount of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in exchangeable form in each fraction was determined. The amount of  $^{90}\text{Sr}$  increased with the increase in particle size but that of  $^{137}\text{Cs}$  was the same for all fractions with different particle sizes. The fact that the amount of  $^{90}\text{Sr}$  leached in a sandy soil was large (result 8)) is considered to reflect the large particle size of this soil.

10) As a method of measuring the adsorbing power of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  to soils and clay minerals easily and quickly, the thin layer chromatography with soil and clay mineral was examined. The adsorbing power of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  was found to be measurable by developing the spot of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  on the thin layer with 1 M neutral ammonium acetate and 0.5 N hydrochloric acid.

## 2. The absorption of $^{90}\text{Sr}$ and $^{137}\text{Cs}$ by rice plants and its prevention

The absorption via root (indirect contamination route) of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  by rice plants, the behavior of these nuclides in the plant and their concentration into the brown rice were examined, and the methods of preventing the absorption of both nuclides were studied.

1) The behavior of  $^{90}\text{Sr}$  in the rice plant was similar to that of Ca, and the amount translocated into the grains was only about 1.5–2.0%, but the  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$  ratio in the body was not uniform, and was lower in the grains than in the shoot. The range of absorption rate of  $^{90}\text{Sr}$  was 0.45–0.88%, the rate of translocation into the brown rice (radioactivity of brown rice per pot/total radioactivity of top per pot) was 0.86–1.91%, and the concentration factor for brown rice ( $^{90}\text{Sr}$  cpm per 1 g brown rice/ $^{90}\text{Sr}$  cpm per 1 g soil) was  $1.56 \times 10^{-2}$ – $2.49 \times 10^{-2}$ .

2) The behavior of  $^{137}\text{Cs}$  in the rice plant was similar to that of K, but the  $^{137}\text{Cs}/\text{K}$  ratio showed that  $^{137}\text{Cs}$  is more easily accumulated into the grains than K. The absorption rate for  $^{137}\text{Cs}$  was 0.015–0.82%, the translocation rate into brown rice was 12–20%, and concentration factor for brown rice was between  $2.4 \times 10^{-1}$  and  $0.59 \times 10^{-2}$ .

3) To prevent the absorption of  $^{90}\text{Sr}$ , the application of calcium carbonate was found to be effective for paddy rice, and the addition of  $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  and  $\text{NH}_4^+$  for water-cultured rice. On the other hand, to prevent the absorption of  $^{137}\text{Cs}$ , the application of potassium chloride or compost was found to be effective for paddy rice, and the addition of  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{K}^+$  and  $\text{NH}_4^+$  for water-cultured rice.

4) The amount of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  absorbed by paddy rice was found to be affected by the amount of the nuclides in exchangeable form in the soil in which they grew. For example, the reason why the amount of  $^{137}\text{Cs}$  absorbed by paddy rice for Morioka soil was about 10 times higher than that for Takada soil was considered to reflect the fact that the amount of  $^{137}\text{Cs}$  in exchangeable form in Morioka soil was larger than that in Takada soil.

5) One of the reasons of the decrease in the rate of absorption of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  with the course of time in paddy rice may be due to the decrease with the passage of time of the amount of these nuclides in exchangeable form.



### 3. On the direct contamination of paddy rice by $^{90}\text{Sr}$ and $^{137}\text{Cs}$

The direct contamination pathways for paddy rice, i. e., foliar contamination, plant-base absorption and floral contamination were examined by using radioactive Sr and Cs.

1)  $^{89}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were absorbed from the basal part of the rice plant (leaf sheath) but the translocation in the plant differed greatly with the kind of nuclide ( $^{137}\text{Cs} \gg ^{89}\text{Sr}$ ).

2) The ratio of the concentration of  $^{137}\text{Cs}$  to  $^{90}\text{Sr}$  in brown rice when applied on the leaf surface at 4 growth stages was about 10000:1 at all stages.  $^{137}\text{Cs}$  incorporated was easily translocated into the grain even at a relatively early stage of growth.  $^{90}\text{Sr}$  moved little in the plant body, and was found to contaminate the grain more strongly when incorporated at the later stage of growth.

3) When  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were absorbed via the flowers, the concentration of both nuclides incorporated into the rice grain was markedly higher than when they were absorbed from the leaf or basal part of the rice plant.

4) Judging from the above results, radioactive Sr and Cs were considered to be incorporated from the basal part, leaf surface and floret of the rice plant, and contaminate the grain at the concentration of  $\text{Cs} \gg \text{Sr}$ .

### 4. Analysis of the results of radioactivity survey

A radioactivity survey of soils, rice and wheat in Japan has been conducted at our research institute since 1957 up to the present. The major three points of the results obtained from the survey were extracted, and a causative explanation was made based on the results obtained in the present study.

1) The reason why the concentration ratio of  $^{137}\text{Cs}$  to  $^{90}\text{Sr}$  in polished rice produced during the period with a low fallout rate of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  was higher than that in the deposit on the earth's surface and that in the soil could be explained by the difference in concentration factor into rice grain of both nuclides, i. e.,  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$  (contamination of rice grain was due to mainly by the indirect pathway). On the other hand, the reason why the concentration of  $^{137}\text{Cs}$  in polished rice obtained during the periods with a high rate of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  deposition is markedly higher (about 10 fold higher) than that of  $^{90}\text{Sr}$  could be explained as follows: The difference between  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  concentration in rice grain caused by the above indirect contamination, i. e.,  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$ , was intensified by direct contamination (multiple contamination of rice grains by indirect and direct pathways).

2) District—dependent difference in the concentration of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the soil and rice grains could be due to difference in the adsorption and fixation capacity of both nuclides to soil, in addition to the difference in the amount of their deposits onto the earth's surface and of precipitation.

3) The higher concentration of  $^{137}\text{Cs}$  compared to  $^{90}\text{Sr}$  in the soil was considered to be due to the stronger adsorbing power of  $^{137}\text{Cs}$  compared to  $^{90}\text{Sr}$ .