



ISBN4-938987-09-0

NIRS-R-36

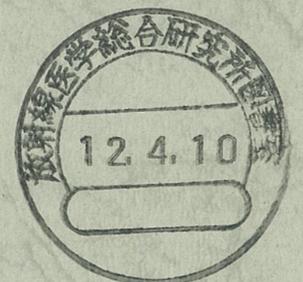
特別研究「環境における放射性物質の動態と
被ばく線量算定に関する調査研究」

(平成5年度～平成9年度)

最終報告書

平成11年12月

放射線医学総合研究所



Final Report on the Project Research

“Dynamics of Radionuclides in the Environment and
Modeling for Assessment of Radiation Exposure to
the Public from Internally Deposited
Radionuclides”

(April 1993~ March 1998)

December 1999

National Institute of Radiological Sciences

9-1, Anagawa 4-chome, Inage-ku, Chiba-shi 263-8555, Japan

特別研究

環境における放射性物質の動態と被ばく線量算定に関する調査研究 最終報告書

緒言

放射線医学総合研究所の環境研究部門では、時代の要請に応じて過去に4次の特別研究を組織してきた。すなわち昭和48年度から同52年度に実施された「環境放射線による被ばく線量の推定に関する調査研究」、昭和53年度から同57年度までにわたる「原子力施設等に起因する環境放射線被ばく評価に関する調査研究」および昭和63年度に始まり平成4年度に終了した「環境と食物連鎖に係わる公衆の被ばく評価の関する調査研究」である。

これら4次20年間の研究は放射性核種の環境中の分布と挙動、放射線の変動、人体中での振る舞いについて多大な知見を生み、被ばく線量を評価するために必要な各種のパラメータの蓄積に大きな貢献をなした。よって放射線医学総合研究所の設置目的の一つである放射線障害からの予防に関する国民の要請にも応えて来たことと評価できよう。この間昭和61年に発生したチェルノブイリ事故の経験は、放射線の環境問題として原子力施設事故への対応の必要性をあらためて認識させるものであった。また公害物質による環境汚染も深刻さを増し、その影響からの防護に関する研究が急速に進展してきた。

このような状況を認識して新環境特別研究の組織化については将来の発展性及び新規性を求める立場と過去の環境特別研究で解決されていない放射線・放射能に係わる課題を実施して環境部門に問われている社会的責任を果たす立場から議論が交わされた。両者の折衷案が出されて調整が行われた結果、後者の内容が採択された。環境部門の新たな再編成を経験し前者については平成7年度および平成8年度より研究グループが組織され別個に研究が進捗している。このため研究能力や活性が分散され不必要に消耗されて、本環境特別研究の求心力は急速に希薄になり平坦ならざる途を歩むことを余儀なくされ、中課題Iの被ばく線量算定コードの開発に遅滞を来したのは遺憾なことであった。

今次特別研究は平成5年度に「環境における放射性物質の動態と被ばく線量算定に関する調査研究」を主題に開始された。過去4次にわたる「環境特別研究」で得られた放射性物質の動態と被ばく線量推定に関わる成果を線量評価モデルと線量推定コードに統合すること（中課題I「重要核種の環境及び人体移行パラメータの整備と線量評価モデル化の開発に関する調査研究」）で、健康・安全評価ネットワークシステムおよび被ばく線量評価システムの高度化、精密化を図ることが今次特別研究の一つの目的であった。一方、中課題II「長半減期核種の環境挙動と公衆被ばくに関する調査研究」が設定され、使用済み核燃料の再処理が本格化することにより発生が予測される長半減期核種の環境動態や代謝データを蓄積することを第2の目的とした。

中課題I「重要核種の環境及び人体移行パラメータの整備と線量評価モデルの開発に関する調査研究」では原子力施設等に起因する重要核種、 ^3H 、 ^{90}Sr 、 ^{131}I 、 ^{137}Cs に

ついて、気圏、陸圏、水圏における挙動モデルを有機的に結合して、放射線核種の環境移行モデルを設定した。ここからのoutputをinputとすることで経口摂取による内部被ばく線量の推定コードを完成させた。さらにこのコードに組み込まれる、日本で取得されたデータを中心とした関連するパラメータのデータベースを作成した。

中課題II「長半減期核種の環境挙動と公衆被ばくに関する調査研究」では将来の被ばく線量推定モデルへの活用を念頭に置き、Tc、U、ThおよびPuの環境および人体における分布と挙動についてのデータを利用可能な形で蓄積した。

特別研究は以下の構成で実施された。

班長 鈴木 譲（平成7年度まで）
内山正史（平成8、9年度）
副班長 内山正史（平成7年度まで）
藤高和信（平成8、9年度）
中村 清（全期間）

中課題I「重要核種の環境及び人体移行パラメータの整備と線量評価モデルの開発に関する調査研究」

グループリーダー 内山正史（平成7年度まで）
藤高和信（平成8、9年度）

小課題1 環境移行と線量モデル及びシステム化に関する研究

サブグループリーダー 本郷昭三

山口寛、竹下洋、柴田貞夫、松本雅紀、藤高和信、内田滋夫、武田洋、西村義一、中村裕二（平成5年度）、井上義和（平成7年度まで）、内山正史（平成5年度）、岩倉哲男（平成6、7年度）

小課題2 気圏における移行パラメータとモデルに関する研究

サブグループリーダー 藤高和信

古川雅英、松本雅紀、床次真司（平成7年度から）、宮本霧子（平成7年度から）、井上義和（平成7年度まで）、坂下哲哉（平成9年度）

小課題3 陸圏における移行パラメータとモデルに関する研究

サブグループリーダー 内田滋夫

村松康行、保田浩志、中島敏行（平成7年度まで）、井上義和（平成7年度まで）、府馬正一（平成6年度から）

小課題4 淡水及び汽水を含む水圏における移行パラメータとモデルに関する研究

サブグループリーダー 中村良一

中原元和、石井紀明、松葉満江、渡部輝久（平成7年度から）、宮本霧子、木村健一（平成7年度まで）、鈴木譲（平成7年度まで）

小課題5 人体における移行パラメータとモデルに関する研究

サブグループリーダー 内山正史（平成7年度まで）
武田 洋（平成8、9年度）

中村裕二（平成5年度）、土居雅広、河村日佐男、湯川雅枝、西村義一、武田洋（平成7年度まで）、石川徹夫（平成6年度から）、田中義一郎（平成6年度から）、渡辺嘉人（平成7年度から）、内山正史（平成8、9年度）

中課題2 「長半減期核種の環境挙動と公衆被ばくに関する調査研究」

グループリーダー 中村 清

小課題1 陸圏における分布と挙動に関する研究

サブグループリーダー 村松康行

内田滋夫、柳沢啓、吉田聡、坂内忠明、田上恵子

小課題2 海洋における分布と挙動に関する研究

サブグループリーダー 平野茂樹

山田正俊、青野辰雄、中村清

小課題3 食品等からの摂取と体内移行に関する研究

サブグループリーダー 河村日佐男

白石久二雄、阿部道子（平成7年度まで）、黒瀧克己、今井靖子、渡利一夫（平成5、6年度）

以上の正規職員の他にデータ整理や実験補助として賃金職員のみなさんに協力していただいた。就中、中課題1の被ばく線量推定コードについて、その操作性の改良に黒田典子さんは大きな役割を果たした。感謝の意を表する次第である。

各グループリーダーが成果の概要を、サブグループリーダーが個々の小課題についてその詳細を後述するが、本特別研究の実施により、第1次環境特別研究実施に当たり設定された研究大綱の基本的方針第6項「コンピュータ技術を積極的に導入し、データ処理、解析、および環境のシステム・アナリシス技法を開発する」に対して、未熟ではあるが解答を示すことができた。すなわち環境に放出された代表的な放射線核種である ^3H 、 ^{90}Sr 、 ^{131}I 、 ^{137}Cs を経

口摂取して生じる被ばく線量を推定するためのモデルが設定され、必要なパラメータがデータベースの形態に総括され、計算コードとして結実した。計算コードの現状は各圏において必要なパラメータが仮の数値を与えられている場合もあり、また境界領域における有機的接続は未だ不十分である。さらに本報告書に記載することが出来なかった多くのパラメータ値が集積されているのでこれを公開可能な形に加工してインターネットを介してアクセス可能にすること、食品流通や人口動態等の社会学的データベースや関連のモデルが作成されなかったために集団線量への対応が未構築である点や吸入被ばく及び外部被ばくについては計算過程を具体的に構築するに到らなかったことなど改善や補強すべき点が多い。したがって本計算コードの実効性を問われると忸怩たるものがある。今後も倦むことなくパラメータ値の取得に務め補完と最新のデータへの更新により、本計算コードを完成して被ばく線量の現実的な評価に活用することを期待する。本計算コードの顕著な特色は各圏内における放射性核種の移行を許細に解析できる構造を持つことにあるので、公害物質へのばく露による健康影響推定コードを設定する場合の参照としての位置づけが為される。

長半減期核種、プルトニウム、テクネチウム、超ウラン元素や天然アルファ線放出核種の環境中での分布や挙動については分析方法の開発や測定装置の進歩と相俟って多くの知見を得ることができた。この知見を結集して、「重要核種の環境及び人体移行パラメータの整備と線量評価モデル化の開発に関する調査研究」で設定されたモデルと計算コードを参考に再処理問題に関わる「放出された長半減期核種による被ばく線量の推定モデルや計算コード」を開発することが望まれる。さらにこれらのモデルや計算コードの活用が、環境に放出された放射性核種から受ける健康影響を現実的に評価し、エネルギー問題におけるリスクを正しく理解する基盤の形成や被ばく線量低減に寄与することを願うものである。これらへの期待をこめて成果をとりまとめ本特別研究の最終報告書とする次第である。

特別研究班長 内山正史

目 次

特別研究「環境における放射性物質の動態と被ばく線量算定に関する調査研究」 緒言 内山 正史

I. 重要核種の環境及び人体移行パラメータの整備と線量評価モデルの開発(シナリオ概要)	藤高 和信 -----	1
Development of a Dose Prediction Model Based on Existing Parameters on Transfer of Important Radionuclides in Environment and Human Body-abstract of Scenario	K. Fujitaka	
I-1 環境移行と線量モデル及びシステム化に関する研究	本郷 昭三, 竹下 洋, 山口 寛 -----	3
Transfer in the Environment and Does Model System	S. Hongo, H. Takeshita and H. Yamaguchi	
I-2 気圏における移行パラメータとモデルに関する研究	坂下 哲哉, 藤高 和信, 井上 義和, 宮本 霧子, 松本 雅紀 -----	10
A Study of Transfer Factor and Model of Nuclides in the Atmosphere	T. Sakashita, K. Fujitaka, Y. Inoue, K. Miyamoto and M. Matsumoto	
I-3 陸圏における移行パラメータとモデルに関する研究	内田 滋夫, 村松 康行, 保田 浩志, 井上 義和, 府馬 正一 -----	19
Transfer Model and Its Parameters for Predicting Radionuclides in the Japanese Terrestrial Environment	S. Uchida, Y. Muramatsu, H. Yasuda, Y. Inoue and S. Fuma	
I-4 淡水及び汽水を含む水圏における移行パラメータとモデルに関する研究	中村 良一, 中原 元和, 石井 紀明, 松葉 満江, 渡部 輝久, 木村 健一, 鈴木 譲, 宮本 霧子 -----	26
Derivation of the Partner Values to be Used in a Compartmentalized for Describing the Transfer of Radionuclides in the Aquatic Environment Including the Fresh, Brackish and Seawater Bodies	R. Nakamura, M. Nakahara, T. Ishii, M. Mastuba, T. Watabe, K. Kimura, Y. Suzuki and K. Miyamoto	
① ^{137}Cs , ^{90}Sr および ^{131}I の水圏における移行	中村 良一, 中原 元和, 石井 紀明, 松葉 満江, 渡部 輝久, 木村 健一, 鈴木 譲 -----	26
Transfer Models for ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^{131}I in the Aquatic Environment	R. Nakamura, M. Nakahara, T. Ishii, M. Mastuba, T. Watabe, K. Kimura and Y. Suzuki	
② ^3H の水圏における移行	宮本 霧子 -----	53
A Transfer Model for ^3H in the Aquatic Environment	K. Miyamoto	
I-5 人体における移行パラメータとモデルに関する研究	武田 洋, 土居 雅広, 内山 正史, 河村日佐男, 西村 義一, 湯川 雅枝, 石川 徹夫, 渡辺 嘉人 -----	60
Biokinetic Model and Parameters for Estimation of Internal Dose to Members of Japanese General Public		

H. Takeda, M. Doi, M. Uchiyama, H. Kwamura, Y. Nishimura, M. Yukawa, T. Ishikawa
and Y. Watanabe

① 代謝

武田 洋, 土居 雅広, 内山 正史, 河村日佐男, 西村 義一, ————
湯川 雅枝, 石川 徹夫, 渡辺 嘉人 ----- 62

Metabolism

H. Takeda, M. Doi, M. Uchiyama, H. Kwamura, Y. Nishimura, M. Yukawa, T. Ishikawa
and Y. Watanabe

② 食品を介する放射性核種摂取

湯川 雅枝, 内山 正史, 武田 洋 ----- 81

Intake Model of Radionuclides through Food

M. Yukawa, M. Uchiyama and H. Takeda

II. 長半減期核種の環境挙動と公衆被ばくに関する研究 概況

中村 清 ----- 96

Environmental Behavior of Long-lived Radionuclides and the Public Exposure

K. Nakamura

II-1 陸圏における分布と挙動に関する研究

村松 康行, 内田 滋夫, 柳澤 啓, 吉田 聡, 田上 恵子, 坂内 忠明 ----- 97

Distribution and Behaviour of Long-lived Radionuclides in the Terrestrial Environment

Y. Muramastu, S. Uchida, K. Yanagisawa, S. Yoshida, K. Tagami and T. Ban-nai

II-2 海洋における分布と挙動に関する研究

平野 茂樹, 山田 正俊, 青野 辰雄, 張 勁, 中村 清 ----- 117

Distribution of Long-lived Radionuclides in the Marine Environment

S. Hirano, M. Yamada, T. Aono, jing. Zhang and K. Nakamura

II-3 食品等からの摂取と体内移行に関する研究

河村日佐男, 白石久二雄, 阿部 道子, 黒瀧 克己, 今井 靖子,
渡利 一夫, 西牟田 守, 小村 和久 ----- 121

Intake through Foods and Air-borne Dust, and Transfer to the Human Body

H. Kawamura, K. Shiraishi, M. Abe, K. Kurotaki, K. Imai, K. Watari, M. Nishimuta and K. Komura

① 食品からの摂取と体内移行

河村日佐男, 白石久二雄, 平野 茂樹, 西牟田 守 ----- 121

Intake through Different Foods and Transfer to the Body

H. Kawamura, K. Shiraishi, S. Hirano and M. Nishimuta

② 大気浮遊じん中の天然放射性核種の線量推定にかかわる物理的特性

阿部 道子, 黒瀧 克己, 小村 和久, 今井 靖子, 渡利 一夫 ----- 125

Physical States of Natural Radionuclides in the Air-born Dust for Estimation
of Inhalation Dose

M. Abe, K. Kurotaki, K. Komura, K. Imai and K. Watari

I. 重要核種の環境及び人体移行パラメータの整備と線量評価モデルの開発（シナリオ概要）

藤高和信（第3研究グループ）

Development of a Dose Prediction Model Based on Existing Parameters on Transfer of Important Radionuclides in Environment and Human Body—abstract of Scenario.

Kazunobu Fujitaka (Space and Particle Radiation Science Research Group)

Abstract

Transfer of important radionuclides in environment and human body was modelled. Parameters characterizing the transfer were collected and a computer code to predict time variation of the dose was developed. The computer code is composed of two parts. The first one, EESAD, calculates atmospheric transport of radionuclides from a domestic or overseas nuclear facility to land or water surface near the metropolitan area in Japan. The second one, ERMA, calculates cross transfer of radionuclides among various environmental sections and/or human organs. Combining EESAD and ERMA, one can predict effective dose as well as organ doses due to emitted radionuclides from a nuclear facility. As both EESAD and ERMA are compact and can be run with a workstation, one can use these codes as his research tools according to his interests.

〔緒言〕

中課題 I が目指したのは、原子力施設等から大気中に放出された放射性核種が、環境中をどのように移行して、最終的に人体にどれだけ被ばく線量をもたらすか、を予測できるモデルを構築することである。そのため必要な移行パラメータ値群を整備し、またそれを用いて移行特性の記述および線量評価を行えるコンピュータコードを開発した。特に注目する重要核種は ^3H 、 ^{90}Sr 、 ^{131}I 、 ^{137}Cs の 4 つである。ここで想定したシナリオでは、中国大陸にある点発生源または東海村にある点発生源から放出された放射性核種が大気中を運ばれ、千葉市を含む首都圏の環境に影響をもたらすものとした。エンドポイントはそこに住む住民の各年齢層を代表する個人が受ける被ばく線量の推定であり、放射線障害までは扱わない。遠距離発生源にはアジア大陸上で原子力施設のある地点を、近距離発生源には東海村を想定して設計した。この成果は国内および海外の原子力事故による汚染評価に応用できる。

〔開発したモデルの概要〕

現時点で当モデルで扱えるのは、アジア大陸か東海村から大気放出された放射性核種が大気中を輸送され、地面（水面）に沈着し、土壌（海水）を通じて動植物に取り込

まれ、食品に加工されて人体に摂取され、人体臓器群を通過して排泄されるプロセスである。その詳細は以下の通りである。

- (1) 放出量および放出の時間変化、着目する落下地点は任意に選べる。気象条件は観測データに基づく。
- (2) 地圏と水圏及び動植物における各核種の移行は実験データに基づく。
- (3) 食品摂取量は、調査された統計データに基づく。
- (4) 人体は日本人の 4 年令層（1、5、10、20 歳）または欧米人（コーカサス人種）の体格を選べる。
- (5) 体内臓器間の移行は実験データによる。線量評価は基本的に ICRP モデルに準拠する。

このモデル全体は二つの部分で構成される。気圏中の輸送予測には複雑な気象力学計算を要する一方、大気中の運ばれ方は核種によって余り変わらない特徴がある。一方土壌や人体は単純なコンパートメントで模擬できるが、コンパートメント間の移行は核種毎に大きく異なるという特徴がある。これらを考慮して、当モデルでは気圏とそれ以降（地圏、水圏、食品、人体）の 2 段階に分けて扱うことにした。気圏で遠距離放出源を扱う場合は気圧水平配置や温度鉛直構造の現実的なデータを用いるように設計されているが、そのデータは過去の特定日時のものを気象庁から有償で入手できる。逆に、ここで開発した気圏輸送モデルは過去の特定事象の評価にのみ使える。その代わり放出地点や着目する沈着地点は気象データが存在する地域内なら自由に選べる。一方近距離放出源を扱う場合は、季節や時刻毎の平均的風向や平均的風速等について、過去に蓄積された気象データを入力するように設計されている。そのため、ここで開発したモデルは過去の気象データが揃った領域内の放出地点とその周辺でのみ使える。但し放出地点と着目する沈着地点はその領域内で自由に選べる。コンパートメントの放射能濃度の増減を考える際は、気圏では物質の移動と核種毎の物理的半減期を考慮すれば済むが、気圏以外では核種毎の物理的半減期に加えて生物学的半減期を入力する必要がある。

〔開発したモデルの利用〕

実際の事故では放出量もその時間変動もケース毎に異なるので、それをモデル化して設定すれば、観測された気象パラメータ（気象観測は常時行われているため、放出があった日時のデータを入手可能）から各地の沈着量の時間変化を予測できる。これを扱う計算コードを EESAD (Easy

Evaluation System for Atmospheric Dispersion)と称し、これから沈着量の大きさを算定できる。一方、地圏、水圏、食品、人体のコンポーネント群を扱う計算コードは ERMA と称し、一般に単位放射能 (1Bq) の入力後の移行量または移行割合を算定できる。従って ERMA の結果に EESAD が算出した沈着絶対量 (Bq 量) を乗じれば、特定の放出に起因する実効線量ないし臓器線量を推定できる。このように EESAD と ERMA の二つの計算コードを組み合わせれば、汚染影響予測という実用目的に利用できる。

EESAD は簡易型の大気拡散計算コードで、先行する SPEEDI より軽く、ワークステーションで扱える。SPEEDI では詳細な予測が可能だが、その運用は国に一括管理されており、研究者は計算された最終結果を入手できるだけである。一方 EESAD では、研究者が様々なパラメータを自分で選んで入力できるので、卓上で事故影響の目安を迅速に予測できる利点がある。他方 ERMA では、研究者が興味を持つ移行経路に焦点を絞り、それに対応するコンパートメント群をモデル全体から切り取って、その小領域

内の移行を数値実験できる。例えば胃・小腸・血液だけに関心がある場合は、胃に 1Bq 入った場合に小腸経由で血液に時々刻々とどのように移行するかを数値的に追跡できる。この場合、胃・小腸・血液の周辺にある他の関連臓器の影響をどこまで考慮するかは、研究者の興味次第である。つまり ERMA は実験ツールとして利用できる利点がある。

[モデルに残された課題]

線量予測モデルには既存のものが幾つかあるが、ここで開発したモデルが得意とするのは主として事故復旧期における内部被曝予測である。現時点では外部被曝プロセスのコンパートメント化が未完成のため、外部被曝が重要な役割を演じる事故初期の線量予測には適さない。また現実の内部被曝線量の評価には食品流通による希釈効果の考察が必要だが、当モデルではまだ不十分で、将来に残された課題である。また EESAD と ERMA にデータとして入力するパラメータ値群は随時更新する必要がある。そのためパラメータ収集作業は不断に続ける必要がある。

図 1 に中課題 I で扱った研究の構成を模式的に示す。

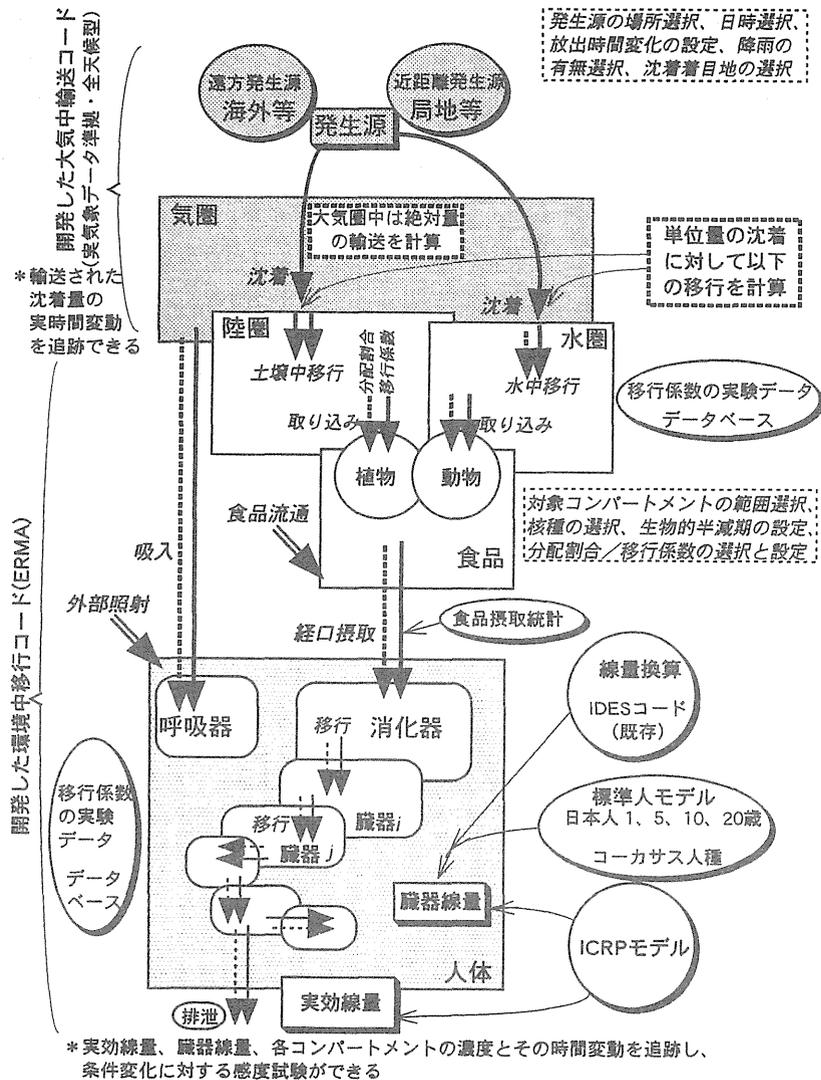


図 1 重要核種の環境及び人体移行パラメータの整備と線量評価モデルの開発---概要

2.2 マトリックス (行列) を用いた単純な例題

2.2.1 1 コンパートメント

最も単純な例題として、コンパートメント数 n が 1 の場合

$$dX_1/dt = W_{11} * X_1$$

となる。 W_{11} が負の値をもてば放射能の崩壊式 $dN/dt = -\lambda N$ と全く同じ式である。これは解析的に解くことができ、

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$

となる。

^{131}I の場合半減期 T は 8.05d であるから、

$$\lambda = 0.693/T = 0.086087$$

となる。従って $W_{11} = -0.086087$ と置き、コンパートメント数を 1 とすればヨウ素の減衰曲線

$$N = e^{-0.086087t}$$

が得られることになる。

2.2.2 2 コンパートメント

コンパートメント数 n が 2 の場合

$$\begin{vmatrix} dX_1/dt \\ dX_2/dt \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} \\ W_{21} & W_{22} \end{vmatrix} * \begin{vmatrix} X_1 \\ X_2 \end{vmatrix}$$

は

$$dX_1/dt = W_{11} * X_1 + W_{12} * X_2$$

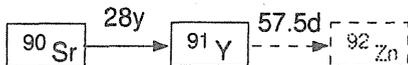
$$dX_2/dt = W_{21} * X_1 + W_{22} * X_2$$

となる。 W_{11} , W_{22} が負の値をもち、 $W_{12} = 0$ 即ち戻りがない場合は親子関係の放射能の崩壊式

$$dN_1/dt = -\lambda_1 N_1 \quad (4)$$

$$dN_2/dt = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (5)$$

と全く同じ式である。 ^{90}Sr は 28 年の半減期をもち ^{91}Y になる。 ^{91}Y は 57.5 日の半減期で安定元素 ^{92}Zn になる。



DAY 単位で崩壊定数を求めると、

$$\lambda_1 = 0.693/T_1 = 0.693/(28 * 365) = 0.0000680$$

$$\lambda_2 = 0.693/T_2 = 0.693/57.5 = 0.012052$$

となる。従って

$$\begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} \\ W_{21} & W_{22} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} -0.0000680 & 0 \\ 0.0000680 & -0.012052 \end{vmatrix}$$

このマトリックスを用いて、

$$N_1 = N_1^0 e^{-0.0000680t} \quad (8)$$

$$N_2 = \frac{0.0000680 N_1^0}{0.012052 - 0.0000680} (e^{-0.0000680t} - e^{-0.012052t}) + N_2^0 e^{-0.012052t} \quad (9)$$

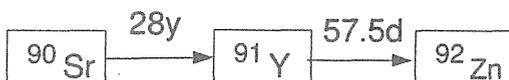
を得ることができる。

2.2.3 2 個以上のコンパートメントモデル

● 3 コンパートメント

2 コンパートメントの例題で安定元素 ^{92}Zn を加えて記述

すると



$$dN_1/dt = -\lambda_1 N_1 \quad (10)$$

$$dN_2/dt = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (11)$$

$$dN_3/dt = \lambda_2 N_2 \quad (12)$$

となる。従って

$$\begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} & W_{13} \\ W_{21} & W_{22} & W_{23} \\ W_{31} & W_{32} & W_{33} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} -\lambda_1 & 0 & 0 \\ \lambda_1 & -\lambda_2 & 0 \\ 0 & \lambda_2 & 0 \end{vmatrix}$$

と 0 の多い行列になる。

ここで、 W_{nm} を線量計算で用いる吸収割合 $AF(T \leftarrow S)$ の表記をまねてみると $W(n \leftarrow m)$ と表すことができ、 W_{21} 即ち $W(2 \leftarrow 1)$ はコンパートメント 1 (^{90}Sr) からコンパートメント 2 (^{91}Y) に移動 (ここでは変換) する量を表すことになる。上記行列を言葉で表すと 1 列目は、単位時間に ^{90}Sr は $W_{11} = -\lambda_1$ 減少し、その減少分 $W(2 \leftarrow 1) = \lambda_1$ はすべて ^{91}Y に移動する。 ^{90}Sr からは他のコンパートメント $W(n \leftarrow 1)$ には行かないことを表し、2 列目は、単位時間に ^{91}Y は $W_{22} = -\lambda_2$ 減少し、その減少分 $W(3 \leftarrow 2) = \lambda_2$ はすべて ^{92}Zn に移動する。 ^{91}Y からは他のコンパートメントには行かないことを表す。同様に 3 列目は ^{92}Zn は安定元素でこの先の移動はないことを表している。行列は以下の様に表現すると分かり易い。

	上流	^{90}Sr	^{91}Y	^{92}Zn	^{90}Sr	^{91}Y	^{92}Zn
下流							
^{90}Sr		↓			$-\lambda_1$	0	0
^{91}Y		←	↓		λ_1	$-\lambda_2$	0
^{92}Zn			←		0	λ_2	0

ここで、表の右に示したものを パスマトリックス と呼ぶことにする。行列表示では、すべてのコンパートメントにパスを作ることができ、行列の入れ換えが可能である。

	上流	^{90}Sr	^{92}Zn	^{91}Y	^{90}Sr	^{92}Zn	^{91}Y
下流							
^{90}Sr		↓			$-\lambda_1$	0	0
^{92}Zn				←	0	0	λ_2
^{91}Y		←		↓	λ_1	0	$-\lambda_2$

● ICRP の組織コンパートメントモデル

ICRP の組織コンパートメントモデルでは、a は通過コンパートメントであり b, c はそれぞれ

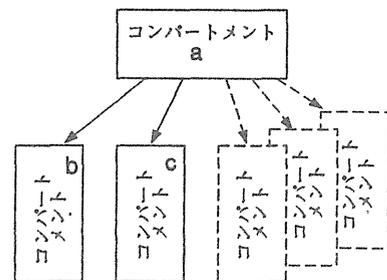


図 2: ICRP の組織コンパートメント

の組織に相当する。

$$dq_a/dt = I - \lambda_a q_a - \lambda_R q_a \quad (13)$$

$$= W_{11} * q_a + I \quad (14)$$

$$dq_b/dt = b\lambda_a q_a - \lambda_b q_b - \lambda_R q_b \quad (15)$$

$$= W_{12} q_a + W_{22} * q_b \quad (16)$$

cについてもbと同様に表すことが出来る。ここでbは通過コンパートメントから単位時間に消失する λ_a の内bコンパートメントに行く割合で通常はb+c+...は1になるはずである。

$$\begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} & W_{13} \\ W_{21} & W_{22} & W_{23} \\ W_{31} & W_{32} & W_{33} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} -\lambda_a - \lambda_R & & \\ b\lambda_a & -\lambda_b - \lambda_R & \\ c\lambda_a & & -\lambda_c - \lambda_R \end{vmatrix}$$

となり、近似的に、組織コンパートメントの数だけ、指数関数が重なった形で観察されることになる。ERMAの行列表現では、

下流 \ 上流	(a)	(b)	(c)	...	(n)
通過コンパートメント (a)	$-\lambda_a - \lambda_R$				
組織コンパートメント (b)	$b\lambda_a$	$-\lambda_b - \lambda_R$			
組織コンパートメント (c)	$c\lambda_a$		$-\lambda_c - \lambda_R$		
組織コンパートメント (n)	$n\lambda_a$...	$-\lambda_n - \lambda_R$

となり、これら再循環が無い場合も、上記行列をもちいて逐次積分により、解を求めている。

コバルトの場合は

	体液	肝臓	肝臓	肝臓	その他	その他	その他	排泄
体液	-1.3864							
肝臓	.0416	-0.11586						
肝臓	.0139		-0.01191					
肝臓	.0139			-0.001515				
その他	.3742				-0.11586			
その他	.1247					-0.01191		
その他	.1247						-0.001515	
排泄	.6932	0.11586	0.01191	0.001515	0.11586	0.01191	0.001515	

の体内移動行列が得られるが、この行列から、図式モデルを想像したり、メカニズムを解析することは容易ではない。

2.3 濃度計算について

コンパートメントの総量で計算する場合(2)式の X_n の変分 dX_n を逐次解き、 X_n に dX_n を加算して必要な時間繰り返し計算することにより、 X_n の時系列データが得られる。この時系列データを刻々コンパートメントの体積で除することにより、濃度時系列を求めることができるが直接濃度計算をしたい場合は V_2 を2番目のコンパートメントの体積、 C_2 を2番目のコンパートメントの濃度とすると $X_2 = V_2 \cdot C_2$ であるから(1)式は

$$\begin{aligned} dX_1/dt &= W_{11} * X_1 + W_{12} * V_2 \cdot C_2 + \dots + W_{1n} * X_n \\ V_2 \cdot dC_2/dt &= W_{21} * X_1 + W_{22} * V_2 \cdot C_2 + \dots + W_{2n} * X_n \\ &\vdots \\ dX_n/dt &= W_{n1} * X_1 + W_{n2} * V_2 \cdot C_2 + \dots + W_{nn} * X_n \end{aligned} \quad (17)$$

となる。ここで2番目のコンパートメントについては V_2 で除して

$$\begin{vmatrix} dX_1/dt \\ dC_2/dt \\ \vdots \\ dX_n/dt \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} W_{11} & W_{12}V_2 & \dots & W_{1n} \\ W_{21}/V_2 & W_{22} & \dots & W_{2n}/V_2 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ W_{n1} & W_{n2}V_2 & \dots & W_{nn} \end{vmatrix} \begin{vmatrix} X_1 \\ C_2 \\ \vdots \\ X_n \end{vmatrix}$$

以上で明らかのように、i番目のコンパートメントを濃度で計算したい場合は W_{ii} は変わらず、 W_{im} の変わりに W_{im}/V_i を W_{ni} の変わりに $W_{ni}V_i$ を用いればよいことになる。

2.4 単純連鎖モデルと濃縮係数CFについて

単純連鎖モデルと濃縮係数CFについて

前に議論したように濃度でモデルを解く場合は以下のようなになる。

$$\begin{vmatrix} dC_1/dt \\ dC_2/dt \\ \vdots \\ dC_n/dt \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} * V_2/V_1 & \dots & W_{1n} * V_n/V_1 \\ W_{21} * V_1/V_2 & W_{22} & \dots & W_{2n} * V_n/V_2 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ W_{n1} * V_1/V_n & W_{n2} * V_2/V_n & \dots & W_{nn} \end{vmatrix} \begin{vmatrix} C_1 \\ C_2 \\ \vdots \\ C_n \end{vmatrix}$$

ここで、 $W_{nm} * V_m/V_n$ を F_{nm} と置き、n番目のコパートメントに注目すると、

$$dC_n/dt = F_{n1} * C_1 + F_{n2} * C_2 + \dots + F_{nm} * C_m$$

となる。ここで濃度が変化が無くなる場合を想定すると、

$$0 = F_{n1} * C_1 + F_{n2} * C_2 + \dots + F_{nm} * C_m$$

となる。

さらに、これが下図のような単純連鎖モデルの場合

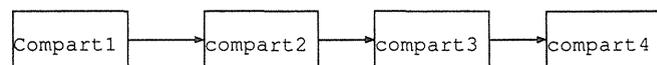


図3: 単純連鎖モデル

F_{nm} マトリクスは以下のように各行列とも二箇所しか値を持たない。

$$\begin{vmatrix} F_{11} & & \dots \\ F_{21} & F_{22} & \dots \\ & F_{32} & F_{33} & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \\ & & & & & F_{nm} \end{vmatrix}$$

2番目のコンパートメントに注目してみよう。濃度が変化が無ければ、

$$0 = F_{21} * C_1 + F_{22} * C_2$$

即ち

$$F_{21}/F_{22} = -C_2/C_1$$

となる。 C_2/C_1 は一般に濃縮係数(CF)といわれており、この

CFにより、 F_{21} と F_{22} の比が求まる。

あとは、どちらかの時間的な傾向がわかれば、 F_{21} 、 F_{22} が求められる。

例えば、 $F_{21} = 1$ と置いて、シミュレーションし、除々にこの値をかえて、現実に近い値を探すことが出来る。

環境移動行列の対角線上は、放射能の全量で表そうが、濃度で表そうが同じ値がはいる。この値は、そのコンパートメントの実行減衰係数 $-\lambda_e$ で、実行半減期 T_e と以下の関係にある。

$$-\lambda_e = \log(2)/T_e = -0.693/T_e$$

T_R を放射性物質自身の半減期、 T_C をコンパートメント特有の半減期（放射能崩壊がないときの半減期）とすると

$$-\lambda_e = -\log(2)/(1/T_c + 1/T_R) = -(\lambda_c + \lambda_R)$$

となる。半減期については、

$$1/T_e = 1/T_c + 1/T_R$$

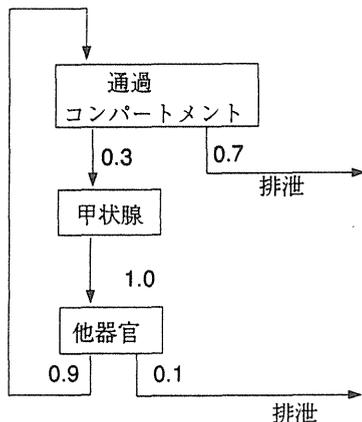
実行半減期 T_e が

- 日にち単位(D)の場合 $W_{nm} = -\lambda_e = -0.693 \sim -0.1$
- 週単位(W)の場合 $W_{nm} = -\lambda_e = -0.1 \sim -0.002$
- 年単位(Y)の場合 $W_{nm} = -\lambda_e = -0.002 \sim$

2.5 分離型移動行列の導入

今まで示したように移動行列はやや難解である、そこで ERMA では、分離型移動行列という形式を導入している。

便宜のため、ICRP のヨウ素の体内代謝モデルを用いて概要を示す。



ICRP のヨウ素代謝コンパートメントモデルでは単純な 3 コンパートメントモデルで記述されており、通過コンパートメント（半減期 0.25 日）に入ったヨウ素のうち、0.3 の割合が甲状腺に移行し、残り 0.7 が直接排泄される。甲状腺中のヨウ素は 80 日の生物学的半減期で残留し、有機要素の形で甲状腺以外の人体の組織に均等に分配し、12 日の生物学的半減期で残留するものと仮定している。

X_1 、 X_2 、 X_3 をそれぞれ通過コンパートメント、甲状腺、他の器官のヨウ素量、 λ_R をヨウ素の崩壊定数とすると、

$$\begin{aligned} dX_1/dt &= -0.693/0.25 * X_1 + 0.9 * 0.693/12 * X_3 - \lambda_R * X_1 \\ dX_2/dt &= -0.693/120 * X_2 + 0.3 * 0.693/0.25 * X_1 - \lambda_R * X_2 \\ dX_3/dt &= -0.693/12 * X_3 + 1.0 * 0.693/120 * X_2 - \lambda_R * X_3 \end{aligned} \quad (18)$$

X_1 、 X_2 、 X_3 について整理すると

$$\begin{pmatrix} -(0.693/0.25 + \lambda_R)X_1 & (0)X_2 & (0.9 * 0.693/12)X_3 \\ (0.3 * 0.693/0.25)X_1 & -(0.693/120 + \lambda_R)X_2 & (0)X_3 \\ (0)X_1 & (0.693/120)X_2 & -(0.693/12 + \lambda_R)X_3 \end{pmatrix}$$

が得られる。移動行列は

$$\begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} & W_{13} \\ W_{21} & W_{22} & W_{23} \\ W_{31} & W_{32} & W_{33} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} -(0.693/0.25 + \lambda_R) & (0) & (0.9 * 0.693/12) \\ (0.3 * 0.693/0.25) & -(0.693/120 + \lambda_R) & (0) \\ (0) & (0.693/120) & -(0.693/12 + \lambda_R) \end{vmatrix}$$

となる。 ^{131}I の場合半減期が 8.04 日であるから $\lambda_R = 0.693/8.04 = 0.086194$ となり

$$\begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} & W_{13} \\ W_{21} & W_{22} & W_{23} \\ W_{31} & W_{32} & W_{33} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} -2.858194 & 0 & 0.051975 \\ 0.831600 & -0.091969 & 0 \\ 0 & 0.005775 & -0.143944 \end{vmatrix}$$

を得る。

また、 ^{125}I の場合半減期 60.14 日であるから $\lambda_R = 0.693/60.14 = 0.011523$ となり

$$\begin{vmatrix} W_{11} & W_{12} & W_{13} \\ W_{21} & W_{22} & W_{23} \\ W_{31} & W_{32} & W_{33} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} -2.783523 & 0 & 0.051975 \\ 0.831600 & -0.017298 & 0 \\ 0 & 0.005775 & -0.069273 \end{vmatrix}$$

となり、 ^{131}I と対角要素だけが異なる。

ここで、マトリックスを便宜上以下のように分離すると整理しやすい。

元素特有の崩壊定数	λ_R		
コンパートメント名	通過コンパートメント	甲状腺	その他器官
コンパートメント減衰	0.693/0.25	0.693/120	0.693/12
通過コンパートメント	-1	0	0.9
甲状腺	0.3	-1	0
その他器官	0	1	-1

これを分離型移動行列と呼ぶこととする。分離型移動行列にはモデルの意味がわかり易い等、幾つかの長所がある。

- 対角線上はそれぞれのコンパートメントからの単位量(1)の減少を表し。
- 縦方向にみると移動先にその移動割合が現れる。
- 移動先がすべて記述されていれば、縦方向の合計は0になるはずである。
- 移動が同じ同位体の場合は、 λ_R だけを変えればよい。

ICRP のヨウ素代謝の記述とくらべると、その意味が明らかである。

一般的に、分離型移動行列は以下の形式で表すことができる。

元素特有の崩壊定数	λ_R			
コンパートメント名	a	b	n
コンパートメント減衰	λ_a	λ_b	λ_n
コンパートメント a	-1	K_{12}	K_{1n}
コンパートメント b	K_{21}	-1	K_{2n}
.....	$K_{.1}$	$K_{.2}$	$K_{.n}$
コンパートメント n	K_{n1}	K_{n2}	-1

この分離型から、以下の手続きで容易に実行型移動行列を作ることができる。

- 対角線上はコンパートメント減衰 λ_n を掛け、元素特有の崩壊定数加算 λ_R する。

$$W_{nn} = -\lambda_n - \lambda_R \quad (19)$$

- 移動割合 $K_{.n}$ にはコンパートメント減衰 λ_n を掛ける。

$$W_{nm} = K_{nm}\lambda_m \quad (20)$$

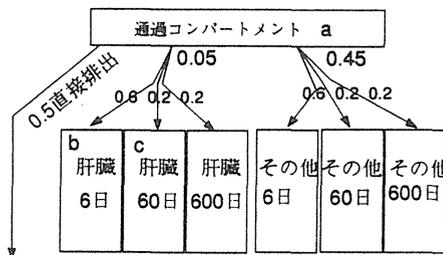
対応する形式で表され、実行型移動行列は

コンパートメント名	a	b	n
コンパートメント a	$-\lambda_a - \lambda_R$	$K_{12}\lambda_b$	$K_{1n}\lambda_n$
コンパートメント b	$K_{21}\lambda_a$	$-\lambda_b - \lambda_R$	$K_{2n}\lambda_n$
.....	$K_{.1}\lambda_a$	$K_{.2}\lambda_b$	$K_{.n}\lambda_n$
コンパートメント n	$K_{n1}\lambda_a$	$K_{n2}\lambda_b$	$-\lambda_n - \lambda_R$

実行型移動行列→分離型型移動行列の変換は

- 対角線上 $K_{nn} = (W_{nn} - \lambda_R)/\lambda_n = -1$
- 対角以外は $K_{nm} = W_{nm}/\lambda_m$

で表すことができる



元素特有の崩壊定数	λ_R						
	体液	肝臓	肝臓	肝臓	その他	その他	その他
半減期	0.5	6	60	600	6	60	600
体液	-1						
肝臓	0.03	-1					
肝臓	0.01		-1				
肝臓	0.01			-1			
その他	0.27				-1		
その他	0.09					-1	
その他	0.09						-1
排泄	0.5	1	1	1	1	1	1

分離型移動行列では図式と対比が容易な行列が得られる。この例はコバルトの体内移行である。

3 システム概要

3.1 開発環境と概要

データベースの構築および計算処理コードの開発はエンジニアリング・ワークステーション (EWS) で行ない。データの入力等はパーソナル・コンピュータで行ないこれらを統合するとともに、各研究者が利用できるネットワークシステムとした。

ERMA の基本構造は日本人公衆のための被曝線量計算システム (IDES) に、移動行列編集機能 (マトリックスエディター) と計算値の時系列を表示する機能を追加したものである。

基本的な設計についてはパーソナルコンピュータ上のベーシック言語で作成した、その後、計算部分をモジュール化して c 言語に変換しコマンドとしてコンパイルされている。ユーザインタフェース部分は Xwindow に翻訳された。

これにより、ERMA は、

1. グラフィカルユーザインタフェース
2. www ブラウザからの簡易アクセス
3. mail によるアクセス
4. コマンドによるアクセス

により、使用できる。機能だけをみれば、コマンドベースが最も多機能であるが、大変難解である。グラフィカルユーザインタフェースから殆んどのコマンドを呼び出せるので、普通はコマンドを意識する必要がない。www ブラウザや mail によるアクセスはある程度機能が限定されている。

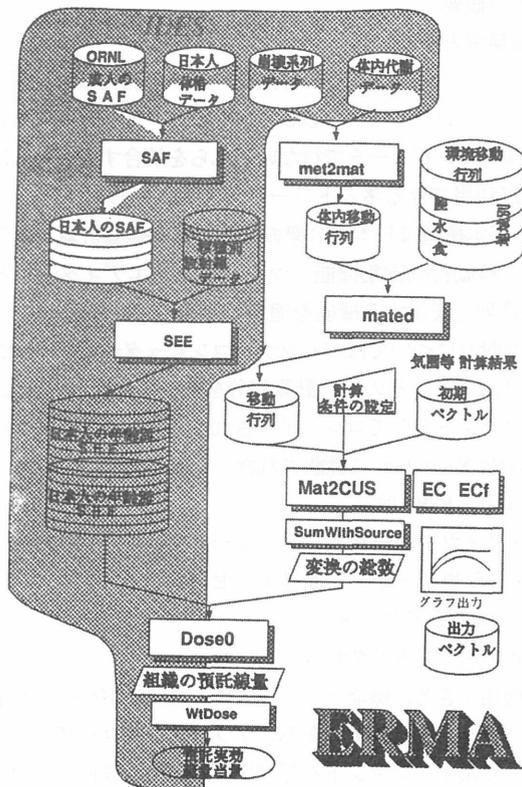
3.2 計算の流れと主なプログラム

グラフィカルユーザインタフェース部分は初期のバージョンでは Xwindow のライブラリを直接使って組まれていたため Xwindow 以外にのせるにはやや難しい面があったが現在のバージョンではユーザインタフェースが TCL/TK で書かれているため、TCL/TK を装備したウインドウなら容易にこのコードを用いることができる。

このグラフィカルユーザインタフェースが各種のコマンドを呼び出して処理している。

計算処理プログラムの概要

1. 移動行列エディタ (mated)
2. 従来の代謝データから体内移動行列を作成するプログラム (met2mat)
3. 体内移動行列を逐次積分する (EC)
4. ポストスクリプト言語で作図する (pssc)
5. 組織コンパートメント変換の総数を求めるプログラム (Mat2CUS)
6. 上記を線源器官で集計するプログラム (SumWithSource)
7. 変換の総数に比実行エネルギーを演算し標的器官線量を求めるプログラム (Dose0)
8. 標的器官線量を集計し実効線量等を求めるプログラム (WtDose)



3.2.1 移動行列エディタ

移動行列エディタは ERMA の入口であるとともに、モデルをつくる重要な部分である。

MatrxED(マトリックスエディタ)

画面制御

ファイルマネージャ

マトリックスの読み込み
代謝データベースの読み込み
ファイル管理
(移動、削除、複写)

入力・編集

実行型、分離型変換
周期率表からの核種選択
半減期の変換
体内移行マトリックスの作成
対角要素、収支の計算
連結
マトリックスの印刷

マトリックスの保存

初期値の保存
出力の保存

ERMA のファイル管理はファイル名とファイルコメントでファイルを管理するファイルマネージャを通して行なわれる。移動行列エディタにおいては、

1. ファイルの入出力はファイルマネージャを通して行なわれる。
2. 実行型と分離型の行列変換がワンタッチで可能である。
3. 核種は核データベースを使って、選択でき、半減期、原子番号、質量数は自動入力される。
4. 体内代謝のマトリックスは、ICRP publ 30 のデータから自動的に作ることが出来る。
5. 出入りがもれなく記述されていれば、対角要素は自動計算できる。
6. 収支が妥当かどうか判断するための合計値が下段に表示される。
7. マトリックスの連結が可能。

等の機能や特徴をもっている。

3.2.2 その他のプログラム

逐次積分はもっともプリミティブなニュートン法によって行なっている。従って、積分間隔は直接的に結果に影響を与える可能性がある。ルンゲクッタの方法もコマンドレベルからは利用できるが、この方法を用いたから、積分間隔は適当で良いというわけには行かない。移動行列のなかで最も大きな値を示すものが線形で近似できる程度の積分間隔をユーザが選ぶ必要がある。通常はこの値は体内の移動で現われ、この場合は 0.01 日程度の積分間隔が適当である。

初期のバージョンでは、出力は、ERMA システム内のビューで処理されていたが、保守性などから現在のバージョンでは、図表の出力はすべてポストスクリプト (印刷言語) で行なわれ、一般のポストスクリプトビューで閲覧するものになっている。

4 おわりに

4.1 ERMA の特長

ERMA はインターネット上で開発されたもので、Xウィンドウのグラフィカルインターフェース (GUI) によるものには種々の機能が盛り込まれているが特長的なものは

1. 分離型移動行列が扱える。
2. 移動行列の連結が行える。
3. 日本人の体格で線量計算ができる。
4. 線量でパラメータの感度の解析を行なうことが出来る。

および、

1. 移動行列の一部に変動を与えることができる。
2. 実験値等とフィッティングできる。
3. ICRP30 の代謝モデルは 70%以上移動行列に自動変換可能であり、中でも実行型の行列と、分離型の行列が容易に変換できることが上げられる。

フィッティング等により、新たな行列が得られても、それが何を意味しているか解釈できなければ、たまたま実験値や観測値にあった数字の羅列になってしまう可能性が大きい。予測や、移動

メカニズムの解析に使うには、移動行列の数字が何を意味しているか充分理解しておく必要がある。分離型行列は移動メカニズムの解析に良いヒントを与えてくれるものと思っている。

また、線量計算が出来ることももう一方の特徴である。ある地域の実集団の予想線量を計算するには、市場希釈等の困難なファクターを考慮する必要があり、環境モデルで線量まで計算する必要がないのではないかとこの意見も聞かれるが、

1. ある仮想人を環境に配置することにより、環境の危険度評価指標が得られると期待できる。

即ち、環境の危険度評価指標検出器として計算機上の仮想人を用いることができる。

2. 環境モデルを記述する種々のパラメータの感度解析において、上記の環境の危険度評価指標（仮想人の線量）を用いることが出来る。

等において、地域の実集団の予想線量まで解析出来ない場合においても意味があるものと考えている。

4.2 将来展開等

ERMA は移動行列の作成、加工および、それを時間積分し移動を解くシステムで、移動行列（モデル）はユーザが自由に設定できる。現在では、放医研のネットワークにはファイヤウォールが設けられ、外部から直接Xウインドウのグラフィカルインターフェース（GUI）による ERMA を利用することは出来ない。ERMA をインターネット展開するには、『メール』による方法が有望である。各インターネット上のクライアントには、移動行列（モデル）を作成、編集する『マトリックスエディタ』および、計算結果を図表化するアプリケーション』（市販のもので十分と思われる）を用意し、移動行列（モデル）および初期値をメールにより ERMA に送信し、受信した結果を自アプリケーションで図表化する方法が有効であると考えられる。

この場合、標準的な移動行列については、クライアントからの送信ではなく指定のみで計算可能、必要なら、移動行列の送付要求、受信が可能であるものが望ましい。

濃度による計算を行なうときは、移動行列に大きなレンジが必

要となる場合が考えられ、場合によっては、現在の ERMA では対応できないものもあるかもしれない、ERMA のバグ退治や拡張も将来的には必要であろう。

ここでは、簡単な例題をもとに、代謝モデルと環境モデルは移動行列で表すことができ、代謝モデルを拡張することにより、環境中に放出された、放射性核種の移動をシミュレーションし被曝線量計算することが出来ること（古い例で、時代錯誤の説明であったかもしれないが）を述べてきた。現在、環境移行モデル解析と線量評価システム（ERMA）は、Xwindow システム、ウェブブラウザ、電子メールのユーザーインターフェースを備えたシステムとして仕上がっている。

将来、展開については種々のもの考えられるが、展開よりも、このシステムの保守体制が心配である。

参考文献

- [1] ICRP Publication 29, Radionuclide release into the environment : assessment of dose to man (1978), Pergamon Press, Oxford.
- [2] ICRP Publication 38, Radionuclide transformation Energy and Intensity of Emissions(1983), Pergamon Press, Oxford. workers(1979), Pergamon Press, Oxford.
- [3] ICRP Publication 30, Limits of intake of Radionuclide by workers(1979), Pergamon Press, Oxford.
- [4] ICRP Publication 23, Report of the Task Group on Reference Man(1975), Pergamon Press, Oxford.
- [5] 山口 寛 他; 日本人のMIRD表の作表プログラム, 保健物理, 18, 43(1983).
- [6] 田中義一郎 他; 規格日本人 (Reference Japanese) の設定, 日本原子力学会誌, 19, 674(1977).
- [7] 本郷昭三 他; 日本人の体内被曝による実効線量当量の計算コード IDES の開発について, 保健物理体内被曝線量評価専門研究会報告書, 1992

I-2 気圏における移行パラメータとモデルに関する研究

坂下哲哉(第4研究グループ)、藤高和信(第3研究グループ)、井上義和(IAEA)、
宮本霧子(第4研究グループ)、松本雅紀(人間環境研究部)

A Study of Transfer Factor and Modeling of Nuclides in the Atmosphere

Tetsuya Sakashita, Kazunobu Fujitaka*, Yoshikazu Inoue**, Kiriko Miyamoto
and Masaki Matsumoto***

Environmental and Toxicological Sciences Research Group, *Space and Particle Radiation Science Research Group,

IAEA, *Division of Human Radiation Environment

Atmospheric transport models were developed for personal use. One is for local area and another is for regional area. In a vicinity of a nuclear site, dry and wet depositions of some nuclides released were evaluated in some meteorology conditions.

Comparisons of nuclides, seasons, time zones and precipitation intensities were carried out. As the results, qualitative behaviors of depositions were revealed with time series. The regional transport model also calculated effects from a remote source like a Chinese facility. Three cases for precipitation intensities were simulated and the discrepancy between three cases was the magnitude of more than twenty orders. The features of these models are simple operations and that it is possible to use on Internet browser. Therefore, to advance a level of atmospheric transport study and the public acceptance, it hopes that various people make these models of use.

1. 緒言

大気圏内での核実験¹⁾、アメリカのTMI-2事故、及びチェルノブイリ事故²⁾等により、大気中に人工放射性核種が幾度か放出されてきた。これらの影響については現在も研究が進められている²⁾³⁾。このような放出ケースの初期の段階において、重要となるのが大気中での輸送経路である。TMI-2事故以来、日本でも日本原子力研究所において緊急時の放射性核種の大気中移行に関する研究が進められ、その成果がSPEEDI(System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information)として、現在、日本における原子炉サイトの防災用に運用されている⁴⁾。また、チェルノブイリ事故、酸性雨、さらにはインドネシアの煙霧⁵⁾の被害を契機として、国境を越えた影響の広がりが懸念されるようになった。特に、日本においては、その影響のエリアとして東アジア地域が注目されており、その領域内での国境を越えた影響を評価するモデルの開発が進展中である⁶⁾。

気圏における放射性核種の移行モデルには、時間に着目

すると、緊急時のような短期的な現象を追跡するモデルから長期的な変動を追跡するモデルまで、空間的な面では、原子力施設周辺から地球規模を対象としたモデルまで、実に様々なモデルが存在する。また、最終目的に応じて適用する数値解析手法も各々異なる。原子力施設周辺への影響に関しては、原子力安全指針に示されている気象指針の評価方法により通常は十分影響評価が可能である⁷⁾。しかし、異常放出時や、建物による気流の変化が著しい時、さらには複雑な地形が存在する等の場合には、SPEEDI⁴⁾や微気象を再現できるモデルが必要である。一方、先に述べた東アジア地域程度の広がりを持った領域での気圏移行に関しては、これまでに酸性雨⁸⁾、黄砂⁹⁾、ラドンの輸送¹⁰⁾に関して定性的な評価がなされてきた。ただし、ラドンについては一部定量的な評価がなされている¹¹⁾。しかし、放出量の把握、多数地点での測定値の存在からみると、モデルを用いて精度の高い定量的な評価がなされたケースといえるのは、チェルノブイリ事故の影響評価²⁾と、ヨーロッパ等でのトレーサ放出実験の評価¹²⁾¹³⁾のみである。

また、経時的な気象の変化を考慮した気圏移行モデルの多くが、高精度の演算・大容量のデータ処理を行うために、スーパーコンピュータを用いている。そのため、一般の研究者が気軽に利用できる環境ではない。スーパーコンピュータから小型ワークステーションへの気圏移行モデルの移植が茅野によってなされた¹⁴⁾。これにより、小規模の計算資源でも気圏移行計算が可能なが示された。しかし、一般研究者が利用するパーソナルコンピュータ上で、例えばWindowsの環境で使用するワープロのようなアプリケーションのように気圏移行モデルを利用できない事は、明白な事実である。地球環境問題が、一般の人々にも身近な事象となっている現在においては、放射性核種の気圏移行による影響に関しても、パブリックアクセプタンスを配慮する意味でも、情報の公開が可能なモデルの存在が必要である。

こうした背景のなか、放射線医学総合研究所では、「何らかの事情により、原子力施設等から放出された放射性核種が、大気中を輸送され地表面等に沈着した後、経口摂取により人体内に入った結果、どの程度の内部被ばくをもた

らすかを評価できるモデルの構築」を最終目的として気圏移行モデルの開発を行う。また、内部被ばくを評価するシナリオとして、比較的短期間での(数時間～数日程度の放出)核種放出が想定された。短期間放出を想定したため、気圏移行モデルには、経時的な気象条件の変化を考慮することが要求される。また、原子力施設周辺と東アジア地域に与える影響を、ひとつのモデルで同時に評価することは、計算資源の問題や計算手法が複雑になる点から適当ではない。そのため、両地域を対象とするふたつの気圏移行モデルを開発する。さらに、本研究により開発したモデルの最大の特徴として、簡易なインターフェースの使用があげられる。これにより、一般の研究者の利用が容易になる。加えて、インターネット上でも動作するため、本モデルが、パブリックアクセプタンスに利用可能なモデルのひとつに含まれることだろう。

以下、原子力施設周辺への影響を近距離発生源の評価と、東アジア地域での気圏移行モデルの開発および計算結果を遠距離発生源の評価を、モデル研究の成果として示す。また、簡易インターフェースの一例も示す。

2. 近距離発生源の評価

2. 1 はじめに

原子力施設周辺への影響を、以下の仮想シナリオのもとで、モデル計算により評価することを試みる。

茨城県東海村の仮想施設が何らかの事故に遭遇し高度10mのスタックから、放射性核種(¹³⁷Cs、⁹⁰Sr、¹³¹I、³H)が放出された場合に、施設周辺20km四方の領域に与える沈着量の経時変化について検討する。

放出条件には、1時間及び5日間の連続放出の条件を与える。また、1時間の連続放出に関しては、3つの放出変動パターンを考慮する。すべての場合について総放出量を1Ci(3.7×10¹⁰Bq)とする。

気象条件に関しては、夏と冬、朝と昼、降水のあるなしの各条件の違いを検討する。経時的な気象条件の変化を考慮するため、日本原子力研究所東海施設(北緯36度27分24秒、東経140度36分13秒)の測定データを用いた。検討する夏・冬に関しては、1986年の8月および1月の月平均値を用いる。

以上のシナリオのもとで得られた結果が、人体が受ける被曝を算定するコンパートメントモデルの入力値となる。

2. 2 気圏移行モデル

(a) 概要

近距離発生源に対する評価計算を、基本的に「発電用原子炉施設の安全解析に関する気象指針」⁷⁾の基本拡散式に準じて行う。指針の基本拡散式にはガウスプルーム式が採用されている。しかし、このガウスプルーム式により沈着計算を行う際によく用いられるソース・デプレッションモデルには、本来地表付近での現象であるはずの沈着過程が、プルーム全体で生じ、かつ全体に均一に発生するといったような非現実的な仮定が必要である。そのため、本研究では、局所的な沈着計算や複雑な境界条件を与えることが可能な

粒子拡散法⁴⁾を気圏移行モデルで採用する。

(b) 大気拡散計算

気圏移行モデルの大気拡散手法に粒子拡散法を用いた。粒子拡散法とは、放射性雲を模擬したラグランジュアン粒子群により、放出した核種の空間分布を求めるモデルである。粒子群の移動が、風の平均流による移動と、風の乱流に起因する拡散との移動の和によって表される。

粒子群の各粒子の移動は、次式

$$\begin{aligned} x_{i+\Delta t} &= x_i + u_x \Delta t + dx \\ y_{i+\Delta t} &= y_i + u_y \Delta t + dy \\ z_{i+\Delta t} &= z_i + u_z \Delta t + dz \end{aligned} \quad (1)$$

によって表わされる。ここで、 x_i, y_i, z_i は移動前の粒子位置、 Δt は計算時間ステップ、 (u_x, u_y, u_z) は風速の各軸方向成分、 $x_{i+\Delta t}, y_{i+\Delta t}, z_{i+\Delta t}$ は移動後の粒子位置、 dx, dy, dz は拡散による移動距離である。拡散による移動距離は、拡散係数 K を用いて(y 方向のみ示す)

$$dy = \sqrt{24K_y \Delta t} (0.5 - R(1)) \quad (2)$$

で評価する。ここで、 $R(1)$ は0から1の一樣乱数であり、 K は、

$$K = \frac{1}{2} \cdot \frac{d\sigma^2}{dt} \quad (3)$$

の関係から求める。 σ は、大気安定度別に風下距離 r の関数で与えられ、Pasquill-Meadeの式⁷⁾を用いた。(3)式を

$$K = \frac{1}{2} \cdot \frac{d\sigma^2(r)}{dt} = \frac{1}{2} \frac{dr}{dt} \frac{d\sigma^2(r)}{dr} = u\sigma(r)\sigma'(r) \quad (4)$$

に書き換え用いる。

(c) Pasquill-Meadeの式

σ を、大気安定度別に風下距離 r の関数で与えたPasquill-Meadeの式によって計算する。

Pasquill-Meadeの式により、 y 方向の濃度分布に関する標準偏差が

$$\sigma_y = 0.67775\theta_{0.1} \cdot (5 - \log_{10} x) \cdot x \quad (5)$$

と表わされる。ここで、 x の単位はkm、 $\theta_{0.1}$ (degree)は、0.1kmにおける水平1/10濃度幅を見込む角 θ の値で、Table 1で与えられる。

Table 1 $\theta_{0.1}$ (degree) for each stability case

Stability	A	B	C	D	E	F
$\theta_{0.1}$	50	40	30	20	15	10

また、 z 方向の濃度分布の標準偏差は、

$$\sigma_z = \sigma_1 x^{a_1 + a_2 \log x + a_3 (\log x)^2} \quad (6)$$

で表わされる。ここで、 σ_1 、 a_1 、 a_2 、及び a_3 は定数で、Table 2 及び Table 3 で与えられる。なお、実用上、上の式で 1000m をこえる σ_z については、1000m として扱うこととした。

Table 2 σ_1 , a_1 , a_2 , and a_3 for each stability case

Stability	σ_1	A_1	A_2	a_3
A	768.1	3.9077	3.898	1.7330
B	122.0	1.4132	0.49523	0.12772
C	58.1	0.8916	-0.001649	0.0
D	31.7	0.7626	-0.095108	0.0
E	22.2	0.7117	-0.12697	0.0
F	13.8	0.6582	-0.1227	0.0

Table 3 σ_1 and a_1

Stability	σ_1	A_1
A	165	1.07
B	83.7	0.894
C	58.0	0.891
D	33.0	0.854
E	24.4	0.854
F	15.5	0.822

ただし、 a_2 、及び a_3 は 0 とする。

(d) 濃度計算

濃度計算手法には、Kernel Density Estimator (KDE) 法を用いる¹⁵⁾。KDE 法では、各粒子の放射能が、粒子の位置を中心として、ガウス分布状に広がっていることを仮定する。この仮定により、位置 (X, Y, Z) に存在する単位放射能粒子から、ある距離だけ離れた場所 (x, y, z) への濃度の寄与は、

$$x(x, y, z) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2} \sigma_x \sigma_y \sigma_z} \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{(x-X)^2}{\sigma_x^2}\right) \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{(y-Y)^2}{\sigma_y^2}\right) \cdot \left\{ \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{(z-Z)^2}{\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{(z+Z-2z_g)^2}{\sigma_z^2}\right) \right\} \quad (7)$$

と表わせる。ここで、 z_g は評価点での標高である。さらに、放射能分布の標準偏差を、風下距離に比例して増大させることで、粒子数の減少による統計誤差を減らす。この標準偏差の増加により、放出点近くと遠方とを精度的に大差なく評価することを可能にする。実際には、 σ_y の標準偏差を、 $\sigma_y^2(t+\Delta t) = \sigma_y^2(t) + 2K\Delta t$ に従い増加させる。 σ_z も同様にして標準偏差を増加させる。しかし、 σ_z をあまり増加させると、風のシアを十分に再現しない。そのため、日本原子力研究所の EXPRESS¹⁶⁾ の σ_z 値 25m を、本モデルの上限値とする。水平方向も、同様の理由により、計算領域の格子間隔を上限値として仮定する。

(e) 沈着計算

降雨洗浄と乾性沈着とを考慮する。

計算時間ステップ Δt 間に与えられる降雨洗浄による地表面への沈着量 G_w を

$$G_w = \sum_{n=1}^N \alpha_n Q_n \{1 - \exp(-\Lambda \Delta t)\} \quad (8)$$

で評価する。ここで、 α_n は粒子の寄与率、 Q_n は粒子 n が

現在のステップで持つ放射能強度、 Δ は洗浄率、 J は降水強度を表わす。ここで、粒子の寄与率を計算するために、各粒子が、水平方向に KDE 法で与えた標準偏差の 2 倍に相当する一辺を持つ矩形分布であると仮定する。この矩形分布が、メッシュの格子が代表する領域である各評価領域と重なる割合から、荷重平均法を用いて粒子放射能の寄与分を算出する。

計算時間ステップ Δt 間に与えられる乾性沈着による地表面への沈着量 G_d は、

$$G_d = \sum_{m=1}^M \alpha_m Q_m \{1 - \exp(-k v_g \Delta t)\} \quad (9)$$

と表される。ここで、 α_m は粒子の寄与率、 Q_m は粒子 m が現在のステップで持つ放射能強度、 v_g は沈着速度、 k はある高度における沈着への寄与率で

$$k = 2.0 \times \left(1.0 - \frac{h_p}{\Delta z}\right) + \Delta z \quad (10)$$

と表わされる。ここで、 h_p は粒子の中心位置の高度、 Δz は沈着に寄与する層の厚さである。

2. 3 結果と考察

(a) はじめに

2. 1 で述べたシナリオに基づき、施設周辺の地表面に対する核種沈着量の経時変化を、幾つかの気象条件に対して評価する。

対象領域の概念図を Fig. 1 に示す。

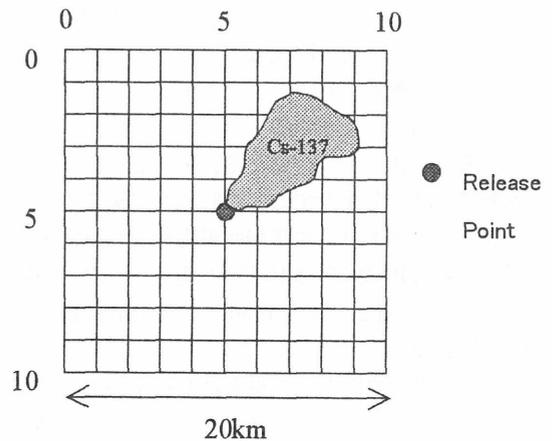


Fig. 1 Objective area

1 時間の連続放出に対する総沈着量の経時変化を、核種の違い、夏と冬、朝と昼、降水強度の違い、及び放出変動パターンの違いから考察する。ただし、沈着量はいずれも 400km² での 1 時間あたりの沈着量を表わす。

(b) 核種の違いによる沈着量の差

この計算では、対象領域全体に対する ¹³⁷Cs と ¹³¹I の総沈着量の経時変化を調べる。

Table 4 で与える沈着パラメータ以外の気象等の計算条件は、同一とする。

Table 4 Parameters for deposition process

Nuclide	¹³⁷ Cs	¹³¹ I(aerosol)
Deposition velocity	0.001 m/s	0.003 m/s
Washout coefficient	$5.0 \times 10^{-5} J^{0.8}$	$5.0 \times 10^{-5} J^{0.8}$

冬の朝に対する気象条件を与え、降水はなしと仮定した。

Fig. 2 に計算結果を示す。

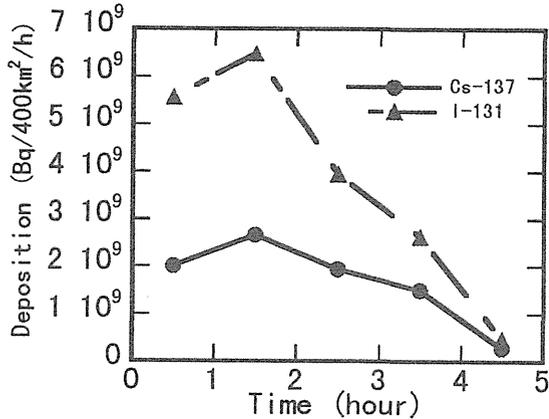


Fig. 2 Deposition of two nuclides

Fig. 2 より、総沈着量の時間変化は両核種において同様の傾向を示すことが分かった。また、沈着速度の違いにより沈着量の量的な差が明確に認められ、その大きさが、沈着速度の違いに比例し約3倍程度になった。

(c)季節の違い及び朝と昼の時間帯の違いによる沈着量の差

次に、季節と時間帯の違いによる沈着量の差について検討する。夏と冬の気象データには、1986年の8月及び1月の月平均データを用いた。Fig. 3に各月の風向及び風速を示す。

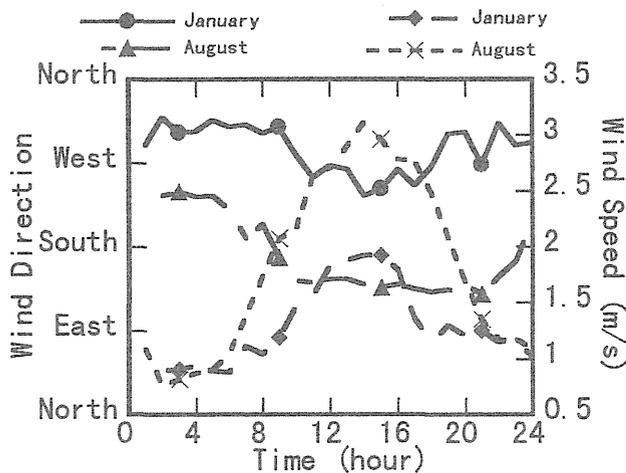


Fig. 3 Wind direction and wind speed

Figure 4 に計算結果を示す。ただし、核種には ¹³⁷Cs を用いた。この図では、Mor. とは Morning を表わし、Aft. とは Afternoon を表わす。具体的な放出条件としては、朝 (Morning) については午前4時から1時間放出であり、昼 (Afternoon) については正午からの1時間放出である。この

結果から、鉛直混合の盛んな昼間よりも大気が安定となる朝方のほうが、沈着量が多いことが分かる。このケースに関しては、放出直後に関して、約10倍程度の差が認められた。また、冬は日の出が遅いことから、Fig. 4に見られるような最大値が生じた。この結果から、朝と昼の時間帯の違いが、沈着量に関して、季節の違いよりも大きな影響を持つことが推定できる。

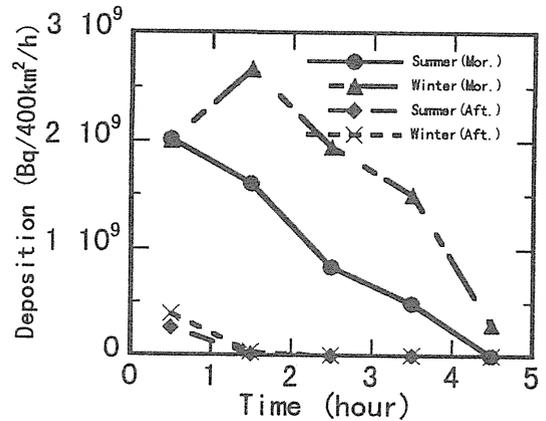


Fig. 4 Comparisons on Season and Time zone

(d)降水強度の違いによる沈着量の差

降水強度を、なし、0.1mm/h、20mm/h とした時の沈着量を計算した。一般に、この降水強度は、それぞれしとしと雨、土砂降りの状況に相当する。結果を Fig. 5 に示す。

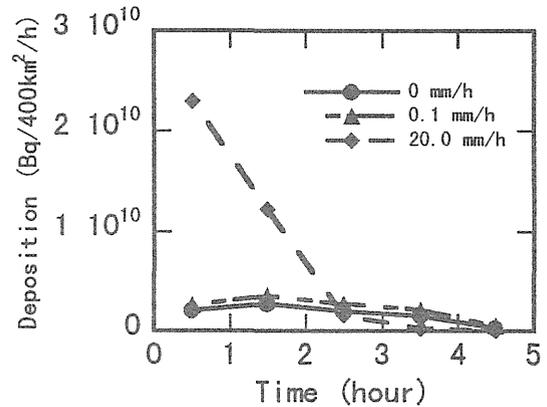


Fig. 5 Comparison on Precipitation intensity

Figure 5 より、降水強度が増すと沈着量が増加する傾向がある。しかし、経時変化に関して2時間後以降の沈着量に関しては逆に他の降水強度に比べて低くなり、量的にも同程度になった。

(e)放出変動パターンの違いによる沈着量の差

放出の変動パターンを変えた時に、沈着量に差が生じるかどうかを検討する。変動パターンとして、一定の場合 (pattern 1)、放出期間の中ほどで最大放出値となる場合 (pattern 2)、及び最初に最大値をとりその後は減少となる場合 (pattern 3) の3パターンについて調べた。変動パターンを Fig. 6 に示す。

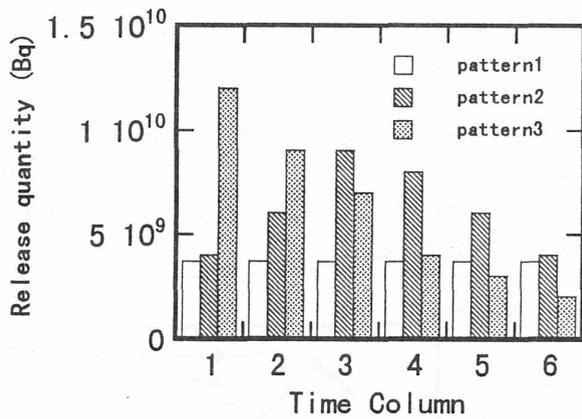


Fig. 6 Release Patterns

結果を Fig. 7 に示す。図から、放出量の factor 2 程度の違いは、放出初期において問題となるが、その後は、沈着量の経時変化に大きな寄与を示さない結果が得られた。

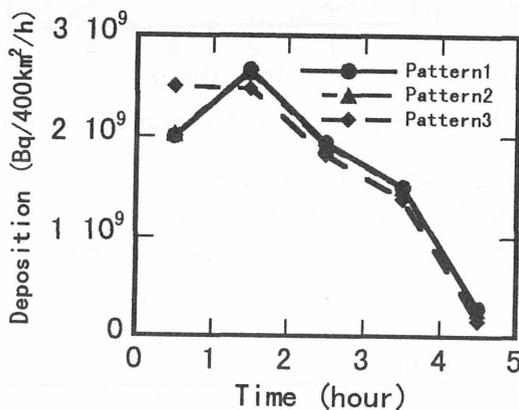


Fig. 7 Comparison on Release Patterns

(f) 5日間連続放出時の沈着量

最後に、5日間連続放出を行った場合の沈着量の経時変化を Fig. 8 に示す。

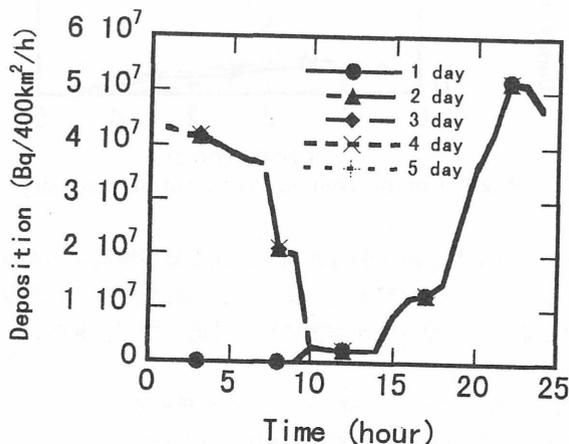


Fig. 8 Continuous release for 5 days

Figure 8 より、夜間に最大の沈着率を、昼間に最少の沈着率を示す結果を得た。

2. 4 まとめ

仮想シナリオに基づく原子力施設周辺への沈着量の評価を行った。モデルから導かれる定性的な結果が、原子力施設

周辺への影響評価を考える上で有効な指標になるものと考えられる。しかし、今後研究の課題として、より詳細な沈着プロセスの検討が残されている。

3. 遠距離発生源の評価

3. 1 はじめに

近距離発生源の評価と同様に、核種の放出シナリオが以下のように想定された。

1996年11月15日午前××時に、中国大連市(東経122度・北緯39.4度)にある原子力施設が何らかの異常により放射能漏れ事故を発生。11月15日午前9時から計5日間にわたり、環境中に¹³⁷Cs、⁹⁰Sr、¹³¹I、³Hが各々1Ci放出された。

このシナリオで想定された事故により、日本、特に東京近辺に与える影響について検討を行う。

3. 2 気圏移行モデル

(a) 概要

気圏移行モデルに用いる手法はほぼ同じであるが、地形の影響を考慮に入れるため、鉛直座標系の変更や、対象領域が広くなることによる地図の歪みの補正がなされた。以下、変更点およびモデルについて説明する。

(b) 座標系

水平面に対して直交座標系を使い、一定間隔の格子を取った。鉛直方向に対しては、計算領域内の地形を考慮するために、地形準拠座標系(z*座標系)を用いた。

z*座標系は、

$$z^* = \frac{H(z - z_g)}{(H - z_g)}, \quad (h = H - z_g) \quad (11)$$

として表される。ここで、 $z_g(x, y)$ は標高、 H は上部境界の参照高度である。参照高度には、17000mを設定した。鉛直方向を12層とし、0, 100, 800, 1500, 3000, 5600, 7100, 9000, 10000, 11500, 13500, 16000mの不等間隔メッシュを用いた。

(c) 地図投影の補正

遠距離発生源の評価に用いた気象庁公開データであるGPV(GridPointValue)データ¹⁷⁾は、その種別により、格子系の座標が異なっている。東アジア地域での大気拡散計算に使用するRSM航空A(広域)データには、ポーラステレオ投影図法が採用されている。そのため、ある地点の計算結果を評価する場合、地図投影の変換が必要である。

地図上の座標と、それに対応する地球表面上のある一点の緯度経度が、地図の歪み(マップファクタ=地図上の距離÷真の距離)を考慮して、

$$x = (\cos 15^\circ)^2 \frac{2R \cos \phi}{1 + \sin \phi} \sin \lambda \quad (12)$$

$$y = (\cos 15^\circ)^2 \frac{-2R \cos \phi}{1 + \sin \phi} \cos \lambda \quad (13)$$

$$\phi = \sin^{-1} \left[\frac{(2R \cos^2 15^\circ)^2 - x^2 - y^2}{(2R \cos^2 15^\circ)^2 + x^2 + y^2} \right] \quad (14)$$

$$\lambda = \tan^{-1} \left[\frac{-x}{y} \right] \quad (15)$$

の関係として得られる。 x, y は、地図上での座標、 ϕ, λ は地球の経度、緯度である。また、RSM 航空 A 用のポーラーステレオ座標が、北緯 60 度でひずみがないように基準設定がされている。上述式は、15 度が基準となった関係式である。

(d) 気流場の形成

気流場の基となるデータとして気象庁 GPV データ (RSM 航空 A) を用いる。計算の簡略化のため、計算の水平格子位置を GPV データと同一位置にした。しかし、鉛直方向に関しては、GPV の鉛直座標が等圧面を基準面としているため、鉛直格子点のデータを、直線内挿により推定した。

以上の前処理を行った後、大気拡散計算で使う鉛直風速値を、連続の式、

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\rho hu}{m} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{\rho hv}{m} \right) + \frac{1}{m^2} \cdot \frac{\partial(\rho hw^*)}{\partial z^*} = 0 \quad (16)$$

を満足するようにして生成した。ここで、 (u, v, w^*) は、 (x, y, z^*) 軸に沿った風速成分、 m はマップファクタ、 ρ は空気の密度を表わす。風速ベクトル図の一例を Fig. 10 に示す。

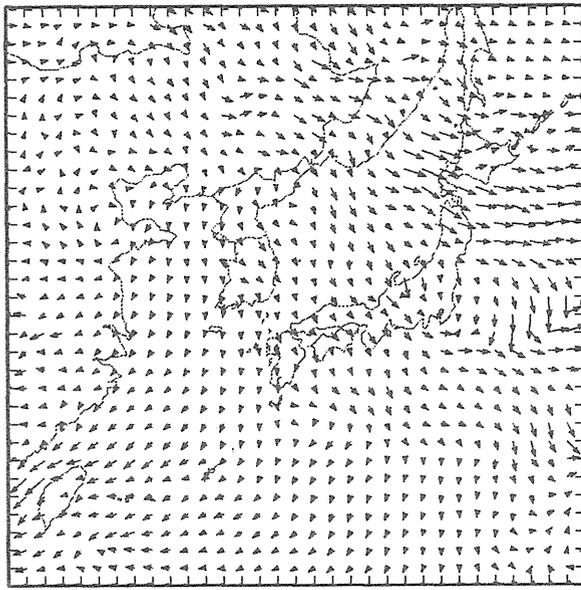


Fig. 10 Vector map of wind

(e) 大気拡散計算

近距離発生源のモデルと同じく粒子拡散法⁴⁾を用いる。粒子の移動量算出には、Gifford らによる水平拡散係数¹⁸⁾及び WSPEEDI⁶⁾の鉛直拡散係数を用いた。気流の平均流と乱れとにより、位置 (x_t, y_t, z_t) に存在した粒子は、 Δt 後、次式により

$$\left. \begin{aligned} x_{t+\Delta t} &= x_t + m_x (u \Delta t + X_p^*) \\ y_{t+\Delta t} &= y_t + m_y (v \Delta t + Y_p^*) \\ z_{t+\Delta t} &= z_t + w^* \Delta t + Z_p^* \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

位置 $(x_{t+\Delta t}, y_{t+\Delta t}, z_{t+\Delta t})$ に移動する。ここで、 $m_x u \Delta t$, $m_y v \Delta t$, $w^* \Delta t$ は平均流による移動量を、 (u, v, w^*) は粒子位置での風速成分、 (X_p^*, Y_p^*, Z_p^*) は拡散による移動量を表す。

水平方向の拡散による移動量は、0 から 1 の一様乱数を $R(1)$ とすると、

$$\begin{aligned} X_p^* &= \sqrt{24 K_{hor} \Delta T} (0.5 - R(1)) \\ Y_p^* &= \sqrt{24 K_{hor} \Delta T} (0.5 - R(1)) \end{aligned} \quad (18)$$

とかける。さらに、 K_{hor} と σ_{hor} との間には

$$K_{hor} = \frac{1}{2} \cdot \frac{d\sigma_{hor}^2}{dt} \quad (19)$$

なる関係が成り立つ。ここで、 σ_{hor} には Gifford らによって推定された水平方向の拡散係数¹⁸⁾を用いた。Gifford らは、多くの研究者によって行われた拡散実験を収集、整理した。その結果、粒子の放出開始からの経過時間 t と拡散幅 σ_{hor} との間に、

$$\begin{aligned} \sigma_{hor}^2 &= 2K_{zt} + \frac{V_0^2}{\beta^2} [1 - \exp(-\beta t)] \\ &+ \frac{K_t}{\beta} [-3 + 4 \exp(-\beta t) - \exp(-2\beta t)] \end{aligned} \quad (20)$$

なる関係があることを経験的に導いた。鉛直方向の拡散による移動量を、Diehl らが導いた拡散距離の取り扱い手法¹⁹⁾、及び WSPEEDI で用いられた鉛直拡散係数の値⁶⁾とにより算出した。Diehl らは、拡散係数が次式のように、

$$F(z) = -(K_0 + K_1 z) \frac{\partial \chi}{\partial z} \quad (21)$$

一次に変化する場に、上下方向への拡散による移動量 l_{up} , l_{down} が

$$\begin{aligned} l_{up} &= \sqrt{2\Delta t(K_0 + K_1 z) + (K_1 \Delta t)^2} + K_1 \Delta t \\ l_{down} &= \sqrt{2\Delta t(K_0 + K_1 z) + (K_1 \Delta t)^2} - K_1 \Delta t \end{aligned} \quad (22)$$

であることを導いた。ここで、 K_0 は渦動拡散係数の鉛直分布を 1 次式で近似したときの切片、 K_1 は渦動拡散係数の一次勾配である。

上述の関係を地形準拠座標系に應用すると、鉛直方向の拡散による移動量は、

$$Z_p^* = K_{1z} \Delta t \pm \sqrt{2(K_{0z} + K_{1z} z^*) \Delta t + (K_{1z} \Delta t)^2} \quad (23)$$

として表せる。ここで、粒子位置の拡散係数をあらためて $K_{0z^*} = K_{0z} + K_{1z} z^*$ と置き直すと、

$$Z_p^* = K_{1z} \Delta t \pm \sqrt{2K_{0z^*} \Delta t + (K_{1z} \Delta t)^2} \quad (24)$$

が得られる。粒子位置での K_{0z^*} , K_{1z^*} 及び式(24)から鉛直方向の拡散による移動量が求まる。しかし、 K_{0z^*} , K_{1z^*} は地形準拠座標系での拡散係数であるため、通常のデカルト座標系での拡散係数から変換する必要がある。地形準拠座標系とデカルト座標系との間で、拡散係数には、

$$K_z = \frac{K_z}{h^2} = \frac{1}{h^2} \frac{dr}{dt} \frac{d\sigma_z^2}{dr} = \frac{1}{h^2} |u| \sigma_z \frac{d\sigma_z}{dr} = \frac{1}{h^2} \int_L |u| \quad (25)$$

のような関係がある⁶⁾。ここで、 K_z はデカルト座標系での

鉛直拡散係数、 r は粒子の総輸送距離、 σ_z は鉛直拡散幅、 $|u|$ は風速の絶対値である。また、パラメータ f_L に関して、異なる値を3つの層 ($L=1, 2, 3$) に与えた⁶⁾。パラメータ f_L と層との関係を Table 5 に示す。

Table 5 Relation between f_L and each layer

Layer	1	2	3
Altitude	0~900m	900~1000m	1000m~
f_L	20.0	Interpolatelaye1 and layer 3 with a line function	0.1
Comment	Boundary Layer	Transition Layer	Free Atmosphere

濃度計算と沈着計算には、近距離発生源の評価で用いた手法と同様の手法を用いる。

3.3 結果と考察

遠距離発生源評価に用いた計算条件を Table 6 に示す。

Table 6 Parameters for remote source simulation

Item	Information
Term of the calculation	1996.11.15~1996.11.28 (13 days)
Term of nuclide releases	1996.11.15~1996.11.20 (5 days)
Total release	1 Ci
Position of release	E 122°, N 39.4°
Stack Height	10 m
Time Step	900 sec
Total particles Number of	Max 11,520 particles
Particles for one step	24 particles / 1 step
Interval of meteorology	12hours

評価シナリオでは4核種を計算対象としているが、ここでは、¹³⁷Cs 及び ¹³¹I の計算結果について報告する。両核種の沈着条件は、Table 4 と同じである。

以上の条件で、3ケースの計算を行った。この3ケースの条件を Table 7 に示す。Case A は、降水がない場合であり、乾性沈着のみにより地表面への沈着がある場合の沈着量算出である。Case B は、乾性及び降雨洗淨のいずれも考慮した場合である。降雨洗淨のパラメータとなる降水強度には 1mm/h の値を用いる。さらに、Case C は、乾性沈着のみが地表面への主たる沈着過程であることを想定するとともに、東京近辺の 120km 四方の領域のみ降水強度 1mm/h の雨が降り降雨洗淨がある場合である。この3つのケースに対する結果が、各々どの軽度であり、また、他者との差がどの程度であるかを検討する。

Table 7 3 cases study

Case	Information
Case A	Only dry deposition
Case B	Dry and wet deposition
Case C	Dry and limited wet deposition. Active area for wet deposition where is 120km square and is centered Tokyo

3つのケースに対して行った ¹³⁷Cs の計算結果を、Fig. 11 に示す。

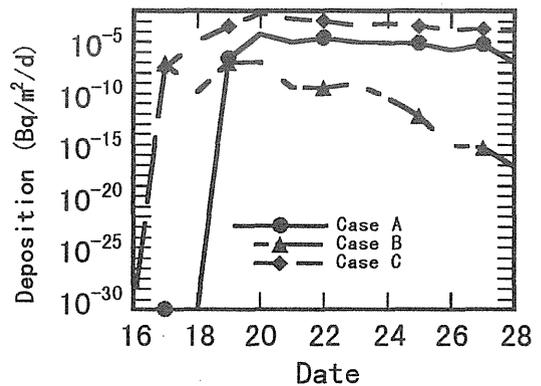


Fig. 11 Result of simulation for ¹³⁷Cs

Figure 11 より、乾性沈着および東京近辺のみ降水があるケースがもっとも沈着量が多い。また、全体としては、乾性及び降雨洗淨の両沈着過程が継続的に働く場合が最も沈着量が少ない。これは、中国大陸で発生した放射性核種が、日本の評価点に到達する以前に、乾性及び降雨洗淨により、地表面に沈着することが、他のケースに比べて大きいことに起因する。また、乾性沈着のみ考慮した計算では、Case C と同様の経時変化を示すが、降雨洗淨が無い分、値が小さくなっている。加えて、乾性沈着量は地表面近くに存在する ¹³⁷Cs に起因するため、地表付近の高度で評価地点に到達する核種が、上空に比べて到達時刻が遅いため、Case C に比べて、Case A の立ち上がりが遅れる結果となった。

次に、3つのケースに対して行った ¹³¹I の計算結果を、Fig. 12 に示す。Figure 12 より、¹³¹I の経時変化は、¹³⁷Cs の結果とおおよそ同様の変化が得られた。しかし、乾性沈着量の違いに伴い、両核種の間に若干の値の差が見られる。

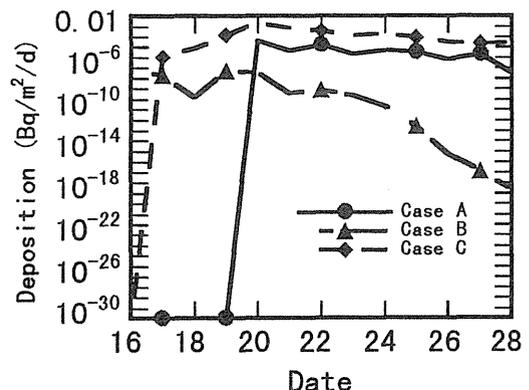


Fig. 12 Result of simulation for ¹³¹I

3. 4 まとめ

遠距離発生源評価用モデルを作成し、あるシナリオに基づき試算を行った。 ^{137}Cs 及び ^{131}I の2核種について結果を得、沈着の支配的な過程の違いにより、20 乗程度のオーダーの違いが生まることが分かった。しかし、2核種の間、結果の傾向の大きな違いは認められなかった。わずかな違いは、沈着速度の違いにより生じているものと考えられる。

結果のオーダーが沈着過程の支配的な特性により大きく異なることから、沈着過程、特に降雨洗浄の取り扱いが重要である。今後、影響評価、特にリスクを評価するために、降雨洗浄に対するモデルを向上させる必要がある。また、WSPEEDI との計算結果の比較を行い、モデルの性能評価を行うことも重要である。

4. 簡易インターフェース

開発したモデルの最大の特徴が、簡易インターフェースを利用できる点にある。一連のインターフェースが、Microsoft 社のインターネットブラウザ上で動作可能なため、インターネット上でのモデル公開が可能である。多くの選択画面があるが、代表的な入力画面と実行時の画面の2つのみ示す。

代表的な入力画面を、Fig.13 に示す。このインターフェースでは、核種の選択がマウスのクリックによって、また降水量が数値のキーボード入力によって、気圏移行を計算するプログラムにデータを渡すことができる。核種の条件だけでなく、気象条件、放出条件、時間設定、入出力に関する条件、及び Graphic に関する条件を同様の画面で適時選択・キーボード入力により簡易にプログラムの操作が可能である。

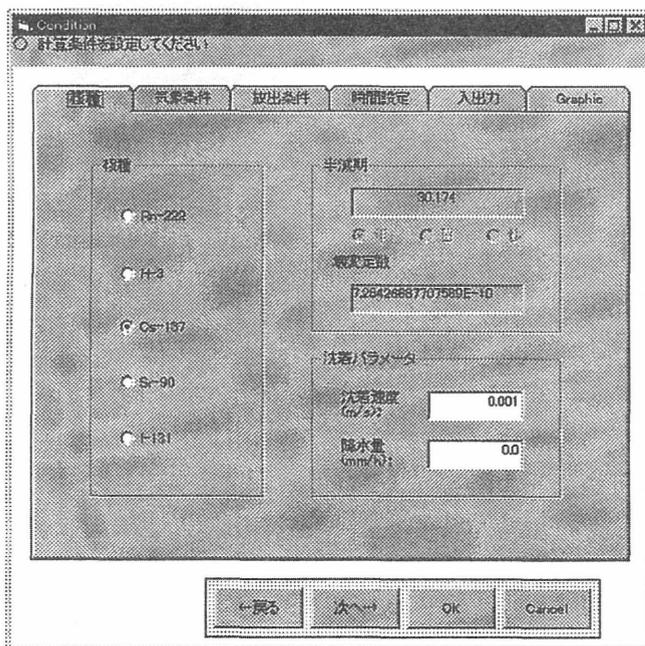


Fig. 13 Interface for data input

次に、実際に動作した状態の画面を Fig.14 に示す。この図では、遠距離発生源に対する評価が実行されている。点が粒子を表わし、東京近辺での濃度が棒グラフで表示して

ある。このように、動きをともなった画像が簡単な、データ入力により実行できるため、緒言で意図していた一般研究者や公衆へのパブリックアクセプタンスへの利用に役立つ可能性を持っている。今後の利用が期待される。

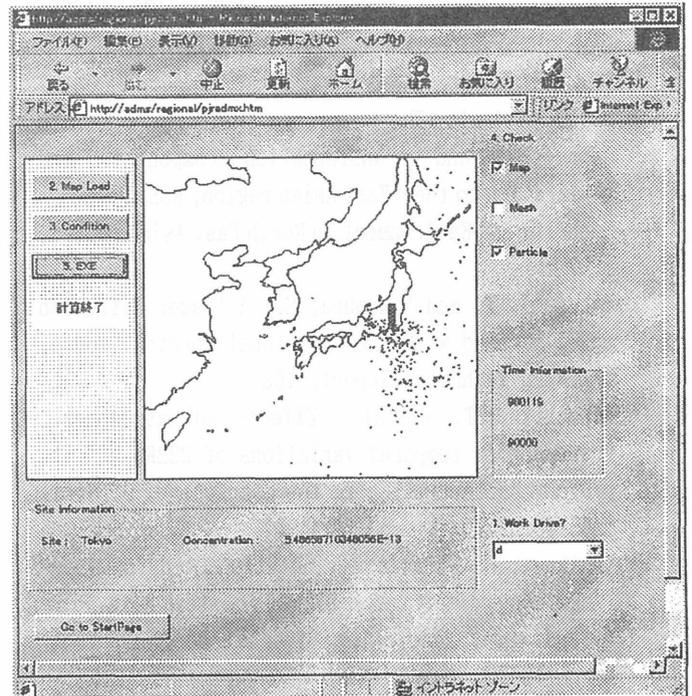


Fig. 14 Internet application of atmospheric transport model

5. 結論

原子力施設周辺を対象としたモデルと、東アジア地域を対象とした気圏移行モデルを開発した。この2つのモデルは、ともに簡易インターフェースを持っているため、手軽に利用することが可能である。将来的に、様々な人々により利用され・試験されることが期待される。開発したモデルを用いて行ったモデル解析からは、沈着に関する興味深い定性的な結果を得ることができた。しかし、簡略化したパラメータをこのモデルがまだ多く含んでいる。そのため、パラメータで代表されたプロセスの詳細な解析が、今後の重要な研究課題である。

謝辞

本研究で使用した気象データを提供していただいた日本原子力研究所放射線管理第一課松浦氏に感謝致します。

[参考文献]

- 1) UNSCEAR: United Nations, New York, 1988
- 2) Shimada, Y. et al.: A numerical model for the analysis and evaluation of global ^{137}Cs fallout, Health Phys., 70, 171-179, 1996
- 3) Pollanen R. et al.: Transport of radioactive particles from the chernobyl accident, Atmospheric Environment, 31, 3575-3590, 1997
- 4) 茅野政道、他: 3次元風速場を用いた粒子拡散法による複雑地形上の被曝線量評価モデル, 日本原子力学会誌, 26, 526-534, 1984

- 5)朝日新聞夕刊記事:平成9年9月25日付
- 6)Chino, M. et al.: WSPEEDI(Worldwide Version of SPEEDI); A computer code system for the prediction of radiological impacts on Japanese due to a nuclear accident in foreign countries, JAERI, 1334, 1995
- 7)原子力安全委員会編:発電用原子炉施設の安全解析に関する気象指針, 343-373, 1982
- 8)Sato, J. et al.: The long range transport model with deposition and transformation components and application to the East Asian region, ESENA(Energy, Security and Environment in North East Asia) report, 1997
- 9)Takasugi, T. and Nakamura, H.: A tracer diffusion model coupled with the JMA global spectral model, JMA/NWPD Technical Report, 1988
- 10)Sakashita, T. et al.: Effects of atmospheric transport on temporal variations of ^{222}Rn and its progeny concentration in the atmosphere, J. Nucl. Sci. Technol., 34, 63-72, 1997
- 11)Ishikawa, H. et al.: A simulation study on long-range transport of radon-222 over eastern Asia, Proc. Intern. Conf. Radiation Effects and Protection, March 18-20, Mito, 1992
- 12)山澤弘実、他:緊急時環境線量情報予測システム(世界版) WSPEEDI の開発と検証, 日本原子力学会誌, 39, 881-892, 1997
- 13)Brost, A. et al.: The effect of diffusion on tracer puffs simulated by a regional scale eulerian model, J. Geoph. Res., 93, 2389-2404, 1988
- 14)石川裕彦、茅野政道:小型計算機用3次元大気拡散簡略コードWINPRの開発, 日本原子力学会誌, 30, 350-358, 1987
- 15)Lorimer, G. S.: The kernel method for air quality modeling (I), Mathematical formulation, Atmos. Environ., 20, 1447-1452, 1986
- 16)Chino, M.: Manual of a suite of computer codes, EXPRESS (Exact Preparedness Supporting System), JAERI-M, 92-082, 1992
- 17)朝倉正、他編:「気象ハンドブック」GPV とその応用, 朝倉書店, 640-650, 1995
- 18)Gifford, F. A.: Horizontal diffusion in the atmosphere: A lagrangian-dynamical theory, Atmos. Environ., 16, 505-512, 1982
- 19)Diehl, S. R.: Random-walk simulation of gradient transfer processes applied to dispersion of stack emission from coal-fired power plants, J. Appl. Meteor. 21 69-83, 1982

I-3 陸圏における移行パラメータとモデルに関する研究

内田滋夫、村松康行、保田浩志*、井上義和、府馬正一(第4研究グループ)

*: 第3研究グループ

Transfer Model and Its Parameters for Predicting Radionuclides in the Japanese Terrestrial Environment

S. Uchida, Y. Muramatsu, H. Yasuda*, Y. Inoue and S. Fuma
(Environmental and Toxicological Sciences Research Group)

*: Space and Particle Radiation Science Research Group

Abstract

Assessment of the radiological impacts of planned or existing practices, including the actual or potential release of radionuclides to the environment, is largely based on mathematical transport models which express the transfer processes of the released radionuclides from the sources to man.

Many parameters are used in the models. In order to improve predictions of the consequences of the released radionuclides, the transfer parameters used in the models should also be polished up. Numerous studies have been done in the environment and in the laboratories, e.g. adsorption phenomena in soil-water system, the determination of transfer factors from soils to crops and to animals, and physical and chemical properties of radionuclides.

The main objective of this research is to develop transfer models for predicting the behaviour of Cs-137, Sr-90, I-131 and H-3 in Japanese terrestrial environment and to collect relevant transfer parameters used in the models.

1. 緒言

放医研では、環境中に放出された放射性核種により、一般公衆が受ける被曝線量を推定する被曝線量評価モデルを構築するため、種々の研究が行われてきた。欧米では、既に幾つかのモデルが開発されており、それらを用いて、環境中に放出された放射性核種の挙動や、人体への移行量を計算した報告もある。しかし、環境中における放射性核種の挙動は、その環境の地域特性に依存する部分が多く、それらを考慮したモデル及び移行パラメータを設定することが重要である。

本稿では、日本の陸圏環境における放射性核種(トリチウム [T]、Sr、Cs など)の移行パラメータの収集・整備並びに移行モデルに関する調査・研究の成果についてまとめる。

2. 研究方法

本研究では、トリチウム(H-3)と他の3核種とを分けて研究を進めた。すなわち、トリチウムは、環境中での化学的挙動が他の3核種と大きく異なるため、独自のモデルを開発することとした。また、他の3核種については、最初に、土壌中での存在形態が複雑であるCs-137の移行モデルを提案し、それを他核種へ適用する際の条件を検討することにした。

モデル開発に関しては、特に、我が国の環境特性を考慮し、また、移行パラメータの収集に関しては、出来る限り日本で得られたデータの収集に努めた。具体的な研究方法は、以下で述べる「結果と考察」の章でさらに詳しく述べることにする。

3. 結果と考察

3. 1. トリチウムのパラメータおよび陸圏モデルについて

3. 1. 1. 化学形について

最初にトリチウムの陸圏モデルについてその特徴を記す。トリチウムの環境移行を考える際、その化学形が重要である。トリチウムの陸圏移行モデルの設定に際し、環境中への放出時における化学形に関する情報を収集した。その結果、

- ①: 施設からの放出は、水素ガス(HT)およびトリチウム水(HTO)が主であるが、両者の割合は施設の種類によって大きく異なること、
 - ②: しかし、HTは摂取放射能当たりの線量寄与がHTOに比べて小さいため、線量評価上は、HTOが問題となること、
 - ③: また、HTの化学形で放出されても、放出直後の大気拡散の段階で、地表に沈着したHTが直ちにHTOに変換され、その後はHTOとして挙動する、
- などが明らかになった。

したがって、本研究では、大気へのトリチウムの放出形態および環境中でのトリチウムの化学形態はHTOとし、植物体に取り込まれたHTOの一部がOBTに変化すると仮定した。

3. 1. 2 陸圏モデルの概念設計

図3-1に、本研究で開発した陸圏移行モデルの概念図を示す。本モデルにより、Tの主要な農作物への大気からの直接沈着と土壌経由の経路からの移行量を評価できる。また、気圏および水圏移行モデルと結合することにより、水産物をも含めた食品や呼吸による吸収による被曝線量を計算することが可能である。陸圏モデルでは、畜産物への移行は、ミルクと牛肉を対象とし、インヘレーションおよび飼料（牧草）からの移行を検討した。土壌、すなわち根圏域を3層に分け、各層から農作物に吸収されると仮定した。通常、水田や畑土壌などは、耕作を行うため土壌中の濃度は均一であると仮定できる。しかし、牧草や茶・果樹園などではこの仮定は採用できない。また、事故時のように播種後に放射性核種が土壌に沈着した場合なども均一と仮定することは誤差を生じる。本モデルでは、前述したように、根圏域土壌を3層とすることにより事故時における非定常なケースでも評価できることを目指したものである。また、トリチウムの化学形にも着目し、被曝線量評価上重要である有機結合トリチウム(OBT)についても、農作物摂取による人体への移行量を評価できるように配慮した。

本モデルの特徴を列記すると以下のようである。

- 1) 根圏域を3層に分割
- 2) 水田環境を考慮
- 3) 有機結合トリチウム(OBT)の移行も評価

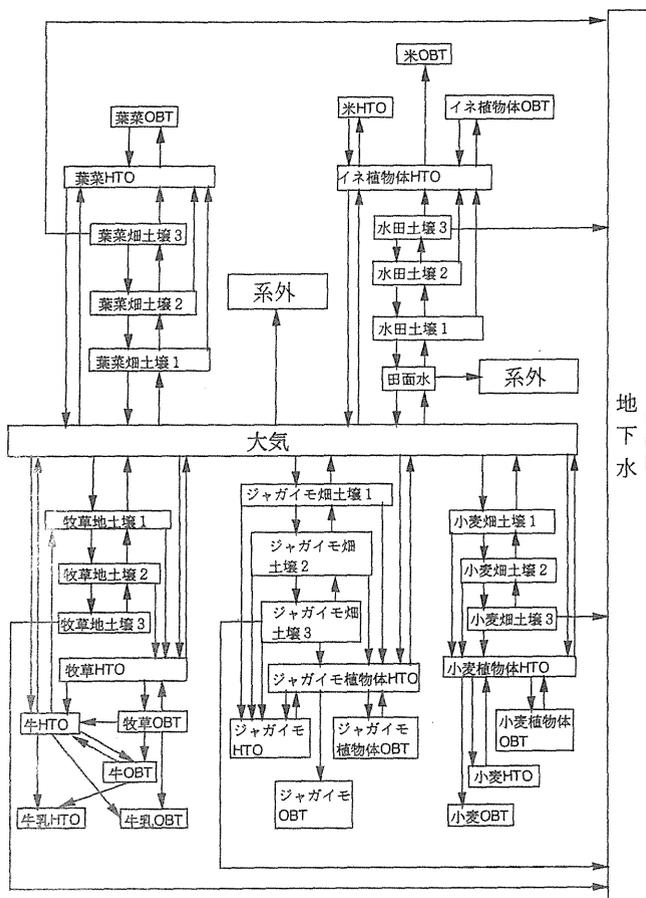


図3-1 トリチウム陸圏モデルのブロックダイアグラム

3. 1. 3 感度解析

当然、コンパートメントが多くなればパラメータも多くなり、現象を正確に記述できる反面、パラメータの精度が問題となる。モデルの中で使用されているパラメータについては、感度解析などを行い、重要なパラメータについては、さらにデータの蓄積をはかる必要がある。本特研で提案した陸圏におけるトリチウムの移行モデルを用いて行った、移行パラメータの感度解析の結果を以下に述べる。

図3-2に感度解析に用いたコンパートメントを示す。トリチウムは、前述したように、大気、土壌さらに植物中において、その化学形態が変化する。本感度解析では、HTOの化学形で大気中に放出されたトリチウムが大気-土壌-植物系の移行過程の中で、どのパラメータが最も大きい影響を与えるかを検討した。特に、植物中のHTOとOBT濃度に着目した。簡略化のため、モデル全体の中から葉菜類への移行を検討対象とした。計算結果の一例を図3-3に示す。これは、 10^9 Bqのトリチウムが大気中に放出

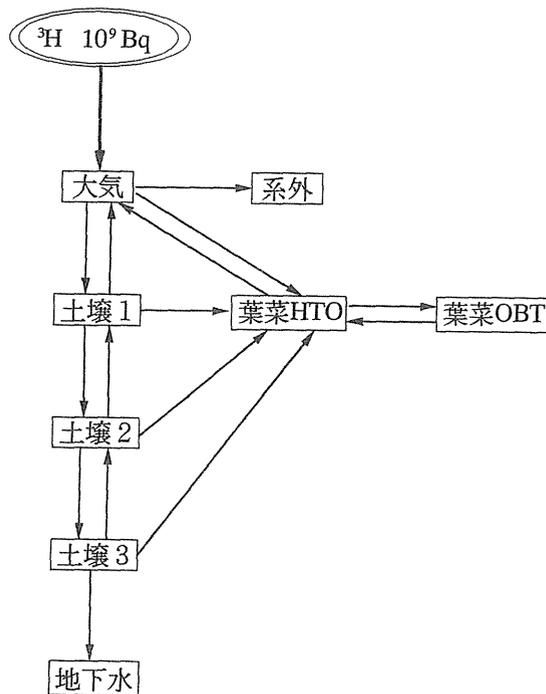


図3-2 感度解析に用いたトリチウム移行モデルのコンパートメント

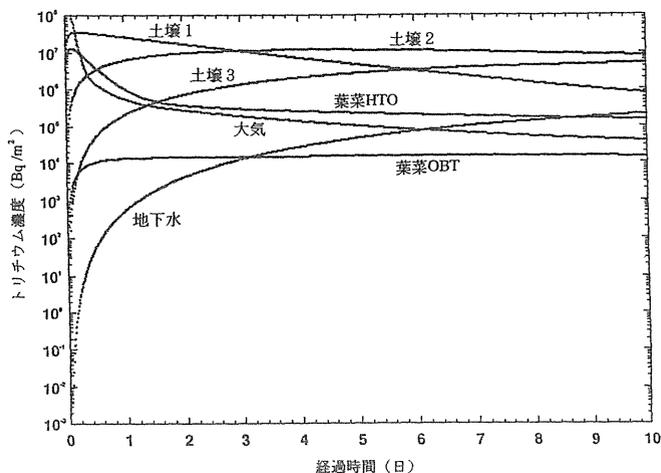


図3-3 葉菜移行モデルの計算結果の一例
[図3-2に示した各コンパートメントのトリチウム濃度変化]

されてから 10 日間までの各コンパートメント中のトリチウム濃度の経時変化を示したものである。最初に、大気中の濃度が土壌表層への沈着や系外への流出等により減少している。それに連動して、土壌表層（土壌-1：土壌コンパートメント-1）の濃度が速やかに上昇し、その後緩やかに減少している。この濃度上昇は、土壌深部（土壌-2 および 3：土壌コンパートメント-2 および 3）のそれと比較して非常に急であり、0.2 日以内にピークに達している。これは、大気からの直接沈着の寄与が大きいことを示唆している。土壌-2 の濃度は、土壌-1 を通過する時間的遅れが認められ、その濃度上昇は緩やかである。本計算結果では、だいたい 3-4 日でピークに達しており、その後、濃度はほぼ一定である。一方、土壌-3 は、さらに緩やかな濃度上昇を示し、10 日後でも上昇を続けていることが分かる。葉菜中の HTO 濃度は、大気中のそれと連動して、大気中の濃度が減少すると次第に減少してゆく。3-4 日後から減少の程度が大気中のそれより緩やかになるのは、土壌からの経根吸収による寄与のためと考えられる。それに比べて、葉菜中の OBT の濃度は、0.5 日までに平衡に達し、それ以降 10 日目までほぼ同じ濃度であった。

表 3-1 に感度解析の結果を示す。ここでは、表の一番左側に示した移行経路のパラメータを 1% 増加させた場合における葉菜中の HTO と OBT の 0.1 日後および 10 日後の濃度変化を示した。表中の数値は、対象経路の移行パラメータを 1% 増加させた結果と増加させなかった結果との相対比 (%) である。マイナスの数値は、葉菜中の HTO または OBT の濃度が減少したことを示す。

HTO の場合は、0.1 日後では、大気から葉菜への直接沈着経路が一番大きな影響を受け、また大気から系外の経路も重要であることが分かる。これ以外の経路はあまり貢

献しない。これは、大気中の濃度が敏感に反応していることを示しているものである。10 日後では、大気から系外、葉菜中の HTO から大気、および大気から土壌-1 の経路が重要であることが分かる。

これらの結果から、大気放出直後 (0.1 日) では、HTO に関しては大気から植物表面への沈着係数の、OBT では沈着係数および植物中での HTO から OBT への変換係数の感度が大きいことがわかった。一方、10 日後では、HTO に関しては、植物から大気への蒸散係数と大気から土壌への沈着係数が最も感度が大きく、次に土壌から植物への経根吸収係数が大きい。OBT に関しては、蒸散係数および変換係数の感度が大きく、土壌への沈着係数や土壌からの経根吸収係数はそれほど重要ではないことがわかった。これらの結果をまとめて図 3-4 に示す。図の (A) は HTO の、(B) は OBT の結果である。

3. 2. Cs-137 の移行パラメータおよび陸圏移行モデルについて

3. 2. 1. はじめに

Cs-137 は、核分裂収率が高く、事故時および原子力施設の安全評価において重要な核種の 1 つである。Cs は、土壌中での存在形態が時間と共に変化する事が報告されており、この Aging 効果を考慮することにより、Cs-137 の環境中での挙動をより現実的に記述する必要性が指摘されている。そこで、本研究では、土壌中におけるセシウム (Cs) の存在形態を考慮した陸圏移行モデルの構築を試みた。ここで構築されたモデルは、土壌中での存在形態が単純な正イオンと推察される Sr-90 へ容易に応用できる。

表 3-1 パラメータの変動に対する葉菜トリチウム量の感度* (短期放出の場合)

移行経路	葉菜HTOの感度		葉菜OBTの感度	
	0.1日後	10日後	0.1日後	10日後
大気→系外	-0.70	-1.0	-0.42	-0.98
大気→葉菜HTO	0.98	0.025	0.99	0.67
葉菜HTO→大気	-0.24	-1.0	-0.12	-0.99
大気→土壌1	-0.022	0.99	-0.014	0.31
土壌1→大気	0.00078	-0.53	0.00041	-0.12
土壌1→葉菜HTO	0.0070	-0.045	0.0033	0.12
土壌1→土壌2	0	0.39	0	0.051
土壌2→土壌1	0	-0.019	0	-0.0014
土壌2→葉菜HTO	0	0.43	0	0.13
土壌2→土壌3	0	-0.087	0	-0.010
土壌3→土壌2	0	0.0034	0	0.00068
土壌3→葉菜HTO	0	0.24	0	0.028
土壌3→地下水	0	-0.010	0	-0.00068
葉菜HTO→葉菜OBT	0	0	1.0	1.0
葉菜OBT→葉菜HTO	0	0	-0.00082	-0.26

*パラメータが1%変化した時の葉菜トリチウム量の%変化。

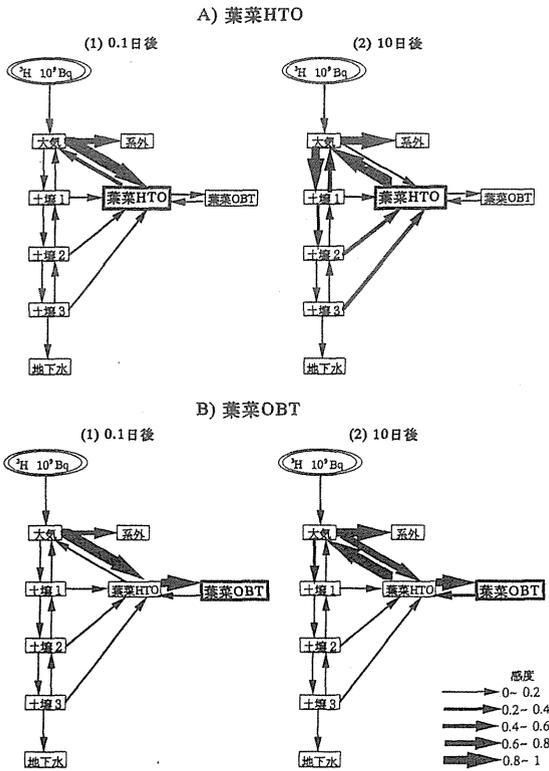


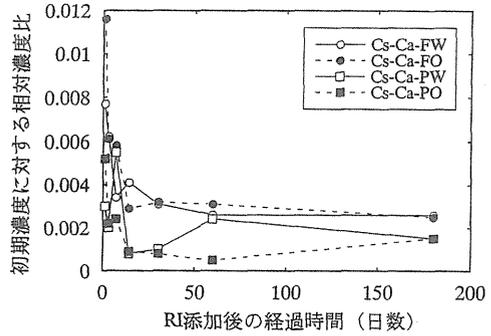
図3-4 パラメータの変動に対する葉葉中のトリチウム量の感度

3. 2. 2. Aging について

多くの放射性核種は、土壌と吸着・脱離反応を繰り返しながら土壌中を移動してゆく。また、土壌に吸着した放射性核種の一部は、植物に吸収されにくい形態になってゆく。したがって、この吸着反応をどのように扱うかは、土壌中での挙動や土壌から農作物への移行をモデル化する上で重要である。本研究では、室内実験並びに文献調査により、Cs-137の土壌中の吸着挙動、特に土壌中での存在形態に関する時間変化を検討した。その結果、土壌に添加したCsは、速やかに土壌に吸着され、0.05Mの塩化カルシウム溶液では、ほとんど抽出されない吸着形態であることが明らかとなった(図3-5)。この結果は、土壌中に添加されたCsは、土壌中を移動しがたいこと、また植物にも吸収されがたいことを意味する。過去の文献においても、土壌に添加されたCsは次第に植物に吸収されにくい形態になることが指摘されており、上記の実験結果を裏付けている。

ちなみに、Srの場合は、土壌添加の70-80%が0.05Mの塩化カルシウム溶液で抽出でき、その割合は150日経過しても変化しておらず、Agingがほとんど認められない。この結果は、Sr-90の陸圏移行モデルにおいて、土壌での吸着挙動を可逆的な反応と仮定し、1つのフラクシオンで表現できることを意味している。したがって、前述したように、Cs-137の移行モデルを作成しておけば、不要なコンパートメントを削除するか、特定の移行パラメータを0とおくことにより、Sr-90のモデルへの変換が可能である。

CaCl₂で抽出される土壌中のCsの割合



CaCl₂で抽出される土壌中のSrの割合

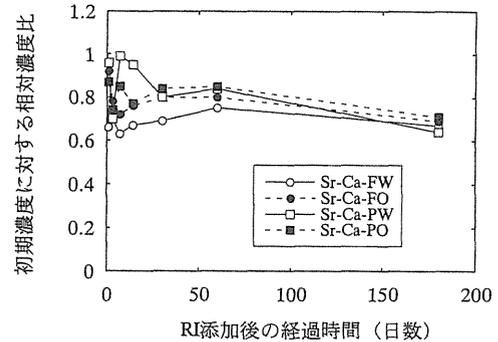


図3-5 塩化カルシウム溶液で抽出される土壌中CsおよびSrの割合

3. 2. 3. セシウムの陸圏モデルについて

これらの情報に基づき、Csの陸圏移行モデルにおいてはCsの挙動をより現実的に表せるように工夫した。これは、本モデルの大きな特徴の1つである。すなわち、土壌を2つのフラクシオンに分け、土壌中におけるCsの挙動をより詳細に記述した。第1のフラクシオンは土壌中での移動や植物への移行に寄与する易動フラクシオンであり、第2は土壌に強く吸着・固定され移動並びに移行しがたい固着フラクシオンである。

Cs-137のモデルの陸圏全体の構成は、図3-1に示したものとほぼ同様である。すなわち、大気、土壌、農作物、かんがい水等のコンパートメントから成り、土壌は3層から構成されている。さらに、各土層は、前述したように2つのフラクシオンに分けられている。ここでは、Csの移行モデルの特徴がよく分かるように、Csのモデルの中で、大気-水田土壌-水稲系の移行を記述した部分を取り上げる。それを図3-6に示す。水田土壌中では、トリチウムと同様、根圏域土層を3層に分け、各層毎に可逆的フラクシオンおよび非可逆的フラクシオンの2つのコンパートメントから成るとした。大気中のCs-137は、最初にこの可逆的フラクシオン-Aに入り、その後、一部がさらにより深い可逆的フラクシオン-Bに浸透して行くと共に、非可逆的フラクシオン-Aにも入ってゆく。非可逆的フラクシオンの間は、核種は移行しない。すなわち、根圏域土壌におけるCsの移動はすべて可逆的フラクシオンの間で行われる。

後述するシミュレーションにおいては、土層3層の各層

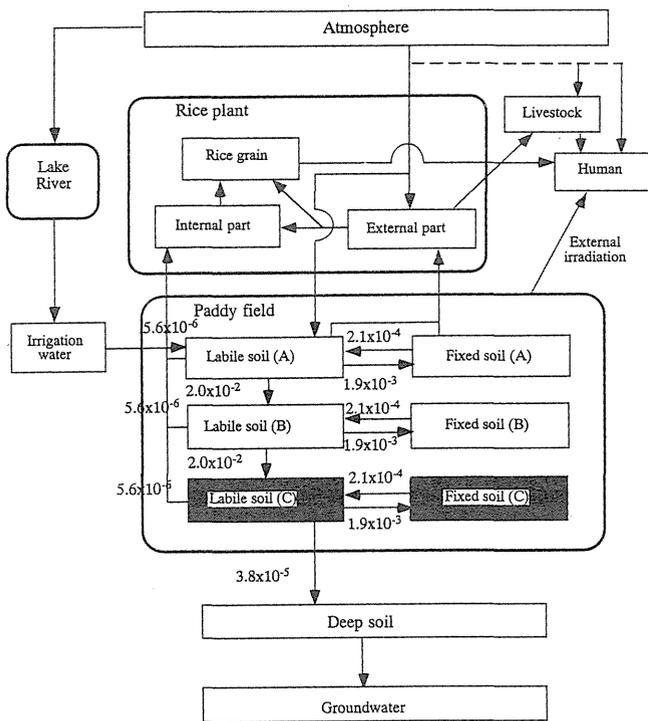


図3-6 Csの陸圏移行モデルの概念図(水稲への移行)
(大気-水田-土壌-水稲系)

毎の可逆的フラクションと非可逆的フラクション間でのCsの移動係数は3層すべて同じと仮定した。しかし、実際には、根圏域の下層が上層とは異なった土壌特性を有するようなケースも多い。本モデルでは、その移動係数として各土壌の特性を有するものを用いることにより、そのような状況でも再現可能である。

水稲への移行は、土層3層の可逆的フラクションから経根吸収されると仮定した。また、水稲では、吸収を内部と外部の2つに分け、経根吸収は内部吸収であり、その一部が米へ転流する。一方、葉面付着・沈着は外部吸収とし、外部吸収された核種は内部吸収経路に転流し、米へ移行すると仮定した。また、モデルでは、稲藁を家畜の餌とする場合を考慮して、その経路も付け加えてある。日本では一般的にこの経路は考慮する必要はないが、ある特定の地域や集団では無視できない可能性もある。

畑作物の中では、葉菜類が重要である。大気からの直接沈着経路の場合も、土壌からの経根吸収経路の場合も、ともに移行しやすいことが報告されている。果菜類および根菜類への移行は、葉菜類ほど大きくはない。

3. 2. 4. 主要移行パラメータの変動および分布

1) 分配係数(K_d)の変動および分布

人体への移行を考えた場合、表層土壌での挙動は、農作物への移行や地下水への混入等に直接・間接的に関係するため重要である。この土壌中での核種の易動性すなわち、移動の程度を表すパラメータが、「分配係数(K_d)」であり、本研究はこのK_dに着目し、既存の報告値を集めるとともに、わが国ではほとんど得られていない農耕土壌について、試料を全国から収集し、Sr、Cs、Co、MnおよびZn等のK_dを実験的に求めてきた。

図3-7は、水田および畑土(それぞれ18種類、合計36種類)のK_d値(SrおよびCs)について、その分布

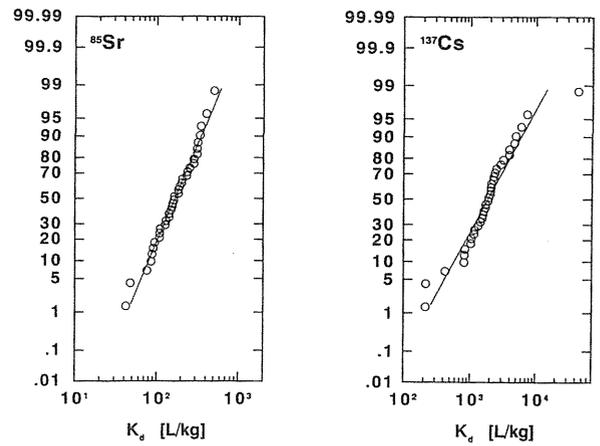


図3-7 SrおよびCsの分配係数(K_d)の分布
(水田および畑土壌、それぞれ18種類、合計36種類)

を検討したものである。その分布は、2核種とも対数正規分布で近似できることが分かった。環境移行の詳細モデルを開発する上で、重要なことの1つは、移行パラメータの精度である。しかし、モデルに用いられているパラメータ全てを精度良く求めることは困難であり、現実的には重要なパラメータを優先せざるを得ない。どれが、重要なパラメータであるかを調べる際に、感度解析を行うが、そのとき各パラメータの分布パターンが分かっているならば、かなり現実的な結果が得られる。したがって、重要な環境移行パラメータの1つであるK_dの分布を求めておくことは重要である。ちなみに、ZnやCoも同様に対数正規分布を示したが、Mnについては、正規、対数正規どちらでも近似できない結果となった。この原因については、土壌微生物の影響ではないかと考えており、現在、実験的検討を進めている。

SrのK_d値は、数十から500であり、他の核種に比べて有意に小さくなっている。Csの幾何平均値は約1850であった。得られたK_d値と土壌の物理・化学的特性[陽イオン交換容量(CEC)、交換性Ca、交換性K等]との相関についても検討した。その結果、イオン交換能に関与すると考えられる特性がK_dと強い正の相関を示した。ただし、最も高い相関が見られる特性は、核種により異なる。Srについては、これまで農耕地以外の土壌について報告されてきたようにCECとの相関が高いという結果が得られた。これは、農耕土に多く含まれる有機物への吸着もイオン交換反応であることを示唆するものであると思われる。一方、Csについては、特に高い相関を示す成分は無かった。最も高い相関を示したのは交換性Kとであり、相関係数は0.44である。これは、Csの吸着メカニズムが単純なイオン交換反応ではないことを示唆している。

2) 移行係数(TF)の変動および分布

移行係数(TF)は、土壌から農作物可食部への放射性核種の移行量を予測するためのパラメータである。残念ながら、我が国では統計解析が可能なほどデータが集まっていない。ここでは、IUR(国際放射生態学連合)が作成している移行係数のデータベースを用いて、種々の解析を行った。このデータベースは、移行係数値だけではなく、

実験条件なども詳細に記述してあるため、種々の統計解析が可能である。本研究では、Cs-137のTFについて、土壌の種類、フィールド実験とライシメータ・ポット実験との違い、洗浄の有無などについて作物種毎に検討した。その結果を要約すると、各作物の移行係数は、ほぼ対数正規分布を示し(図3-8)、その変動は2-4オーダーに及び、幾何標準偏差は0.59-0.76となった。土壌pHと移行係数との直接的な相関関係は認められなかった。また、土壌種を区分することにより、移行係数の不確実性を低減化できることが示唆された。

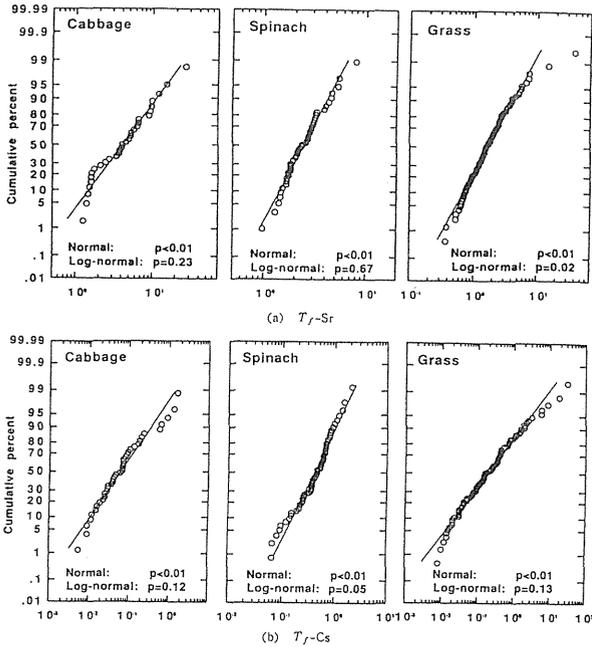


図3-8 移行係数 (Tf) 値の確率分布

IAEAがIURの協力によりまとめたパラメータ集 (IAEA Technical Report Series No.364) には、核種毎のTFが幾つかの代表的な作物種別にまとめられている。これらのデータは主としてヨーロッパで得られたものであり、現在IAEAとFAOが中心となって、熱帯・亜熱帯地域における移行係数をまとめつつある。(IAEAのテクニカルドキュメントとして出版されることになっている。) これまで、放医研の環境特別研究等で得られた我が国のデータもその中に含まれる予定である。

3. 2. 5. 感度解析

本研究において構築したセシウムの陸圏移行モデルを用いて、移行パラメータの感度解析を行った。感度解析では、瞬間的な大気放出を仮定して、主として水稻への移行に及ぼす各パラメータの影響を検討した。その結果、大気から水稻への直接沈着に関するパラメータと、大気から土壌表層の可逆的吸着領域への沈着率が米への移行に大きな影響を及ぼすこと(図3-9、図3-10)、土壌の非可逆的吸着領域への移行パラメータはそれほど大きな影響を及ぼさないこと等が示された。ただし、大気放出後から1年間の環境移行を検討した場合と、数年にわたる移行を検討した場合は、パラメータの感度が異なる可能性があり、モデルの改良も含めて、今後さらに検討が必要である。

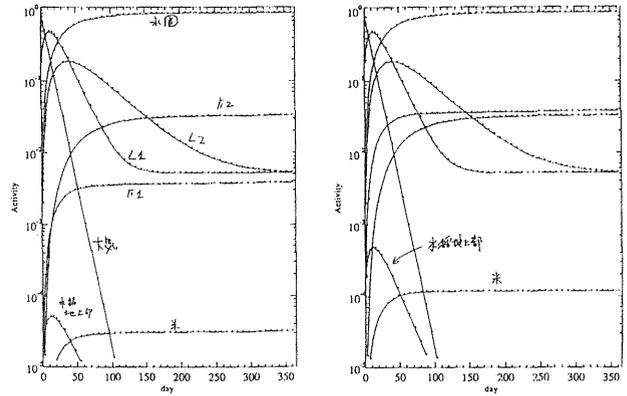


図3-9 パラメータ感度解析の結果
(大気から水稻地上部への沈着量を十倍にした場合)

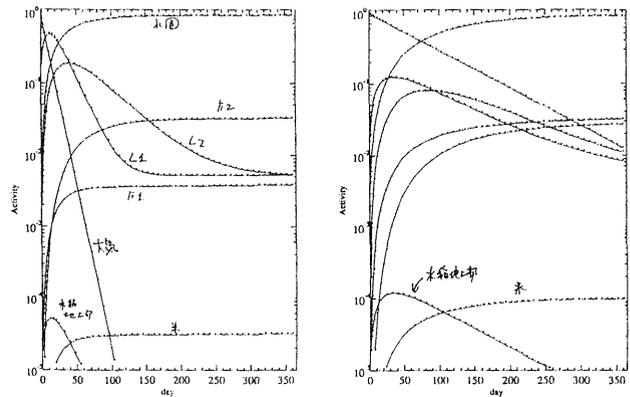


図3-10 パラメータ感度解析の結果
(大気から土壌表層の可逆的吸着領域への沈着量を十倍にした場合)

4. 今後の課題

これまで、前環境特別研究などを通じて得られた移行パラメータやフォールアウトのデータを収集し、本モデル開発に必要なパラメータを整備した。さらに本特別研究において、他の研究グループ(気圏、水圏および人体)と協力して、共通に使用できるパラメータのデータベースを作成してきた。今後の課題として、パラメータの空間的・時間的変動を定量化することを念頭に、評価対象とする場において系統的にデータを収集していく必要がある。

[研究発表]

トリチウム関連の研究発表

- 1) 久松*, 滝沢*, 井上: 日本放射線影響学会第36回大会, 広島, 1993.10. (*: 秋田大)
- 2) Inoue, Y., Fuma, S.: Proceeding of the 4th Low Level Counting Conference Using Liquid Scintillation Analysis, 111-117, Tokyo, 1994.
- 3) Hisamatsu, S., Inoue, Y., Takizawa, Y.*: *J. Radiat. Res.*, 35, 112-115, 1994. (*秋田大)
- 4) 井上, 府馬, 安達*: 日本保健物理学会第29回研究発表会, 敦賀, 1994.5. (*東邦大)
- 5) Fuma, S., Inoue, Y.: *Appl. Radiat. Isot.*, 46, 991-997, 1995.

- 6) Hisamatsu, S. *, Inoue, Y., et al. : *Health Phys.*, **68**, 499-502, 1995. (*秋田大)
- 7) 井上 : 日本分析センター広報, **25**, 34-42, 1994.
- 8) 井上, 武田, 宮本, 府馬, 他 : 第1回核融合エネルギー連合講演会, 京都, 1995. 12.
- 9) 久松¹, 井上, 滝澤² : 第1回核融合エネルギー連合講演会, 京都, 1995. 12.
(¹秋田大, ²国立水俣病研究センター)
- Cs, Sr, ヨウ素関連の研究発表
- 1) 保田, 他 : *Radioisotopes*, **41**, 343-349, 1992.
- 2) 保田, 他 : 保健物理, **27**, 123-134, 1992.
- 3) 保田, 井上 : 保健物理, **27**, 295-303, 1992.
- 4) Yasuda, H., Uchida, S. : *Environ. Sci. Technol.*, **27**, 2462-2465, 1993.
- 5) 保田, 内田 : 保健物理, **28**, 413-419, 1993.
- 6) Yasuda, H. : *Water Air Soil Pollut.*, **75**, 421-427, 1994.
- 7) Yasuda, H., Uchida, S. : *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**, 1308-1313, 1994.
- 8) Yasuda, H. : *Environ. Technol.*, **16**, 197-200, 1995.
- 9) Yasuda, H., Uchida, S. : *J. Health Phys.*, **30**, 15-18, 1995.
- 10) Yasuda, H., Uchida, S. : Environmental Impact of Radioactive Releases (IAEA-SM-339), 259-267, 1995.
- 11) Yasuda, H., Uchida, S., Muramatsu, Y., Yoshida, S. : *Water Air Soil Pollut.*, **83**, 85-96, 1995.
- 12) Yasuda, H. : *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 1272-1283, 1995.
- 13) Yasuda, H. : *J. Nucl. Sci. Technol.*, **33**, 166-170, 1996.
- 14) Yasuda, H., Ambe, S. *, Uchida, S. : *Environ. Technol.*, **17**, 1151-1154, 1996. (*RIKEN)
- 15) 内田 : 日本分析センター広報, **27**, 44-52, 1995.
- 16) 内田, 保田, 他 : JAERI-Review, 95-009, 1995.
- 17) Uchida, S., Tagami, K. : International Conference on Radiation Dosimetry and Safety, Taipei, Taiwan, 1997. 3.
- 18) Yoshida, S., Muramatsu, Y., Uchida, S. : *Radioisotopes*, **44**, 837-845, 1995.
- 19) Muramatsu, Y., Uchida, S., Sumiya, M., Ohmomo, Y. : *Health Phys.*, **71**, 757-762, 1996.
- 20) Tagami, K., Uchida, S. : *Toxicol. Environ. Chem.*, **8**, 1-13, 1996.
- 21) Tagami, K., Uchida, S. : Eco-informa'96 (4th International Conference on Global Networks for Environmental Information), Lake Buena Vista, Florida, USA, 1996. 11.

I-4 淡水及び汽水を含む水圏における移行パラメータとモデルに関する研究

中村良一*、中原元和*、石井紀明*、松葉満江*、渡部輝久*、木村健一**、鈴木譲***、宮本霧子****
(*那珂湊放射生態学研究センター、**環境衛生研究部(平成5~8年度)、
海洋生物環境研究所、*第4研究グループ)

Derivation of the Parameter Values to be Used in a Compartmentalized Model for Describing the Transfer of Radionuclides in the Aquatic Environment Including the Fresh, Brackish and Seawater Bodies.

Ryoichi Nakamura*, Motokazu Nakahara*, Toshiaki Ishii*, Mitsue Matsuba*, Teruhisa Watabe*, Kenichi Kimura**, Yuzuru Suzuki***, Kiriko Miyamoto****
(*Laboratory for Radioecology, NIRS, **Division of Environmental Health, ***Marine Ecology Research Institute, ****Environmental and Toxicological sciences Research)

Abstract

In the pathways through that radionuclides, which released into environment, reach the men to cause the internal irradiation, transfer routes in the hydrosphere may be much complicated but important subjects to be investigated. Therefore, a compartment model containing more than fifty compartments, was developed for the precise simulation of aquatic transfer of the radioactive Sr, Cs and I. For ^3H , the proper nine-box compartment model was derived from the global scale seven-box model proposed by NCRP,

considering Japanese geographical and geological conditions. Furthermore, the tritium metabolism of aquatic plant, invertebrate and fish was taken into consideration. The compartments for these organisms were divided into two sub-compartments for tissue free water tritium(TFWT) and for organically bound tritium(OBT). Database of transfer coefficients for used in the models were composed of data from literatures and from original results by the present experiments.

① ^{137}Cs , ^{90}Sr および ^{131}I の水圏における移行

中村良一*、中原元和*、石井紀明*、松葉満江*、渡部輝久*、木村健一**、鈴木譲***
(*那珂湊放射生態学研究センター、**環境衛生研究部(平成5~8年度)、***海洋生物環境研究所)

Transfer Models for ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^{131}I in the Aquatic Environment

Ryoichi Nakamura*, Motokazu Nakahara*, Toshiaki Ishii*, Mitsue Matsuba*, Teruhisa Watabe*, Kenichi Kimura**, Yuzuru Suzuki***
(*Laboratory for Radioecology, NIRS, **Division of Environmental Health, ***Marine Ecology Research Institute)

[モデル]

Abstract

The behavior of radionuclides in the aquatic environment was reviewed in order to set up a so-called compartmentalized model to be associated with a comprehensive calculational system of the assessment of radiation dose of the public. The review included not

only the dispersion of radionuclides within the waterbodies itself, but also the phenomena intervening in the interface between the soil and aquatic environment as well as those of the bioaccumulation of radionuclides in the aquatic environment. The discussion focused on the methodology how to derive numerically the values for the transfer parameters defined in the model, and the parameter values were

tentatively derived for Ibaraki Prefecture as a case study. Stress should be directed to the importance of preparation of a database on statistics on the socioeconomical situations such as population, water supply, agriculture products, dairy products, fishery products, etc. as well as the natural circumstances such as geographical features, climatic conditions, etc. of the region of concern.

Accumulation of more detailed information especially on the 'Distribution Factor' defined as radioactivity concentration in soil (suspended materials or sediments in a water body) vs. that in solution and 'Bioaccumulation Factor' (Concentration Factor) would be required so that the parameter values specific to the situation composed of a diversity of both species of organisms and the geological features could be derived, although much information had been so far available.

緒言

本小課題は、線量評価モデルにおける淡水、汽水、海洋を含む水圏での放射性物質動態の位置づけを明らかにし、³Hおよび放射性 Sr、Cs、I の水圏環境移行に関与するデータを収集・整理し、計算に用いられるパラメータ値(移行係数)を決定することを目標としている。本評価モデルでは放出源を任意の圏に仮定できることを目指しており、パラメータの設定には水圏以外の他の環境媒体である気圏、陸圏、人体(圏)との間の移行についても一貫性が保たれることが求められている。

水圏における放射性物質の移行は、第一義的には水圏の水の流動に付随して起こる。したがって、水圏を構成する要素(コンパートメント)間の移行係数は、それぞれのコンパートメントの水の流出入量(回転率、交換率)に支配される場合が多い。このとき放射性物質の動きは、接する土壌圏との吸着や吸収、生物圏への吸収や濃縮による水の動きからのずれで表現されるのが一般である。しかし、膨大な量の水の動態を克明に把握することはすべての場合に可能であるとは限らない。また時空間的に離散的で、あるいは概念的なサブコンパートメントではあってもその存在が経験的に認識され被曝線量評価の面からは設定が必須である場合などもあり、このような回転率、交換率を決定することが意味をなさないこともあり得る。海洋を表層と深層に概念的に区分し、その両者で放射性物質濃度が測定されている場合などがこの状況に該当すると考えられる。このような場合には、後者のコンパートメントとして前者との濃度関係に対応した放射性物質が「湧出」する仮想的なものを想定することによって両者の関係を表現する等の工夫も必要である。

水圏におけるコンパートメント間の水の流出入は評価対象地点に固有の特性値と考えられ、降雨降雪等の気象条件、地理的条件に影響される。したがって、評価対象地点を特定しなければこれら移行係数を決定し得ないものである。また、水圏から生物圏への放射性物質の移行に関しても評

価対象地点に固有の農畜産物・水産物生産態様があり、対象地点を特定して始めて移行係数を決定できる場合もある。気象条件や地理的条件、農畜産物・水産物生産態様などの点に関して共通の条件を有する空間的な「範囲」を設定することが本課題の最初に必要な作業である。

ここでは、茨城県を評価対象地点とし、想定される水圏構成コンパートメント間の移行係数を誘導することを試みる。なお、水圏を構成するコンパートメントは、基本的には核種間で共通であり、パラメータ値の設定に関しては放射性 Sr、Cs、I についてまとめて議論を進めていくこととする。

研究方法

1. 線量評価対象単位

茨城県では、久慈川、那珂川、利根川の一級河川が多く、の市町村を流域としながら太平洋に注いでいる。また、霞ヶ浦、北浦および溜沼等の生産力の高い湖沼を有するとともに186kmにわたる海岸線には数多くの漁港が存在し高い漁業生産をあげるなど、淡水圏から汽水、海水圏まで多様な水圏環境を有している。線量評価においては放出源と被ばく者との間の位置関係を明確にすることが重要であり、地理・地形上の特徴から水圏環境が放射性物質移行への関与を考慮する必要がある。たとえば放射性物質が河川を流下する場合、一般的には放射性物質は上流より下流にもたらされ、その逆を考えることは困難である。このような因果関係が線量評価に反映されなければならぬことは自明のことである。線量評価における水圏の重要性は、特に農畜産業、水産業などの第一次生産や飲料水としての利用と密接に関連している。農畜産物や水産物の生産量、農業用水や上水としての水系の利用状況等は、放射性物質の環境移行に関わるパラメータの誘導に必要な情報であるが、これらの資料は、都道府県、および市区町村等の行政単位で得られるのが通常である。これらの行政単位は地理上の位置づけも明確であり、その中では農業用水の利用や流通等において共通の生産基盤のもとでの生産活動が行われ、共通の生活様式での生活が営まれていると考えることができる。ここでは茨城県の市町村を評価の単位としてパラメータ値の誘導を試みる。

2. 水圏を構成するコンパートメントの設定

水圏を構成する「コンパートメント」には河川や湖沼、海洋などのように地理・地学的な観点から一つの単位とみなすことができる現実と対応した空間的な区分と、「地下水」や河川の上流・下流、海洋の沿岸・遠洋などのように境界が必ずしも明確ではなく概念的な範囲というべきものが含まれる。前者においてはコンパートメント(の大きさや範囲)を時間空間的に定量的に定義することが比較的容易な場合が多いが、後者にあってはそれはほとんど困難である。たとえば、浅層地下水や深層地下水、あるいは沿岸海洋や遠洋海洋の大きさを決定することは不可能ではないにしても他のコンパートメントと同様の精度で大きさを決定することは困難である。

前項で述べたとおり本研究では市町村等の行政区分を線

量評価の単位、あるいはパラメータ値誘導のための単位と考えている。これらの市町村はいずれかの河川系との関係を持っており、農業用水や上水の供給を受け、農業用水や生活用水を河川に排水することによってさらに下流の市町村とも関係を持つことになる。また、各市町村においては、水圏と接する土壌圏、生物圏、人体圏に含まれるコンパートメント間で放射性物質の移動があり、これらの因果関係を含めたコンパートメントの設定が必要となる。一方、農畜産物生産や住民の被ばく態様は各市町村で独立であるが、水系を通じて市町村間の放射性物質移行があると見ることもできる。これらの関係を図示すると図1のとおりである。

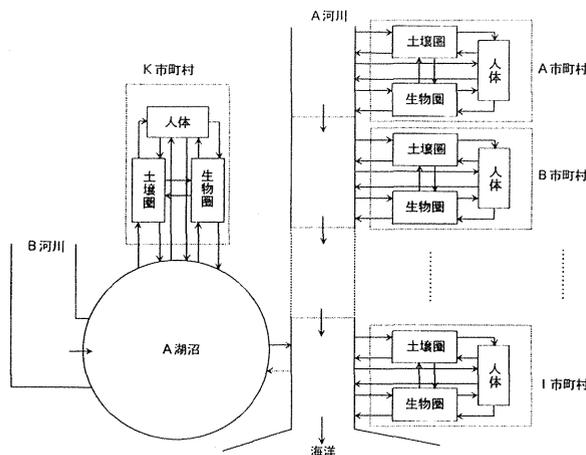


図1 放射性物質の水系を通じた移行の概念図

3. パラメータ値の誘導法

コンパートメントモデルにおけるコンパートメント間の移行係数は、移行元コンパートメントにおいて放射性物質が一樣に分布するとし、その全量に対する単位時間における移行先への流出量の割合で示される。これらの全量、流出量を定量的に表現することは必ずしも容易ではなく、水圏においては水の流動や放射性物質の環境移行に関する知識を基に多くの仮定のうえでの推測によらざるを得ない。茨城県の市町村の多くは、地理上の位置から上述の3河川との関連を想定することが可能である。河川流域に位置する市町村からは降水が河川に排水される。この河川流量に対する各市町村からの排水の寄与は、地形や土地利用に基づく土地表面の状態や地下浸透のしやすさにより表面流出は異なるものの、基本的には流域全体の受ける降水量に対する各市町村の降水量の比で表すことができる。河川流量や流域面積、あるいは市町村面積等に関しては統計がとられており、これらの統計量からパラメータ値の推定が可能である。また、各市町村においては主として第一次生産活動に伴って土壌、水等環境媒体から農畜産物等の生物圏に放射性物質が移動するとした。放射性物質の土壌から農作物への移行は、単位乾燥重量あたりの土壌中放射性物質濃度に対する単位湿重量あたりの農作物中濃度で表される。したがって土壌の放射能汚染を単位面積あたりの降下密度で与えられたとき、農作物根圏域土壌の面密度、農作物栽培面積、およびある期間での収穫量を知れば、土壌コンパートメントから農作物コンパートメントへの放射性物質の

移行パラメータが得られることになる。これらの場合のように各コンパートメントに付帯する条件や様々な仮定を設定することにより統計値からパラメータ値の誘導が可能であることが多く、各種の統計値を収集することが本課題遂行に必要なものである。このとき放射性物質の水の流動からのずれを表す指標として重要なものは、土壌溶液における土壌粒子と土壌水との間の放射性物質の分配係数、河川、湖沼水における水と懸濁粒子間における放射性物質の分配係数、および、農畜産物や水生生物による放射性物質の濃縮係数である。移行係数値誘導に際するこれら係数の取り扱い方については個々のコンパートメント間で異なることが予想され、それぞれの場合において最適な方策が講じられる必要がある。

結果と考察

1. 土壌圏より水圏への移行

1. 1. 降水の地表流出

河川の流況は、降雨・降雪等によって影響を受け、これら気象条件には、大きな年変動を伴う。しかし、気象条件は1年を単位として周期的であり、平均的・長期的には、それぞれの河川で特徴のある流況を示す。河川の流況に関する特性は、洪水管理、あるいは利水管理や水質管理を目的として所轄省庁・自治体等で調査され、調査結果が公表されている。これらのうち、日平均流量を大きさの順に並べた形で表された流況曲線は、利水管理の見地から重要であり、各河川に特徴的であると考えられる。通常次のように分類された量が報告されている。

- ①最大流量($m^3/秒$ 、以下すべて $m^3/秒$ で表示)、
- ②豊水量(年間95日は利用し得る流量)、
- ③平水量(年間185日は利用し得る流量)、
- ④低水量(年間275日は利用し得る流量)、
- ⑤渇水量(年間355日は利用し得る流量)、および、
- ⑥最小流量、

等である。

流況曲線では、流量の大きな日数は比較的少なく一年のうち的大部分は大きな変化のないほぼ一定の流量を示すのが一般的である。河川流量は流域の湿潤状態に対応しており、流況曲線は流域の飽和状態から乾燥状態に至る流域特有の湿潤状態の経時的な変化を反映していると考えられる。このように流況曲線は飽和状態の流域からの水の流出速度と同義とみなすと、速やかな減少は半減期が約数10日程度であり、緩やかなものは100日程度とすることができる。ここでは、河川流況曲線を用いて、流域の降水の保留状態をモデル化し、地表流出、地下浸透に関するパラメータを得ることを試みる。

降水の流出を表すモデルとしてタンクモデルが広く受け入れられている。タンクモデルは、流域を幾段かのタンクの積み重ねと考え、タンクに1個以上の横穴と1個の底穴を設け、横穴からの流出は河川流出に、底穴からの流出を地下深層への浸透になぞらえるものである。流出速度は穴上部の水位に比例するとし、横穴に複数個のものを設定することによって、現実に観察される非線形的流出を表し得

るとしている。ここでは、流況曲線が2つの成分からなっていることから、流域は2つのタンクからなるものと仮定してタンクの容量(流域の降水保留量)とタンクからの流出(流域からの流出)速度を求める。ただし、流出には線形関係を仮定し、図2のように第1段目のタンクには横穴が1つだけついているものとする。

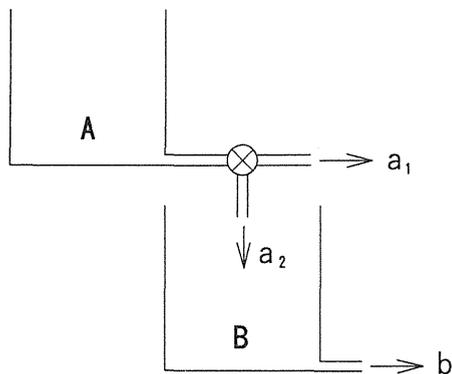


図2 タンクモデルの概念図
a₁、a₂ および b : 流出速度定数

流域が飽和の湿潤状態、すなわち t=0(最大流量時)のときのタンクA、およびタンクBの水量(保留量)をそれぞれ V₀^A、V₀^B とすると、時間 t におけるタンクA、およびタンクBの保留量 V_A、V_B は、次のように表される。

$$\frac{dV_A}{dt} = -(a_1 + a_2) \cdot V_A \quad \text{および} \quad \frac{dV_B}{dt} = a_2 \cdot V_A - b \cdot V_B \quad (1)$$

これらを解くと、

$$V_A = V_0^A \cdot e^{-(a_1+a_2)t}$$

$$V_B = \frac{a_2 \cdot V_0^A}{b - (a_1 + a_2)} e^{-(a_1+a_2)t} + \left\{ V_0^B - \frac{a_2 \cdot V_0^B}{b - (a_1 + a_2)} \right\} e^{-bt} \quad (2)$$

が得られる。流況曲線は、したがって、

$$S_t = a_1 \cdot V_A + b \cdot V_B$$

$$= \left\{ a_1 \cdot V_0^A + \frac{a_2 \cdot b \cdot V_0^A}{b - (a_1 + a_2)} \right\} e^{-(a_1+a_2)t} + \left\{ b \cdot V_0^B - \frac{a_2 \cdot b \cdot V_0^B}{b - (a_1 + a_2)} \right\} e^{-bt} \quad (3)$$

と表すことができる。

流況曲線 ($S_t = Ae^{at} + Be^{bt}$) を構成する4つの係数 a、b、A、B は、流況に関する6つの報告値から最小自乗法を用いて決定することができる。表1には、1991年の資料¹⁾を基に誘導したこれら4つの係数を含む茨城県における主要河川の流況を示した。ところで流況曲線の近似式から3つの速度定数と2つのタンクの初期値を求めることはできない。しかし、地表流出と地下浸透の比を河川流況に一致するように推定することは可能である。ここでは、最も簡便(極端)な考え方として a₂ を無視し、降水のあったときに地表および地下のコンパートメントに上で表した流況曲線のそれぞれの項の係数の比で分配されると仮定して議論を進めることとする。すなわち、降水のうち A/(A+B) の割合は地表に、B/(A+B) の割合は地下に浸透するものとする。

表1 茨城県一級河川の流況[†]

河川	流域面積 (km ²)	5ヶ年平均流量(S62~H3)							A (m ³ /sec)	B (m ³ /sec)	a (1/日)	b (1/日)
		最大 (m ³ /秒)	豊水 (m ³ /秒)	平水 (m ³ /秒)	低水 (m ³ /秒)	渇水 (m ³ /秒)	最小 (m ³ /秒)	年平均 (m ³ /秒)				
利根川	16840	3960.06	284.48	150	91.21	62.52	45.39	248.73	3524.54	435.52	-0.0502	-0.0058
鬼怒川	1760.1	1434	75.63	42.69	32.92	17.4	13.42	76.53	1316.45	117.55	-0.0612	-0.0053
小貝川	1043	476.59	25.09	14.25	8.53	4.86	3.71	24.61	432.64	43.95	-0.0772	-0.0061
那珂川	3270	2127.66	95.86	58.95	37.4	24.09	18.14	88.16	1973.95	153.71	-0.0760	-0.0052
久慈川	1490	1735.83	43.07	27.9	20.53	13.98	9.73	45.76	1678.12	57.71	-0.0670	-0.0039

※:茨城県をモデルケースとしたため、以下の図表中で地域に関するデータは可能な限り茨城関連のものを用いた。

1. 2. 地表から河川系への流出

地表に降下した放射性物質は、降水に伴って河川等の水系に排出される。一般にある地点について降水が排出される先の河川等の水系は定まっており、またどの地点においても降水はいずれかの水系に排出されると考えられる。河川系が排水を集める地域は地形図から推定することができる。一例として茨城県において市町村を地域の単位とみな

したとき各市町村と河川系は図3のように関係づけることが可能である。降水の地表からの排水強度はその土地の傾斜や利用形態によって異なると考えられる。しかし、この排水強度には傾斜・土地利用形態依存性がないと仮定した場合、河川流量に対する各市町村からの排水の寄与は降水量で正規化した各市町村面積の全流域面積に対する寄与で表すことができる。すなわち、全降水量 R_T、流域面積 S_T

の河川流量に対する降水量 R_i 、面積 S_i の市町村からの排水の寄与 r_{Fi} は：

$$r_{Fi} = \frac{R_i \cdot S_i}{R_T \cdot S_T} \quad (4)$$

である。(4)式が成立するとき、茨城各市町村からの排水の河川流量に対する寄与は図3中の数字のとおりである。ただし、図では降水量による正規化を考慮していない。

地表に沈着した放射性物質は、過去の大気圏における核爆発実験や旧ソ連邦の原子力発電所事故の例に見るように一部の核種を除き土壌粒子等に吸着し粒子状放射性物質としての性質を示す。降水が河川系へ流出するとき地表表面の土壌粒子や粘土鉱物の洗い出しを引き起こす。河川水中の浮遊懸濁物質はこれらの土壌粒子や粘土鉱物に起源し、地表に沈着した放射性物質もそれらとともに洗い出しを受けると想像される。河川水中の浮遊懸濁物質の起源となる土壌粒子、粘土鉱物も降水の場合と同様に河川流域各地域から降水量で正規化した地域面積の寄与にしたがって洗い出されることができる。したがって、放射性物質が D_i (unit/L²) の降下密度で沈着した市町村から洗い出され

で表すことができる。対象とする市町村に沈着した放射性物質の総量に対する河川へ流出する割合(年間)は、したがって：

$$R_i/R_T \times F_{SS}/(S_i \cdot \rho_v) \quad (6)$$

となり、降水量が一樣ならば流域で流出率は一定である。河川水中の浮遊懸濁物質濃度は、茨城県の一級河川、那珂川、久慈川、および利根川の下流の例では、昭和62年から平成3年までの5年間の平均で、それぞれ、9.2、11.7、21ppm が報告されている¹⁾。すなわち、それぞれの河川の平均流量、88.16、45.76、および248.73m³/秒を乗じると、年間、それぞれ、 2.56×10^4 、 1.69×10^4 、 1.65×10^5 t に及ぶ量が海洋環境に放出されたと見積もることができる。陸圏に放射性物質が放出されたとき、耕作地においては土壌表層が耕耘されることによって放射性物質は耕耘深度まで均一に分布することになる。原野、山林や都市部など非耕作地では土壌表層の攪乱はないが、おしなべて土壌圏の上層15cmに放射性物質が均一に分布し河川水浮遊懸濁物の起源に関与すると仮定すると、上記の三河川流域で年間、それぞれ、 7.83×10^{-5} 、 1.14×10^{-4} 、 5.22×10^{-5} に相当する量(沈着した放射性物質についても同量)が河川に洗い出されることになる。ただし、土壌上層15cmの面密度を100kg/m²と仮定した。これらの値が移行係数マトリックス上で土壌圏から河川への移行係数を決定する際の基本的なものとなる。

1. 3. 深層土壌への移行

地表に沈着した放射性物質は、農耕地においては耕耘深度に均一に分布するが、一部分は土壌粒子との間での吸着・脱着反応を起こしながら地下浸透する水とともに根圏域より深部の土壌に移行する。いま、放射性物質が沈着密度 D (unit/L²) で地表に沈着したとき、単位面積あたり年間 V_{pen} (L/T) の降雨の浸透による深部土壌への移行による根圏域の濃度の減少は、耕耘深度 L 、深度 L で評価した土壌の面密度を ρ_v (W/L²)、土壌水分含有量を θ 、土壌水分中放射性物質濃度を C_{SOLW} (unit/L³)、土壌固相中の濃度 C_{SSOL} (unit/W)、土壌の水相と固相の間での放射性物質の分配係数を K_d (W/L³) とすると次式によって表すことができる。

$$\frac{dD}{dt} = -\frac{V_{pen}}{L \cdot \theta} C_{SOLW} \quad (7)$$

定義により次式が得られ：

$$C_{SSOL} \cdot \rho_v + C_{SOLW} \cdot L = D \quad (8)$$

$$C_{SSOL} = K_d \cdot C_{SOLW} \quad (9)$$

(7)は次のように変換される。

$$\frac{dD}{dt} = -\frac{V_{pen}}{L \cdot \theta \cdot (K_d \cdot \rho_v + L)} \cdot D \quad (10)$$

すなわち、放射性核種の地下浸透の速度定数は、降水の地下浸透の速度定数を $(K_d \cdot \rho_v + L)$ で除した値となる。

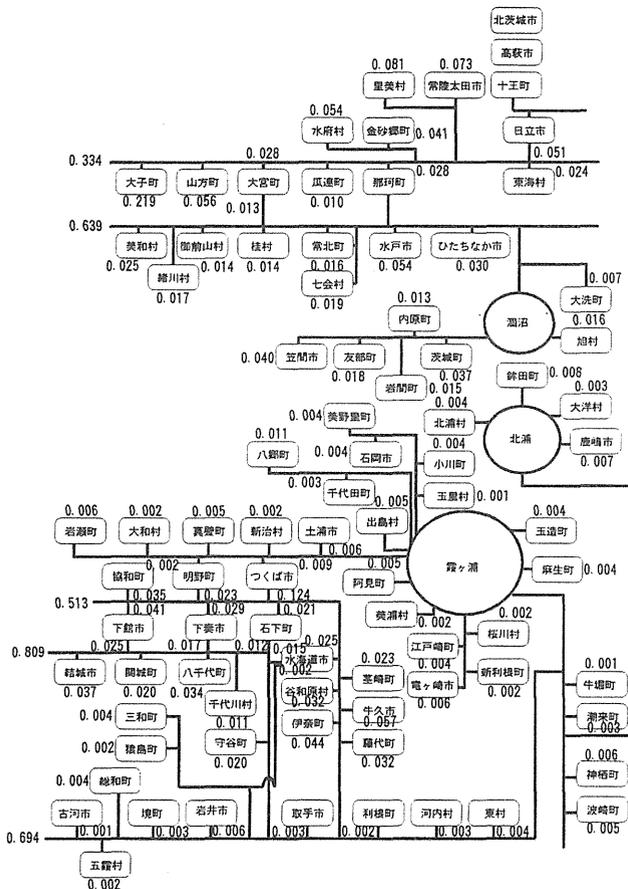


図3 茨城県の水系と各水系総流域面積に対する各市町村面積の割合

る放射性物質の量は、河川によって流域から洗い出される懸濁粒子の全量を F_{SS} (W/T)、土壌の単位面積あたりの乾燥重量(面密度)を ρ_v (W/L²) とすると：

$$r_{Fi} \times F_{SS} \times D_i / \rho_v \quad (5)$$

2. 陸水圏における移行

2. 1. 河川水の農業利用による水田への移行

水田に利用される水は必ずしもすべてが河川水とは限らないが、ここでは、すべてが1. 2で考慮した水系から受水するとして考察する。茨城県を流下する一級河川の農業用水の許可水量は、1991年度の統計で、那珂川、久慈川および利根川で、それぞれ、38件 50.65m³/秒、12件 15.42m³/秒、および1116件 293.4795m³/秒である。許可水量は必ずしも利用水量と一致するとは限らないが、これらが稲作期間中水田に供給されるとすると、各市町村に属する水田では河川流域に広がる水田の総面積に対する割合分河川水の

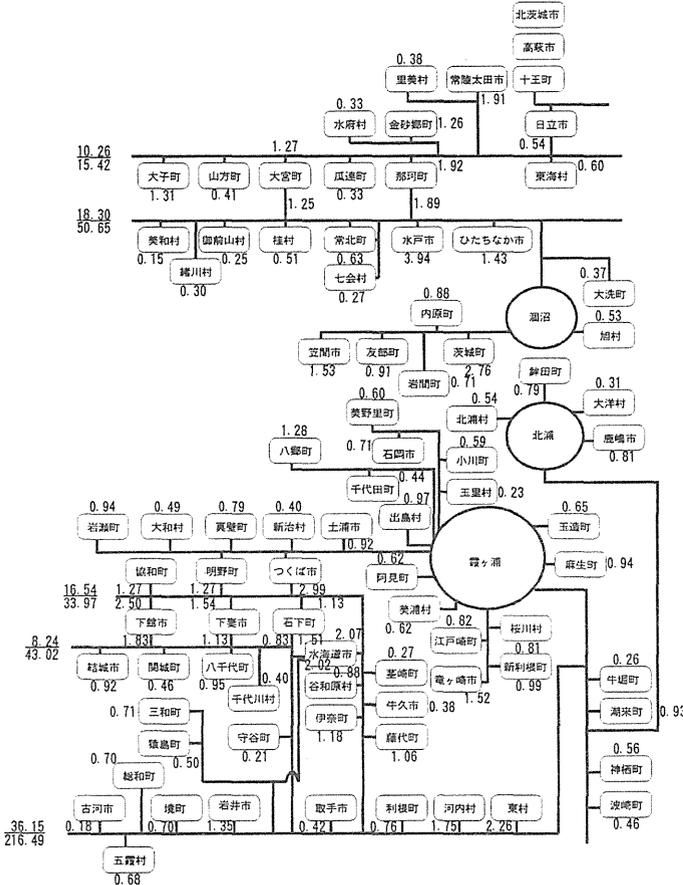


図4 茨城県各市町村における一級河川からの灌漑用水受水量の推定(m³/秒)

供給を受けることになる。図4には茨城県各市町村における一級河川からの灌漑用水の受水状況を示した。(ただしこれら一級河川の上流県における土地利用の状況について現時点で詳細情報をもっていないので図3で示した全流量に対する上流県流域の流量の寄与と全灌漑水利用量に対する上流県での灌漑水利用の割合が等しいとした。)上流域で発生した放射能汚染は上で述べた降水に伴う流出とは別途河川水の農業利用により河川に流出し順次下流の水田に伝播される。いま河川最上流の市町村より*i*番目に位置する市町村の放射性物質の収支と河川への流出を考えると、式(5)より河川水の供給を受けない土地からの放射性物質の流出は：

$$\frac{R_i \cdot S_{RF_i} \cdot F_{SS} \cdot D_{RF_i}}{R_T \cdot S_T \cdot \rho_v} \quad (11)$$

で表される。ここで、 $D_{FLi,j}$ は*j*番目の土地利用を行っている土地の放射性物質の面濃度(unit/L²)である。水田については：

$$\frac{R_i \cdot S_{RF_i} \cdot F_{SS} \cdot D_{RF_i}}{R_T \cdot S_T \cdot \rho_v} - \frac{Q_i \cdot I_i}{F_w \cdot \sum_{k=1}^{i-1} \frac{R_k \cdot S_k}{R_T \cdot S_T}} + \frac{F_{SS} \cdot I_i \cdot D_{RF_i}}{F_w \cdot \rho_v} \quad (12)$$

が得られる。ただし、 $S_{FLi,j}$ 、 S_{RF_i} は、それぞれ河川水の供給を受けない土地の面積(L²)、水田の面積(L²)、 I_i は灌漑用水の利用量(L³/T)、 Q_i は*i-1*番目の市町村を通過した河川の放射性物質の流量(unit/T)である。(12)式の第2項は河川から水田への流入量、第3項は灌漑水を受けたことによる水田からの放射性物質の洗い出し効果を表す。放射性物質の沈着量が市町村単位で与えられたとき、*i*より一つ下流の市町村が灌漑用水として利用する河川水中の放射性物質の量 Q_{i+1} には*i*番目の市町村を流下する河川水に(11)式と(12)式の和が加わることになる。すなわち：

$$Q_{i+1} = Q_i \left(1 - \frac{I_i}{F_w \cdot \sum_{k=1}^{i-1} \frac{R_k \cdot S_k}{R_T \cdot S_T}} \right) + \frac{R_i \cdot F_{SS} \left(\sum_j D_{H_i,j} + S_{RF_i} \cdot D_{RF_i} \right) \cdot F_{SS} \cdot I_i \cdot D_{RF_i}}{R_T \cdot S_T \cdot \rho_v} + \frac{F_{SS} \cdot I_i \cdot D_{RF_i}}{F_w \cdot \rho_v} \quad (13)$$

である。ただし、最上流の市町村の利用する河川水中には放射性物質は含まれないとする。

2. 2. 河川(陸水)中の放射性物質濃度

上に述べた流域からの放射性物質の流亡率の誘導では、降水の地表からの洗い出し強度は流域全体で一様であることを仮定している。したがって、河川水中の懸濁物質濃度は上流より下流まで一様である。ところで最上流部から*n*番目の市町村までの洗い出しを受けた河川の河川水総量は河川水総流量を F_w (L³/T)としたとき次式のとおりである。

$$\sum_i^n \frac{R_i \cdot S_i}{R_T \cdot S_T} \cdot F_w \quad (14)$$

また、懸濁物総量は次式のとおりである。

$$\sum_i^n \frac{R_i \cdot S_i}{R_T \cdot S_T} \cdot F_{SS} \quad (15)$$

*i-1*番目の市町村の洗い出しを受けた後の懸濁物質中の放射性物質濃度を C_{SSi} (unit/W)、河川水中の放射性物質濃度を C_{RWi} (unit/L³)とすると、両者の間には次の関係が成立している。

$$\frac{C_{SSi}}{C_{RWi}} = K_d \quad (16)$$

ただし、 K_d (W/L³)は分配係数である。懸濁物質中と河川水中の放射性物質の量の和は流域からの洗い出し量に等しいから：

$$C_{SSi} \cdot \sum_{i=1}^{n-1} \frac{R_i \cdot S_i}{R_T \cdot S_T} \cdot F_{SS} + C_{RWi} \cdot \sum_{i=1}^{n-1} \frac{R_i \cdot S_i}{R_T \cdot S_T} \cdot F_w = Q \quad (17)$$

表3 主要家畜飼養頭羽数(平成7年度)

自治省 コード	市町村	乳用牛 (10頭)	肉用牛 (10頭)	豚 (10頭)	採卵鶏 (100羽)
	水戸市	104	48	538	2930
	日立市	5	0	0	x
	土浦市	35	47	562	200
	古河市	x	0	0	0
	岡崎市	65	23	717	x
	下館市	27	64	1225	537
	結城市	61	115	3481	181
	竜ヶ崎市	57	0	142	x
	下妻市	15	89	2649	3878
	水海道市	77	49	905	3217
	常陸太田市	5	77	424	0
	高萩市	88	287	53	0
	北茨城市	18	349	95	20
	笠間市	82	49	321	1556
	取手市	x	0	0	x
	岩井市	100	10	3015	10367
	牛久市	63	38	620	1071
	つくば市	61	181	971	229
	ひたちなか市	17	x	112	281
	茨城町	169	616	1713	7680
	小川町	62	23	1008	26936
	美野里町	436	57	3695	5133
	内原町	73	73	746	2003
	常北町	22	77	81	2022
	桂村	16	96	488	0
	御前山村	x	51	151	0
	大洗町	x	x	0	x
	友部町	112	76	316	1567
	岩間町	169	7	3638	386
	七会村	14	43	260	x
	岩瀬町	42	42	307	4100
	東海村	x	17	x	x
	那珂町	42	39	72	647
	瓜連町	0	x	0	x
	大宮町	25	390	25	1229
	山方町	17	355	282	0
	美和村	31	22	49	0
	楳川村	14	18	125	1185
	金砂郷町	6	74	29	x
	水府村	28	42	44	0
	里美村	66	63	9	x
	大子町	145	425	458	x
	十王町	0	125	x	0
	旭村	11	x	7189	1740
	鉾田町	148	69	5332	3250
	大洋村	60	13	1446	0
	大野村	0	x	357	0
	鹿島町	13	x	x	x
	神栖町	x	x	161	x
	波崎町	0	53	224	850
	麻生町	40	28	2070	x
	牛堀町	18	0	151	1210
	潮来町	17	x	x	x
	北浦村	x	78	1497	4912
	玉造町	60	15	756	2520

自治省 コード	市町村	乳用牛 (10頭)	肉用牛 (10頭)	豚 (10頭)	採卵鶏 (100羽)
	江戸崎町	12	x	541	782
	美浦村	21	26	117	0
	阿見町	37	6	87	x
	菱崎町	x	28	x	x
	新利根村	x	0	64	0
	河内村	55	x	33	0
	桜川村	x	0	38	0
	東村	306	246	347	x
	出島村	156	150	1015	427
	玉里村	58	0	1040	0
	八郷町	287	56	3969	1049
	千代田町	17	15	1392	560
	新治村	22	123	1939	x
	伊奈町	x	x	x	0
	谷和原村	20	0	262	0
	関城町	19	77	367	x
	明野町	49	190	175	1125
	真壁町	37	33	216	0
	大和村	23	x	224	0
	協和町	39	84	596	x
	八千代町	60	91	366	2358
	千代川村	12	23	409	x
	石下町	42	65	159	980
	総和町	70	61	777	1266
	五霞村	10	0	x	0
	三和町	31	8	1028	0
	猿島町	25	5	1174	4008
	境町	94	48	1297	498
	守谷町	119	61	62	x
	藤代町	0	0	0	x
	利根町	x	x	14	x
	計	4357	5809	66217	104890

ミルクを便宜上乳牛の一つの臓器と考えたとき、放射性物質一回 Q_{cs} (unit) 摂取後のこのコンパートメントでの濃度の減少速度定数を $k(1/T)$ とすれば、摂取後時間 t でのミルク中の放射性物質濃度は $C_m(\text{unit}/L^3)$ 、

$$C_m = f_1 \cdot d_m \cdot Q_{cs} e^{-kt} / m \quad (21)$$

で表される。ここで、 f_1 は吸収率(家畜についてのデータがない場合はヒトのデータを流用)、 d_m は血液からミルクへ移行する割合、 m は1日泌乳量(L)である。放射性物質を毎日 $Q_c(\text{unit}/T)$ ずつ摂取し続けるとすると摂取開始後時間 t でのミルク中の放射性物質濃度は、

$$C_m = f_1 \cdot d_m \cdot Q_c / k \cdot (1 - e^{-kt}) / m \quad (22)$$

となり、 t が無限大となれば C_m は平衡値

$$C_m = f_1 \cdot d_m \cdot Q_c / k / m \quad (23)$$

となる。定義によれば $F_m = C_m / Q_c$ であり、したがって、 k と F_m の間には次の関係が成り立つ。

$$k = f_1 \cdot d_m / F_m / m \quad (24)$$

すなわち、移行係数マトリックス上の乳牛→生乳のセルには $(-\lambda_p - k)$ が挿入されるべきである。

2. 4. 水圏環境が河川より湖沼への移行

茨城県の一級河川那珂川、利根川下流域には涸沼、霞ヶ浦、および北浦が広がっており、それぞれの河川の支流が流入し河口付近で本流に合流している。三つの湖沼の面積は、それぞれ、9.4、167.6、35.2km²、平均深度は、2.1、3.4、4.5mである。後二者は淡水湖、涸沼は海水のほぼ4分の1の塩素量を示す汽水湖である。これら三湖沼は、上水の利用のほか漁業生産が盛んである。そして水生生物の生息環境である湖沼水中の放射能レベルは湖沼水の交換率にしたがって推移する。一般に、水量 V_L の湖沼に外部よりある物質濃度 C_{cs1} 、 C_{cs2} 、... C_{csi} (unit/L³)、流量 v_1 、 v_2 、... v_i (L³/T) の水の流入があったとき、湖沼の物質濃度 $C_{cs}(t)$ (unit) は、次式のような変化を示す。

$$\frac{dC_{cs}(t)}{dt} = \frac{v_1 \cdot C_{cs1} + v_2 \cdot C_{cs2} + \dots + v_i \cdot C_{csi}}{V_L} - \frac{v_1 + v_2 + \dots + v_i}{V_L} C_{cs}(t) \quad (25)$$

$t=0$ における湖沼の物質濃度を0とすれば、上式の解は次のようになる。

$$C_{cs}(t) = \frac{v_1 \cdot C_{cs1} + v_2 \cdot C_{cs2} + \dots + v_i \cdot C_{csi}}{v_1 + v_2 + \dots + v_i} \left\{ 1 - e^{-\frac{v_1 + v_2 + \dots + v_i}{V_L} t} \right\} \quad (26)$$

$t \rightarrow \infty$ では、湖沼の物質濃度 $C_{cs}(\infty)$ は：

$$C_{cs}(\infty) = \frac{v_1 \cdot C_{cs1} + v_2 \cdot C_{cs2} + \dots + v_i \cdot C_{csi}}{v_1 + v_2 + \dots + v_i} \quad (27)$$

となる。(26)式における $(v_1 + v_2 + \dots + v_i) / V_L$ をここでは、湖沼の水の交換率と呼ぶようにすると茨城県の3湖沼の交換率は、表4に示すとおりである。また、涸沼においては、涸沼川と海からの2経路からの水の流入があり、定常的な

表4 茨城県における湖沼のプロフィール

湖沼	面積 (km ²)	平均深度 (m)	水量 (m ³)	河川水の 年間流入量 [*] (m ³)	年間交換率
涸沼	9.4	2.1	1.97E+07	4.08E+08	20.7
北浦	35.2	4.5	1.58E+08	1.66E+08	1.1
霞ヶ浦	167.6	3.4	5.70E+08	7.02E+08	1.2

*:各湖沼の流出合流する本流河川(那珂川、利根川)の流量に各湖沼に流入する河川を有する市町村面積の合計を本流河川の流域総面積で除した値(流量寄与率)を乗じた値。

状態として塩分濃度が海水の4分の1を示す^{4)・5)}ことから:

$$\frac{1}{4} \cdot C_{d_i} = \frac{v_R \times 0 + v_S \cdot C_{d_i}}{v_R + v_S} \quad (28)$$

となり、河川水と海水の流入量の比は、3:1となる。したがって、茨城沿岸に放射能汚染が発生したときには、涸沼のコンパートメントでは相当量の放射性物質の湧出を仮定して放射能レベルの推移を推測しなければならない。

河川水中の浮遊懸濁物質はコロイドとしての性質を示し、その沈降速度は無視し得るほど小さい。河川水が海水に流入すると浮遊懸濁物と電解質としての海水との反応により凝集沈殿が起こり、河川水中の浮遊懸濁物質はすべて沿岸域に堆積することになる。このとき海中には放射性物質の浮遊懸濁物質と海水との間の分配係数にしたがって放射性物質が溶存状態として放出される。また、涸沼のような海水が流入する湖沼においては、海水の混合割合に相当する部分が湖底に沈殿移行すると考える。しかし湖底に沈殿しているヘドロ状の堆積物は水の動きで舞い上がり(再浮遊)、河川水から供給を受けた分に相当する量が水中に供給され、河川全体として浮遊懸濁物濃度には変化がないと考えることにする。すなわち、汽水湖涸沼に流入する河川水量を $v_R(L^3/T)$ 、流入する河川水中の放射性物質の量を $Q_R(\text{unit}/T)$ 、この放射性物質はコロイド状として存在しており汽水湖に流入することによって湖底に移行する割合を P_{sw} 、湖の面積、水量、放射性物質濃度を、それぞれ $S_L(L^2)$ 、 $V_L(L^3)$ 、 $C_{LW}(\text{unit}/L^3)$ 、また、湖底堆積物の面密度、濃度をそれぞれ $\rho_L(W/L^2)$ 、 $C_{LS}(\text{unit}/W)$ とすると、湖底堆積物中放射性物質濃度は次式により変化する。

$$\frac{dC_{LS}}{dt} = \frac{P_{sw} \cdot Q_R}{S_L \cdot \rho_L} - \frac{P_{sw} \cdot v_R \cdot F_{SS}}{F_w \cdot S_L \cdot \rho_L} \cdot C_{LS} \quad (29)$$

ここで、 Q_R は(9)と同義であり、 v_R は、涸沼に流入する河川の流域市町村が $i=1$ から n までであるとき、次式となる。

$$v_R = F_w \cdot \sum_{i=1}^n \frac{R_i \cdot S_i}{R_T \cdot S_T} \quad (30)$$

また、湖水中の放射性物質濃度変化は、次式で与えられる。

$$\frac{dC_{LW}}{dt} = \frac{1-P_{sw}}{V_L} \cdot Q_R + \frac{P_{sw} \cdot v_R \cdot F_{SS}}{F_w \cdot S_L \cdot \rho_L \cdot V_L} \cdot C_{LS} + \frac{v_R}{3 \times V_L} \cdot C_{sw} - \frac{4 \times v_R}{3 \times V_L} \cdot C_{LW} \quad (31)$$

ただし、 C_{sw} は涸沼に流入する海水中の放射性物質濃度(unit/L^3)である。湖水水分画の放射性物質濃度と湖水浮遊懸濁物物質中放射性物質濃度の間には(16)から(19)で議論したと同様の関係があるから前者を $C_{LW_{LW}}$ (unit/L^3)、後者を $C_{LW_{SS}}$ (unit/W) とすると:

$$\frac{C_{LW_{SS}}}{C_{LW_{LW}}} = K_d \quad (32)$$

$$C_{LW_{SS}} \cdot \frac{F_{SS}}{F_w} \cdot V_L + C_{LW_{LW}} \cdot V_L = C_{LW} \cdot V_L \quad (33)$$

となり、したがって、湖水水分画中の放射性物質濃度、浮遊懸濁物質中濃度は、それぞれ次式で表される。

$$C_{LW_{LW}} = \frac{F_w}{K_d \cdot F_{SS} + F_w} C_{LW} \quad (34)$$

$$C_{LW_{SS}} = \frac{K_d \cdot F_w}{K_d \cdot F_{SS} + F_w} C_{LW} \quad (35)$$

2. 5. 淡水、汽水生物への放射性物質の移行

茨城県の三湖沼を含む淡水、汽水領域には水生生物が生息しており、内水面漁業による漁獲物が食品として利用されている。放射性物質の水生生物への移行は濃縮係数で表される。すなわち、水中の放射性物質濃度を $C_{FW}(\text{unit}/L^3)$ 、生物種 j の放射性物質濃度を $C_{FORj}(\text{unit}/W)$ 、濃縮係数を $C_{FRj}(L^3/w)$ とすれば、次式を得る。

$$C_{FORj} = C_{FRj} \cdot C_{FW} \quad (36)$$

濃縮係数値は表5のように種々の文献において報告されている。これらの多くは原子力施設の立地移動に際しての事前評価に用いるためのものであり、値は必ずしも現実的なものばかりではなくむしろ「安全側」に、すなわち生物移行を過大に見積もっているものもある。淡水および汽水産生物について実測値に基づいて誘導した濃縮係数値の例を表6に示す。一般に、ストロンチウムやセシウムに対するカルシウムやカリウムのようにその同族元素が生物にとって必須の元素では、濃縮係数と同族安定元素濃度は、両対数グラフ上負の傾きをもった直線関係で表されることが知られている⁶⁾。最も端的な例としては必須元素それ自身を挙げるができるが、この場合には、生物中の濃度は一定であり、濃縮係数は環境水中濃度と反比例し、したがって両対数グラフ上で両者は-1の傾きをもった直線関係で表されることになる。放射性核種 i の濃縮係数 C_{FRi} と環境水中の i と同族の安定元素の濃度を C_{FWai} とすると上述の関係は次式で表される。

$$\ln C_{FRi} = a - b \cdot \ln C_{FWai} \quad (37)$$

実測値を解析し a 、 b を求めた例は、表5にみられるとおりである。ストロンチウムやセシウムでは-1に近い値を示すことが理解されるが、わが国においてこの関係を導くに足るデータはないのが現状である。表7には、表6から推

表5 淡水産生物における主要放射性核種の濃縮係数

核種	生物	文献1	文献2	文献3	文献4	文献5	文献6	文献7	文献8	文献9
Sr	淡水植物	500	500		200		1000			1000~3000
	無脊椎動物	700	100	100	300	300	300			
	甲殻類									100
	軟体類									100
Cs	淡水植物	200	500		1000		1000			2000~8000
	無脊椎動物	1000	100	1000	1000	1000	1000			
	甲殻類									100~500
	軟体類									100~200
I	淡水植物	100	40		120~800		800			300
	無脊椎動物	25	5	5	50~340	400	300			
	甲殻類									100~200
	軟体類									
I	魚類	1	15	15	40~50	40	20	200~500	5	30
	魚類									
	魚類									
	魚類									

- 文献1: Chapman, W. H., Fisher, H. L., Pratt, M. W.: Concentration Factors of Chemical Elements in Edible Aquatic Organisms, UCRL-50564, 1969
 文献2: Thompson, S. E., Burton, C. A., Quinn, D. J., Ng, Y. C.: Concentration Factors of Chemical Elements in Edible Aquatic Organisms, UCRL-50564, Rev. 1, 1973.
 文献3: U. S. Nuclear Regulatory Commission: Calculations of Annual Doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose evaluating compliance with 10 CFR Part 50, Appendix 1, Regulatory guide 1.109, Revision 1, 1973
 文献4: Vanderploeg, H. A., Parzyck, D. C., Wilcox, W. H., Kercher, J. R., Kaye, S. U.: Bioaccumulation factor for radionuclides in freshwater biota, ORNL-5002, 1976.
 文献5: International Atomic Energy Agency: Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases, IAEA Safety Series No. 57, IAEA, Vienna, 1983.
 文献6: Models and parameters for environmental radiological assessment, C. W. Miller (Ed.), DOE/TIC-11468, 1984.
 文献7: Poston, T. M., Klopfer, D. C.: Concentration factors used in the assessment of radiation dose to consumers of fish, A review of 27 radionuclides, Health Physics, 55, 751-766, 1989.
 文献8: Feldt, W., personal communication, 1990.
 文献9: Radionuclide distribution and transfer in terrestrial and aquatic ecosystems, Coughtrey, P. J., Jackson, D., Jones, C. H., Kane, P., Thorne, M. C., Vols1-3(1983), Vols. 4, 5(1984) and Vol. 6(1986), A. A. Balkema, Rotterdam/Boston.

表6 淡水、汽水生物の濃縮係数誘導の例

核種	生物	濃縮係数	備考	出典			
Sr	魚類	フナ	494 ± 415	乾燥重量ベースの濃縮係数	放射能調査		
		コイ	192 ± 173	乾燥重量ベースの濃縮係数	放射能調査		
		ワカサギ	101 ± 31	乾燥重量ベースの濃縮係数	放射能調査		
		ハセ	17 ~ 29	湿沼	武石ら		
		ウグイ	4	湿沼	武石ら		
		ワカサギ	44 ~ 45	湿沼	武石ら		
		ヒリウゴ	11	尾駁沼 (全体)	石井ら		
		ワカサギ	9.5	尾駁沼 (全体)	石井ら		
		ヌマガレイ	0.048	尾駁沼 (筋肉)	石井ら		
		クロノイ	8.7	尾駁沼 (全体)	石井ら		
		ジミ	12	湿沼	武石ら		
		ウグイ	0.94	尾駁沼 (軟体部)	石井ら		
		甲殻類	エビシヤコ	52	尾駁沼 (全体)	石井ら	
		Cs	魚類	フナ	272 ± 192	乾燥重量ベースの濃縮係数	放射能調査
コイ	684 ± 254			乾燥重量ベースの濃縮係数	放射能調査		
ワカサギ	508 ± 151			乾燥重量ベースの濃縮係数	放射能調査		
ハセ	16 ~ 40			湿沼	武石ら		
ウグイ	30 ~ 42			湿沼	武石ら		
ワカサギ	16 ~ 36			湿沼	武石ら		
ヒリウゴ	25			尾駁沼 (全体)	石井ら		
ワカサギ	29			尾駁沼 (全体)	石井ら		
ヌマガレイ	37			尾駁沼 (筋肉)	石井ら		
クロノイ	31			尾駁沼 (全体)	石井ら		
ジミ	4 ~ 13			湿沼	武石ら		
甲殻類	エビシヤコ			30	尾駁沼 (全体)	石井ら	
I	魚類			ヒリウゴ	20	尾駁沼 (全体)	石井ら
				ワカサギ	4	尾駁沼 (全体)	石井ら
		ヌマガレイ	2.8	尾駁沼 (筋肉)	石井ら		
		クロノイ	8.3	尾駁沼 (全体)	石井ら		
		甲殻類	エビシヤコ	29	尾駁沼 (全体)	石井ら	

定した淡水中の生物における濃縮係数および海産生物の濃縮係数値、ならびに各水域でのカルシウムおよびカリウム強度を示した。ストロンチウムおよびセシウムについて(37)式の関係が淡水域から海水域まで適用できると仮定すると、表7の値からa、およびbが得られる。表7にはこれらの値も示した。

表7 水生生物の濃縮係数推奨値

核種	生物	淡水域		海水域		a値 [†]	b値 [†]	a値 [†]	b値 [†]
		筋肉	全体	筋肉	全体	筋肉	全体	筋肉	全体
Sr	魚類	10	50	1	30	0.60	3.63	0.13	4.21
	軟体類	10	-	5	-	0.18	2.70	-	-
	甲殻類	-	50	-	10	-	-	0.42	4.84
Cs	魚類	100	100	40	40	0.16	4.67	0.16	4.67
	軟体類	50	-	10	-	0.29	4.03	-	-
	甲殻類	-	50	-	10	-	-	0.29	4.03
I	魚類	30	30	30	30	-	-	-	-
	軟体類	30	-	30	-	-	-	-	-
	甲殻類	-	30	-	30	-	-	-	-
水中Ca濃度(ppm)		9		410					
水中K濃度(ppm)		1.5		392					

†: 塩濃度補正式($\ln CF = b - a \ln CW$)の係数

放射性物質の湖汚水、河川水全体から生息する生物全体への移行率(移行係数) $k_{w \rightarrow OR}(1/T)$ は、湖沼水、河川水の総量を $V_w(L^3)$ 、生物の年間生産量(現存量: standing crop、 W/T)を M_{OR} とすると次式のとおりである。

$$k_{w \rightarrow OR} = \frac{\sum_{i} C_{FRi} \cdot M_{ORi}}{C_{FW} \cdot V_w} = \frac{1}{V_w} \cdot \sum_{i} C_{FRi} \cdot M_{ORi} \quad (38)$$

湖沼においては V_w は先に定義した V_L に等しく、河川においては年間の総流量を用いばよい。水生生物の生態学的な総生産量を把握することは困難である。しかし、ヒトとの関わりにおいて現存量を求めるならば、漁獲量は一つの

観測された流入量 (unit/L²、たとえば MBq/km²)、 d_{eff} は流入量を濃度に変換する係数で 1/L の次元をもち各海域の地形や海況に依存する海域固有の値である。また、 $e^{-\lambda_k}$ を期間 τ の減少率と呼ぶこととする。

地球規模に拡散した放射性物質の海洋への流入経路としては、大気からの直接的な沈着が第一義的に重要である。いま、放射性物質の海面への沈着が地表面への沈着と等しく、また陸上環境から雨水等によって洗い出され海洋へ流入する寄与が無視し得るとし、さらに日本近海で核爆発実験海域からの放射性物質を含んだ海水の直接的な流入がないとすると、(41) 式の F_{D1} 、 F_{D2} 、 \dots 、 F_{Di} 、 F_{Dm} は、陸上の放射性物質の降下密度と同義である。したがって、放射性物質の降下密度と海水中の濃度の測定値から海洋における放射性物質の消長を特徴づける d_{eff} および λ_k を求めることができることになる。わが国では、各地の都市部において放射性物質の降下量が定期的に測定されている。一方、海水についても比較的高い頻度で調査が行われている。すなわち、わが国では、連続的な放射性物質の降下密度と離散的な海水濃度データが放射能調査ネットワークによって提供されている。これらの 2 種類の放射能調査データから、逐次近似手法を用いた最小二乗法により海況パラメータが導かれる。

いまこれらの係数の近似値 d_{eff} 、 λ_{k_1} が与えられたとし、海水中の放射性物質濃度をあらためて $C(d_{eff}, \lambda_k, F)$ と表記すると、

$$C(d_{eff}, \lambda_k, F_{D_i}) = C(d_{eff}, \lambda_{k_1}, F_{D_i}) + (d_{eff} - d_{eff_1}) \cdot f_{d_{eff}=d_{eff_1}} + (\lambda_k - \lambda_{k_1}) \cdot f_{\lambda_k=\lambda_{k_1}} \quad (42)$$

である。ここで $f_{d_{eff}=d_{eff_1}}$ 、 $f_{\lambda_k=\lambda_{k_1}}$ は、 $Y=C(d_{eff}, \lambda_k, F_{D_i})$ としたときそれぞれ Y の d_{eff} 、 λ_k の偏微分係数、

$$\begin{cases} \frac{\partial Y}{\partial d_{eff}} = \tau \sum F_{D_i} \cdot e^{-\lambda_k(m-i)\tau} \\ \frac{\partial Y}{\partial \lambda_k} = -d_{eff} \cdot \tau \sum \tau(m-i) \cdot F_{D_i} \cdot e^{-\lambda_k(m-i)\tau} \end{cases} \quad (43)$$

$d_{eff}=d_{eff_1}$ 、 $\lambda_k=\lambda_{k_1}$ における値である。

$$Y_{res} = C(d_{eff}, \lambda_k, F_{D_i}) - C(d_{eff_1}, \lambda_{k_1}, F_{D_i})$$

$$\text{および、} \quad X_1 = f_{d_{eff}=d_{eff_1}}, X_2 = f_{\lambda_k=\lambda_{k_1}} \quad (44)$$

とすると、

$$Y_{res} = (d_{eff} - d_{eff_1}) \cdot X_1 + (\lambda_k - \lambda_{k_1}) \cdot X_2 \quad (45)$$

となり、この式は変数 X_1 、 X_2 に関する Y_{res} の線形回帰を表すことになる。そして、 X_1 、 X_2 の各係数 ($d_{eff} - d_{eff_1}$)、 $(\lambda_k - \lambda_{k_1})$ から d_{eff} 、 λ_k に対する第二近似値 d_{eff_2} 、 λ_{k_2} を得ることができる。このようにして順次近似値を求め d_{eff} 、 λ_k の変化が無視できる程度に小さくなるまで計算を繰り返すことにより最適値が求められる。

わが国における放射能調査データは Radioactivity Survey Data in Japan (以下 RSD と記す) に集計され、国内外に報告されている。この調査計画では多くの環境試料が

対象とされており、なかでも放射性降下物に関しては全国を網羅し、毎月のデータが得られている。また、いくつかの地点においては 1960 年代のデータにまで遡及することも可能になっている。海水中の放射性核種濃度については試料採取地点の数も頻度もこれよりは少ない。しかし、RSD とは別に科学技術庁が主宰する調査計画が 1986 年より原子力施設近傍海域で実施されており、別途これらのデータの利用も可能である。ここでは、これら二つの資料をもとに ¹³⁷Cs の海洋中での消長に関するパラメータ値を求めることとする。

¹³⁷Cs の降下密度は RSD 等より抽出し、欠測値については以下に述べる方法によって補完することとした。すなわち、対象とする県のデータの東京における同月のデータに対する回帰直線の式を求め、対象県で得られていない月に関して東京のデータから回帰式によって推定するものである。大気圏には 1945 年広島、長崎での核爆発を含むその後の核爆発実験によって放射性物質が放出されている。しかし、放射性降下物のデータは主として 1960 年以降、海水に関するデータは 1965 年以降にとられていること、また 1960 年代に行われた実験と比較して 1960 年以前のは規模が小さかったとことを考慮し、ここでは、環境の放射能汚染に対し 1960 年以前の寄与は無視し得ると考え、それ以降のデータを解析に用いることとした。海水のデータ数は放射性降下物のデータに比べ少ない。そしてデータがとられている時期が集中している場合も多く、しかもその間の変動は必ずしも小さくはない。そこで、比較的少ない海水のデータを最大限利用するとともに計算時間を最小限に抑えるために、便宜的に暦上の一年を 4 季に分け、3 ヶ月ごとに降下物については合計値を、海水濃度については平均値を求め、その期間の最初の月にこれらのデータを対応させて二つの試料間の関係を考察した。また、茨城県、福島県については海況に大きな相違はないと考え、海水濃度に関しては両県のデータを合わせ、降下物濃度は両県の平均値を用いて考察を行った。このようにして得られた ¹³⁷Cs 降下量、¹³⁷Cs 海水中濃度をそれぞれ表 12、表 13 に示す。上述の方法にこれらの数値を用いて、マイクロソフト社製の表計算ソフトエクセル Ver. 7 上で繰り返し計算を行った。初期値としては、岸海域での混合層を数十～数百メートルと考えその逆数、および ¹³⁷Cs の物理学的崩壊定数を、それぞれ上記で定義した d_{eff} および λ_k の第一次近似値とし、ふたつのパラメータ値の変化がともに 0.1% 以下となるまで繰り返し計算を行った。得られた λ_k 値は ¹³⁷Cs の物理崩壊による減少と海洋中での移流や拡散の結果としての希釈の両方の効果が含まれており、後者のみの減少割合 λ_s は、前者を λ_p とすると次式によって表される。

$$\lambda_s = \lambda_k - \lambda_p \quad (46)$$

また、物理崩壊、希釈による減少、およびそれら双方の結果としての減少の半減期をそれぞれ、 τ_p 、 τ_s 、 τ_k と記すと、これらの間には次の関係がある。

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{1}{\tau_k} - \frac{1}{\tau_p} \quad (47)$$

表12 茨城・福島県、新潟県、および福井県における¹³⁷Cs降下密度(MBq/km²)

採取期間	3ヶ月降下量	採取期間	3ヶ月降下量	採取期間	3ヶ月降下量
1961 MAR	12.1	1971 MAR	6.8	1981 MAR	2.9
JUN	35.5	JUN	42.7	JUN	18.5
SEP	16.9	SEP	19.1	SEP	2.1
DEC	135.0	DEC	5.2	DEC	0.5
1962 MAR	93.1	1972 MAR	10.9	1982 MAR	0.7
JUN	279.9	JUN	19.8	JUN	2.1
SEP	70.2	SEP	12.0	SEP	0.7
DEC	114.3	DEC	2.2	DEC	0.3
1963 MAR	145.9	1973 MAR	1.9	1983 MAR	0.4
JUN	580.9	JUN	5.7	JUN	0.6
SEP	380.4	SEP	2.7	SEP	0.4
DEC	175.5	DEC	1.2	DEC	0.2
1964 MAR	140.2	1974 MAR	7.8	1984 MAR	0.5
JUN	252.1	JUN	26.9	JUN	0.4
SEP	61.2	SEP	6.7	SEP	0.1
DEC	38.1	DEC	2.2	DEC	0.1
1965 MAR	81.2	1975 MAR	7.3	1985 MAR	0.5
JUN	143.6	JUN	12.8	JUN	0.3
SEP	58.0	SEP	2.1	SEP	0.1
DEC	18.7	DEC	1.6	DEC	0.1
1966 MAR	39.1	1976 MAR	1.6	1986 MAR	0.1
JUN	72.9	JUN	4.5	JUN	161.0
SEP	14.2	SEP	1.7	SEP	2.7
DEC	6.3	DEC	1.8	DEC	0.7
1967 MAR	29.7	1977 MAR	1.4	1987 MAR	1.0
JUN	20.9	JUN	9.1	JUN	0.6
SEP	6.3	SEP	14.9	SEP	0.3
DEC	3.3	DEC	4.8	DEC	0.4
1968 MAR	9.4	1978 MAR	8.2	1988 MAR	0.5
JUN	30.2	JUN	17.6	JUN	0.4
SEP	17.8	SEP	3.8		
DEC	8.0	DEC	2.5		
1969 MAR	7.2	1979 MAR	3.1		
JUN	22.9	JUN	7.5		
SEP	15.0	SEP	2.4		
DEC	7.4	DEC	1.0		
1970 MAR	5.7	1980 MAR	1.1		
JUN	26.1	JUN	2.5		
SEP	10.4	SEP	1.7		
DEC	6.1	DEC	0.8		

このようにして¹³⁷Csについての茨城・福島沿岸海域における先に定義した有効確度としては47mが、また拡散減少の半減期として7.2年を得ることができた。得られた二つのパラメータ値と表12に与えた¹³⁷Cs降下量(流入量)から計算した浄水中の¹³⁷Cs濃度の経時変化を測定値とともに図6に表す。

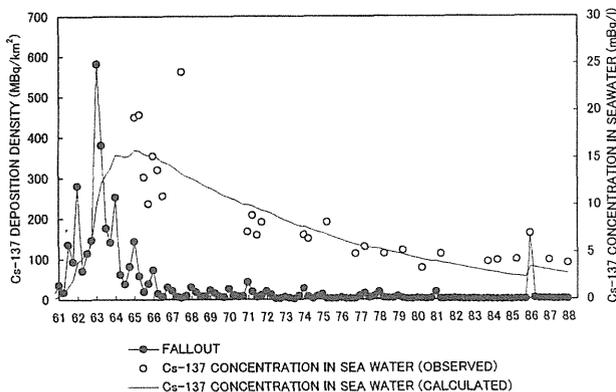


図6 茨城県・福島県における¹³⁷Cs降下量と海水中濃度の経時変化

3. 2. 河川より沿岸海域への移行

陸圏より海洋中に陸水が流出したとき懸濁物質は海底に凝集沈殿し、溶存分画が海水中に拡散し沿岸海域に均一に分布することとする。茨城県の各河川等から流出した放射性物質については、北緯35°30'から北緯37°、東経140°から東経142°に囲まれた水域で、¹³⁷Csの場合前章で得られた深度47m、すなわち、 $7.05 \times 10^{12} \text{m}^3$ (北緯35°における子午線1°長さ:110.95km、北緯36°における経度1°に対する弧の長さ:90.11km)の容量の海水に均一に分布すると仮定する。

表13 茨城・福島県、新潟県、および福井県沖の海水中の¹³⁷Cs濃度(mBq/l)

採取期間	3ヶ月平均濃度	採取期間	3ヶ月平均濃度	採取期間	3ヶ月平均濃度
1961 MAR		1971 MAR		1981 MAR	
JUN		JUN	7.2	JUN	
SEP		SEP	8.9	SEP	4.8
DEC		DEC	6.8	DEC	
1962 MAR		1972 MAR	8.1	1982 MAR	
JUN		JUN		JUN	
SEP		SEP		SEP	
DEC		DEC		DEC	
1963 MAR		1973 MAR		1983 MAR	
JUN		JUN		JUN	
SEP		SEP		SEP	
DEC		DEC		DEC	
1964 MAR		1974 MAR		1984 MAR	4.0
JUN		JUN	6.8	JUN	
SEP		SEP	6.4	SEP	4.1
DEC		DEC		DEC	
1965 MAR		1975 MAR		1985 MAR	
JUN		JUN	19.2	JUN	
SEP		SEP	19.5	SEP	4.2
DEC		DEC	13.0	DEC	
1966 MAR		1976 MAR		1986 MAR	
JUN		JUN	10.1	JUN	6.9
SEP		SEP	15.2	SEP	
DEC		DEC	13.7	DEC	
1967 MAR		1977 MAR		1987 MAR	
JUN		JUN	4.8	JUN	4.1
SEP		SEP	5.6	SEP	
DEC		DEC		DEC	
1968 MAR		1978 MAR		1988 MAR	
JUN		JUN		JUN	3.8
SEP		SEP	4.8	SEP	
DEC		DEC		DEC	
1969 MAR		1979 MAR			
JUN		JUN			
SEP		SEP	5.2		
DEC		DEC			
1970 MAR		1980 MAR			
JUN		JUN			
SEP		SEP	3.3		
DEC		DEC			

つまり、沿岸海水中の放射性物質濃度 $C_{CSW}(\text{unit/L}^3)$ は、沿岸海水の容積($7.05 \times 10^{12} \text{m}^3$)を $V_{CSW}(\text{L}^3)$ とすれば、沿岸海水中の放射性物質濃度変化はことができる。

$$\frac{dC_{CSW}}{dt} = \frac{1}{V_{CSW}} \sum_{k=1}^n \frac{F_{Wk} \cdot Q_{T_k}}{K_d \cdot F_{SSk} + F_{Wk}} - \lambda_s \cdot C_{CSW} - \frac{v_R}{3 \times V_{CSW}} \cdot C_{CSW} \quad (48)$$

ここで、 Q_{T_k} 、 F_{Wk} 、 F_{SSk} はそれぞれ、この海域に流入するn個ある河川のうちのk番目の河川からの放射性物質の流入量、水流入量、懸濁物質流入量である。沿岸に流入した放射性物質濃度は前章で述べたように¹³⁷Csの場合7.2年の半減期で拡散によって減少する。右辺第2項はこの減少分を表現している。また、沿岸海水は、先に述べたように茨城県においては潮沼に逆流する。この寄与は、沿岸海水コンパートメントから潮沼のコンパートメントに向かう移行として(31)式右辺第3項から、 $v_R / (3 \times V_{CSW})$ で表されることになる。沿岸海水中の放射性物質は沿岸海域で¹³⁷Csの場合深度47m以下の深層そして海底堆積物中に移行することが考えられる。しかし、漁業はもっぱら47m以浅で行われるとすると深層に移行した放射性物質はヒトとの接触の機会はないことからこの寄与を考慮しないことにする。したがって、沿岸海水中の放射性物質は潮沼への移行と次章で述べるように沿岸海水中の放射性物質は沖合海水コンパートメントへの移行、および水生生物への移行のみを考慮すればよいことになる。

3. 3. 沿岸海域から沖合海域への移行

沿岸海域で有効深度に均一に分布した放射性物質は、海流等により移流し拡散する。ここでは、沿岸海域の中心からの流向の頻度分布と、その方角に向かう流れの平均的な流速にしたがって沖合海域に移流拡散すると考えることにする。いま、沿岸海域の中心から対象となる沖合海域に向かう方角の流れの頻度分布を P_D 、その流れの平均流速を $U_D(L/T)$ 、沿岸海域中心で海水中の放射性物質が $Q_0(\text{unit}/T)$ で定期的放出されているとすると、沖合海域での濃度 $C_{OSW}(\text{unit}/L^3)$ は、流れ方向の拡散を無視できるとすると次式が成立する。

$$U_D \frac{\partial C_{OSW}}{\partial x} = K_y \frac{\partial^2 C_{OSW}}{\partial y^2} - K_z \frac{\partial^2 C_{OSW}}{\partial z^2} - \lambda_s \cdot C_{OSW} \quad (49)$$

これを解くと：

$$C_{OSW}(x, y, z) = \frac{P_D \cdot Q_0}{2\pi \sqrt{K_y \cdot K_z}} e^{-\lambda_s x / U_D} \cdot e^{-\frac{y^2}{4K_y x / U_D}} \cdot e^{-\frac{z^2}{4K_z x / U_D}} \quad (50)$$

が得られることが期待される。ただし、 K_y 、 K_z は海洋における水平および垂直方向の拡散係数で、それぞれ $10^7 \text{cm}^2/\text{s}$ 、 $30 \text{cm}^2/\text{s}$ に及ぶ値をとることが知られている。

茨城県沖の沖合海域は、指定漁業の東限、東経 153° 以西、北緯 $35^\circ 30'$ 以北、北緯 37° 以南の海域と仮定し、沿岸海域に続く経度 1° 毎の子午線で囲まれた海域を単位として、各沖合海域の放射性物質濃度を求めた。すなわち、沿岸海域の中心は東経 $141^\circ 30'$ 上にありそこより放射性物質が連続放出されると仮定し、その点を通る緯度線上における濃度を $K_y=10^7 \text{cm}^2/\text{s}$ および $K_z=30 \text{cm}^2/\text{s}$ とし(50)式で求め、各海域の濃度の代表値とした。また、各単位海域の濃度の平均値で全沖合海域の濃度と考え、沖合漁業における水生生物への移行を推定した。なお、茨城県沖における流向流速の頻度分布は図7のとおりであり⁹⁾、東へ向かう流れの頻度

原点からの方向	頻度	平均流速 (kt)
北	0.088	0.737
北東	0.149	1.420
東	0.164	1.100
南東	0.158	0.706
南	0.235	1.730
南西	0.078	0.527
西	0.050	0.496
北西	0.044	0.458
計	0.967	

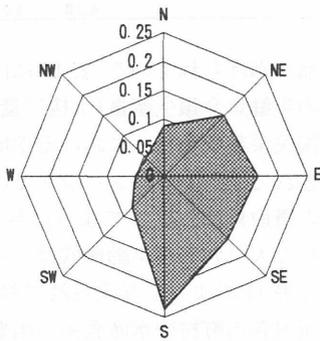


図7 平成2~4年度、茨城県沖で観測された流向の頻度分布および平均流速(kt)

16.4%、平均流速 1.1knot を計算に用いた。計算によって得られた各沖合海域の放射性物質濃度の沿岸放出源の放出率に対する比の値を図8に示した。また、このときの沖合海域の放出率に対する平均濃度は、 $4.47 \times 10^{-8} (\text{秒}/\text{m}^3)$ が得られる。

沿岸海域の海水濃度の式(48)式で(50)式と同様、 Q_0 の定期的な放射性物質の流入があり、涸沼への移行が無視し得るとすると次式を得ることができる。

$$\frac{dC_{CSW}}{dt} = \frac{Q_0}{V_{CSW}} - \lambda_s \cdot C_{CSW} \quad (51)$$

$t=0, C_{CSW}=0$ とすると、これは次式のように解くことができる。

$$C_{CSW} = \frac{Q_0}{\lambda_s \cdot V_{CSW}} (1 - e^{-\lambda_s t}) \quad (52)$$

$t \rightarrow \infty$ で C_{CSW} は、 $3.74 \times 10^{-5} (\text{秒}/\text{m}^3)$ が得られ、沿岸海域での放射性物質の海水濃度に対する沖合海域での海水濃度の比の値として、 1.20×10^{-3} が得られる。

3. 4. 海産生物への移行

放射性物質の海産生物への移行は、基本的には2.5で述べたような淡水、あるいは汽水産水生生物への移行と同様であると考えることができる。したがって、沿岸海域および沖合海域の海産生物種 OR_j の放射性物質濃度を C_{CSOR_j} 、 C_{OSOR_j} 、それらの濃縮係数を CF_{OR_j} とすると次式が得られる。

$$\begin{aligned} C_{CSOR_j} &= CF_{OR_j} \cdot C_{CSW} \\ C_{OSOR_j} &= CF_{OR_j} \cdot C_{OSW} \end{aligned} \quad (52)$$

沿岸海域の海水中の放射性物質濃度は、(48)式により数値的に得ることが期待される。また、得られた沿岸海域の濃度から沖合海域の濃度が上述の 1.20×10^{-3} を用いて推定される。淡水・汽水水産生物の場合と同様に(38)式に準じて海域から海産生物への移行係数を定義することが可能である。すなわち、次式によって沿岸海域、沖合海域それぞれから海産生物への移行係数を推定する。

$$k_{CSW \rightarrow OR_{CSW}} = \frac{\sum_i C_{MOR_i} \cdot M_{MOR_i}}{C_{CSW} \cdot V_{CSW}} = \frac{1}{V_{CSW}} \sum_i CF_{MOR_i} \cdot M_{MOR_i} \quad (53)$$

$$k_{OSW \rightarrow OR_{OSW}} = \frac{\sum_j C_{OSW_j} \cdot M_{MOR_j}}{C_{OSW} \cdot V_{OSW}} = \frac{1}{V_{OSW}} \sum_j CF_{MOR_j} \cdot M_{MOR_j} \quad (54)$$

ここで、 V_{OSW} は、沖合海域の海水容積 (L^3)、 $M_{MOR_{ij}}$ は、沿岸および沖合海域における生物の年間生産量(現存量) (W/T) で、これを漁獲量ではめることとする。

(54)式において、 V_{OSW} について正確な値を得ること必ずしも容易ではなく、沖合域海水から沖合生物への移行係数を決定することは困難である。また、沿岸海域および沖

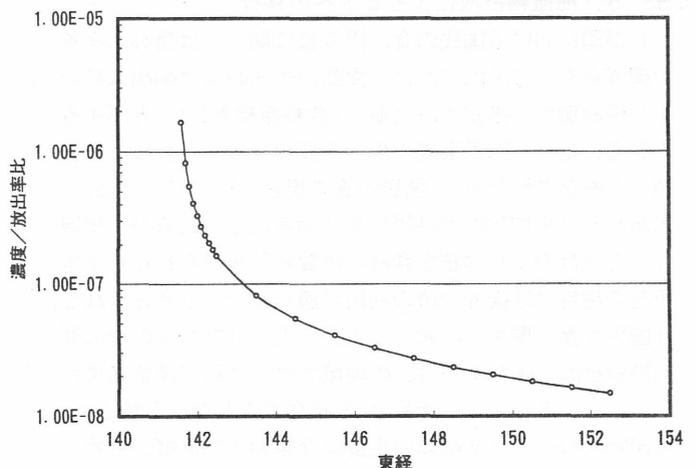


図8 東経 $141^\circ 30'$ 地点において放射性物質 $1 \text{unit}/\text{秒}$ の連続放出があった場合の同緯度線上の濃度対放出比

合海域における海水から海産生物への移行係数は、生物の生産量に比較して海水の容量が膨大であることから極めて小さいことが予想され、値を得るためには高い精度での数値計算法を必要とする可能性もある。一万、全漁獲物に移行する放射性物質の総量は、(52)、(53)式および各海域における漁獲量から容易に求めることができる。ここでは、沿岸および沖合海域水産物のコンパートメントとして沿岸および沖合海水中の放射性物質濃度に相当する放射性物質の湧出を仮定した仮想的なコンパートメントを設けることによって求めることとする。すなわち、沿岸および沖合海域の漁獲物のコンパートメントとしてそれぞれ次式で表されるものを考える。

$$\sum_i C_{CSOR_i} \cdot M_{MOR_i} = C_{CSW} \cdot \sum_i CF_{MOR_i} \cdot M_{MOR_i} \quad (55)$$

$$\sum_j C_{OSOR_j} \cdot M_{MOR_j} = C_{OSW} \cdot \sum_j CF_{MOR_j} \cdot M_{MOR_j}$$

生物の生産量に比較して海水の容量は、膨大である。したがって、生物が海水より取り込み排泄や死後分解により海水へ逆流する放射性物質の移行分は無視し得ることになる。

海産生物の濃縮係数については種々の報告があるが、主として本研究所の研究を中心としてCs、Sr、およびIに対して誘導した値を表14に、また、茨城県における沿岸、沖合、遠洋の各漁業による魚種別漁獲量を適用すべき濃縮係数値とともに表15に示す。なお、本研究の評価対象地区である茨城県における放出に起因する遠洋海域の放射能汚染は考慮する必要がないものとする。

表14 海産生物の濃縮係数

生物	Cs	Sr		I
		軟組織	骨組織	
褐藻類	2.7E+01	1.7E+01		1.6E+03
棘皮類	1.1E+01	1.2E+01		1.8E+01
甲殻類	9.7E+00	2.7E+00	9.2E+01	1.1E+01
貝類	1.3E+01	1.3E+00		3.0E+01
頭足類	8.9E+00	2.6E-01		1.0E+00
魚類	プランクトン食性魚類	3.1E+01		
	魚食性魚類	4.9E+01	2.5E+01	2.8E+01

3. 5. 海産物摂取によるヒトへの移行

わが国における国民の食品摂取量に関しては農林水産省の調査をもとに国内における食品の生産および輸出入統計より供給側から推定された値(「食料需給表」)¹⁰⁾と厚生省の調査に基づく国民栄養の現状把握の立場からむしろ需要側から推定された値(「国民栄養の現状」)がある。国民一人あたりの平均的な食品摂取量は両者にみられるが、地域ごとの統計やより詳細な食材の消費統計が得られる点で本研究の趣旨には後者の値の利用が適していると考えられる。「国民栄養の現状」において国民一人一日あたりの食品群別摂取量は全国および12の地域ブロック別に調査結果が示されている。また、食品は85種類の食品群に分類され、海産物については8種類の生鮮魚介類および塩蔵、乾物、缶詰、佃煮、練製品、ハム・ソーセージの6種類の水産加

表15 茨城県における海面漁業漁獲量(t) (平成6年度)

「国民栄養の現状」による分類	生物種		濃縮係数(1/Kg)			沿岸	沖合	遠洋
			Cs	Sr	I			
53	海藻類	ひげ	2.7E+01	1.7E+01	1.6E+03	26		
		ワケ	2.7E+01	1.7E+01	1.6E+03	4		
		ワケ類	2.7E+01	1.7E+01	1.6E+03	75		
		ワケ/海藻類	2.7E+01	1.7E+01	1.6E+03	8		
62	さけ、ます	サケ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	2	1044	
		マス	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	1	46	
63	まぐろ類	マグ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	358	1644	1269
		サバ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	1	291	47
		カツノ類	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01		17	19
		ワケ/カツノ類	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	29		
		カツノ/カツノ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01			1
		カツノ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	4	135	823
		カツノ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01		21	44
		カツノ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01		5	18
		カツノ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	140	31	4
		カツノ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	3	168	295
64	たい、かれい類	タイ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	248	35	
		カレイ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	2		
		カレイ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	3	2	
		カレイ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	32	2	
		カレイ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	151	36	
		カレイ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	131	4	
		カレイ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	62	11	
65	あじ、いわし類	アジ	3.1E+01	5.3E+00	2.8E+01	3993	15880	
		イワシ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	325	53832	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01		14302	
		イワシ	3.1E+01	5.3E+00	2.8E+01	2892		
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	72	23423	
66	その他の生魚	アジ	3.1E+01	5.3E+00	2.8E+01	369	12832	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	131	47	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	35	3	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	1	19	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	12	16	46
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	6		1
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	6	4	3
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	34	1	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	3	3	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	19		
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	46	12	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	113	18	
		アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	19	12	
アジ	4.9E+01	4.2E-01	2.8E+01	1	1			
67	いか、たこ、かに	イカ	8.9E+00	2.6E-01	1.0E+00	2	372	
		タコ	1.1E+01	1.2E+01	1.8E+01	12		
		イカ	9.7E+00	2.7E+00	1.1E+01	136		
		イカ	9.7E+00	2.7E+00	1.1E+01	1		
		イカ	8.9E+00	2.6E-01	1.0E+00	9	2	
		イカ	8.9E+00	2.6E-01	1.0E+00	60	1006	
		イカ	8.9E+00	2.6E-01	1.0E+00	831	58	
		イカ	8.9E+00	2.6E-01	1.0E+00	199	1079	
		イカ	8.9E+00	2.1E+01	1.1E+01	252	1	
		イカ	9.7E+00	2.7E+00	1.1E+01	29	16	
		イカ	1.1E+01	1.2E+01	1.8E+01	8		
68	貝類	アサギ	1.3E+01	1.3E+00	3.0E+01	6		
		アサギ	1.3E+01	1.3E+00	3.0E+01	1	2	
		アサギ	1.3E+01	1.3E+00	3.0E+01	1347		
		アサギ	1.3E+01	1.3E+00	3.0E+01	188		
		アサギ	1.3E+01	1.3E+00	3.0E+01	413	2	

工品が挙げられている。表15には食品群別に分類した茨城県の生鮮魚介類生産量(水揚げ量)を示した⁸⁾。茨城県は、「国民栄養の現状」における地域ブロックでは関東Ⅱに分類されており、このブロックでの各食品群の一人一日あたりの摂取量は、表16のように与えられている。茨城県各市町村の人口および年齢構成は、平成2年国勢調査報告において表17のように与えられており¹¹⁾、表16、表17の値より茨城県各市町村の水産食品の消費量を得ることができる。表18には、茨城県全体での水産食品の食品群別の消費量を示した。茨城県の各漁港で水揚げされた漁獲物はすべてが県内の消費に向けられているとすることはできないが、仮にすべてが、まず生鮮魚介として消費に向けられ、残りが水産加工等で使われると仮定すると、茨城県における自給率が表19のように推定できる。すなわち、茨城県の漁業生産で県民の需要を満たすことのできる食品群別の魚種では、アジ・イワシ類のみであり、他の魚種はすべてある割合は県外の漁業に負わざるを得ない状況であるということが出来る。ここでは、表15に示した茨城県で漁獲された生鮮魚

表16 全国および関東Ⅱブロックにおける食品群別摂取量

食品番号	食品群	食品名	摂取量(全国) (g/日)	摂取量(関東) (g/日)	食品番号	食品群	食品名	摂取量(全国) (g/日)	摂取量(関東) (g/日)
1	穀類	米類	192.0	199.5	44	その他の野菜	大根	38.4	43.9
2	穀類	米類	3.4	5.6	45	その他の野菜	たまねぎ	24.6	24.4
3	穀類	米類	0.3	0.4	46	その他の野菜	きゅうり	19.9	19.4
4	穀類	小麦類	8.8	8.7	47	その他の野菜	きゅうり	11.3	13.5
5	穀類	小麦類	32.8	28.9	48	その他の野菜	はくさい	22.8	25.3
6	穀類	小麦類	7.4	6.2	49	その他の野菜	その他の野菜	33.9	37.3
7	穀類	小麦類	30.0	29.2	50	その他の野菜	葉類つけもの	7.0	14.2
8	穀類	小麦類	4.6	5.0	51	その他の野菜	たくあん、その他のつけもの	12.3	14.2
9	穀類	小麦類	3.4	3.7	52	きのこ類	きのこ類	10.4	10.3
10	穀類	小麦類	1.8	1.9	53	海藻類	海藻類	5.5	6.8
11	種実類	種実類	1.4	1.4	54	調味嗜好飲料	しょうゆ	20.6	21.7
12	いも類	さつまいも	9.6	9.3	55	調味嗜好飲料	ソース類	4.4	4.3
13	いも類	じゃがいも	27.8	28.5	56	調味嗜好飲料	塩	1.5	1.6
14	いも類	その他のいも	11.2	10.8	57	調味嗜好飲料	その他の調味料	10.0	8.1
15	いも類	いも類加工品	13.8	13.8	58	調味嗜好飲料	日本酒	16.0	19.6
16	砂糖類	砂糖	9.2	8.5	59	調味嗜好飲料	ビール	44.0	34.6
17	砂糖類	ジャム類	1.0	1.0	60	調味嗜好飲料	洋酒その他	5.9	8.5
18	菓子類	飴類	0.4	0.3	61	調味嗜好飲料	その他の嗜好飲料	40.9	42.8
19	菓子類	せんべい類	1.9	1.8	62	魚介類	生魚	3.4	4.6
20	菓子類	カステラ、ケーキ類	3.0	2.5	63	魚介類	まぐろ類	8.8	11.3
21	菓子類	ビスケット類	3.5	3.6	64	魚介類	たい、かれい類	8.9	7.2
22	菓子類	その他の菓子類	11.6	10.6	65	魚介類	あじ、いわし類	11.9	12.1
23	油脂類	バター	0.9	0.7	66	魚介類	その他の生魚	8.9	5.9
24	油脂類	マーガリン	1.6	1.3	67	魚介類	いか、たこ、かに	18.0	17.3
25	油脂類	植物油	10.2	11.1	68	魚介類	貝類	4.6	4.8
26	油脂類	動物性油脂	0.2	0.3	69	魚介類	魚(塩蔵)	7.9	9.7
27	油脂類	マヨネーズ類	4.9	5.3	70	魚介類	魚介(生干し、乾物)	7.9	8.9
28	豆類	大豆、大豆製品	14.6	16.4	71	魚介類	魚介かん詰	3.1	3.0
29	豆類	大豆、大豆製品	34.4	31.8	72	魚介類	魚介佃煮	0.4	0.6
30	豆類	大豆、大豆製品	8.0	6.9	73	魚介類	魚介練製品	11.9	11.2
31	豆類	大豆、大豆製品	7.2	9.0	74	魚介類	魚肉ハム、ソーセージ	0.5	0.8
32	豆類	大豆、大豆製品	1.8	1.7	75	肉類	牛肉	20.3	15.1
33	果実類	柑類	35.5	40.1	76	肉類	豚肉	24.8	29.2
34	果実類	りんご	29.2	32.9	77	肉類	鶏肉	17.7	16.3
35	果実類	バナナ	8.3	6.9	78	肉類	鯉肉	0.1	0
36	果実類	いちご	0.3	0.4	79	肉類	その他の肉	0.7	0.8
37	果実類	その他の果実	31.2	22.7	80	肉類	ハム、ソーセージ	10.1	9.7
38	果実類	果汁	10.4	8.6	81	卵類	卵類	42.7	39.6
39	緑黄色野菜	にんじん	17.7	19.1	82	乳類	牛乳	117.9	124.6
40	緑黄色野菜	ほうれん草	17.8	20.6	83	乳類	チーズ	1.9	1.7
41	緑黄色野菜	ピーマン	3.2	3.5	84	乳類	その他の乳製品	11.0	11.5
42	緑黄色野菜	トマト	12.7	12.8	85	乳類	その他の食品	5.3	5.9
43	緑黄色野菜	その他の緑黄色野菜	30.2	27.2					

表17 茨城県各市町村における人口(平成2年)

市町村コード	市郡名	町村名	人口	市町村コード	市郡名	町村名	人口
201	水戸市		234,968	324	多賀郡	十王町	12,928
202	日立市		202,141	325	鹿島郡	旭村	11,270
203	土浦市		127,471	326	鹿島郡	鉾田町	28,370
204	古河市		58,231	327	鹿島郡	大洋村	10,483
205	石岡市		50,618	328	鹿島郡	大野村	13,865
206	下館市		66,028	329	鹿島郡	鹿島町	45,227
207	結城市		53,288	330	鹿島郡	神栖町	40,351
208	龍ヶ崎市		57,238	331	鹿島郡	波崎町	37,245
209	那珂湊市		32,577	332	行方郡	麻生町	17,774
210	下妻市		33,731	333	行方郡	牛堀町	6,418
211	水海道市		42,340	334	行方郡	潮来町	24,445
212	常陸太田市		37,624	335	行方郡	北浦村	11,107
213	勝田市		109,825	336	行方郡	玉造町	14,112
214	高萩市		35,320	337	稲敷郡	江戸崎町	14,638
215	北茨城市		51,093	338	稲敷郡	美浦村	14,348
216	笠間市		30,811	339	稲敷郡	阿見町	42,192
217	取手市		81,665	340	稲敷郡	茎崎町	25,070
218	岩井市		43,102	341	稲敷郡	新利根村	9,177
219	牛久市		60,693	342	稲敷郡	河内村	11,201
220	つくば市		143,396	343	稲敷郡	桜川村	8,060
301	東茨城郡	常陸村	10,557	344	稲敷郡	東村	13,451
302	東茨城郡	茨城町	35,651	345	新治郡	出島村	18,674
303	東茨城郡	小川町	18,483	346	新治郡	玉里村	7,966
304	東茨城郡	美野里町	21,751	347	新治郡	八郷町	29,417
305	東茨城郡	内原町	14,931	348	新治郡	千代田村	24,339
306	東茨城郡	常北町	11,322	349	新治郡	新治村	9,582
307	東茨城郡	桂村	6,688	350	筑波郡	伊奈町	26,604
308	東茨城郡	御前山村	4,965	351	筑波郡	谷和原村	11,933
309	東茨城郡	大洗町	20,745	352	真壁郡	関城町	16,377
310	西茨城郡	友部町	30,965	353	真壁郡	明野町	18,183
311	西茨城郡	岩間町	16,006	354	真壁郡	真壁町	20,833
311	西茨城郡	七会村	2,711	355	真壁郡	大和村	7,838
312	西茨城郡	岩瀬町	23,209	356	真壁郡	協和町	17,217
313	那珂郡	東海村	31,557	357	結城郡	八千代町	24,351
314	那珂郡	那珂町	42,561	358	結城郡	下川村	8,973
315	那珂郡	瓜連町	8,517	359	結城郡	石下町	22,004
316	那珂郡	大宮町	25,537	360	猿島郡	総和町	44,844
317	那珂郡	山方町	8,780	361	猿島郡	五霞村	9,468
318	那珂郡	美和村	5,283	362	猿島郡	三和町	36,164
319	那珂郡	緒川村	5,105	363	猿島郡	猿島町	15,597
320	久慈郡	金砂郷村	10,424	364	猿島郡	境町	26,922
321	久慈郡	水府村	7,031	365	北相馬郡	守谷町	36,427
322	久慈郡	里美村	4,679	366	北相馬郡	藤代町	32,744
323	久慈郡	大子町	27,067	367	北相馬郡	利根町	20,511
					計		2,845,385

表18 茨城県における水産食品の消費量

食品番号	食品群	食品名	一人あたり年摂取量 (kg)	茨城県の消費量 (t)	
53	海藻類	海藻類	2.48	7,062	
62	魚介類	生魚	さけ、ます	1.68	4,777
63	魚介類	生魚	まぐろ類	4.12	11,736
64	魚介類	生魚	たい、かれい類	2.63	7,478
65	魚介類	生魚	あじ、いわし類	4.42	12,567
66	魚介類	生魚	その他の生魚	2.15	6,128
67	魚介類		いか、たこ、かに	6.31	17,967
68	魚介類		貝類	1.75	4,985
69	魚介類		魚(塩蔵)	3.54	10,074
70	魚介類		魚介(生干し、乾物)	3.25	9,243
71	魚介類		魚介かん詰	1.10	3,116
72	魚介類		魚介佃煮	0.22	623
73	魚介類		魚介練製品	4.09	11,632
74	魚介類		魚肉ハム、ソーセージ	0.29	831

表19 茨城県における生鮮水産食品の需給状況

食品番号	食品名	漁獲量(t)					茨城県の消費量(t)	自給率
		内水面	沿岸	沖合	遠洋	計		
53	海藻類		113			113	7,062	1.6%
62	さけ、ます	48	3	1,090		1,141	4,777	23.9%
63	まぐろ類		535	2,312	2,520	5,367	11,736	45.7%
64	たい、かれい類		629	92		721	7,478	9.6%
65	あじ、いわし類		7,561	235,558		243,119	12,567	1934.6%
66	その他の生魚	2,759	1,340	1,618	59	5,776	6,128	94.3%
67	いか、たこ、かに		1,539	2,534	1,561	5,634	17,967	31.4%
68	貝類	4,840	1,955	4		6,799	4,985	136.4%

介類は表 19 の自給率にしたがって県内の各人に供給され
ると考えることとする。(55)式で表されたそれぞれの海域
での食品群 j に属する生鮮魚介類コンパートメントから茨
城県に居住する個人への移行係数 $k_{MOR_j, k \rightarrow hum}$ は、食品群
 j に属する魚介類の全海域の漁獲量に対する各海域の漁獲
量の割合、 $f_{j, k}$ と食品群 j の魚介類の自給率、 d_j との積で表
されることになる。すなわち、次式を得る。

$$k_{MOR_j, k \rightarrow hum} = d_j \cdot f_{j, k} \quad (56)$$

ただし、自給率が 100%を超える場合には d_j は 1 とする。し
たがって、 $d_j < 1$ の生鮮魚介類の一人あたりの摂取量は漁獲
量を茨城県の人口で除した値と等しい。また、各市町村に
居住する全住民への移行係数は、表 17 に示した各市町村の
人口を乗じたものとなる。ちなみに各海域から生鮮魚介類
を通じて各個人に至る移行係数は表 20 のとおりである。な
お、内水面漁業における各河川、湖沼からの住民への移行
は、表 20 の内水面漁業の値に表 10 に示した各漁場での漁
獲量の内水面漁業全体の漁獲量に対する割合を乗じたもの
になる。

表20 各海域から「国民栄養の現状」で定義された食品群を通じて茨城県民に摂取される
放射性物質の移行係数

「国民栄養の現 状」による分類	生物種	内水面	沿岸	沖合	遠洋
53	海草類	-	1.60E-02	-	-
62	さけ、ます	1.00E-02	6.28E-04	2.28E-01	-
63	まぐろ類	-	4.56E-02	1.97E-01	2.15E-01
64	たい、かれい類	-	8.41E-02	1.23E-02	-
65	あじ、いわし類	-	3.11E-02	9.69E-01	-
66	その他の生魚	4.50E-01	2.19E-01	2.64E-01	9.63E-03
67	いか、たこ、かに	-	8.57E-02	1.41E-01	8.69E-02
68	貝類	7.12E-01	2.88E-01	5.88E-04	-

参考文献

- 1) 1991 日本河川水質年鑑、建設省河川局監修、(社)日本河川協会編、1993年3月。
- 2) 茨城県の水道(平成7年度)、茨城県衛生部環境衛生課。
- 3) 茨城県農林水産統計年報(平成6年～平成7年)、関東農政局茨城統計情報事務所編集、茨城農林水産統計協会発行(1995)。
- 4) 武石稔、河村将、中島尚子：瀬沼におけるフォールアウト核種の移行挙動に関する研究(I)、保健物理、28、283-289(1993)。
- 5) 武石稔、篠原邦彦、中島尚子：瀬沼におけるフォールアウト核種の移行挙動に関する研究(II)ー放射性セシウムの移行モデルの開発ー、保健物理、32、53-65(1997)。
- 6) Vanderploeg, H. A., Parzyck, D. C., Wilcox, W. H., Kercher, J. R., Kay, S. U. : Bioaccumulation factor for radionuclides in freshwater biota, ORNL-5002(1976)
- 7) 平成7年度版、国民栄養の現状(平成5年国民栄養調査成績)、厚生省保健医療局健康増進栄養課監修、第一出版(1995)。
- 8) 平成7年度茨城県漁業の動向、付平成6年茨城農林水産統計年報(水産編)、関東農政局茨城統計情報事務所編集、茨城農林水産統計協会発行(平成8年1月)。
- 9) 茨城県水産試験場私信。
- 10) 昭和63年度食料需給表、農林水産大臣官房調査課(平成2年3月)
- 11) 平成2年国勢調査報告、第2巻第1次基本集計結果、その2 都道府県・市区町村編 08 茨城県、総務庁統計局。

[データベース]

1. フィールド試料の安定元素分析による生物濃縮パラメータ

[緒言]

放射性核種による人体に対する被曝線量を算定する際に用いられるパラメータの一つとして濃縮係数が重要視されており、精度の高い濃縮係数の提供が保健物理の分野から要望されている。今回の研究では、日本沿岸で生息している海洋生物について安定セシウム、ストロンチウム、ヨウ素濃度を測定し、濃縮係数を算定した。

[方法]

実験材料

青森、茨城、千葉、静岡、和歌山、大分などの太平洋沿岸で漁獲された海洋生物約100種を採取して分析試料とした。3-5個体の供試生物から分析部位を解剖して取り出し、テフロンビーカーに収容した後、真空凍結乾燥器を用いて恒量に達するまで乾燥した。

湿式分解

安定セシウムとストロンチウムの分析は誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)と誘導結合プラズマ原子発光分析法(ICP-AES)を用いたため試料を溶液化する必要があった。乾物に硝酸と過塩素酸を加え、ホットプレート上で液が透明になるまで湿式分解した。必要に応じて、フッ化水素酸と過酸化水素水を加えた後、乾固した。乾固物を1規定硝酸で溶解した後、機器自身およびプラズマの不安定性による変動を補正するために、内標準元素としてICP-MSではインジウムを100ppbになるように加え、ICP-AESではイットリウムが10ppmになるように加えられた。なお、用いた硝酸と過塩素酸はすべて多摩化学製A-100gradeを用いた。また、ミリボア社製MilliQILabで18.3MΩ以上の比抵抗を示す純水を用いた。

安定セシウムの分析法

安定セシウムの定量分析には、誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)を適用した。用いた装置は、VG Elemental PQ2 ICP-MSで表1に示した条件下で分析を行った。ICP-MSは低・中質量元素に対しては同重体干渉が大きいため定量分析には適していないが、原子質量が100 amu以上の元素に関しては化学分離を行わないで高精度分析が可能であると報告されている。安定セシウムの原子質量は133 amuであるため共存元素の影響は殆ど見られず、精度の高い実分析が可能であった。標準液は、米国SPEX社製のXSTC-13 ICP用混合標準液を1,5,10,50,100pptになるように段階的に希釈して用いた。なお、今回の測定条件下における安定セシウムに対する検出限界は10pptであるから、生体中に1 ng/g以上セシウムが含有されていればICP-MSが十分に適用出来ることになる。今回の測定試料はこの条件を全て満たしていた。

表1 安定セシウムの分析に用いたICP-MSの測定条件

Mass spectrometer	VG Elemental Plasma Quad PQ-2
Scan mass range	100.0-140.0 amu
Number of channels	512
Number of scan sweeps	480
Dwell time	640 μs/channel
Run time	315 s (ca. 5.0 s/mass)
Skipped mass regions	11.50-22.00 27.50-42.50
Vacuum system	1st stage 2.6 mbar 2nd stage 1 x 10 ⁻⁴ mbar 3rd stage 2 x 10 ⁻⁶ mbar
Plasma torch	
Frequency	27.12 MHz
RF power	1.2 kW
Ion extracted position	10 mm from load coil
Coolant gas flow rate	14.0 l/min
Plasma gas flow rate	1.0 l/min
Carrier gas flow rate	0.7 l/min
Sample uptake rate	1.8 ml/min
Nebulizer	Concentric glass type

安定ストロンチウムの分析

安定ストロンチウムの定量分析には、誘導結合プラズマ原子発光分析法(ICP-AES)が用いられた。用いた装置は、Shimadzu ICPQ-1012W ICP-AESで表2に示した条件下で分析を行った。従来、安定ストロンチウムの分析には滴定法や原子吸光法が用いられてきたが、共存妨害物質の影響を除くために化学分離が必要であった。しかし、ICP-AESによる安定ストロンチウムの分析においては、マトリックス元素の影響も殆ど観察されず高感度で高精度の定量分析が可能であった。

表2 安定ストロンチウムの分析に用いたICP-AESの測定条件

Polychromator system	Shimadzu ICPQ-1012W
Focal length	1.0 m Paschen-Runge
Holographic grating	2700 grooves/mm
Range	190.0-456.0 nm
Emission line of Sr	407.7 nm
Integration time	15 s
Plasma torch	
Frequency	27.12 MHz
RF power	1.2 kW
Observation height	15 mm above load coil
Coolant gas flow rate	15.0 l/min
Carrier gas flow rate	1.2 l/min
Sample uptake rate	2.0 l/min
Nebulizer	Concentric glass type

放射化分析によるヨウ素の定量

回収率用標準試料の作製と分析は次のように行った。ヨウ素5 mgを含むNH₄Iを小紙片上に採取し包んだ後、ポリエチレンの袋に2重に封入した。この試料を必要数だけ作製し、おのおのポリイミド箔に包み石英管に封入した。これをポリエチレン製照射用キャプセルに入れ、日本原子力研究所のJRR-4のTパイプ照射孔で20分間中性子照射した。翌日、キャプセルを取り出し開封した。石英管を割ってヨウ素を取り出し、ポリイミド箔やポリエチレンの外

側の袋をはずして新しいポリエチレンの袋に封入し直し、回収率算出用標準試料を作製した。化学分離を行う前と後で、I-126の放射能を測定することによって放射能比を求め、得られた回収率から化学分離に伴う損失の程度を補正した。なおヨウ素濃度の高い試料についてはI-126による回収率補正法は用いず、直接非分離法でヨウ素を定量した。

ヨウ素濃度の低い試料の放射化分析は次のように行った。NaCl含量が高い試料の場合は試料を50-100mg採取し、ポリエチレンの袋に3重に封入した。JRR-3 PN-1照射孔 ($5 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{ cm}^{-2} \cdot \text{ s}^{-1}$) およびJRR-2 PN照射孔 ($5 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{ cm}^{-2} \cdot \text{ s}^{-1}$) で1分間中性子照射を行った。

照射後試料の化学分離及び定量法を以下に説明する。キャリアとして安定ヨウ素5mgを加えた後、試料を $\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{HNO}_3$ で加熱分解した。発生するヨウ素などのハロゲンガスだけを NaHSO_3 を加えた NaOH 溶液に吸収させ、 ^{24}Na 等の妨害となる放射性核種から蒸留分離したヨウ素を $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$ で酸化させた後 CCl_4 で溶媒抽出したが、この時塩素、臭素は大部分水相に残っている。ヨウ素を抽出した後、有機相を水洗し、ヨウ素に伴って溶媒抽出された一部の塩素、臭素を逆抽出した。還元剤を入れた水と振りまぜヨウ素を水相に逆抽出しピーカーに移した。ピーカーに AgNO_3 を加え AgI の沈澱を作り、ろ過後沈澱をポリエチレンの袋に封入して測定試料を作製した ^{127}I (n, γ) ^{128}I により生じたI-128の放射能を300-500秒測定し、続いてヨウ素回収率を求めためI-126の放射能を5000秒測定した。I-128の442.9keVのピークエネルギーの放射能をヨウ素基準試料の放射能と比較し、さらにI-126から求めた回収率で補正して分析試料中のヨウ素濃度を算出した。

ヨウ素濃度の高い試料の非分離法によるヨウ素の定量は次のように行った。ヨウ素濃度の高いソデガイ科の蓋とゴカイ科の顎、マコンブの葉体の場合は各試料について50mgを採取しポリエチレンの袋で2重に封入後、照射用キャプセルに詰め、JRR-3 PN-3気送管を用い熱中性子束= $2 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{ cm}^{-2} \cdot \text{ s}^{-1}$ 、照射時間=10秒で放射化を行った。照射後、試料の外側のポリエチレンの袋を除き新しい袋に封入し直し測定用試料を作製した。30分冷却後に、化学分離を行わずに直接I-128のピークエネルギーである442.9keVの放射能を測定し、標準試料とのカウント数の比からヨウ素濃度を算出した。

[結果と考察]

セシウム濃度

今回分析した17種の魚類の筋肉中の安定セシウム濃度及び濃縮係数を表3に、海産無脊椎動物9種の可食部における値を表4示した。なお濃縮係数は生重量当たりのセシウム濃度を海水中のセシウム濃度0.5ng/mlで除することにより求めた。表3に示したように、魚類の筋肉中の生重量当たりのセシウム濃度は12.0-56.2ng/g・生、濃縮係数は20-110の範囲にあった。これに対して、表4に示したように海産無脊椎動物中の可食部の生重量当たりのセシウム濃度は3.3-10.9ng/g・生と魚肉と比べて低く、従って濃縮係数も7-21と魚肉よりも低かった。表5に海藻中の安定セシウム濃度を示したが、セシウム濃度は海産無脊椎動物と同程度であった。

表3 日本沿岸で採取された魚類の可食部中のセシウム濃度 (ng/g・生) 及び濃縮係数

魚種名	Cs濃度	濃縮係数
アカジ	44.8	90
ヒラメ	15.5	30
シロザケ	21.5	40
ハモ	18.9	40
マアジ	12.7	30
ヒラメ	22.0	40
アイナメ	22.0	40
イシモチ	16.0	30
ウスメバル	32.0	60
ゴマソイ	18.0	40
スズキ	28.0	60
ブリ	12.0	20
チダイ	16.0	30
オニカマス	46.2	90
ムツ	48.0	100
ウミヒメジ	56.2	110
ブダイ	49.9	100

外国の文献値よりも日本産の生物を分析対象として算定した濃縮係数を用いる方がより精度高い線量評価が行える

表4 日本沿岸で採取された海産無脊椎動物の可食部中のセシウム濃度 (ng/g・生) 及び濃縮係数

生物種名	Cs濃度	濃縮係数
ガザミ	3.3	7
ヒラツメガニ	4.7	9
クロアワビ	7.3	15
イガイ	5.0	10
コタマガイ	6.2	12
ハマグリ	4.6	9
コウイカ	3.5	7
シャコ	6.8	14
クルマエビ	10.9	21

外国の文献値よりも日本産の生物を分析対象として算定した濃縮係数を用いる方がより精度高い線量評価が行える

表5 日本沿岸で採取された海藻中の安定セシウム濃度 (ng/g・生) 及び濃縮係数

生物種名	Cs濃度	濃縮係数
アナアオサ	8.5	17.0
アオノリ	6.1	12.2
ツノマタ	6.4	12.8
ハリガネ	14.0	28.0
ワカメ	4.7	9.4
アラメ	10.6	21.2
ヒジキ	6.9	13.8
ウミトラノオ	10.7	21.4
ネジモク	8.5	17.0
オバモク	6.6	13.2
ハハキモク	7.9	39.5
アカモク	7.1	14.2

外国の文献値よりも日本産の生物を分析対象として算定した濃縮係数を用いる方がより精度高い線量評価が行える

安定ストロンチウム濃度

海洋動物中のストロンチウム濃度は0.11-59であり、濃縮係数も0.014-7.34と殆ど濃縮が起きてないことを示している。なお濃縮係数を求めるための海水中のストロンチウム濃度としては8.0 μg/mlを用いた。

表6 日本沿岸で採取された海洋動物中の安定ストロンチウム濃度 (μg/g・生) と濃縮係数

生物種名	部位	Sr濃度	濃縮係数
魚類			
ヒラメ	筋肉	0.24	0.030
スズキ	筋肉	0.11	0.014
マダラ	筋肉	0.28	0.039
アンコウ	筋肉	0.28	0.035
ハタハタ	筋肉	0.55	0.069
マアジ	筋肉	0.27	0.034
トビウオ	筋肉	0.25	0.031
マサバ	筋肉	0.39	0.049
キンメダイ	筋肉	1.20	0.150
アオダイ	筋肉	0.58	0.073
甲殻類			
サルエビ	筋肉	4.1	0.51
アカエビ	筋肉	5.8	0.73
ボタンエビ	筋肉	7.3	0.91
ヒラツメガニ	筋肉	13	1.63
アサヒガニ	筋肉	14	1.75
トゲクリガニ	筋肉	8.6	1.08
ベニズワイガニ	筋肉	15	1.88
ツノナシオキアミ	全体	59	7.34
軟体類			
ワスレガイ	軟体部	28	3.5
ホタテガイ	軟体部	3.2	0.40
ナミガイ	水管	2.9	0.36
エゾアワビ	筋肉	3.2	0.40
サザエ	筋肉	2.4	0.30
マダコ	筋肉	1.5	0.19
イイダコ	筋肉	2.3	0.29
ミズダコ	筋肉	3.2	0.40
コウイカ	筋肉	1.2	0.15
スルメイカ	筋肉	1.8	0.23
原索動物			
マボヤ	外套膜	3.7	0.46
棘皮動物			
キタムラサキウニ	卵巣	2.7	0.34
キタムラサキウニ	精巣	3.2	0.40
マナマコ	全体	8.6	1.08

外国の文献値よりも日本産の生物を分析対象として算定した濃縮係数を用いる方がより精度高い線量評価が行える

安定ヨウ素濃度

安定ヨウ素の濃度は種の違いや、部位の違いによって大きな濃度差が観察された。海藻のマコンブ、環形動物のゴカイ科の顎と剛毛、軟体動物のソデガイ科の蓋がヨウ素に対して高濃度蓄積現象を示した。海洋動物の可食部におけるヨウ素濃度は低く、0.034-3.5の範囲にあり、そのため濃縮係数は0.57-58.3であった。特に魚類の筋肉では10以上の濃縮係数を示す種は存在しなかった。なお濃縮係数を算定するための海水中のヨウ素濃度としては、60ng/mlを用いた。

表7 日本沿岸で採取された海洋生物中のヨウ素濃度と濃縮係数

生物種	部位	ヨウ素濃度	濃縮係数
イワムシ	顎	40	670
イワムシ	全体	11.8	197
イワムシ	剛毛	16000	267000
ジャムシ	顎	13000	216000
エラコ	軟体部	34	567
クマデケヤリ	軟体部	114	1900
甲殻類			
クルマエビ	尾筋肉	0.094	1.57
クルマエビ	殻	16.12	268
エビジャコ	尾筋肉	0.51	8.4
エビジャコ	殻	17.11	285
イセエビ	尾筋肉	0.29	4.8
イセエビ	殻	14.11	235
アサヒガニ	足筋肉	0.15	2.53
アサヒガニ	殻	0.74	12.4
ヒラツメガニ	足筋肉	0.54	9.03
その他の無脊椎動物			
バフンウニ	卵巣	6.42	107
マナマコ	全体	1.02	17
マボヤ	筋膜	3.5	58.3
魚類			
キチジ	筋肉	0.17	2.77
ヒラメ	筋肉	0.092	1.53
ウナギ	筋肉	0.22	3.73
ビリンゴ	筋肉	0.42	7.03
ワカサギ	筋肉	0.106	1.77
クロソイ	筋肉	0.22	3.73
ヌマガレイ	筋肉	0.078	1.3
メジナ	筋肉	0.058	0.97
アイナメ	筋肉	0.23	3.83
ホッケ	筋肉	0.24	3.93

外国の文献値よりも日本産の生物を分析対象として算定した濃縮係数を用いる方がより精度高い線量評価が行える

〔結論〕

海洋生物中のセシウム、ストロンチウム、ヨウ素の安定同位元素分析を実施した結果、海洋動物の可食部におけるストロンチウム、ヨウ素の濃縮係数は小さい値を示していることから、海洋動物を水産食品として摂取することによる放射性ストロンチウム、ヨウ素による内部被曝線量はあまり重視する必要がないものと判断された。

〔研究発表〕

- 1) Ishii, T. et al.: Discovery of a new vanadium accumulator, the fan worm *Pseudopotamilla ocellata*. *Naturwissenschaften*, 80, 268-270 (1993).
- 2) Ishii, T.: Intracellular localization of vanadium in the fan worm *Pseudopotamilla ocellata* *Mar. Biol.*, 121, 143-151 (1994).
- 3) 石井紀明：海洋生物が特異的に濃縮する金属元素。化学と生物、33、389-393 (1995).
- 4) Ishii, T. et al.: Biological significance of vanadium in a polychaete worm. "Metal ions in biological systems (edited by H. Sigel and A. Sigel)", Marcel Dekker Inc., New York, Vol.31, 1995, pp. 491-509.
- 5) Ishii, T.: Specific accumulation of iodine by the operculum of the strawberry conch *Strombus luhuanus*. *Fisheries Science*, 63, 646-647 (1997).
- 6) Ishii, T.: Characterization of vanadium in a fan worm, *Pseudopotamilla ocellata*. "Vanadium in the environment (edited by J. O. Nriagu)", The advances in environmental science and technology, New York, Vol. 30, 1998, pp. 199-216.
- 7) Marumo, K., Ishii, T., Ishikawa, Y., and Ueda, T.: Concentration of elements in marine zooplankton from coastal waters of Boso Peninsula, Japan. *Fisheries Science*, 64, 185-190 (1998).

2. RIトレーサ実験による生物濃縮パラメータ
淡水生物

〔緒言〕

我が国の原子力施設は、外国と異なり、大部分が海岸に建設され、排水は直接海に放出される。そのため、淡水魚を対象としたRI蓄積実験はほとんど報告されていない。外国では、かなりの数の報告があるが、淡水域の棲息環境は水質、水温など全く異なる場合が多いため、外国のデータを我が国の生物に当てはめることは問題が多く、我が国独自のパラメータを求める必要がある。

〔方法〕

淡水魚による環境水からの¹³⁷Csの蓄積を調べるため、¹³⁷Cs(塩化物)を添加した淡水(40ℓ)中で、平均体重26gのコイ *Cyprinus Carpio* 6尾を31日間にわたって飼育し、¹³⁷Csの魚体内への蓄積経過を追跡した。その後、それらのコイを非汚染水中で21日間飼育し、体内からの¹³⁷Csの排泄状況を調べた。実験期間中、経日的(2~7日毎)にコイを飼育水から取り上げ、魚体放射能を'Armac'の Whole body counter により測定したのち、もとの水槽に戻した。

なお、コイに飼料として市販されているペレットを毎日食べさせた。

また、コイによる餌からの¹³⁷Csの蓄積を調べるため、10尾に¹³⁷Csでラベルしたペレットを1回投与し、7尾に¹³⁷Csを取り込ませたヒメダカ (*Oryzias latipes*)を同様に1回投与した。投与直後のコイの¹³⁷Cs濃度を基準とし、52日間にわたり、経日的に体内残留率を測定した。

〔結果と考察〕

飼育水からのコイの¹³⁷Cs蓄積は取り込み実験の平均水中濃度に対する6尾の平均¹³⁷Cs濃度比(Activity ratio, AR)として表し、取り込み実験時(31日間)の6測点と排出実験時(21日間)の5測点のデータを「生物濃縮解析プログラム」¹⁾を用いて指数関数による近似計算を行い、取り込み定数(u)、排出定数(β)、濃縮係数(CF)および生物学的半減期(Tb_{1/2})を求め、表8に示した。

表8 Parameters used for estimating the steady state concentration factor of ¹³⁷Cs in the common carp'

	K ₁ (u)	K ₂ (β)	K _β (u/β)	CF	Tb _{1/2} (days)
Short component	0.1400	0.9921	0.14	7.61	0.7
long component	0.0827	0.0111	7.47		63

K₁:Uptake rate constant, K₂:Elimination constant

$$CF = \frac{u}{\beta}$$

¹⁾: 国内産生物を国内の代表的環境条件下で飼育し、実験したデータである。

一方、餌からの蓄積は、52日間にわたって10測点の体内残留率を求め、それらのデータを前述の計算プログラムを用いて解析し、吸収率(Absorption rate, AR)、排出定数および生物学的半減期を算出した。表9に餌から吸収した¹³⁷Csの生物学的半減期を飼育水から吸収した場合の半減期と共に示した。また、表10には、コイによる¹³⁷Csの飼育水からの濃縮係数と共にヒメダカを餌とした場合の濃縮係数を示した。餌からの濃縮係数の計算は、一定の¹³⁷Cs濃度の淡水中でヒメダカが¹³⁷Csを平衡濃度(CF)にまで蓄積し、それを餌としてコイが毎日一定量(体重に対する一定の割合)を摂取すると推定して表10に示した計算式により求めた。餌となるヒメダカの¹³⁷Csの濃縮係数は別の実験で10と計算され、1日に摂取する餌(ヒメダカ)のコイの体重に対する割合(日間摂餌率)は0.04(4%)とし、吸収率(0.91)と排出定数(0.00943)は前述の投餌実験で求めたものである。

表9 Biological half-life for ¹³⁷Cs in the common carp'

Pathway	Tb ₁ (days)	Tb ₂ (days)
Water	0.7	63
Food	Pellet	1.2
	Medaka	3.4

¹⁾: 国内産生物を国内の代表的環境条件下で飼育し、実験したデータである。

表10 Concentration factor for ^{137}Cs in the common carp^{*}

Pathway	CF
Water	7.6
Food (Prey fish, Medaka)	38.6 [*]

^{*}The concentration factor for ^{137}Cs in the fish through the food chain was estimated by the following formula.

$$CF = \frac{CF \text{ in the prey}(10) \times \text{absorption rate}(0.91) \times \text{daily amount of food ingested} (0.04)}{\text{Biological elimination constant} (0.00943)}$$

^{*}:国内産生物を国内の代表的環境条件下で飼育し、実験したデータである。

飼育水からの ^{137}Cs の蓄積曲線は2つのコンポーネントで構成されているが、ロング・コンポーネントの割合が遥かに大きく、排出は緩慢であった。

餌から体内に取り込んだ ^{137}Cs の体内残留曲線(排出曲線)はやはり2コンポーネントで表され(表9)、ロング・コンポーネントがコイの消化管から代謝系に吸収されたのちに排出される部分と推定される。その半減期はペレット餌、ヒメダカ餌ともに70日前後で大きな違いがなく、餌に含まれる ^{137}Cs の存在形態に関係なく吸収、代謝、排出されるものと思われる。さらに、飼育水から取り込んだ ^{137}Cs の生物学的半減期と比較しても、両コンポーネント共に、類似の値を示し、蓄積経路が異なっても ^{137}Cs はコイにより同じように代謝、排出されると推定される。

ところが表10の濃縮係数は蓄積経路による違いが認められ、餌(ヒメダカ)からの濃縮係数の方がかなり高い。その原因は、餌からの濃縮係数の計算式の分子の値が大きいためである。すなわち、飼育水からの濃縮係数(7.6)は表8のロング・コンポーネントの K_{β} (7.47)に大きく依存するが、 K_{β} の分母の排出定数(β)が0.0111と餌からの濃縮係数の計算式の分母(0.00943)の値と余り変わらないのに対して、 K_{β} の分子の取り込み定数(u)の0.0827に比べて、餌からの濃縮係数の計算式の分子の値(餌からの取り込み定数)が0.364とかなり大きいためである。

RIトレーサ実験による淡水魚の ^{137}Cs 蓄積に関しては、Foulquier²⁾がウナギについて飼育水からの濃縮係数が3で、餌(グッピー)からの濃縮係数が72と報告している。本実験のコイに比べて飼育水からの濃縮係数は低く、餌からの濃縮係数は高かった。しかしながら ^{137}Cs に関しては、餌からの蓄積が飼育水からの蓄積より遥かに大きい結果が得られ、水生生物の ^{137}Cs 濃縮に対する食物連鎖の影響の大きさが認められた。

[参考文献]

- 1) 柴田貞夫: RI排泄パターンが複数の指数関数で表現できる水生生物の濃縮係数の求め方について、「第25回理工学における同位元素研究発表会要旨集」、東京、1988、P.180.
- 2) Foulquier, L.:Donners Synthetiques sur les Publications de Radiohydrobiologie de la Section de Radioecologie, CEA-BIB-229, 1978.

[研究発表]

K. Kimura and R. Nakamura:Accumulation and Retention of ^{137}Cs by a Freshwater Fish, *Cyprinus Carpio* L. from Water and Food. International Seminar on Freshwater and Estuarine Radioecology, Lisbon, Portugal, 21-25 March, 1994.

海産及び汽水生物

[緒言]

環境中に放出された放射性核種は、水圏に直接導入されるものはもちろん気圏、陸圏に放出されたものも最終的には水圏に到達する。水圏は淡水圏と海水圏、そして両水圏が接し、淡水と海水が混じり合う汽水圏に分けられる。各々の水圏には、その環境に適応した生物が生活する生態系が形づくられる。生態系の中では個々の生物が消費と生産の活動を行ない、植物プランクトンや藻類の様な一次生産者から大型魚類等の高次の消費者まで複雑に結びつきながらエネルギー代謝・物質代謝のバランスが保たれている。ここに放射性核種が導入された場合、水圏生態系がどの様に汚染され、また除染されていくかを経時的に予測するモデルを構築するのが、今回の特研の我々のグループのテーマである。ここでは、モデルを動かすのに必要な水圏生物の生物濃縮パラメータの内、海産生物及び汽水生物による水槽でのトレーサ実験から推定された放射性セシウム、ストロンチウム、ヨウ素のパラメータを文献から集めた。またデータの無いもの、特に汽水生物については実際に水槽実験を行ない、パラメータを求めて検討した。

[研究方法]

文献調査の他にデータの不足している核種については水槽実験を行なった。特に汽水生物に関しては、下記の様な実験方法でパラメータを求め、またパラメータへの塩分の影響についても検討した。

汽水生物の水槽実験

汽水域は、一般に生物の生産性が高く、また水産上重要な生物も多く生息する。汽水域は淡水域や海水域とは異なり、潮の干満等により短時間の内に塩分が大きく変動する為、この変動に耐えうる生物のみが生息可能である。実験には大型の核燃料再処理工場が建設されている青森県六ヶ所村の汽水湖である尾駮沼で漁獲されたハゼの一種のピリンゴ(*Chaenogobius castanea*, 体重 $1.1 \pm 0.2\text{g}$)とヌマガレイ(*Platichthys stellatus*, 体重 $10.3 \pm 3.4\text{g}$)及び他の汽水域で採取されたヤマトシジミ(*Corbicula japonica*)を用いた。トレーサとしては ^{137}Cs 、 ^{85}Sr 、 ^{125}I で、前者は塩化物、 ^{125}I は I^- の形で用いた。実験には実際に尾駮沼の汽水を用いて行った。またピリンゴとシジミについては環境水の塩分の変化によるパラメータの変動を観察するために、海水を水道水で3段階に希釈した水(入っている海水の割合を%で表現し、例えば海水1に対して水道水9を加えたものを10%海水の様に表記した)で同様の取り込み・排出実験を行った。実験から得られた取り込み・排出の曲線に、指数関数モデルをあてはめて生物濃縮パラメータを計算した。

[結果と考察]

海産生物

文献調査及び水槽実験で得られた海水からの取り込み・排出によるパラメータを核種別に表11-13に示した。

表11 海産生物による放射性セシウムの海水取り込みの生物濃縮パラメータ

生物	体重	部位	第一成分			第二成分			CF1+CF2	水温(°C)	文献
			取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF1	取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF2			
魚類											
マハゼ	27 g	全身				0.256	0.026	9.8		20~22	1
クロソイ	6 g	全身	0.1303	0.0824	1.6	0.1479	0.0144	10.3	11.9	15	2
	303 g	全身	0.0587	0.7430	0.1	0.0818	0.0078	10.5	10.6	15	2
ヒラメ	10 g	全身	0.2871	0.4044	0.7	0.2436	0.0095	25.6	26.3	15	2
	392 g	全身	0.1253	0.2591	0.5	0.1116	0.0111	10.1	10.6	15	2
ツノガレイ	30 g	筋肉					0.0051			10	3
ガギンエイ	80 g	筋肉					0.0038			10	3
原索類											
マボヤ	35 g	全身	0.2329	0.4179	0.6	0.0600	0.0510	1.2	1.8	15	4
		軟体部	0.4173	0.1726	2.4	0.2810	0.0474	5.9	8.3		4
マボヤ	150~400 g	全身		0.433			0.035			15	5
棘皮類											
キタムラサキウニ	110 g	全身(♂)	0.7822	0.4113	1.9	0.0504	0.0500	1.0	2.9	15	6
		性腺(♂)	0.5268	0.5164	1.0	0.3930	0.0437	9.0	10.0		6
キタムラサキウニ	110 g	全身(♀)	0.6828	0.4192	1.6	0.0729	0.0592	1.2	2.8	15	6
		性腺(♀)	0.2666	0.4660	0.6	0.1568	0.0096	16.3	16.9		6
キタムラサキウニ	27 g	全身		0.231			0.035				7
甲殻類											
イセエビ		全身					0.0231		10		
		筋肉							36		

表12 海産生物による放射性ストロンチウムの海水取り込みの生物濃縮パラメータ

生物	体重	部位	第一成分			第二成分			CF1+CF2	水温(°C)	文献
			取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF1	取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF2			
魚類											
ニベの一種	23~70 g	全身		0.554			0.0050			23~30	13
		筋肉		0.128			0.0069			23~30	15
カサヅツツのシラス	1~4 g	全身		0.347			0.0083			20	14
クロソイ		全身	0.2063	2.7256	0.1	0.0275	0.0010	27.5	27.6	15	
原索類											
マボヤ	150~400 g	全身		1.03			0.030			15	5
軟体類											
サザエ(輪島産)		全身	0.77	2.053		0.07	0.006		14		
サザエ(高知産)		全身	1.24	2.167		0.04	0.011		4		
バイ		全身	0.4139	1.6974	0.2	0.0317	0.0125	2.5	2.7	15	
		軟体部	0.7894	2.7214	0.3	0.0423	0.0100	4.2	4.5	15	
イダコ		全身	1.2079	3.6923	0.3	0.0037	0.0268	0.1	0.4	15	

表13 海産生物による放射性ヨウ素の海水取り込みの生物濃縮パラメータ

生物	体重	部位	第一成分			第二成分			CF1+CF2	水温(°C)	文献
			取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF1	取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF2			
魚類											
ニベの一種	23~70 g	全身		2.772			0.2772			11~17	13
ドロメ		全身					0.0462			15	15
スズキ	430~740 g	筋肉		0.231			0.0128			20	14
スズキ	42.5 g	全身	1.3914	0.5720	2.4	0.0542	0.0451	1.2	3.6	20	
		筋肉	0.9784	0.7659	1.3	0.0363	0.0682	0.5	1.8	20	
クロソイ	42.4 g	全身	2.0161	0.1914	10.5	0.1901	0.0160	11.9	22.4	15	
		筋肉	0.4010	0.1429	2.8	0.0303	0.0277	1.1	3.9	15	
甲殻類											
イセエビ		全身					0.0123		22		
		筋肉							0.7		
軟体類											
サザエ(輪島産)		全身	2.53	1.153		0.69	0.028		27		
サザエ(高知産)		全身	1.75	1.286		0.45	0.031		16		
海藻											
ヒジキ				0.0693~ 0.0289							16

水産物を食べることによる人の放射線被曝に焦点をしばると、生物の可食部すなわち筋肉等の軟組織が重要となるが、今回の特研の課題であるモデルを考えた場合には、生態系での食物連鎖を考慮して、生物の全身についてのパラメータを主として集めた。

Csに関しては、ほとんどの生物種が排出の速い成分(第1成分)と排出の遅い成分(第2成分)の2成分の存在を示し、後者の成分が放射性Csの蓄積の大半を占めていた。生物の組織を骨や殻などの硬組織と筋肉や内臓などの軟組織に分けると、放射性Csは両組織に分布するが、軟組織がやや高めであり、魚の筋肉では排出も遅くなる傾向が見られた(表11)。

Srでも2成分の存在が示され、やはり第2成分の割合が大きかった。SrはCaと似た挙動をし、骨や殻などの硬組織に蓄積され、軟組織には濃縮されない。しかし、硬組織に入ったSrは、その後の排出が遅い為、生物全身で見た場合に、排出速度を遅くする要因となっている(表12)。

Iに関しても2成分となったが、Cs, Srの場合と異なり、魚では蓄積への寄与が両成分とも同程度であった。Iは筋肉部位にはあまり蓄積されない様である(表13)。

今回のモデルでは水生生物を魚類、無脊椎動物、藻類に分けて、各々の代表的パラメータが求められている。放射性核種の生物濃縮パラメータは生物種、サイズ、雌雄、水温等の諸々の要因で変動するので、代表値を決定するのは不可能に近いが、ここではかなり強引なやり方ではあるが、各々の生物グループ毎に平均値を取って表14にまとめ、代表値とした。

食物連鎖を通じての放射性核種の移行を予測するのに必要なパラメータの一つとして核種の消化管吸収率その他を表15にまとめた。多くの生物では餌の消化・吸収は1~2日以内に終了するので、ここでの消化管吸収率は、摂取した汚染餌の放射能に対しての、摂取後1~2日目の時点で生物体内に残存した放射能の割合を%で示したものである。魚類による消化管吸収率は各々の核種で特徴が見られた。すなわち、Csは非常に吸収され易く、摂取した放射能の80%近くが吸収されたのに対し、Srは10%以下と消化管からはほとんど吸収されなかった。Iは魚種により差が見られたが、Srよりも吸収され易いものと推定された。

汽水生物

汽水生物の水槽実験に用いた尾駱沼の水は、Na, Ca, Mg等の元素分析の結果から淡水と海水が半々の割合で混合しているものと推定された。汽水魚2種(ビリンゴ、ヌマガレイ)と汽水性のヤマトシジミについて水からの取り込み・排出実験から求められた生物濃縮パラメータを核種別に表16にまとめた。Cs, Srでは魚種による差は見られなかったが、Iでは差が見られ、ビリンゴはヌマガレイのほぼ4倍の濃縮を示した。Iは脊椎動物の甲状腺ホルモンとして必須元素であり、生物代謝の重要部分を担っているが、生物の成長段階や季節等により、また種類によって要求量が異なるのがこの差の原因ではないかと思われた。表16の値を、海産の魚及び貝類と比較するとそれ程大きな差は見られなかったが、実験例が少ない為、更にデータの蓄積が必要と思われる。

表14 海産生物による放射性セシウム、ストロンチウム、ヨウ素の海水取り込みの生物濃縮パラメータの平均値

核種・生物	第一成分		第二成分	
	取り込み速度(Day ⁻¹)	排出速度(Day ⁻¹)	取り込み速度(Day ⁻¹)	排出速度(Day ⁻¹)
放射性セシウム				
魚類	0.1504 ± 0.0839 (4)	0.3722 ± 0.2425 (4)	0.1682 ± 0.0700 (5)	0.0138 ± 0.0065 (5)
無脊椎動物	0.7723 ± 0.3535 (8)	0.5105 ± 0.2201 (12)	0.0748 ± 0.0199 (8)	0.0423 ± 0.0191 (12)
海藻	1.98 ± 1.51 (2)	1.36 ± 0.87 (2)	0.30 ± 0.03 (2)	0.0047 ± 0.0012 (2)
放射性ストロンチウム				
魚類	0.2063 (1)	0.9387 ± 1.0426 (4)	0.0275 (1)	0.0053 ± 0.0027 (4)
無脊椎動物	0.9080 ± 0.3403 (4)	2.4024 ± 0.7646 (4)	0.0364 ± 0.0236 (4)	0.0141 ± 0.0077 (4)
海藻				
放射性ヨウ素				
魚類	1.7038 ± 0.3124 (2)	0.3817 ± 0.1903 (2)	0.1222 ± 0.0680 (2)	0.0358 ± 0.0140 (3)
無脊椎動物	2.14 ± 0.39 (2)	1.2195 ± 0.0665 (2)	0.57 ± 0.12 (2)	0.0238 ± 0.0082 (3)
海藻		0.0693~0.0289		

文献値及び水槽実験から求められた値を生物グループ毎に平均した。カッコ内は平均に用いたデータ数。

表15 海産生物による放射性セシウム、ストロンチウム、ヨウ素の餌からの取り込みの生物濃縮パラメータ

核種・生物	体重	部位	吸収率(%)	第一成分		第二成分		水温(°C)	文献
				排出速度(Day ⁻¹)	成分割合(%)	排出速度(Day ⁻¹)	成分割合(%)		
放射性セシウム									
魚類									
クロソイ	13 g	全身	83	1.3482	15	0.0138	85	15	2
	352 g	全身	82	0.3500	17	0.0126	83	15	2
ヒラメ	15 g	全身	92	1.8386	3	0.0362	97	15	2
	405 g	全身	78	0.2324	24	0.0245	76	15	2
メジナ	5~10 g	全身	50						14
マハゼ	17 g	全身	80						1
原索類									
マボヤ	26 g	全身	44	0.2707		0.0465		15	4
棘皮類									
キタムラサキウニ	27 g	全身	48~59	0.137~ 0.177					7
	158 g	全身	25	0.2256		0.0230			4
軟体類									
ウバガイ	151 g	全身	8	0.2497		0.0336		10	4, 17
ホタテガイ	65 g	全身	20	0.1042		0.0468		10	12, 17
エゾアワビ	115 g	全身	64	0.3163		0.0191			4
サザエ	30 g	全身	6					15	17
クロアワビ	15 g	全身	6					15	17
バイ	64 g	全身	23					15	17
イダコ	54 g	全身	45					15	17
放射性ストロンチウム									
魚類									
ヒラメ	320 g	全身	5						14
メジナ	10 g	全身	6						14
ブリ	70~80 g	全身	7						14
放射性ヨウ素									
魚類									
メジナ	40 g	全身	20						14
	40 g	全身	4						14
ズズキ	58 g	全身	9	1.0832	82	0.0748	18	20	
クロソイ	90 g	全身	40	0.3815	70	0.0478	30	15	

表16 汽水生物による放射性セシウム、ストロンチウム、ヨウ素の汽水からの取り込みの生物濃縮パラメータ

核種・生物	体重	部位	第一成分			第二成分			CF1+CF2	水温(°C)	文献
			取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF1	取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	CF2			
放射性セシウム											
魚類											
ビリンゴ	1.1 g	全身	0.0760	0.4764	0.2	0.0862	0.0102	8.4	8.6	20	
ヌマガレイ	10.3 g	全身	0.1052	0.2908	0.4	0.1644	0.0202	8.1	8.5	20	
軟体類											
ヤマトシジミ	7.7 g	全身	0.3773	0.4060	0.9	0.0284	0.0316	0.9	1.8	20	
		軟体部	4.9648	0.3838	12.9	0.5000	0.0433	11.6	24.5	20	
放射性ストロンチウム											
魚類											
ビリンゴ	1.1 g	全身	0.0620	0.7941	0.1	0.0495	0.0063	7.9	8.0	20	
ヌマガレイ	10.3 g	全身	0.0617	1.4650	0.04	0.0549	0.0039	14.2	14.2	20	
軟体類											
ヤマトシジミ	7.7 g	全身	0.8609	0.8817	1.0	0.0723	0.0098	7.4	8.4	20	
		軟体部	2.4415	2.2786	1.1	0.0475	0.0675	0.7	1.8	20	
放射性ヨウ素											
魚類											
ビリンゴ	1.1 g	全身	2.2397	0.1192	18.8	0.9323	0.0298	31.3	50.1	20	
ヌマガレイ	10.3 g	全身	2.3081	0.3543	6.5	0.4610	0.0605	7.6	14.1	20	
軟体類											
ヤマトシジミ	7.7 g	全身	0.9037	0.2651	3.4	0.4818	0.0128	37.7	41.1	20	
		軟体部	2.9388	0.4328	6.8	0.1447	0.0159	9.1	15.9	20	

塩分変動の影響

汽水域の塩分は、潮の干満や河川水の流入量の変化等によって大きく変動する。このような環境を生活の場としている汽水生物は、環境水の塩分の変化に応じて体内の塩分の出入を調節する能力を有するものが多い。塩分の出入調節は、生物による放射性核種の取り込み・排出へも影響すると思われるので、汽水生物の放射性核種濃縮のパラメータへの塩分の影響についても実験した。ビリンゴとシジミの結果を各々表17、18に示した。脊椎動物のビリンゴでは3核種の内、SrとIで塩分の影響が見られた。すなわち、Sr、I共に塩分の低下につれて平衡時の濃縮係数(CF)が増大し、20%海水では60%海水の2~3倍の値を示した。一方Csに関しては、顕著な影響は見られなかった。Sr、Iの塩分低下によるCFの増大は、塩分低下につれて各々

の核種の水からの取り込み速度が大きくなることが主因と思われる。汽水性無脊椎動物のシジミでは殻を含む全身で見た場合、Sr、Iの濃縮係数は塩分の低下につれて増大し、ビリンゴと同様の傾向を示した。しかし、殻を除く軟体部で見た場合は、10%海水と80%海水でそれ程大きな差は無いことから、全身で見られた塩分の影響は、殻の放射性核種の蓄積(多分吸着)が塩分により影響を受けた為と思われる。

以上の様に核種によっては、塩分の変化によって生物濃縮パラメータが変動することが判った。しかし、実際の汽水環境を考えた場合、潮の干満等による日周期の低塩分と高塩分のくり返しであるので、汽水生物のパラメータとしては、低塩分と高塩分をならして50%海水での値を用いるのが適当と考えられる。

表17 ビリンゴによる放射性核種の汽水からの取り込みの塩分の影響

(水温 20°C)

	¹³⁷ Cs			⁸⁵ Sr			¹²⁵ I		
	第二成分		CF	第二成分		CF	第二成分		CF
	取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)		取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)		取り込み速度 (Day ⁻¹)	排出速度 (Day ⁻¹)	
20%海水	0.0576	0.0114	5.2	0.1085	0.0044	26.1	4.4762	0.0433	143
40%海水	0.0709	0.0126	5.7	0.0557	0.0041	13.8	4.1321	0.0408	121
60%海水	0.0935	0.0110	8.6	0.0430	0.0051	8.5	2.1631	0.0365	79

表18 シジミ全身・軟体部の環境水からの取り込みにおける濃縮係数・生物学的半減期への塩分の影響
(水温 20℃)

	¹³⁷ Cs		⁸⁵ Sr		¹²⁵ I	
	CF	T _b 1/2	CF	T _b 1/2	CF	T _b 1/2
全身						
10%海水	3.6	25日	27	100日	93	75日
40%海水	3.3	22日	11	90日	57	72日
80%海水	3.4	28日	8	110日	34	52日
軟体部						
10%海水	35	31日	2.4	17日	48	37日
40%海水	29	26日	1.2	15日	30	41日
80%海水	30	35日	1.0	11日	31	62日

〔参考文献〕

- 1) KKimura : Accumulation and retention of cesium-137 by the common goby., Bull. Japan. soc. sci. Fish., 50, 481-487(1984).
- 2) Y.Suzuki, K.Nakamura, R.Nakamura, M.Nakahara, T.Ishii, M.Matsuba and Y.Nagaya : Radioecological studies in the marine environment, Proceedings of International Conference on Radiation Effects and Protection, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokyo, 484-491 (1992).
- 3) D.F.Jefferies and C.J.Hewett : The accumulation and excretion of radioactive caesium by the plaice (*Pleuronectes platessa*) and the thornback ray (*Raja clavata*), J. Mar. Biol. Ass. U.K, 51, 411-422(1971).
- 4) 海洋環境放射能総合評価事業成果報告書－海産生物放射能評価調査－平成2年度青森県事業成果報告書(1991).
- 5) 岩田仲弘, 中原元和, 石井紀明, 小柳卓 : マボヤによる放射性核種取り込みと排出, 電力中央研究所報告 : U87038, (1988).
- 6) 海洋環境放射能総合評価事業成果報告書－海産生物放射能評価調査－昭和62年度青森県事業成果報告書(1988).
- 7) R.Nakamura, M.Nakahara, Y.Suzuki and T.Ueda : Relative importance of food and water in the accumulation of radionuclides by sea urchin *Strongylocentrotus nudus*, Bull. Japan. Soc. sci. Fish., 52, 703-710(1986).
- 8) Y.Suzuki, M.Nakahara and R.Nakamura : Accumulation of cesium-137 by useful mollusca., Bull. Japan Soc. Sci. Fish., 44, 325-329(1978).
- 9) F.L.Harrison : Accumulation and loss of cobalt and Caesium by the marine clam, *Mya arenaria*, under laboratory and field conditions., IAEA-SM-158/28, "Radioactive Contamination of the Marine Environment", Proc. of a symposium, Seattle, IAEA, Vienna, 453-478(1973).
- 10) 海洋環境放射能総合評価事業成果報告書－海産生物放射能評価調査－昭和63年度青森県事業成果報告書(1989).
- 11) G.Cranmore and F.L.Harrison : Loss of ¹³⁷Cs and ⁶⁰Co from the oyster *Crassostrea gigas*, Health Physics, 28, 319-333(1975).
- 12) 海洋環境放射能総合評価事業成果報告書－海産生物放射能評価調査－平成元年度青森県事業成果報告書(1990).
- 13) J.P.Baptist, D.E.Hoss and C.W.Lewis : Retention of ⁵¹Cr, ⁵⁹Fe, ⁶⁰Co, ⁶⁵Zn, ⁸⁵Sr, ⁹⁵Nb, ¹⁴¹In and ¹³¹I by the atlantic croaker (*Micropogon undulatus*), Health Physics, 18, 141-148(1970).
- 14) 佐伯誠道 : 海洋放射能調査研究報告書－一枚放射性核種の海産生物への移行に関する研究ならびに水産食品消費の実態調査－, 放医研NIRS-R-3(1974).
- 15) S.Hirano, T.Ishii, R.Nakamura, M.Matsuba and T.Koyanagi : Chemical forms of radioactive iodine in seawater and its effects upon marine organisms., Radioisotopes, 32, 319-322(1983).
- 16) S.Hirano, M.Matsuba and T.Koyanagi : Influences of stable iodine upon the concentration of radioactive iodine by marine organisms., Radioisotopes, 32, 353-358 (1983).
- 17) 中原元和 : 海洋生物の放射性元素濃縮と食物連鎖, 放医研環境セミナーシリーズNo.20 「環境と公衆の安全のためのアプローチ－放射性核種の生態系移行・代謝・線量推定－」, 放医研NIRS-M-93, 13-22(1993).

② ^3H の水圏における移行

宮本 霧子 (第4研究グループ)

A Transfer Model for ^3H in the Aquatic Environment.

Kiriko Miyamoto

(Environmental and Toxicological Sciences Research Group)

[モデル]

Abstract

Tritium is considered to be a significant source of internal exposure for man. Our present work is focussed on designing a tritium compartment model of the local aquatic ecosystem. Our concept is based on the seven-box model of the hydrological cycle on a global scale that was proposed by National Council on Radiation Protection and Measurements (NCRP). To estimate the impact of nuclear facilities in a local area, geographical and geological conditions need to be taken into consideration. Therefore in present work, groundwater reservoir was divided into three layers and then the transfer coefficients were determined by analyzing time-series data on fallout tritium concentrations in the local environmental water. The most important difference between the NCRP model and ours is that the tritium metabolism of aquatic plants, invertebrates and fish is taken into consideration. For these aquatic organisms there are two sub-compartments, namely tissue free water tritium (TFWT) and organically bound tritium (OBT). We developed this model because the living organisms in such aquatic systems are utilized as fishery products by the Japanese people. There are twenty-six compartments in an aquatic ecosystem at all.

[緒言]

1950年代より行われた核実験によって、多量に生成されたフォールアウトトリチウムは、水(HTO)として地球上を循環してきた。逆にそれがトレーサとして利用され、水循環機構についての研究も数多く行われている。また1979年には、NCRPによって、地球規模の水循環について、7つのコンパートメントからなるモデルが作られた。¹⁾その後、南・北半球、緯度帯、海洋上大気、陸上大気など、コンパートメントを細かく分けるモデルも作られた。²⁾特定の局地の水循環は地域特性をもつパラメータに大きな影響を受けるので、観測結果を基に普遍性のあるモデルを構築しようとする、研究者にとってかなりの思い切りが必要である。研究者1人にモデルが1個あると言っても過言ではない。いや2個以上あるかもしれない。

図1にNCRPが構築した、地球規模水循環モデルを示す。水塊の体積やコンパートメントにおける平均滞留時間などのデータも示されている。図2にNCRPモデルを使って、仮に大気に1 MCi放出した場合の、40年間の河川水や地下水、海水などの各コンパートメントのトリチウム濃度の推移が計算された結果を示す。ヒトの飲料水の80%を地表水から、20%を深部地下水から得るとしてのヒトのトリチウム濃度も推定されている。

本特別研究においては、NCRPモデルを参考にしながら、日本で原子力施設のある小規模の平野などに適用できる、局地規模水循環モデルを構築することを目的にした。

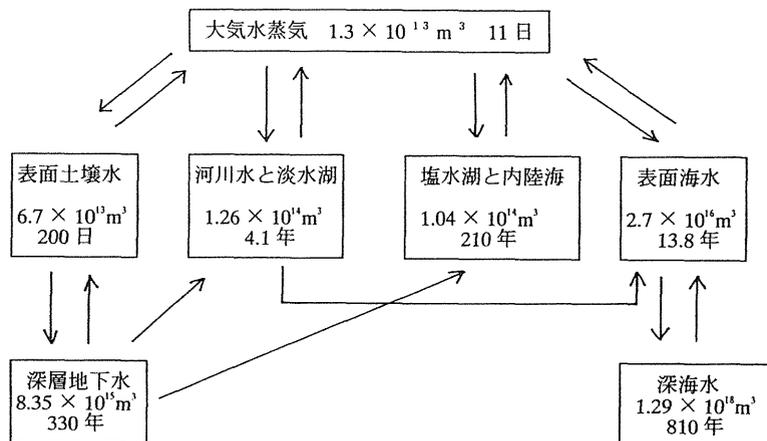


図1 NCRPの水循環7コンパートメントモデルの構造

(コンパートメント内の数字は地球全体で合計した各水塊の体積とその平均滞留時間を表す。)

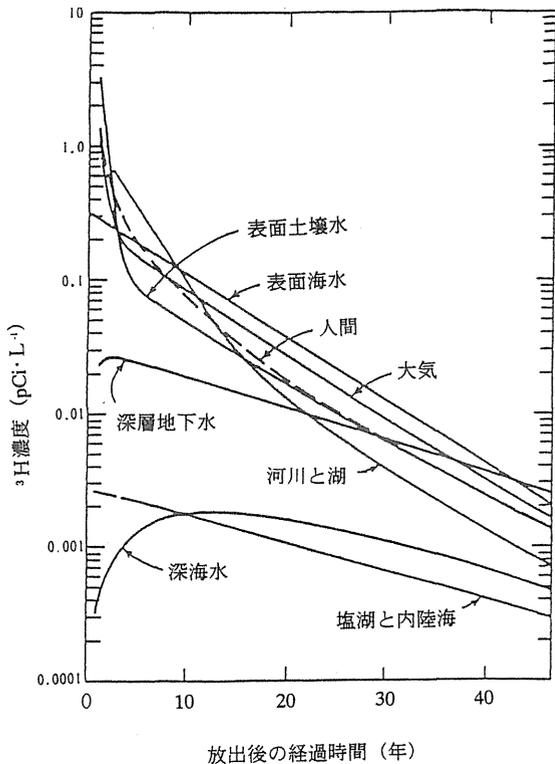


図2 大気に1MCiのトリチウムを放出したと仮定した場合における、NCRPモデルの各コンパートメント中トリチウム濃度の経年変化

[材料と方法]

1. 関東平野における地域水循環モデル

図3及び図4に関東平野における、河川水と地下水の30年間のフォールアウトトリチウム濃度観測値の推移を示した。これらの観測値を解析することにより、関東平野に供給された降水が地下水になり、河川水として流出して海洋へ排出されるまでの機構について、下記のようなモデルを

構築した。³⁾

地下水の帯水層を深さによって3段に分けるが、降水は第一層の帯水層にのみ供給される。第一層からは、1年毎にある割合の地下水が第二層に降下し、同時に河川水にも表面流出する。第二層から第三層にも同じことが起こり、第三層からは表面流出のみが起こる。上層から下層への降下や、河川への流出の割合などを定数として仮定して式を立て、それを変換していくと、最終的に次式のような関係式が成り立つ。

$$[T_{Vn}]_{top} = (1-L)[T_{Vn-1}(1-a-b)]_{top} + T_{Rn} [x]_{top} \quad (1)$$

$$[T_{Vn}]_{second} = (1-L)[T_{Vn-1}(1-a-b)]_{second} + [x]_{second} [T_{Vn-1}(b/x)]_{top} \quad (2)$$

$$[T_{Vn}]_{third} = (1-L)[T_{Vn-1}(1-a)]_{third} + [x]_{third} [T_{Vn-1}(b/x)]_{second} \quad (3)$$

$$T_{Sn} = ([T_{Vn}c]_{top} + [T_{Vn}c]_{second} + [T_{Vn}c]_{third}) / ([c]_{top} + [c]_{second} + [c]_{third}) \quad (4)$$

$$[MRT]_{top} = [V]_{top} / R = 1 / [x]_{top} \quad (5)$$

$$[MRT]_{second} = [x]_{top} / ([x]_{second} [b]_{top}) \quad (6)$$

$$[MRT]_{third} = [x]_{second} / ([x]_{third} [b]_{second}) \quad (7)$$

top : 地表面から数えて第1層目の地下帯水層を示す。

second : 地表面から数えて第2層目の地下帯水層を示す。

third : 地表面から数えて第3層目の地下帯水層を示す。

T_{Vn} : n番目の年の帯水層の地下水の平均トリチウム濃度 (Bq/ℓ)

T_{Rn} : n番目の年の年間降水中の平均トリチウム濃度 (Bq/ℓ)

L : トリチウムの壊変定数 (0.05575 年⁻¹)

R : 第一帯水層への年間降水量(毎年一定とする) (ℓ/年)

V : 各帯水層の体積 (ℓ)

X : 各帯水層のターンオーバー定数(=R/V) (年⁻¹)

a : 毎年各帯水層から下層へ降下する割合 (年⁻¹)

b : 毎年各帯水層から河川へ流出する割合 (年⁻¹)

c : 各帯水層からの流出水の河川への混合比

T_{Sn} : n番目の年の河川水の平均トリチウム濃度 (Bq/ℓ)

MRT : 各帯水層の平均滞留時間 (年)

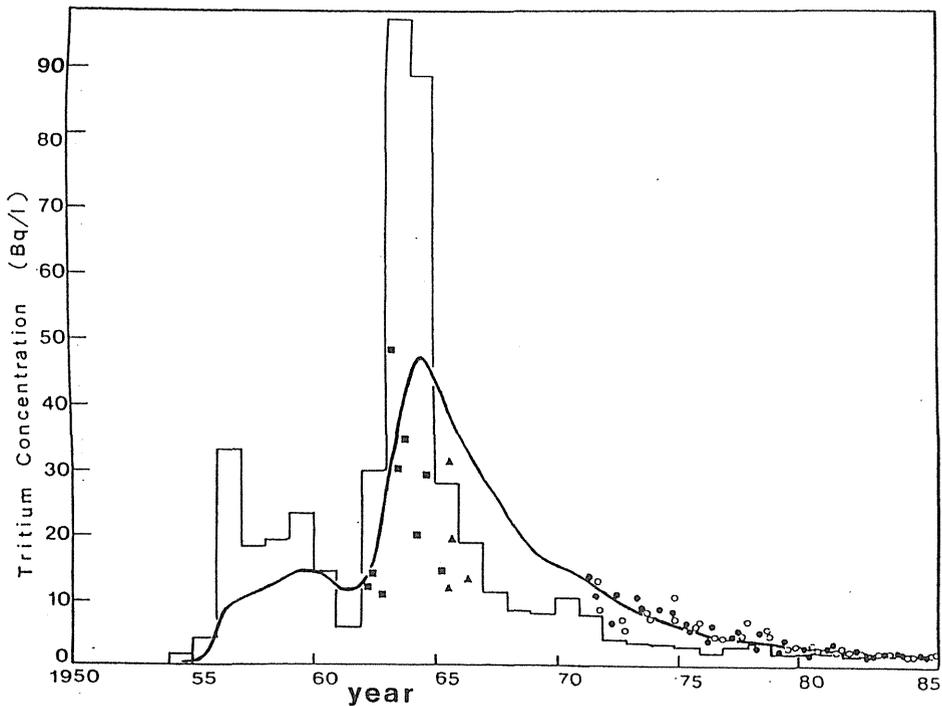


図3 関東平野における河川水のフォールアウトトリチウム濃度の測定値とモデル計算値

○●▲■の記号は関東平野における河川水等地表水中トリチウム濃度の観測値を示す。

曲線は式(4)に基づいた河川水中トリチウム濃度 T_{Sn} の計算値を示す。

棒グラフは降水中トリチウム年平均濃度の観測値を示す。

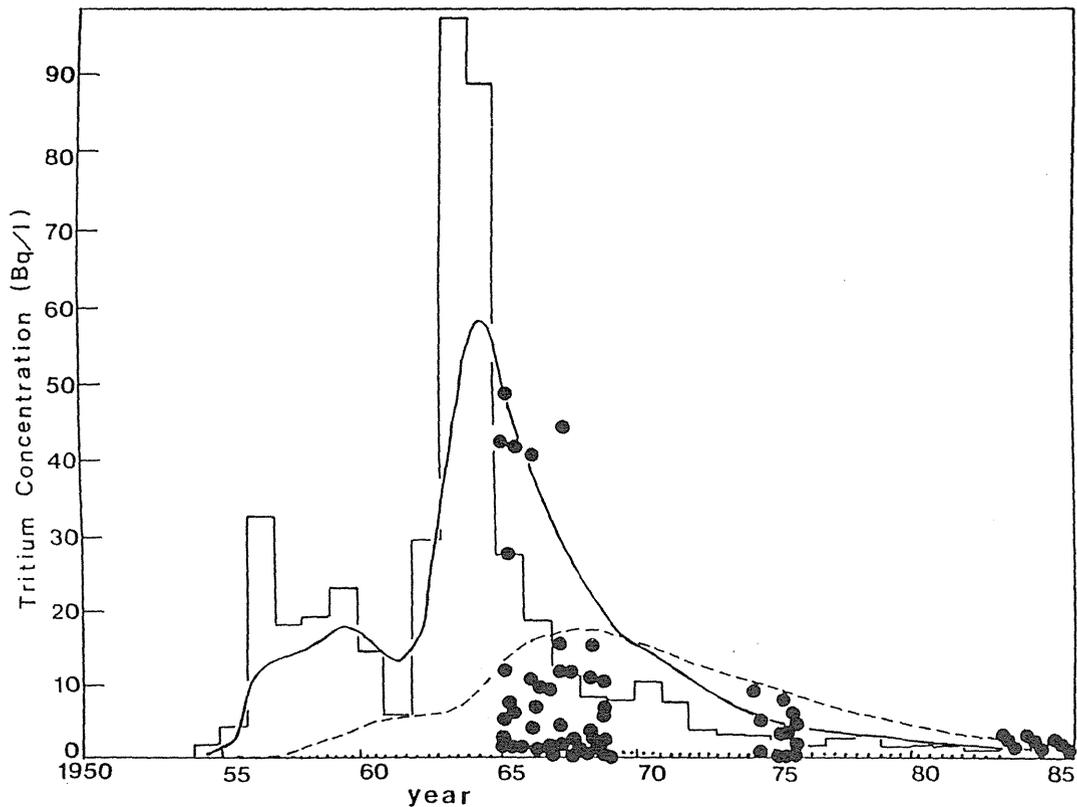


図4 関東平野における地下水のフォールアウトトリチウム濃度の測定値とモデル計算値

●の記号は関東平野における地下水中トリチウム濃度の観測値を示す。
 実線は式(1)、破線は式(2)、点線は式(3)に基づいた、各地下水層の年平均トリチウム濃度 T_v の計算値を示す。
 棒グラフは降水中トリチウム年平均濃度の観測値を示す。

2. 青森県六ヶ所村における地域水循環モデル

トリチウムが降水として関東平野に降下し、地下水から河川水になる水循環機構モデルとその移行速度定数が、フォールアウトトリチウムの時系列解析から求められた。次に同様の考え方を青森県六ヶ所村に適用して、降水、地下水、河川水のトリチウム濃度の5年間の観測結果を解析した。そして関東平野の解析結果と比較することにより、六ヶ所村の地下水の帯水層も3層から成り立っていること、降水のトリチウム濃度は、緯度効果によって関東平野よりも1.5倍高く、また第2帯水層の大きさは関東平野の3分の1に仮定すると、六ヶ所村の高めの河川水中トリチウム濃度の実測値を説明できることなどが分かった。

以上の2地域の観測結果を基に、放医研トリチウム水循環モデルを構築することにした。

3. 移行速度定数の決定

1) 水圏生態系について

文献調査により種々の観測・実験結果から水圏生態系における移行速度定数を求めようとする、下記の情報不足が障害となる。

- ①実験対象の生物種が限られている。
- ②トリチウムについては淡水と海水の実験結果しかない。
- ③実験方法が統一されていない。
- ④報告データの形式が揃っていない。

従って下記のような条件の下で放医研モデルを組み立てた。

- ①生物種は藻類・無脊椎動物・魚類の三種に分類すれば十分である。
- ②淡水生物と海水生物、及び汽水生物は今のところ区別

せず同じ移行速度定数を用いる。

- ③移行速度定数(/日)はグラフから読みとったり生物学的半減期から算出する。
- ④移行速度定数の一部は、仮の値を仮定してモデルを計算し、そのシミュレーション結果を科学的常識や見解を基に判断して、適切な移行速度定数を案出する。

2) 水循環サイクルについて

関係式(1)~(4)の中の定数 a , b , c , x に仮の値を与

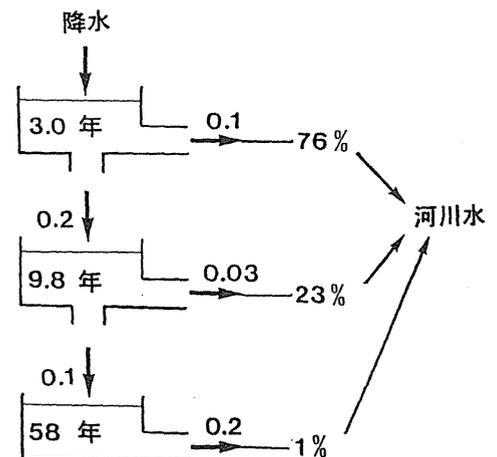


図5 放医研の関東平野水循環モデルの構造

数字は各帯水層からの移行速度定数(/年)、平均滞留時間、河川への混合率などを示す。

え、毎年の降水中のトリチウム濃度の測定値を逐次入力し、計算で得られる各層の地下水と河川水の予測濃度が実際の測定値と合うまで定数を変化させる。そしてよく合ったときに使った定数値を、モデルで使用するパラメータとして決定する。図5はその方法で得られた帯水層からの降下割合や流出割合、平均滞留時間の値をまとめたものである。図3、4中の曲線は、それぞれもっともよく合ったときの計算値を示している。

[結果]

1. 水圏生態系についての放医研モデル

水圏生態系に生育する動植物の組織自由水型トリチウム(TFWT)と有機結合型トリチウム(OBT)は、ヒトが食物連鎖を通して受けるトリチウムによる内部被ばく線量を評価する上でも、水圏生態系における物質循環を明らかにするためにも、コンパートメントとして定義する必要がある。またトリチウムは水素の同位体であるため、水素を多く含む環境要素が重要な移行経路になる。従って放医研トリチウム移行モデルの水圏生態系の部分は以下に述べるような内容とした。

- ①水圏生態系では、生物として藻類・無脊椎動物・魚類の三種のコンパートメントのみを定義することとした。それらは互いに食物連鎖の関係を構成していることとした。トリチウムは水素の同位体であるため、マスの多い生物種がトリチウム移行経路での重要なコンパートメントを意味することになる。藻類は光合成を行う全ての種類の微生物を含んで定義されるコンパートメントであり、無脊椎動物は、水圏生態系において魚類以外に豊富に存在する動物類を総合して定義されるコンパートメントである。
- ②各生物の体内代謝成分コンパートメントとして、組織自由水型水素(TFWH)と有機結合型水素(OBH)の化学形を考えるが、トリチウムは、水素と全く同じ代謝挙動を行うこととする。

図6に上記の考え方で構築した放医研の水圏生態系におけるトリチウム移行モデルの構造を、また表1に文献調査により求め、放医研モデルに組み込んだ、水圏生態系に係わる移行速度定数を示した。

移行速度定数とは、ある一定時間毎に1つのコンパートメントから他のコンパートメントへ移動する割合を表す。表1は1日当たりに移動する割合を示した。表の値が1より小さい場合はコンパートメントの体積の中の割合を表し、1より大きい場合はコンパートメントの体積の倍数を意味する。後者は極めて移行が速いことになるが、コンパートメント間の反対方向の移行速度定数もまた速いので、結果的に相互の交換が速く、2つのコンパートメントの濃度が等しくなるのが速いということの意味する。

2. 水循環サイクルについての放医研モデル

地球規模のNCRPモデルと、関東平野の降水→地下水→河川水の循環に関する著者らの観測結果より、日本の風土に適用できる水循環に関する放医研モデルを構築した。コンパートメントは、水蒸気・土壌水・地下水3層・河川水・汽水・海洋2層の9つを仮定した。図7に構築した放医研の水循環トリチウム移行モデルの全体像を図示し、また

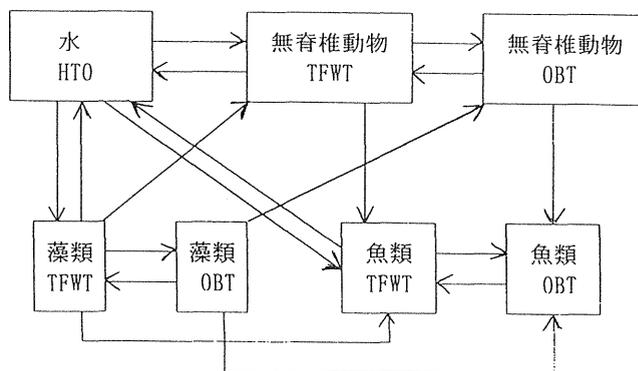


図6 放医研水圏生態系トリチウム移行モデルの構造

表1 放医研水圏生態系トリチウム移行モデル移行速度定数 (AコンパートメントからBコンパートメントへ 単位= /日)

B \ A	水 HTO	藻類 TFWT	藻類 OBT	無脊椎動物 TFWT	無脊椎動物 OBT	魚類 TFWT	魚類 OBT
水 HTO	---	53	0	12	0	0.693	0
藻類 TFWT	53	---	0.99	0	0	0	0
藻類 OBT	0	0.0072	---	0	0	0	0
無脊椎動物 TFWT	0.18	21	0	---	0.0024	0	0
無脊椎動物 OBT	0	0	0.022	0.0005	---	0	0
魚類 TFWT	60	9	0	9	0	---	0.0462
魚類 OBT	0	0	0.022	0	0.022	0.73	---

表2に文献調査及び関東平野での観測結果より求め、放医研モデルに組み込んだ、水循環に係わる各コンパートメントのトリチウムの移行速度定数を示した。

表中の数値の単位は表1と同じである。NCRPの数値をそのまま使ったところと、放医研の観測結果から求めた数値がある。一部は仮の数値が入れてあり、今後のシミュレーション結果を反映させて変更していく予定である。

[考察]

1. 放医研トリチウム移行モデルの試算結果

1) 水圏生態系について

表1の移行速度定数を用いて、放医研水圏生態系トリチウム移行モデルをシミュレーション計算した1例を、図8に示す。水に単位1のトリチウムを放出したときの、各生物コンパートメントのトリチウム存在量の相対的な割合が、

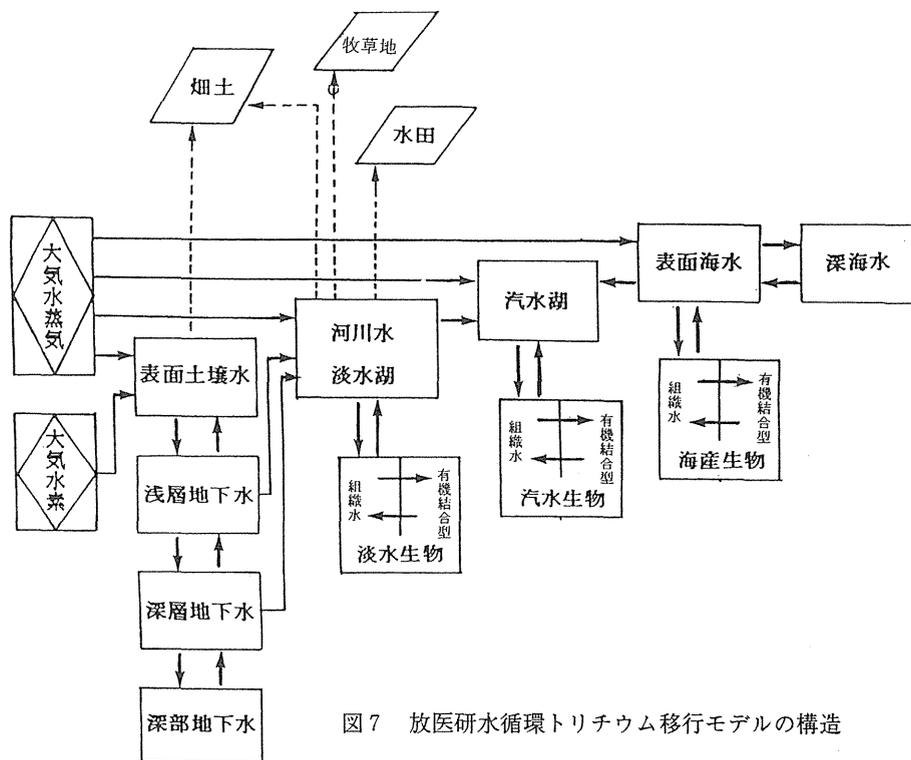


図7 放医研水循環トリチウム移行モデルの構造

表2 放医研水循環トリチウム移行モデルの移行速度定数

(AコンパートメントからBコンパートメントへの移行 単位= /日)

A \ B	大気水蒸気	表面土壌水	浅層地下水	深層地下水	深部地下水	河川水・淡水湖	汽水湖	表面海水	深海水
大気水蒸気	---	0.0028	0	0	0	0.0000217	0.0000217	0.0000355	0
表面土壌水	0.0209	---	0	0	0	0	0	0	0
浅層地下水	0	0.00082	---	0	0	0	0	0	0
深層地下水	0	0	0.00055	---	0	0	0	0	0
深部地下水	0	0	0	0.00027	---	0	0	0	0
河川水・淡水湖	0.000126	0	0.00027	0.000082	0.0000036	---	0.5	0	0
汽水湖	0.000126	0	0	0	0	0.5	---	0.5	0
表面海水	0.0674	0	0	0	0	0.000652	0.5	---	0.000034
深海水	0	0	0	0	0	0	0	0.000162	---

時間と共に変化する様子が曲線群によって表されている。取り込みと排出が速いコンパートメントは、直ちに水と同じ比放射能に達した後、それが保たれ、取り込みの遅いものはゆっくり上昇する様子がシミュレートされている。

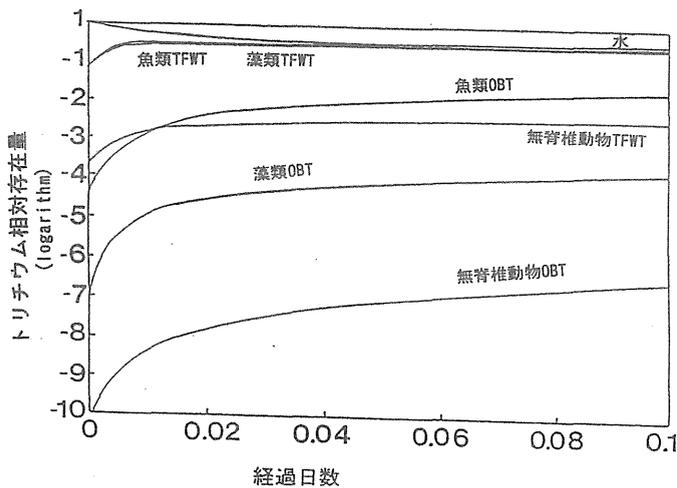


図8 放医研水圏生態系トリチウム移行モデルの試算結果例

2) 水循環サイクルについて

水循環過程について9つのコンパートメントを立てたのは以下のことを考慮した結果である。

- ①NCRPのモデルは、本来地球規模の水循環について定義されたコンパートメントからなっている。しかし日本のある局地を対象とした場合でも、1個の水塊の規模は小さくとも、コンパートメントの種類はおよそこれらの要素から成り立っているといても良いであろう。従ってNCRPモデルは日本の局地用に若干変更することとする。
- ②変更の第1として、地下帯水層を2層加え、3層とした。日本では関東平野に限らず、第4紀沖積層、洪積層に当たる帯水層と、その下の深部帯水層が見られる沖積平野が多く、人口もそこに密集している。著者らは青森県六ヶ所村について同様の観測結果を得ている。
- ③変更の第2として、塩湖や内陸海の代わりに汽水湖コンパートメントを作った。日本列島には大陸に多い塩湖や内陸海にあたるものはなく、湖の規模も小さい。しかし日本には汽水湖や海岸付近の汽水環境は多く、それは豊富な河川流出を伴った小さな入江や湾、干潟の形態としても見られる。従って六ヶ所村の汽水湖のみを標的にするまでもなく、日本の水圏に、塩分濃度の薄い海水環境を定義する必要があると考えられる。

表2の移行速度定数を用いて、放医研水循環トリチウム移行モデルをシミュレーション計算した1例を図9に示す。水蒸気に単位1のトリチウムを放出したときの、各コンパートメントのトリチウム存在量の相対的な割合が、時間と共に変化する様子が曲線群によって表されている。移行速度定数には一部仮の値が入れてあり、今後のシミュレーション結果を反映させて変更していく予定である。

2. 今後の課題

このように、計算機上で仮想のトリチウム放出を行い、

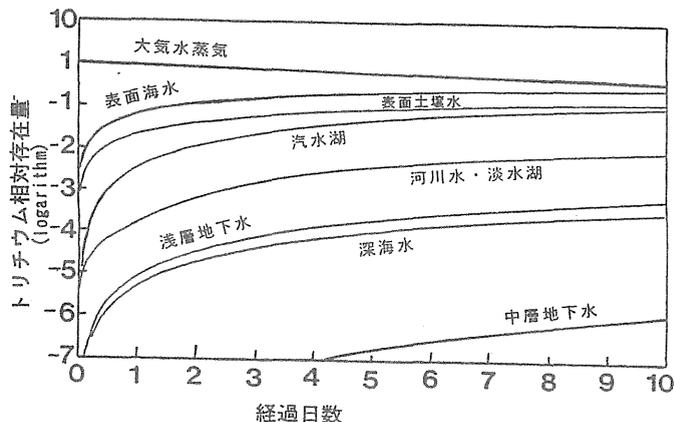


図9 放医研水循環トリチウム移行モデルの試算結果

水圏におけるトリチウムの、相対的な移行分配量の経時変化を求めることはできるが、特定の実在する水域にトリチウムを放出した場合の、個々の生物種、水塊のトリチウム濃度の変化を予測するためには、その水域特性に付随した種々のデータベースを必要とする。

[参考文献]

- 1) National Council on Radiation Protection and Measurements, Tritium in the Environment, NCRP Report No. 6 2, Washington, DC (1979).
- 2) G. G. Killough & D. C. Kocher: A Model for Global Cycling of Tritium, Fusion Technol., 14, 1115-1120 (1988).
- 3) K. Miyamoto, K. Kimura & S. Hongo: A Transfer Model of Tritium in a Local Hydrosphere, Fusion Technol., 28, 910-917 (1995).
- 4) 宮本霧子: 陸圏水循環モデルの局地への適応性、クロスオーバー研究シンポジウム「汚染物質の環境挙動予測に関する局地規模詳細モデルならびにその移行パラメータ」、190-202, 平成7年。
- 5) K. Miyamoto: The Study of a Hydrological Model and its Parameters Using Data on the Distribution of Hydrogen Isotopes, Nuclear Cross-Over Research "Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters", 226-236, 1996.

[研究発表]

- 1) K. Miyamoto, K. Kimura & S. Hongo: A Transfer Model of Tritium in a Local Hydrosphere, Fusion Technol., 28, 910-917 (1995).
- 2) 宮本霧子: 陸圏水循環モデルの局地への適応性、クロスオーバー研究シンポジウム「汚染物質の環境挙動予測に関する局地規模詳細モデルならびにその移行パラメータ」、190-202, 平成7年。
- 3) K. Miyamoto: The Study of a Hydrological Model and its Parameters Using Data on the Distribution of Hydrogen Isotopes, Nuclear Cross-Over Research "Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters", 226-236, 1996.

[データベース]

1. トリチウム移行モデル構築のための基本観測データの収集

過去の研究経緯

世界の多くの国で、海洋、河川や湖など、水圏生態系に生育する生物は、直接的には食品として、また間接的にも有機物資源として利用され、特に日本は、名だたる海洋資源依存国である。また、日本の原子力施設は海岸に立地しているため、魚介類の放射性核種の取り込みに関する研究は、主に核分裂生成核種の濃縮係数を明らかにするという視点から行われてきた。ところがトリチウムは生物濃縮を起こさない。従ってトリチウムは食品経路で摂取されるクリティカルな核種とは見なされず、実験室での魚介類の取り込み実験は行われて来なかった。また欧米では、原子力兵器の開発が盛んであった頃から、現実に自然生態系に多量のトリチウムを放出したので、魚介類のフィールド調査からトリチウムの取り込みに関する情報を直接得ることができた。これは日本では希である。従って水圏生態系におけるトリチウムの移行に関する研究は欧米が中心である。

1973年から1978年まで、IAEAを事務局にして、顧問委員会によりデータがとりまとめられ、Tritium in Some Typical Ecosystems (Technical Report Series No. 207)¹⁾ という資料が1981年に出版された。これは、

IAEA/WMOによる世界規模のモニタリングプロジェクトによって、トリチウムの地球規模での分布については十分な知識が得られたが、局地環境での生態系循環についての情報、即ちコンパートメント間の移行率や、有機組織への取り込み等についての知見が非常に不足しているということか認識されたためである。その中にはベルギー、インド、米国のデータがまとめられている。

藻類のトリチウム取り込み実験

海藻類を直接食用にする国は少ないかもしれないが、藻類自身は水圏生態系における一次エネルギー生産者として物質循環に重要な役割を演じている。水槽を用いて、実験室内で行うトリチウムの取り込み実験は、核種の性質上、水槽中の濃度を平衡状態に保つことが非常に難しいため、長期の実験結果は少ない。組織自由水型トリチウム(TFWT)も有機結合型トリチウム(OBT)もトリチウム水の取り込みと排出はかなり速いため、動的な解析に利用できる途中経過の測定値が貴重である。

OBTについては、アミノ酸分析など成分毎に分画する試みや、DNAレベルの解析も行われているが、今のところ、線量評価上利用すべき重要な知見はない。

表1に藻類のトリチウム取り込み実験の結果をまとめた。平衡状態における比放射能比はTFWTもOBTも1を越えない。

表1 藻類のトリチウム取り込み実験レビュー結果

実験国	生物種	水槽の種類	水槽T濃度 (μ Ci/ml)	培養期間	比放射能比		移行速度定数(/日) (TFWT→水)
					TFWT/水槽	OBT/水槽	
米 国	蒲 (<i>Typha angustifolia</i> L.) 繊維状藻類 (<i>Pithophora</i> sp.)	淡水	0.080	8ヶ月間	1.02	0.62-0.99	
インド	(<i>Scenedesmus obliquus</i>) (<i>Hydrilla verticillata</i>) (<i>Chlamydomonas reinhardtii</i>)	淡水	0.05-50	12-42日間	0.94-1.09	0.67-0.91	67
ベルギー	(<i>Acetabularia mediterranea</i>) (<i>Dunaliella bioculata</i>) 褐藻(<i>Porphyra</i> sp.) 緑藻(<i>Ulva lactuca</i>) (<i>Chlamydomonas</i> sp.)	海水	0.03	2-27日間			
			0.6-4.1				

魚類と無脊椎動物のトリチウム取り込み実験

魚類、貝類や甲殻類などを研究する必要性は、「食用にされるから、線量評価のためにトリチウムの取り込みを解析する必要がある」、というだけでは不十分である。微生物、プランクトンなどを含め、水圏中の多種多様の魚類、脊椎を持たないその他の動物類も、個々が生存のための代謝作用を行うことによって、自然生態系における物質循環において重要な役割を演じている。従ってトリチウムの水圏生態系における移行過程については、少なくとも代表的な生物種についてのパラメータを押さえ、いつでも評価が可能であるように、移行モデルの中に経路を確保する必要があると考えられる。

表2に魚類・無脊椎動物類のトリチウム取り込みと排出の実験結果をまとめた。一部の実験は藻類、プランクトン、昆虫等と混合飼育され、自然の生態系を模した水槽で行われている。トリチウムの取り込みと排出は速く、平衡状態の比放射能比は藻類と同様に、TFWTもOBTともに1以下である。取り込み後の排出の実験から、生物学的半減期や移行速度定数が算出されているが、値の変動原因が生物種の違いによるものなのかどうか、不明である。

表2 魚類・無脊椎動物類のトリチウム取り込み実験レビュー結果

実験国	生物種	水槽の種類	水槽T濃度 (μ Ci/ml)	培養期間	比放射能比 OBT/水槽	移行速度定数(/日) (OBT→TFWT) (TFWT→水)	
米 国	(<i>Gamusia affinis</i>)	淡水	0.08	203日間	0.36-0.88	0.0462	
	(<i>Poeciliopsis occidentalis</i>)			185日間	0.49-0.56		
	鱒(<i>Salmo gairdnerii</i>)			140日間	0.27-0.42		
	鯰(<i>Ictalurus lacustris</i>)			133日間	0.41		
	貝(<i>Anagonta nuttaliana</i> Lea)						
	ザリガニ(<i>Astacus sp.</i>)						
金魚(<i>Carrassius auratus</i>)					0.693		
インド	(<i>Tilapia mossambica</i>)	淡水		30日間	0.035	21	
ベルギー	金魚 (<i>Carassius auratus</i>)	淡水		10-32日間	0.13-0.25		
	鱒(<i>Salmo trutta forma fario</i>)			5-10日間	0.15		
米 国	貝 (<i>Mya arenaria</i>)	海水				6.9、0.0024	
	蟹(<i>Cancer productus</i>)					43	7.9
インド	牡蛎 (<i>Crassostrea gigas</i>)	海水	0.126				
	(<i>Katelysia opima</i>)					6	12-23
	(<i>Anadara granosa</i>)				0.0676		17
ベルギー	(<i>Crangon vulgaris</i>)	海水					
	(<i>Asteria rubens</i>)						
	(<i>Mytilus edulis</i>)						

フィールド調査による研究結果

ベルギーのモルでは、液体廃棄物が、小さな河川や池の連なった水圏生態系に放出され、その研究が行われている。廃棄されたトリチウムにはT有機化合物も含まれていたもので、特に有機物への取り込みについて注意が払われている。

表3にその結果を示した。表1及び表2に示された、実験室におけるトリチウム水からの取り込み実験結果とは異なり、T有機化合物を含んだ河川水に生育する藻類や魚類のOBTの比放射能は、河川水自身の比放射能の数十倍にも達していることが分かる。TFWTもOBT代謝の影響を受けて1以上である。従って後に、河川水中のトリチウムの化学形とその生物学的利用可能性について研究がなされ、トリチウム核種はその存在化学形こそが、ヒト被ばく線量の予測評価にとって、最も感度の高いパラメータであることが明らかにされることとなった。

線量評価モデルを構築するときには、後々の詳細評価に資するため、OBTの取り込みと代謝の経路を確保すべきである。それは食品からヒトへの経路においてはもとより、水圏における生態系循環においてこそ、重要であろう。

[参考文献]

- 1) Tritium in Some Typical Ecosystems, IAEA Technical Report Series No. 207, (1981).

[研究発表]

表3 T有機化合物を放出した河川・池の生物試料の比放射能比調査結果

試料	OBT/水	TFWT/水
河川水 藻類	9.6	—
池水 魚類	9.2	2.1

I-5 人体における移行パラメータとモデルに関する研究

武田 洋、土居雅弘（第4研究グループ）、内山正史、河村日佐男、
西村義一、湯川雅枝、石川徹夫、渡辺嘉人（人間環境グループ）

Biokinetic Model and Parameters for Estimation of Internal Dose to Members of Japanese General Public

H. Takeda, M. Doi (Environmental and Toxicological Sciences Research Group),
M. Uchiyama, H. Kawamura, Y. Nishimura, M. Yukawa, T. Ishikawa, Y. Watanabe
(Division of Human Radiation Environment)

Abstract

The radionuclides released into the environment will be partly incorporated into the human body by ingestion or inhalation. The organ dose and effective dose from the incorporated radionuclides depend on metabolic behaviour of the radionuclides. For an actual and precise dose estimation, it is necessary to develop a biokinetic model which describes the behaviour of radionuclide in the body.

In the present study, a comprehensive system of dose assessment for ^3H , ^{90}Sr , ^{131}I and ^{137}Cs which are important radionuclides from a viewpoint of health physics, was constructed by developing their biokinetic models in connection with their environmental transfer models. The biokinetic models were expected to be applicable to the Japanese general public that consist of different age groups. For this purpose, ICRP models were modified on the basis of difference in physiological data between ICRP Reference Man and Japanese. As for tritium, the model was newly developed to describe the biokinetic of tritium based on the results of animal experiments which were carried out by using tritiated compounds in various chemical forms, since there is no physiological significance in the ICRP model.

The modified and newly developed models were coded for a computer operation. By computer simulation, the parameters used in these models were subjected to sensitivity analysis and changed to be more appropriate parameters. To improve the present model into a furthermore comprehensive model in the near future, the parameters of biokinetic and food intake were collected by surveying currently available literature and a database was developed.

本研究の基本的目標

環境中に放出された主要放射性核種による日本人一般公衆への被ばく線量評価を目的とし、トリチウム(^3H)、ストロンチウム-90(^{90}Sr)、ヨウ素-131(^{131}I)、セシウム-137(^{137}Cs)の4核種について人体内での動態をモデル化する。また、モデルの高精度化や多用途化のため、代謝と食品摂取に関する各種パラメータをデータベースとし

て整備する。なお、代謝モデルについては ICRP が放射線防護上の線量算定に用いているモデルを基本とするが、これまでの研究成果をふまえ、また日本人年齢群別の体格と生理を考慮したモデルへ修正・改良する。図1に ICRP の基本的な放射性核種の代謝モデルを示した。また表1に示したのは摂取された放射性核種の消化管内移動を記述する ICRP の胃腸管モデルである¹⁾。

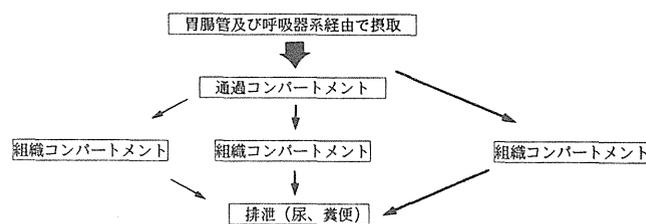


図1 放射性核種代謝モデル¹⁾

表1 胃腸管モデル²⁾

胃腸管の区分	壁の質量 (g)	内容物の質量 (g)	平均滞留時間 (d)	速度定数 (1/d)
胃	150	250	1/24	24
小腸	640	400	4/24	6
大腸上部	210	220	13/24	1.8
大腸下部	160	135	24/24	1

胃腸管に入った放射性核種は上表に示された時間だけ胃腸管の各部分に滞留して、表示された速度定数で胃、小腸、大腸上部、大腸下部の順に逆行することなく移動し42時間で排泄される。この間、小腸から通過コンパートメントである体液へ放射性核種が移行する。体液からは半減期0.25日で各器官に移行して滞留する。

① 代 謝

武田 洋、土居雅弘（第4研究グループ）、
内山正史、河村日佐男、西村義一、湯川雅枝、石川徹夫、渡辺嘉人（人間環境グループ）

Metabolism

H. Takeda, M. Doi (Environmental and Toxicological Sciences Research Group),
M. Uchiyama, H. Kawamura, Y. Nishimura, M. Yukawa, T. Ishikawa, Y. Watanabe
(Division of Human Radiation Environment)

Abstract

Biokinetic models for ^3H , ^{90}Sr , ^{131}I and ^{137}Cs were developed in consideration of currently available information and Japanese physiological characteristics. Although most of these models were created by modifying the ICRP models, the used model parameters were newly and reasonably applied for six different age groups of Japanese. By operating the modified or newly developed models with a computer code system for Environmental Radionuclides Movement Analysis (ERMA), dose estimation or model verification was performed.

[モデル]

トリチウム (^3H または T)

1. 緒言

トリチウムは、水や有機物の主要構成元素である水素の放射性同位体であり、物理的半減期 12.35 年で β 線（平均エネルギー； 5.7 keV）を放出しヘリウムへ壊変する。原子力施設等から放出されるトリチウムの量は他の放射性核種に比べ多く、その放出時の化学形は主にガス状トリチウム (HT) あるいはトリチウム水 (HTO) である²⁾。人が被ばくした場合に、HT は HTO に比べ 4 桁程度体内への取り込み率が低いと見られ、放射線防護上問題となるのは HTO による被ばくである。しかし、環境へ放出されたトリチウムの一部が環境の動植物体内での光合成や生合成過程で有機物中に取り込まれ、これを人が摂取した場合には HTO に比べ高い被ばくをもたらすことが近年のトリチウム研究³⁻⁷⁾により明らかになり、この有機結合型トリチウム (OBT) による被ばくが問題となっている⁸⁾。したがって、被ばく線量評価を目的とする代謝モデルにおいては、トリチウムの被ばく形態として HTO と OBT との間にある代謝の違いを考慮して設計すべきである。以下には、今回我々が新たに設計した摂取型と体内で存在する化学型に配慮したトリチウム代謝モデル（5 コンパートメントモデル）について、その経緯と設計意図および他のモデルとの比較を述べる。

2. 研究内容

2-1. トリチウムの体内代謝モデルと関連する代謝パラメータについて

トリチウムの内部被ばく評価を目的として、これまでも表 2 に示すようなモデルが提唱されている^{1, 9-19)}。

提唱されているトリチウム代謝モデルは、その構造はかなり単純化されたものになっており、人体での水の生理および水素代謝の実態を反映したモデルとはいえない。また

表 2. これまでに提唱されているトリチウム体内代謝モデル

モデル名(発表年)	コンパートメント数	被ばく形態
Snyder モデル(1968)	2	HTO
Sander&Reinig モデル(1968)	3	HTO
Bennett モデル(1972)	3	HTO
Balnov モデル(1974)	4	HTO
NCRP モデル(1979)	3	HTO
ICRP Publ.30 モデル(1979)	1	HTO
Killough モデル(1982)	5	HTO
Belloni モデル(1984)	3	HTO, OBT
Crawford-Brown(1984)	2	HTO, OBT
Etnier&Travis モデル(1984)	4	HTO, OBT
ICRP Publ.56 モデル(1989)	2	HTO, OBT
Saito (MTC) モデル(1992)	3	HTO, OBT

使用された代謝パラメータ（移行係数）も、トリチウム水 (HTO) に被ばくした人の尿中トリチウム排泄データのみを合うように決定されたものであり、食物中に含まれる有機形トリチウム等による被ばくの場合のモデルとしては問題がある。特に、ICRP30¹⁾の代謝モデルでは、水の形 (HTO) での被ばくしか考慮されておらず¹⁾、近年この研究分野で問題とされている有機形のトリチウム (OBT) に被ばくした場合の線量算定の可能な新しいモデルが必要である。

2-2. 動物実験から明らかになったトリチウム代謝の実態

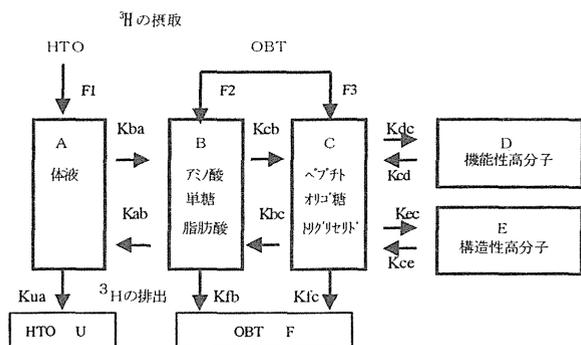
モデルの構築を行うに当たり、これまで我々が行ってきたトリチウムの生体内動態についての動物実験^{5, 6, 21-23)}の結果をレビューすると以下のようにまとめられた。

① HTO から体内有機成分への取り込みは、まず低分子へ取り込まれ、その後高分子化する。

- ②有機結合型トリチウム (OBT) は動物組織の有機成分へ直接取り込まれ、HTO より相対的にトリチウムの体内残留時間は長く、体内各組織への線量は2～5倍高くなる。
- ③作物中の OBT はアミノ酸や単糖などに分解されて吸収されるだけでなく、ペプチドやオリゴ糖などとして効率よく吸収される。
- ④OBT摂取の場合には、尿だけでなく糞によるトリチウムの体外排出が多く、しかもそのかなりの部分がOBTの形で排出されること、等が判明した。
- ⑤脂肪組織やコラーゲンへ取り込まれたトリチウムの体内残留時間は相対的に長い。

2-3. 提案したトリチウムの代謝モデル

このような実験結果を十分考慮に入れ設計したトリチウム体内代謝モデルを図2に示した。なお、このモデルは体内でのトリチウムはすべて均等分布するものと仮定し、他の核種に対して用いられている部位別(臓器・組織別)にコンパートメントを設定したものではなく、存在形態(様式)別のコンパートメントとなっている。本モデルは体内におけるトリチウムの存在様式の違いにより5つの成分とするいわゆるコンパートメントモデルである。このモデルの基本構造(ブロックダイヤグラム)は図2のように表される。



A, B, C, D, E : 各コンパートメントのサイズ
 F1, F2, F3 : 摂取量の割合
 Kba, Kcb, Kdc, Kcd, Kab, Kbc, Kcc, Kce, Kua, Kfb, Kfc : 移行係数

図2 トリチウム体内代謝モデル

本モデルの特徴は、食物に結合したトリチウム(有機結合型³H: OBT)の摂取を考慮した点である。動物のトリチウム代謝実験に基盤をおく現実的なモデルである。他のモデルにはないトリチウムの糞からの排出を考慮し、OBT摂取後に見られる糞からの比較的多量のトリチウム排出を考慮したモデルである。このモデルの全システムは次のような連立微分方程式で表現される。

$$\frac{da}{dt} = bK_{ab} - a(K_{ua} + K_{ba}) + F1 \quad \text{----- (1)}$$

$$\frac{db}{dt} = aK_{ba} + cK_{bc} - b(K_{ab} + K_{cb} + K_{fb}) + F2 \quad \text{----- (2)}$$

$$\frac{dc}{dt} = bK_{cb} + dK_{cd} + eK_{ce} - c(K_{bc} + K_{ec} + K_{dc} + K_{fc}) + F3 \quad \text{----- (3)}$$

$$\frac{dd}{dt} = cK_{dc} - dK_{cd} \quad \text{----- (4)}$$

$$\frac{de}{dt} = cK_{ec} - eK_{ce} \quad \text{----- (5)}$$

a, b, c, d, e : A, B, C, D, E 各コンパートメント中の³H存在量
 K_{ij} : コンパートメント j からコンパートメント i への水素の移行係数

また、水素(H)の収支が一定で平衡状態下にあると仮定すると、次の式が成り立つ。

$$F1 + F2 + F3 = AK_{ua} + BK_{fb} + CK_{fc} \quad \text{----- (6)}$$

$$F1 + BK_{ab} = A(K_{ba} + K_{ua}) \quad \text{----- (7)}$$

$$F2 + AK_{ba} + CK_{bc} = B(K_{ab} + K_{cb} + K_{fb}) \quad \text{----- (8)}$$

$$F3 + DK_{cd} + BK_{cb} + EK_{ce} = C(K_{bc} + K_{dc} + K_{ec} + K_{fc}) \quad \text{----- (9)}$$

$$CK_{dc} = DK_{cd} \quad \text{----- (10)}$$

$$CK_{ec} = EK_{ce} \quad \text{----- (11)}$$

F1, F2, F3 : 水素の摂取量
 A, B, C, D, E : 各コンパートメントの水素存在量

このように表される5コンパートメントモデルの各種パラメータを決定するための基礎となる人での水素のバランス(収支)と体内水素分布、および尿中トリチウムの生物学的半減期などの情報を表3, 4に示す。

表3 水素バランスと体内各コンパートメントの水素量

水素バランス 水素の摂取および排出	水素量(g)		代謝モデル上で対応する 摂取と排泄の名称
	I CRP 標準人(70kg)	標準日本人(60kg)	
摂取(全量)	(346)	(310)	
水分(食物代謝水を含む)	314	286	F1
有機物	(32)	(24)	
炭水化物	20	15	F2
脂質、タンパク質	12	9	F3
排出(全量)	(346)	(310)	
水分	333	300	Ew
有機物	13	10	Eo
人体内での水素分布*	水素量(g)		代謝モデル上で対応する コンパートメント名
	I CRP 標準人(70kg)	標準日本人(60kg)	
分布(全量)	(7000)	(6000)	
体液中	4667	4000	A
有機成分中	(2280)	(2000)	
低分子*	20	16	B
中分子	10	8	C
機能性高分子	470	415	D
構造性高分子*	1780	1560	E

a ; 全体重の約60%が体液、約19%が脂肪、約15%が蛋白質、そして約0.5%が炭水化物、なお、有機物中の水素含量は炭水化物6.2%、脂質12.7%、タンパク質7.0%として計算

b ; アミノ酸プールとグルコースであり、アミノ酸プールには全蛋白質の約4%、グルコース量は全炭水化物の約5%

c ; 脂肪組織とコラーゲンであり、貯蔵脂肪は全体重の約17%、そしてコラーゲン量は全蛋白の約30%

表4 ヒトの尿分析から得られた生物学的半減期とそれより算定された移行係数

生体内の成分	生物学的半減期 ^a (日)	移行係数 ^b (/日)	対応するものと仮定したモデル上のコンパートメント名
体液成分	9.4	0.0735	A
有機成分1	35	0.0198	B,C,D
有機成分2	450	0.00154	E

a ; これまでに報告されているヒトの尿分析の結果から平均的な生物学的半減期の値、なおHTOを摂取した日本人の生物学的半減期を調べた例では9.4日の報告²⁴⁾がある。

b ; 移行係数とは、あるコンパートメントから排出する水素が、単位時間当たりにそのコンパートメント内の全水素量のどれだけの割合で他の特定コンパートメントへ移行するかを表す速度定数であり、この値は次式のように、半減期(T_{1/2})あるいは平均滞留時間との関係式で示される。

$$\text{移行係数} = 0.693 / \text{半減期} = 1 / \text{平均滞留時間}$$

一般的に、ヒトのバイオアッセイや動物実験の結果得られるのは、半減期や平均滞留時間であるが、上記の式を使って移行係数は求められる。

ICRPはPubl.56¹⁸⁾で一般公衆に対する年齢群別の線量係数(1Bq摂取した場合の預託実効線量)を設定するために、体液成分と有機成分の2つのコンパートメントで構成されるモデルを使用している。このモデルの代謝パラメータ(各成分の生物学的半減期と各成分の割合)を提示している。これらのパラメータは、各年齢での欧米人との体重差を考慮に入れることによって日本人に対しても用いることが出来ると考えられる。したがって、体重が少ない日本人成人での生物学的半減期は体液成分に対して9.4日とし、有機成分に対しては35日とした。なお、この有機成分の半減期については、ICRPは1つの成分を考えているが、我々のモデルでは有機成分を4つのコンパートメント(成分)としており、この値はこの4つの成分を合わせた見かけ上の半減期としている。また、OBT摂取の場合の体液成分と有機成分の割合をICRPは50:50としている¹⁸⁾が、我々は動物実験の結果を考慮し、この割合を30:70とした。表5、6に日本人公衆の年齢群別の代謝データ(生物学的半減期と成分割合)について、ICRP56が提示している代謝パラメータ¹⁸⁾と我々が提示した日本人成人に対する代謝パラメータを示した。なお、日本人若年層に対する代謝パラメータは、ICRP56の値¹⁸⁾を用いることとした。

表5 トリチウム水 (HTO) 摂取の場合

年齢	生物学的半減期		各成分の割合 ^c	
	体液成分 ^a	有機成分 ^b	体液成分	有機成分
3ヶ月齢	3.0	8.0	97	3
1歳	3.5	15	97	3
5歳	4.6	19	97	3
10歳	5.7	26	97	3
15歳	7.9	32	97	3
ICRP標準人	10.0	40	97	3
日本の標準人	9.4	35	97	3

a ; コンパートメントAに対応した生物学的半減期
b ; コンパートメントB,C,D,Eを合わせた見かけの生物学的半減期

c ; HTO摂取直後のトリチウムの分布割合

表6 有機結合型トリチウム (OBT) 摂取の場合

年齢	生物学的半減期		各成分の割合 ^d	
	体液成分 ^a	有機成分 ^b	体液成分 ^c	有機成分
3ヶ月齢	4.0	8.0	30	70
1歳	3.6	15	30	70
5歳	4.7	19	30	70
10歳	5.8	26	30	70
15歳	7.9	32	30	70
ICRP標準人	10.0	40	30	70
日本の標準人	9.4	35	30	70

a ; コンパートメントAに対応した生物学的半減期

b ; コンパートメントB,C,D,Eを合わせた見かけの生物学的半減期

c ; OBT摂取後胃腸管内で分解しHTOとなる割合

d ; ICRP Pub. 56では体液成分と有機成分の割合を50:50としている¹⁸⁾が、我々のモデルでは30:70とした。

このような生理学的情報および実験的データを基礎にして、モデルに必要な各種パラメータ値を決定した。その結果を表7にまとめた。BとCコンパートメント間の移行係数のような幾つかのパラメータ値については、現在ある情報だけでは信頼性のある値は決定できず推定値でしかない。今後新たなデータや情報が出てきた時点でより信頼性のある値に修正していく予定である。

表7 成人に対するモデルに使用された各種パラメータ値

水素の取り込み速度 (水素g/day)	コンパートメントの水素量 (g)	移行係数 (/day)
F1 ; 286	A ; 4,000	K _{a,b} ; 3.2
F2 ; 10	B ; 16	K _{b,a} ; 0.01
F3 ; 14	C ; 8	K _{c,b} ; 0.3
	D ; 415	K _{c,d} ; 0.0198
	E ; 1,560	K _{d,c} ; 0.96
		K _{c,e} ; 0.0015
		K _{e,c} ; 0.304
		K _{u,a} ; 0.0735
		K _{f,b} ; 0.3
		K _{f,c} ; 0.2

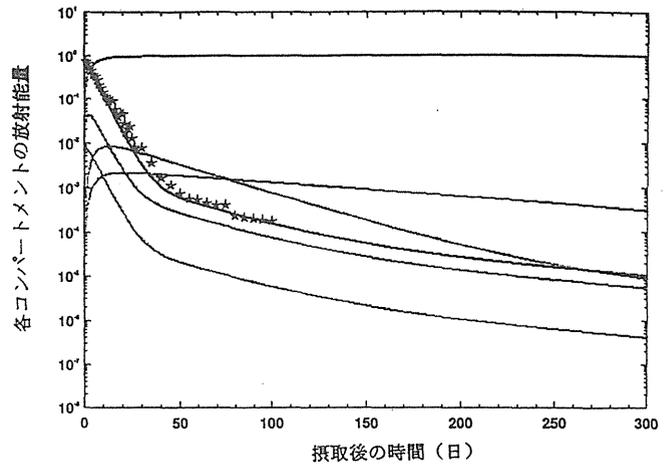
3. 結果と考察

3-1. システム (ERMA) によるモデルの運用

本特別研究で開発した環境放射能動態解析システム (ERMA) を用い、新たに構築したトリチウム代謝モデルを運用した結果について以下に示す。なお、ERMAではコンパートメント間の水素の挙動を表8に示したように、移行係数のマトリックスを用いて記述することによって運用可能となる。モデルを運用し、トリチウム水および有機結合型トリチウムに急性被ばくあるいは慢性被ばくした条件下でのシミュレーション結果を図3に示した。

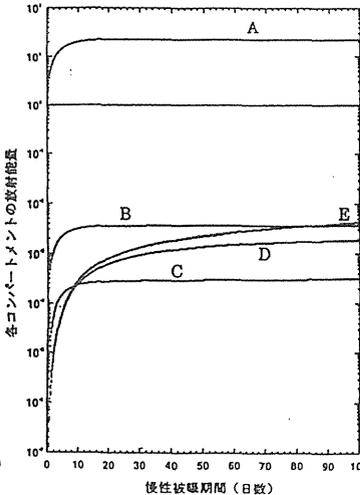
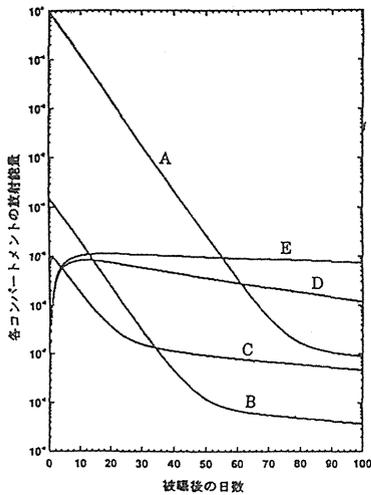
表8 モデル運用のためのパラメータマトリックス

←	A (体液)	B (低分子)	C (中分子)	D (機能性 高分子)	E (構造型 高分子)
A (体液)	---	3.2	---	---	---
B (低分子)	0.01	---	2.0	---	---
C (中分子)	---	0.3	---	0.00198	0.00154
D (機能性高分子)	---	---	0.96	---	---
E (構造型高分子)	---	---	0.304	---	---
F 排泄	0.0735	0.3	0.2	---	---



トリチウム水の急性被ばく

トリチウム水の慢性被ばく



有機結合型トリチウムの急性被ばく

有機結合型トリチウムの慢性被ばく

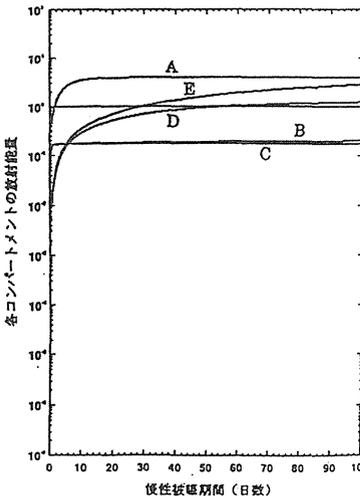
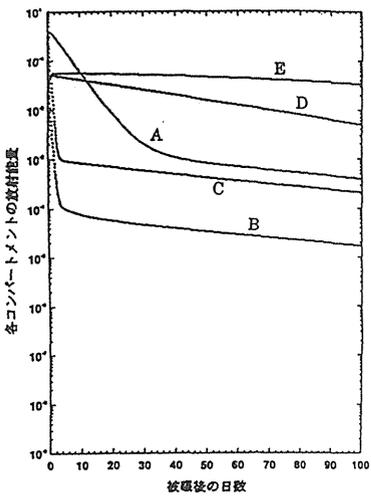


図3 トリチウム被ばくのシミュレーション結果

3-2 モデルの検証

構築したモデルを検証するため、トリチウム水に被ばくした人の尿中トリチウムの測定結果とモデルのシミュレーション結果とを比較した。この比較検証の過程で、モデルに仮使用している幾つかの不確定パラメータ値を、実測データによりフィットする値へ変更した。結果を図4に示した。

図4 尿中トリチウムの実測結果によるモデルの検証

4. 今後の課題

モデルの精度や信頼性を得るためには、今後も実測データによる検証が必要であるが、人での実測データには限界がある。一方、動物実験でトリチウム水 (HTO) と各種有機形³H 標識化合物 (アミノ酸、単糖、脂肪酸及び核酸前駆物質)、さらに³H 標識作物 (玄米、小麦及び大豆) の単回投与または連続投与の結果がある。現在この結果を、人対応型のモデルと基本構造は同じであるが、使用するパラメータを動物 (ラット) 対応型としたモデルでのシミュレーション結果と比較検証を行っている。これは、人モデルと動物モデルのフィードバック検証法として、動物実験結果の人への外挿の問題についての検討も含めた今後の研究課題と考えている。

ストロンチウム (⁹⁰Sr)

1. 緒言

1960年代を中心にフォールアウト⁹⁰Srの一般人集団における人骨および食餌 (日常食、標準食) の分析測定が各国で行われ、国連科学委員会 (UNSCEAR) が毎年データの収集と評価を行ってきた。1980年代をもって、年毎のデータへの言及は終了している。以上のデータは、環境中に放出された⁹⁰Srが食品を経由して経口的に人体に取り込まれ、体内とくにアルカリ土類元素の特徴として主として骨に沈着し、比較的長い生物学的半減期で残留・蓄積する過程について、貴重な定量的知見をもたらした。その過程を記述し短期間 (1年から数年) の将来の骨中濃度を推定する目的でいくつか有効な予測モデルが提出され利用された。人の食餌から骨への移行モデルとしては、⁹⁰Srの年間平均骨中濃度および年間平均食餌中濃度のデータの解析の結果、Riveraの予測式、Bennettの年齢を考慮した予測式が知られている。UNSCEARは、Coulont-Madelmontの予測式を採用し長期間にわたって、骨中濃度の予測のための媒介変数の推定に努めている²⁵⁾。

ICRP Publ. 20²⁶⁾では、人体におけるCaの骨代謝のメカニズムを基礎として成人のアルカリ土類の残留関数を与えている。この関数は、べき関数を含み、計算が容易でないため、Marshallらにより骨格各部のアルカリ土類の量に

ついでに計算結果が投与後の日数の関数として与えられた。ICRP Publ. 30 ではその結果を引用して作業者に対するALIを算出している¹⁾。

Marshall モデルは、計算が容易でないこと、成人のみが対象であることから、その後 Leggett らは、指数関数のみからなるアルカリ土類元素の体内動態モデルを考案し、ICRP Publ. 56 で採用された¹⁸⁾。現在ではさらに、いったん骨に沈着した Sr などが血液中（移行コンパートメント）に移り、循環する過程を取り入れた、各年齢群に対する骨指向性元素の動態を表わすモデル式に発展している²⁷⁾。

2. 方法

従来から行ってきた⁹⁰Sr および Sr の食餌から骨への移行と線量推定に関する検討結果を吟味し、近年新しく提案されているモデルの取り入れについて文献的に検討した。

3. 結果と考察

3.1 食餌から骨への移行モデル

3.1.1 Rivera の式

放医研における人骨中⁹⁰Sr の分析測定値および放医研ならびに日本分析センターにおける日常食中の⁹⁰Sr の報告値を用いて、Rivera の式に対する概略の当てはめを試みた。5-19 才群と成人群に分け、Ca 単位重量当たりの⁹⁰Sr 放射能 (pCi/gCa) に対する原子吸光分析による Ca 単位重量当たりの安定 Sr 重量 (g Sr/g Ca) の比、すなわち⁹⁰Sr の比放射能を用いて、目視による当てはめ計算を行った。その結果、1 年間における骨中の⁹⁰Sr の交代割合(率)は5-19 才群で 31%および成人群で 5%と仮定したときに予測濃度と比較的よく一致したと報告されている²⁸⁾。

3.1.2 Coulont-Madelmont の式

放医研における人骨中⁹⁰Sr の分析測定値 (pCi/gCa) および日本分析センターにおける全国各地の日常食に関する⁹⁰Sr 濃度 (pCi/gCa) の報告値を用い、Coulont-Madelmont の式へのコンピュータによる fitting を行った。当てはめの精度はよくなかったが、UNSCEAR の移行係数 P_{34} ²⁶⁾ の暫定推定値として、0.11 を得ている²⁹⁾。この値は、北半球中緯度に位置する欧米各国の P_{34} 値の範囲、0.11-0.32 に入っているが、その中では小さい例に属する²⁵⁾。

以上、3.1.1、3.1.2 で述べたモデルはいずれも年単位の経年変化の近似を目的としている。

3.1.3 ICRP Publ. 67²⁷⁾におけるアルカリ土類元素の体内動態モデル

このモデルは、(1)年齢依存性が反映できること、(2)骨中の Sr のリサイクルを考慮に入れていること、(3)指数関数で構成してあり、べき関数を含まず計算上扱いやすいこと、などの特徴がある。各コンパートメント及び移行経路のダイアグラムを図5に、また各年齢別の移行速度を表9に示す²⁷⁾。

日本人においては、従来のフォールアウト⁹⁰Sr および安定 Sr に関する人骨および食餌中濃度の分析測定値から、食餌-骨の間の移行係数に相当する Sr/Ca Observed

Ratio_{bone-diet} (O.R. bone-diet) が 0.12 と計算されている。この値は欧米人について報告された 0.16 - 0.25 の最大値に対して 2 分の 1 程度である。また、胎児骨と母親の食餌 (日本人の日常食と同一と仮定した) の安定 Sr および Ca の分析値からは、Sr/Ca O.R. _{fetal bone-mother's diet} の値が 0.055 と計算され、この値は欧米人で観察された 0.11 の約 2 分の 1 と報告されている³⁰⁾。このようなデータは、1960 年代の日本人における食餌から骨への Sr および⁹⁰Sr の移行の割合は、欧米人に比べて小さい傾向があることを示唆している。

したがって、上記の ICRP 67 モデルがそのまま日本人に適用可能か否かの問題が生ずる。そこで一般公衆の集団からサンプリングして低レベルの⁹⁰Sr の分析測定値を求めて得られた平均化した結果を用いて、Publ. 67²⁷⁾の要求する多くの代謝上のパラメータが妥当か否かを個々に検討することになる。しかしそれには、かなりの時間とマンパワーを要し、各年齢群の代謝、線量算定モデルを求めている現特別研究の期間内に完了するには到らなかった。

そのため、ここでは各年齢が扱えることを最大の利点として、上記 ICRP Publ. 67 モデルとそのパラメータ²⁷⁾を本特別研究で開発されたマトリクス形式の移行モデルに無修正で適用することにした。

3.2. 骨線量算定モデル

骨に沈着した⁹⁰Sr およびその壊変核種⁹⁰Y の放出するβ粒子により、放射線感受性組織 (赤色骨髄および骨表面の細胞) が受ける線量の算定を行う必要がある。そのため、Spiers らの基礎的検討を Mays らが発展させたものと考えられる骨線量算定モデル (ICRP Publ. 30¹⁾) の検討を行った。比実効エネルギー (SEE) の計算には、標的器官の質量が重要な役割を果たす。表 10 には、標準日本人および ICRP 標準人の標的器官および線源器官の質量を示した³¹⁻³³⁾。ICRP では、標準人の改定を行いつつあるが、赤色骨髄の質量 (1500g)³⁴⁾をより小さい、日本人に近い値に変更したので³⁵⁾、日本人と ICRP 新標準人との SEE および線量当量 (等価線量) の差異は小さくなることになる。

表 9. Sr 動態モデルにおける各年齢別のコンパートメント間移行速度(d⁻¹) (ICRP Publication 67)

コンパートメント	Age					
	3 mo	1 y	5 y	10 y	15 y	Adult
血液から 膀胱内容物へ	0.577	1.27	1.38	1.02	0.600	1.73
血液から 上部大腸へ	0.175	0.385	0.42	0.308	0.182	0.525
血液から 骨髄表面へ	2.25	1.35	0.133	2.12	3.10	2.08
血液から 骨皮質表面へ	9.00	5.40	4.67	6.28	8.00	1.67
血液から ST0へ	2.50	5.50	6.00	4.40	2.80	7.50
血液から ST1へ	0.50	1.10	1.20	0.880	0.52	1.50
血液から ST2へ	0.0010	0.0022	0.0024	0.0018	0.0010	0.0030
骨表面から 血液へ	0.601	0.601	0.601	0.601	0.601	0.578
骨表面から 交換性骨実質へ	0.0924	0.0924	0.0924	0.0924	0.0924	0.116
交換性骨実質から 骨表面へ	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043
交換性骨実質から 非交換性骨実質へ	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043
非交換性骨実質から 血液へ	0.00022	0.00288	0.00181	0.00132	0.000959	0.000493
非交換性骨実質から 骨表面へ	0.00022	0.00288	0.00153	0.000904	0.000521	0.0000821
ST0 から 血液へ	0.833	1.83	2.00	1.47	0.867	2.50
ST1 から 血液へ	0.116	0.116	0.116	0.116	0.116	0.116
ST2 から 血液へ	0.00038	0.00038	0.00038	0.00038	0.00038	0.00038
f_i	0.6	0.4	0.4	0.4	0.4	0.3

⁹⁰Sr および⁹⁰Y のβ粒子について ICRP の骨線量算定モデルの検討を行ったところ、標準日本人と ICRP 標準人との間

に顕著な差は認められなかった。よって、骨線量算定には、ICRP モデルを適用する。

表10. 成人男子骨格中の線源器官および標的器官の質量(g)

器 官 名	標準日本人 アジア人 20-50 才 (NIRS-M-115)	ICRP標準人 20-30 才 (Publ. 23)	改定ICRP標準人 20-50 才 (Publ. 70)
線源器官			
ミネラル骨	4,500	5,000	5,500
骨梁	900	1,000	
骨皮質	3,600	4,000	
標的器官			
赤色骨髄	1,000	1,500	1,170
骨表面	100	120	
身長(cm)	170	170	176
体重(kg)	60	70	60

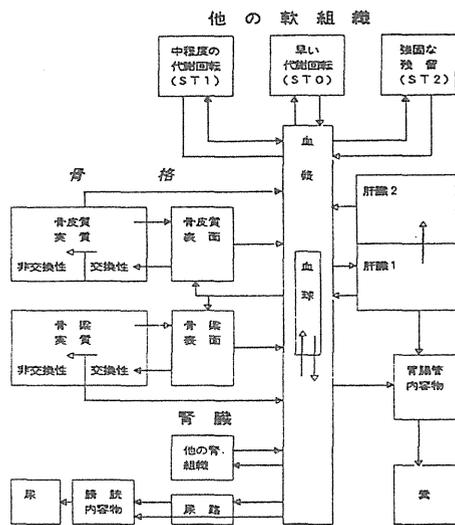


図5 ストロンチウム(Sr)の体内動態モデル

4. 今後の課題

OR 値が日本人と欧米人で大きく異なる点について、この違いを被ばく線量算定モデルに反映させる観点から、フォールアウト ^{90}Sr による観察値と最近の ICRP モデルによる予測値との詳細な比較および ICRP モデルとそのパラメータを、幼児を含む日本人へ適用する上での問題点を詳細に検討する必要がある。

ヨウ素 ^{131}I

1. 緒言

ヨウ素 (^{131}I) は核分裂によって大量に生成され、核実験や原子炉事故の際には環境中に容易に出現する。核分裂生成物としては ^{131}I 以外に ^{129}I 、 $^{132-140}\text{I}$ が生成されるが、 ^{131}I が核分裂収率も高く、最も問題となる核種である。これまでにいくつかの事故によって放射性ヨウ素が環境中に放出されている。

1957 年、英国 Windscale の事故では 20,000Ci の ^{131}I が、1961 年、アメリカ Savanna river 再処理工場では 153Ci の

^{131}I が放出されたと言われている。さらに旧ソ連の Chernobyl 原子力発電所事故では 730 万 Ci が大気中に放出されたものと考えられている。放出された ^{131}I は 7000 km 離れた日本にも到達し、 ^{131}I の一週間積算降下量は秋田市で 2600 Bq/m^2 であった³⁵⁾。人体に入る経路としては初期には吸入で、後には飲食物を通して体内に入り込む。一部は皮膚からも吸収される、といわれているがその量はきわめて少ない。

2. 研究方法

ヨウ素の代謝とモデルおよび代謝パラメータについて日本人のデータを含めて文献学的な検討を行った。

3. 結果及び考察

3-1 ヨウ素の代謝

ヨウ素の代謝に関してはこれまでにほぼ全容が明らかにされている。放射性ヨウ素は化学形の如何を問わず、体内に吸収されると I^- の形を取るものと考えられている。ヨウ素は胃腸管からほぼ完全に吸収され、ほとんどが甲状腺に濃縮する。ヨウ素は血液中のヨウ素プールに入ると、10~30%が摂取後 24 時間以内に甲状腺に取り込まれ、一部は唾液腺、胃粘膜、乳などに濃縮され、唾液、胃液、乳汁などに分泌される。その他のごく少量は筋肉などの全身に移行し、再吸収され、腎臓から尿中に排泄される。また、一部は肝臓を通じて胆汁に移行し、糞中に排泄されるがその割合は非常に少ない¹⁾。本郷らが開発した体内被ばく線量計算システム (IDES) による試算から、再吸収 (循環) が預託実効線量に与える影響は 2%程度と推定される。成人の職業人については 1978 年に国際放射線防護委員会 (ICRP) がすでに線量係数 (1 Bq を摂取したときの預託実効線量) を公表し、1989 年には年齢群別の線量係数も公表している。放射性ヨウ素の場合にはとくに、乳幼児や胎児の被ばく評価が重要である。これは、乳幼児の甲状腺が放射線によるがん発生効果において成人よりも感受性が高いと考えられていること、および甲状腺の大きさと放射性ヨウ素の取り込み率との比が成人とは異なるためである。1950 年~1960 年代にヒト新生児を使った実験が行われている。1~3 日齢の新生児に ^{131}I を筋肉注射し、24 時間後の甲状腺への取り込み率が 61~94%であった、という報告がある³⁶⁾。この他、28 人および 25 人の新生児に経口投与した例があり、甲状腺への取り込み率は前者で 6~36%、後者で 37~82%と変動幅が大きい。この他にも同様の実験がいくつか行われているが、出生直後に高い値をとることがあるが、それ以外では成人よりも大幅に取り込み率が高くなることはないものと考えられる³⁷⁻⁴²⁾。ただし、甲状腺の大きさは年齢によって大きな差があり、0-2 歳で 1~2 g、3-9 歳で 3~5 g、10-20 歳で 10~14 g、成人で 15~20 g といわれている。このことは甲状腺への取り込み率が同じでも乳幼児甲状腺の濃度が成人よりも著しく高くなることを示している。

広い意味では胎児も一般公衆の中に含まれるが、ヒト胎児に関しても実験例がある。 ^{131}I は比較的簡単に胎盤を通過して胎児に移行する。Chapman⁴³⁾ は妊娠 7~32 週の婦人に ^{131}I を投与し、胎児甲状腺への取り込みを調べたところ、妊娠 7~12 週では放射能を検出できなかったが、15~20 週の胎児では投与量の 0.1%/g、32 週では 4.8%/g に達し、妊娠

後いつ投与されたかにより、甲状腺到達率は大きく変化することを述べている。Evansら⁴⁴⁾も同様の結果を報告しており、妊娠後半期から末期に取り込みが著しく増大していく。ここで注意が必要なのは、¹³¹I は胎盤から胎児へ移行するのみならず、分娩後も母乳から高い割合で乳幼児へ移行することである。母乳からの移行量は食品中のヨウ素量に大きく依存している。¹³¹I の代謝はヨウ素の摂取量に大きく依存する。しかし、個人差、地域差がきわめて大きいために日本人のヨウ素摂取量に一定の値を設定することは現状では困難である。

3-2 ヨウ素の代謝モデル

ヨウ素の代謝モデルについては現在のところ、ICRP 代謝モデル以外に適当なモデルが見あたらないため、日本人の線量評価モデルもこれを基本とする。ICRP Publ. 30¹⁾では、通過コンパートメントに入ったヨウ素のうち、30%が甲状腺に移行し、残りは通過コンパートメントから尿中に直接排泄される、としている。甲状腺に取り込まれたヨウ素は120日(後に80日に修正)の生物学的半減期で体内に残留し、有機ヨウ素の形で甲状腺から失われる。有機ヨウ素は甲状腺以外の人体の全ての器官、組織に均等に分布し、そこに12日の半減期で残留する。このうちの1/10が直接糞便中に排泄され、残りは無機ヨウ素として通過コンパートメントに戻る(図6)。3-1でも述べたが、¹³¹I の場合、再吸収(循環)が預託実効線量に与える影響は2%程度である。

3-3 日本人の線量評価のために使用する代謝パラメータ

ICRP に標準人の代謝データが示されているが、摂取量は個人差、地域差、がきわめて大きく、欧米人に比べて日本人は5倍から10倍、海藻を多く摂取している。ヨウ素代謝は安定体のヨウ素の摂取量に大きく依存しており、人体のヨウ素含有量、甲状腺のヨウ素含有量とも日本人の場合は多いため^{32) - 45) , 46)}、ICRP 標準人の代謝パラメータを用いて¹³¹I による被ばくを算定すると過剰評価になる。成人男子について生物学的半減期は約30日と報告されている⁴⁵⁾。また24時間甲状腺到達率は約20%である⁴⁵⁾。ヨウ素の生物学半減期には年齢依存性があるが、日本人乳幼児における生物学的半減期等のデータがまとめられていないため、ここでは公衆のための年齢群別の線量係数を定めたICRP Publ. 56¹⁸⁾の代謝パラメータが日本人にも当てはまるものと仮定する(表11)。しかし成人との大きなギャップを、ICRP 標準人と日本人成人男子の生物学的半減期の比を用いてスケールアップすることで修正を検討することが必要である。体格データについては日本人³²⁾のものを使用する。

表11 線量計算に使用した代謝パラメータ

年齢	甲状腺への取り込み率	生物学的半減期(甲状腺)	生物学的半減期(その他)
3ヶ月齢	0.3	11.2	1.12
1歳	0.3	15	1.5
5歳	0.3	23	2.3
10歳	0.3	58	5.8
15歳	0.3	67	6.7
ICRP 標準人	0.3	80	12
日本人の標準	0.2	30	3.0

3-4 線量係数の試算

結果を表12に示した。

表12 代謝条件や体格の相違が¹³¹Iによる甲状腺内部被ばく線量へ与える影響

対象	消化管吸収率(%)	甲状腺による取り込み率(%)	生物学的半減期(日) ¹⁾	甲状腺線量(Bq) ²⁾
ICRP標準人	100	30	80	4.33×10^{-7}
日本人成人 ³⁾	100	20	30	3.90×10^{-7}
日本人成人 ³⁾	80	20	30	2.57×10^{-7}
日本人15歳 ³⁾	100	30 ⁴⁾	67 ⁴⁾	5.61×10^{-7}
日本人10歳 ³⁾	100	30 ⁴⁾	58 ⁴⁾	9.12×10^{-7}
日本人5歳 ³⁾	100	30 ⁴⁾	23 ⁴⁾	1.35×10^{-7}
日本人1歳 ³⁾	100	30 ⁴⁾	15 ⁴⁾	2.10×10^{-6}

- 1) 甲状腺での生物学的半減期。それ以外の臓器では1/10の生物学的半減期である。
- 2) 1Bq摂取後の甲状腺被ばく線量(線量係数)
- 3) 日本人の甲状腺重量
- 4) ICRP Publ. 56¹⁸⁾の1, 5, 10, 15歳児に対して与えられている数値

4. 今後の課題

安定ヨウ素の摂取量が¹³¹Iの被ばく線量に大きく影響する。ICRPモデルの日本人への適用にあたって、ヨウ素摂取量がICRP標準人よりも明らかに多いことによる代謝への寄与の大きさを評価することが必要である。すなわち本被ばく線量算定コードに、より現実的な被ばく線量結果が与えらるると期待されているので、明らかな過剰評価を与える現状のパラメータは適切でない。甲状腺到達率と生物学的半減期に関する報告をさらに検討して、現実的な被ばく算定モデルへ修正することが必要である。

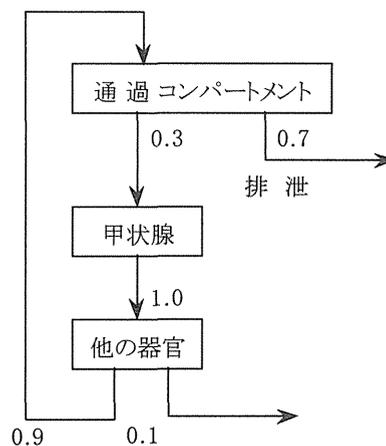


図6 ヨウ素の代謝モデル

【参考】

標準人(ICRP Publ.23,1975、括弧内は田中他から得た文献値)

人体のヨウ素含有量 11mg (10~20mg:日本人の成人)

甲状腺のヨウ素含有量 10 mg (10~20mg:日本人の成人)

(1歳~10歳の日本人:成人の1/10)

飲食物からの摂取量 0.2 mg/day (日本人:1~2mg/day)

セシウム 137 (¹³⁷Cs)

1. 緒言

セシウム 137 を摂取した日本人の内部被ばく線量を正確に推定できるモデルを設定して、このモデルに必要な生理的パラメータを的確に与えることが、本研究の目的である。

ICRP は ICRP Publ. 30¹⁾ で示しているように胃腸管モデルと、その後移行した臓器内でのセシウムの残留モデルによって摂取されたセシウムの体内での挙動を記述している。残留モデルでは放射性核種の再循環は無視されている。その後得られた知見からセシウムは消化管における再吸収に始まる再循環がある。放射性セシウム摂取で生じる内部被ばくの低減剤であるプルシアンブルーの作用機序はこの再吸収を抑制することにある。幾つかの核種について再循環が考慮されたモデルを基に改良されたモデルが ICRP Publ. 56 に示されている¹⁸⁾。しかし保健物理の分野で内部被ばく線量を推定する場合には、再循環を無視したモデルで放射性セシウムの体内挙動を記述して大きな過誤は生じない。

胃腸管被ばくについては、通過時間と吸収率との両パラメータが関与する。ICRP Publ. 30 の胃腸管モデルの通過時間パラメータは全ての放射性核種に共通している。これを表 1 に示した。通過時間に関しては他に適切な情報がないので ICRP Publ. 30 モデルを採用する¹⁾。胃腸管から吸収された放射性核種は、通過コンパートメントを経て組織コンパートメントへ移行する。塩化セシウムの水溶液として人体に投与された若干の実験からも、¹³⁷Cs の胃腸管からの吸収率は必ずしも 100%ではない。しかし ICRP は放射線防護の精神から安全側にたち、セシウムに関して完全吸収を意味する 1 を勧告している¹⁸⁾。核分裂生成物である ¹³⁷Cs は、その人体内存在量について詳細に研究されてきた。それによれば、日常の飲食物として摂取された ¹³⁷Cs の胃腸管吸収率は、塩化セシウムの水溶液としての投与実験とはいくらか異なる結果を示している。本研究では現実的な被ばく線量を算定する計算コードの作成を目的としているので、合理的と判断される ¹³⁷Cs の胃腸管吸収率を提示する。

¹³⁷Cs を摂取して生じる内部被ばくに関与するもう一つの要因は、¹³⁷Cs を取り込んだ器官における実効半減期である。全身に取り込まれたセシウムの残留状況は、速度定数の異なる 2 相からなる時間の関数で近似される。個々の器官におけるデータがないので、ICRP では全身に対する残留関数と同一の残留関数で各器官の代謝が記述できるものとしている。すなわち、ヒトについて唯一観察されている全身の残留関数を個々の器官にも適用する、いわば近似法を用いている^{1, 18)}。本研究でもこの仮定に準じる。

各相の速度定数を \log_2 で除した商が実効半減期であり、物理的な放射壊変による放射能の減衰を除いた半減期が生物学的半減期である。ICRP 標準人と日本人の間にある生物学的差異によりセシウムの代謝が異なる可能性は残るが、全身の残留関数は、ICRP モデルに与えられている時間についての指数関数 2 項の和と矛盾する情報は報告されていないので、本研究でもこのモデルを採用する。ただし生物学的半減期については日本人に適用するために若干の修正を行った。

特殊な年齢群として乳児がある。日本人についても生物学的半減期、成長についてのデータがあるので、これらについても示した。

2. 方法

文献学的手法でヒトについて観察された、日常的に摂取する形態の ¹³⁷Cs の胃腸管吸収率を調査、解析した。日本人についての情報はなく、外国で実施された報告例を日本人にも適用することとした。

生物学的半減期については、データが多い成人男子日本人についての観察例を文献学的手法で研究した。その他の性、年齢については乳児を除くと日本人のデータがなく、体重と生物学的半減期との関係を報告した研究例から推定した。

3. 結果と考察

1) 代謝モデル

血中移行率はその後の被ばく線量に関して支配的なパラメータの一つであるが、ICRP は安全性確保の立場から経口摂取された ¹³⁷Cs は 100%吸収されるとしている。食品中のセシウムの存在状況によっては、移行率は 100%よりも小さい。Rundo は、¹³²Cs 水溶液を経口摂取させると最初の 3 日間に摂取量の 1.7%を糞便中に検出されたのみで血中移行率がほぼ 100%であるが、フォールアウト ¹³⁷Cs を含む食品を摂取した場合、血中移行率は 90%以上であることを報告している⁴⁷⁾。また Lieden はトナカイ肉に含まれる ¹³⁷Cs は約 50%が血中に移行することを観察している⁴⁸⁾。セシウムの組織との結合力の変化を観察して、Eyman はフォールアウト由来の ¹³⁷Cs の調理による魚肉からの消失率を 10%、120 日間汚染させた魚肉からは消失率 70%としている⁴⁹⁾。チェルノブイリ事故影響の観察から、Henrich は平均 78%を報告している¹⁸⁾。よって本モデルでは水以外の形態で ¹³⁷Cs を摂取した場合、血中移行率を 75%とした。

残留関数の始点は、器官に放射性核種が到着したときである。ICRP モデルは血中に入った ¹³⁷Cs が各器官へ移行する移行率に関しては何も示していない^{1, 18)}。よって本モデルでは、摂取された ¹³⁷Cs の各器官への移行率は体重に対する器官重量比である、換言すれば摂取後の任意の経過時間に各器官の濃度は同一であることを仮定する。消化管から吸収された放射性核種が初めて器官に現れる時間についての記述も ICRP モデルに記載がないので、この課題で設定するモデルでも血液に移行した瞬間に同時に各器官へ上記の比率で放射性核種が到着するものとする。要するに必要ならば化学形に配慮して初期濃度を器官毎に推定し、濃度の時間変化で示した残留関数を全身の残留関数で代行して、標的器官における放射線の組織吸収率、AF および比実効係数、SEE との組み合わせでその時点の組織吸収線量を計算するモデルである。¹³⁷Cs の代謝モデルは「1-5 本研究の基本的目標」の図 1 で大略表される。

¹³⁷Cs の全身残留関数について ICRP30 は放射線作業員に対して、摂取された化学形を問わず同一の次式を示している¹⁾。

$$R(t) = a \cdot \exp(-\lambda_1 t) + (1-a) \cdot \exp(-\lambda_2 t) \quad (1)$$

ここで a 、 $(1-a)$ 、 λ_1 、 λ_2 は 0.1, 0.9, 0.693/2 日, 0.693/110 日が与えられている。これらはコーカシアンの

データを集約整理して得られた数値である。日本人について a , $(1-a)$ および λ_1 については、報告例が少なく ICRP30 モデルを変更する必然性はない¹⁾。 λ_2 は上述のように $0.693/T_2$ で与えられるが、生物学的半減期 T_2 の日本人についての報告値は若干短い。85 日が適切な数値とされていた⁵¹⁾。これは 1960 年代に測定された数値である。その後 1980 年代に生じたチェルノブイリ事故による ^{137}Cs の体内汚染の計測からやや長い半減期 100 日が得られ、従来の報告値との差について統計上の有意性がないことから両者を併せた集団を解析して 90 日の平均値が報告された⁵²⁾。M. A. Cryer and K. F. Baverstock による経験式⁵³⁾ から 1960 年代と比較して 1980 年代は日本人男子の体格がいくらか向上していたことでこの違いは説明できる可能性がある。M. A. Cryer and K. F. Baverstock による経験式は式 (2) であり T_2 が体重に依存して変化することを示している。この数値は ICRP の成人 Reference Man に対して設定されている T_2 の値、110 日の 82% に相当する。Reference Man と日本人成人男子とで器官の大きさに有意差がないと仮定すると、同一量の ^{137}Cs を摂取しても体内で起こる全壊変数 U_s は日本人は Reference Man の約 80% であり被ばく線量もまた約 80% となる。

$$T_2 = (1.14 \pm 0.13) m + (4.6 \pm 7.3) \div 1.27m + 11.9 \quad (2)$$

ここで m は kg 表示の体重である。

ICRP Publ. 56 に、乳児のセシウムに対する生物学的半減期 T_2 として、3ヶ月齢と1歳とに対しては16日と13日を与えている¹⁸⁾。ヒトについて生物学的半減期が3ヶ月齢より短い知見は得られていない。日本人では6ヶ月までの乳児について測定して平均13日であった⁵⁴⁾。

その他の性、年齢層に対しても ICRP Publ. 56 は a , $(1-a)$, λ_1 , λ_2 の数値を与えている¹⁸⁾。日本人についてこれらの対象について情報はほとんどないので a , $(1-a)$, λ_1 については ICRP56 の数値をそのまま用いた。 λ_2 、換言すれば T_2 については M. A. Cryer と K. F. Baverstock による経験式⁵³⁾ を適用した。相当する平均体重1歳、5歳、10歳、15歳の男女平均標準体重は10.8, 18.4, 32.8, 53.6 kg であるので、 T_2 は1歳、5歳、10歳、15歳で26, 35, 54, 80日と推定される(表13)。移行速度は $0.693/T_2$ であるから、相当する T_2 から3ヶ月、1歳、5歳、10歳、15歳に対して1日あたり-0.053, -0.027, -0.020, -0.013, -0.0087 で性差はないものとする。同様な計算で成人男子に対しては-0.0077、成人女子は-0.0096 すなわち成人男子の2/3の半減期とした。

3-2 乳児の被ばく線量算定のための関連モデル

乳児は他の年齢層より体格の時間変化が遙かに大きいので、現実的な被ばく線量を計算する場合には、体格の経時変化を正確に把握して、これを線量算定式に反映させることが肝要である。

3-2-1 乳児の生長モデル

乳児の成長モデルは体重の増加を指標にして0~7日、8~15日、15~22日、22~120日、120~180日の5日齢層に区分し、各年齢期間の中では直線増加として近似を行い ^{137}Cs による被ばく線量を算定した^{55, 56)}。本研究では、より詳細な成長に伴う体重の増加について情報が得られたのでこれを用いることにする⁵⁷⁾。なお、母乳児は人工栄養児

に比べて3, 4ヶ月以降は体重の増加量が少ないとされている⁵⁸⁾が、十分な情報を入手していないので、本研究では母乳児、人工栄養児、混合栄養児のいずれもが同一の体重増加を示す成長曲線で近似できるモデルとした。

3-2-2 ミルク摂取量モデル

ミルクを介して ^{137}Cs を摂取したことから乳児に生じる ^{137}Cs の残留量モデルでは、乳児を1個のcompartmentで近似する。ミルクを介して毎日摂取された ^{137}Cs はその生物学的半減期に従って排泄されるが1日間に残留する量を、生物学的半減期に従う排泄を考慮して摂取が続く期間について積分する残留量推定モデルとした。このモデルで推定される毎日の残留量を体重で割ることによって、毎日の体内濃度が推定できる。 ^{137}Cs の体内分布は対応する成人の臓器分布の推定方法に準じる。比実効エネルギー吸収、SEEをこの濃度と組み合わせることで乳児の実効線量の推定が可能になる。

3-2-3 全身線量推定モデル

^{137}Cs について検証が可能なモデルを設定する見地から、全身線量を推定するモデルを設定した。乳児の体形を回転楕円体で近似し、生後6ヶ月間この体形を維持することを仮定した。そして ^{137}Cs は全身に均一に分布して、生後6ヶ月間にわたり変化することなく生物学的半減期13日で排泄される⁵⁴⁾。全身線量はこのような条件下でMIRD (Medical Internal Radiation Dose Committee) 法で計算されている⁵⁹⁾。関連のパラメータについてはデータベースに記述した。

4. 結論と今後の課題

被ばく線量推定に必要とされる、消化管から血中へ移行する比率と生物学的半減期として本研究では以下の数値および表13の数値を適用する。

- 1) 消化管内の移行は「1-5 本研究の基本的目標」の表1のモデルに従う。
- 2) 消化管からの血中への移行率は年齢、性を問わず同一。水溶液で $f_1 = 1$ 、肉、魚肉、その他の食品については $f_1 = 0.75$ 。
- 3) 長い生物学的半減期は3ヶ月、1歳、5歳、10歳、15歳、成人に対して13日、26日、35日、54日、80日、90日とする。成人女子は60日とする。
- 4) ICRP 体内動態モデルによる内部被ばく線量計算コードにつき変更すべきマトリックスの要素は、各器官から体外に移行する速度、これは全身からの移行速度に等しいと仮定して、性差の区別はせずに3ヶ月、1歳、5歳、10歳、15歳に対して1日あたり-0.053, -0.027, -0.020, -0.013, -0.0087とする。成人男子に対しては-0.0077、成人女子は-0.0121とする。
- 5) 乳児の成長とミルク摂取量については、それぞれ階段状モデルを用いた。また全身を回転楕円体で近似してMIRD法を適用する被ばく線量モデルを採用した。
- 6) 社会的、経済的相違が生物学的量に変動を生じさせる可能性に配慮した生物学的パラメータの収集と解析、とくに全年齢層群にわたるデータの取得が、より現実的な被ばく線量を算定するために必要である。

表 13 適用する生物学的半減期

年 齢	構成比(%)		f ₁ **	生物学的半減期(日)	
	Component 1	Component 2		Component 1	Component 2
3ヶ月齢	—	100	1	—	13
1歳	—	100	1	—	26*
5歳	45	55	1	9.1	35*
10歳	30	70	1	5.8	54*
15歳	13	87	1	2.2	80*
成人	10	90	1	2	90

* 推定値 **肉、魚肉、その他の食品については0.75

引用文献

1)ICRP(International Commission on Radiological Protection) Publication 30(1979) Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. Pergamon Press, Oxford.

2)Okada,S and Momoshima,N., : Overview of tritium : Characteristics, sources, and problems. Health Physics, 65: 595-609 (1993).

3)Van den Hoek,J : Tritium metabolism in animals. Radiat. Protect. Dosim. 16: 117-121 (1986).

4)Pietrzak-Flis,Z., Radwan,I. and Indeka,L. Tritium in rabbits after ingestion of freeze-dried tritiated food and drinking water. Radiat.Res., 76: 420-428 (1978).

5)Takeda,H. and Iwakura,T.: Incorporation and distribution of tritium in rats exposed to tritiated rice or tritiated soybean. J.Radiat.Res., 33, 309-318 (1992).

6)Takeda,H. : Metabolic and dosimetric study to estimate an annual limit on intake for organic tritium. Fusion Technology, 28: 964-969 (1995).

7)Hill,L. and Johnson, R. : Metabolism and dosimetry of tritium. Health Physics, 65 : 628-647 (1993).

8)Diabate, S. and Strack,S. : Oraganically bound tritium. Health Physics, 65: 698-712 (1993).

9)Snyder,W.S., Fish,B.R., Bernard,S.R., Ford,M.R. and Muir,J.R. : Urinary excretion of tritium following exposure of man to HTO - a two exponential model. Phys.Med.Biol., 13 : 547-559 (1968).

10)Sanders,S.M.Jr. and Reinig,W.C., : Assessment of tritium in man. In : Diagnosis and treatment of deposited radionuclides.Excerpta Medica Foundation, Amsterdam, pp. 534-542 (1968).

11)Bennett,B.G. : Environmental tritium and the dose to man. In ' Proceedings of the third International Congress of the IRPA, Washington,DC. U.S.AEC Technical Information Center, Oak Ridge, TN, pp.1047-1053.

12)Balonov,M.I., Dolgirev,E.I., Likhtarev,I.A. : Exchange kinetics and dosimetry of tritium oxide in man for different routes of administration. Health Phys., 27 : 375 (1974).

13)NCRP(National Council on Radiation Protection and Measurements), Report 63 (1979) Tritium and other radionuclide labelled organic compounds incorporated in generic material. National Council on Radiation Protection and Measurements, Washington.

14)Killough,G.G. : The estimation of the effective dose

equivalent from tritiated water exposure using tritium concentrations in urine. Radiat.Protect.Dosim. 2, 7 (1981).

15)Belloni,P., Clemente,G.F., Di Pietro,S. and Ingrao,G. (1984) Fallout tritium levels in environmental and biological samples in Italy. In : European seminar on the Risks from Tritium Exposure. Mol.Belgium, Report No. EUR 9065 EN; 51-53.

16)Crawford-Brown,D.J. : An age-dependent model of tritium metabolism following mixed (oraganic/inorganic) intakes. Health Phys. 46, 924-928 (1984)

17)Etnier,E.L., Travis,C.C. and Hetrick,D.M. : Metabolism of organically bound tritium in man. Radiat.Res., 100, 487-502 (1984).

18)ICRP(International Commission on Radiological Protection) Publication 56(1989) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides - Part 1. Pergamon Press, Oxford.

19)Saito,M. : A modified three-compartment model for tritium metabolism in man. Radiat.Prot.Dosim., 42, 17-24 (1992).

20)Takeda,H. and Kasida,Y. : Biological behaviour of tritium after administration of tritiated water in the rat. J.Radiat.Res., 20, 174-185 (1979).

21)Takeda,H., Arai,K.and Iwakura,T. :Comparison of tritium metabolism in rat following single or continuous ingestion of tritium kabled wheat versus tritiated water. J.Radiat.Res., 26, 131-139 (1985).

22)Takeda,H. : Incorporation and distribution of tritium in rats after chronic exposure to various tritiated compounds. Int.J.Radiat.Biol., 59, 843-853 (1991).

23)Lu,H. and Takeda,H. : Biokinetics of tritium incorporation into the tissues of rats during continuous ingestion of tritiated water or tritium-labeled food. Chinese Med. J., 105, 594-597 (1992).

24)Akaiishi, J. et al. ; "Radiation-risk-protection", Koln, IRPA, p.784-787 (1984).

25)UNSCEAR: "Sources and Biological Effects", United Nations, New York, 1982.

26)ICRP: Alkaline Earth Metabolism in Adult Man, ICRP Publication 20, Pergamon Press, Oxford.

27)ICRP: Age Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 2, Ingestion Dose Coefficients, ICRP Publication 67, Annal. ICRP 23 (3/4), 95-108, 1993.

28)河村日佐男 : 骨中⁹⁰Sr濃度の推移と骨線量、「環境の人工放射性物質による体内被ばくの諸問題」NIRS-M-14、1976、55-60.

29)Kawamura, H., Shiraishi, K., Igarashi, Y. and Sakurai, Y.: Transfer of ⁹⁰Sr in the environment to human bone and radiation dose due to the atomic bomb and weapons testing, in Health Problems in Connection with Radiation from Radioactive Matter in Fertilizers, Soils and Rocks, Låg, J. ed., Norwegian University Press, Oslo, 1988.

30)Tanaka, G., Kawamura, H. and Nomura, E.: Reference Japanese Man - II. Distribution of strontium in the skeleton and in the mass of mineralized bone, Health Phys. 40, 601-

- 614, 1981.
- 31)田中、河村：6年齢群に関する「標準アジア人」モデルについて、放射線影響第39回大会、大阪千里、1996.11.
- 32)Tanaka, G. and Kawamura, H.: Anatomical and Physiological Characteristics for Asian Reference Man – Male and Female of Different Ages: Tanaka Model, NIRS-M-115, 1996.
- 33)ICRP: Report of the Task Group on Reference Man, ICRP Publication 23, Pergamon Press, Oxford, 1975.
- 34)ICRP: Basic Anatomical and Physiological Data for Use in Radiological Protection: The Skeleton, CRP Publication 70, Annal. ICRP 25 (2), 1995.
- 35)チェルノブイリの放射能と日本, 寺嶋東洋三、市川龍資 編著, 東海大学出版会, 1989.
- 36)Van Middlesworth, L. Amer.J. Dis. Child, 88: 439, 1954
- 37)Martmer, E.E.. et al., Pediatrics, 17: 503, 1954.
- 38)Ogborn, R. E., et al., ibid., 26: 771, 1960.
- 39)Fisher, D. A. et al., Amer. J. Dis. Child., 103: 738, 1962.
- 40)Morrison, R. T., et al., J. Nucl. Med., 4* 162, 1963.
- 41)Wellman, H. N., et al., PHS Publ. No-999-RH-14, 1965.
- 42)Van Dilla, M. A. and M. J. Fulwylei, Health Phys., 1325-1331, 1963.
- 43)Chapman, E. M. J., : Clin. Endocr., 8, 717 (1948).
- 44)Evans, T. C., et al., J. : Nucl. Med., 8, 157 (1967).
- 45)吉澤康雄、草間朋子: 保健物理 11: 123-128 (1976).
- 46)Uchiyama, M., et al.: Radioiodine Retention by 2 Japanese Male Adults After A Single Oral Dose, J. Radiat. Res., 23: 358-370 (1982).
- 47)Rundo, J.: The metabolism of biologically important radionuclides, IV. A survey of the metabolism of cesium in man. Brit. J. Radiol., 37, 108 (1964).
- 48)Lieden, K.: ¹³⁷Cs burden in Swedish Laplanders and Reindeer. Acta Radiologica Stokh., 56, 237 (1961).
- 49)Eyman, L.D.: Changes in ¹³⁷Cs concentration in Fish during preparation for human consumption, Health Phys., 28, 476 (1975).
- 50)Iinuma, T.A. et al.:Cesium Turnover in Man following Single Administration of ¹³²Cs 1. Whole Body Retention and Excretion Pattern J.Radiat.Res., 6, 73 (1965)
- 51)Uchiyama, M.: Estimation of ¹³⁷Cs Body Burden in Japanese II. The Biological Half-life, J.Radiat.Res., 19, 246 (1978).
- 52)Uchiyama, M.: Reevaluation of Caesium Biological Half-life of Japanese, J. Environ. Radioactivity, 41, 93 (1998).
- 53)Cryer M.A.and Baverstock, K.F.: Biological half-life of ¹³⁷Cs in man, Health Phys., 23, 394(1972).
- 54)Iinuma, T.A.et al.,: S. Estimation of internal dose in human fetus and newborn infants due to caesium-137, In :“Radiation biology of the fetal and juvenile mammal,” Proceedings of the ninth annual Hanford Biology Symposium at Richland, Washington, May 5-8, 1969, ed. by M.R.Sikov and D.D.Mahlum, December 1969.
- 55)米原英典、三橋俊彦、内山正史:チェルノブイリ事故による日本人乳児の¹³⁷Cs 内部被ばく線量評価(1)日本放射線影響学会第39回大会講演要旨集 286 大阪 1996.
- 56)米原英典、三橋俊彦、内山正史:日本人乳児における¹³⁷Cs 内部被ばく線量評価 日本保健物理学会第32回研究発表会要旨集 78 1997.
- 57)米山京子 母乳栄養児の発育と母乳からの栄養素摂取量 平成九年三月 発育の時系列解析で得られる健康情報とその伝達及び活用 平成6年度～平成8年度科学研究費補助金(基礎研究(A)(1))研究成果報告書 研究代表者 神戸大学発達科学部教授 東郷正美 65
- 58)乳幼児身体発育値 平成2年 乳幼児身体発育調査結果報告書 厚生省児童家庭局母子衛生課監修 財団法人 母子衛生研究会発行
- 59)Journal of Nuclear Medicine February 1968 Supplement Number 1 Pamphlets 1-3, March 1969 Supplement Number 2 Pamphlet 4 and August 1969 Supplement Number 3 Pamphlet 5 Medical Internal Radiation Dose Committee.

研究発表
論文

- 1)Takeda,H.,Nishimura,Y.and Inaba,J.: Transfer of tritium to prenatal and neonatal rats from their mothers exposed to tritiated compounds. Radiat.Prot.Dosim., 53, 281-284.1994.
- 2)Takeda,H.: Metabolic and dosimetric study to estimate an annual limit on intake for organic tritium. Fusion Technology, 28, 964-969. 1995.
- 3)Takeda,H., Fuma,S., Miyamoto,K., Nishimura,N and Inaba,J.: Biokinetics and dose estimation of radiocarbon in rats. Radiat. Prot. Dosim., 79, 169-174. 1998.
- 4)河村:ICRP Publication 70「放射線防護に用いる基本的な解剖学的生理学的データ:骨格」について、保健物理 31,418-421 (1996).
- 5)Tanaka, G. and Kawamura, H.: Anatomical and Physiological Characteristics for Asian Reference Man – Male and Female of Different Ages: Tanaka Model, NIRS-M-115, 1996.
- 6).Tanaka, G., Kawamura, H., Griffith, R. V., Cristy, M., and Eckerman, K. F.: Reference Man Models for Males and Females of 6 Age Groups of Asian Populations. Radiation Protection Dosimetry, 79,383-386, 1998.
- 7)Nishimura, Y., Kakuta, I., Takeda, H., Inaba, J., Imai, K., Watari, K. and Matsusaka, N.: Effect of natural chelating agents on the intestinal absorption of radiostromtium in rats. Radiat. Prot. Dosim., 53, 331-334. 1994
- 8)Nishimura, Y., Takeda, H., Watanabe, Y., Yukawa, M., Inaba, J. Sato, I. and Matsusaka, N.: Placental transfer of radiosilver in rats. Radiat. Prot. Dosim., 79, 323-326. 1998.
- 9)Nishimura, Y., Watanabe, Y., M, H. Jia., Takeda, H., Wada, M. and Yukawa, M.: Intestinal absorption of ¹⁴C-chitosan in rats, Chitin and Chitosan Research, 3 , 55-61, 1997.
- 10)Uchiyama, M.: Reevaluation of Caesium Biological Half-life of Japanese, J. Environ. Radioactivity, 41 93-94 1998.

口頭発表

- 1)河村、田中： α 放射性核種による日本人の骨線量の推定における器官質量の影響、放射線影響学会第39回大会、大阪千里、1996.11.
- 2)田中、河村：6年齢群に関する「標準アジア人」モデルについて、放射線影響第39回大会、大阪千里、1996.11.
- 3)河村、田中：アルファ放射性核種による日本人の骨線量における器官質量の影響、日本保健物理学会、第32回研究発表会、奈良、1997.5
- 4)米原英典、三橋俊彦、内山正史：チェルノブイリ事故による日本人乳児の ^{137}Cs 内部被ばく線量評価(1)、日本放射線影響学会第39回大会、286 大阪 1996.
- 5)米原英典、三橋俊彦、内山正史：日本人乳児における ^{137}Cs 内部被ばく線量評価、日本保健物理学会第32回研究発表会、78、奈良 1997.

[データベース]

トリチウム (³H)

トリチウムの代謝モデルを構築する際に、尿中トリチウムの測定による生物学的半減期は人から直接得られる最も重要な情報である。以下には、これまでに報告されている生物学的半減期の値を示す。

表1 トリチウムの生物学的半減期

例数	試料	摂取経路	摂取期間	有効半減期			(文 献)
				第一成分	第二成分	第三成分	
1	尿			9-10 日			1
30	尿			9.3±1.5 日			2
8	尿			9.3-13 日			3
3	尿	経口	1回	10.2 日			4
3	尿	経口	1回	2.4 日			4
5	尿	吸入	1回	5分,20分			4
20	尿		1回	5-11 日			5
2	尿	経口	1回	7.5±0.6 日			6
1	血漿	経皮	5回	20分,36時,46時,12日		90 日	7
5	尿	経口	1回	9.46 日			8
7	尿	吸入	慢性	8.5 日			9
310	尿	吸入		9.5±4.1 日			10
34	尿	吸入、経皮	1回	6.4-14.4 日			11
1	尿	吸入	1回	9 日	34 日		12
1	尿	吸入	慢性	10.5 日	30 日		13
2	尿	吸入			21 日	280 日	14
2	尿	吸入			33 日	2020 日	14
1	尿	吸入		9.1 日	36 日		15
2	尿	吸入			26±5 日	550	16
				9 日	30 日	450	17
5	尿	経口	1回	12.2 日	44 日		18
30	尿	吸入	慢性	12 日		90,140 日	19
						140,168 日	19
						227,257 日	19
11	尿	経口	1回	0.7 day			20
	呼気	経口		7.4 day			20
2	尿	吸入		12,14 day			21
				有効半減期			
				第一成分	第二成分	第三成分	
12				8.5-11 9.6	20-36 30	200-550 450	NCRP Pub.62 のまとめ
30				8.6	28.0	360	上野らのまとめ

表2. 1989-1990年に日本の各県から集められた血液中のトリチウム濃度

(久松俊一; 日本における食品-人体間のトリチウム移行、平成7年度科研費補助金一般研究(C)研究成果報告書、平成8年3月)²²⁾

地 域	トリチウム濃度	
	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)
札幌市	1.9±0.2	1.8±0.3
青森市	1.4±0.2	1.9±0.3
仙台市	1.6±0.2	1.3±0.2
秋田市	1.1±0.2	1.3±0.2
福島市	1.3±0.2	1.1±0.2
水戸市	1.1±0.2	1.1±0.2
武蔵野市	1.5±0.2	1.1±0.2
横浜市	10.0±0.3	4.3±0.3
新潟市	1.4±0.2	1.0±0.2
金沢市	1.3±0.2	1.4±0.2
長野市	1.8±0.2	0.73±0.23
瀬戸市	1.5±0.2	0.75±0.23
京都市	1.1±0.2	0.96±0.22
大阪市	2.2±0.2	0.88±0.23
鳥取市	1.4±0.2	0.64±0.21
広島市	1.7±0.2	0.76±0.21
松山市	0.80±0.22	0.68±0.22
筑紫野市	0.85±0.21	0.76±0.21
熊本市	1.4±0.2	0.90±0.22
鹿児島市	0.74±0.21	0.84±0.21
全平均値	1.8±2.0	1.2±0.8
1例(横浜市)を除く平均値	1.4±0.4	1.0±0.4

引用文献

- G.von Hevesy and E.Hofer, Die Verweilzeit des Wassers in menschlichen Körper: Klin.Wschr.13,1524-1526 (1934)
- P.R.Schloerb, B.J.Fris-Hansen, I.S.Edelman, A.K.Solomon and F.D.Moore, The measurement of total bodywater in the human subject by deuterium oxide dilution: J.Clin.Invest. 29, 1296-1310 (1950)
- E.A.Pinson and E.C.Anderson, The body absorption distribution and excretion of tritium in man and animals: USAEC report LA-1218 (1951)
- E.A.Pinson and W.H.Langham, Physiology and toxicity of tritium in man. J.Appl.Physiol. 104, 108-126 (1957)
- P.Fallot, A.Aeberhardt and J.Masson, A method for tritiated water dosage and its applications in clinical practice: Int.J.Appl.Radiation Isotopes 1, 237-245 (1957)
- J.M.Foy and H.Schnieden, Estimation of total body water (virtual tritium space) in the rat, cat, rabbit, guinea-pig and man, and of the biological half-life of tritium in man. J.Physiol. 154, 169-176 (1960)
- R.Moore, A Comparison of HTO in plasma and expired water vapor: Health Physics 7, 161-169 (1962)
- C.R.Richmond, W.H.Langham and T.T.Trujillo, Comparative metabolism of tritiated water by mammals. J.Cell.Com.Physiol. 59, 45-53 (1962)
- K.F.Wylie, W.A.Biger and G.R.Grove, Biological half-life of tritium: Health Physics 9, 911-914 (1962)

- 10) H.L.Butler and J.H.Leroy, Observation of biological half-life of tritium: Health Physics 11, 283-285 (1965)
- 11) R.V.Osborne, Absorption of tritiated water vapor by people: Health Physics 12, 1527-1537 (1966)
- 12) W.S.Snyder, B.R.Fish, S.R.Bernard, Mary R.Ford and J.R.Muir, Urinary excretion of tritium following exposure of man to HTO - a two exponential model: Phys.Med.Biol. 13, 547-559 (1968)
- 13) W.Minder, Interne Kontamination mit Tritium: Strahlentherapie 137, 700-704 (1969)
- 14) A.A.Moghissi and M.W.Carter, Long-term evaluation of the biological half-life of tritium: Health Physics 21, 57-60 (1971)
- 15) B.E.Lambert, H.B.A.Sharpe and K.B.Dawson, An accidental intake of tritium water: Am. Indust. Hyg. Assoc.J. 32, 682-686 (1971)
- 16) A.A.Moghissi, M.W.Carter and E.W.Breethauser, Further studies on the long-term evaluation of the biological half-life of tritium: Health Physics 23, 805-806 (1972)
- 17) B.G.Bennett, Radiation dose due to acute intake of tritium by man: HASL-253 (1972)
- 18) M.I.Balonov, E.I.Dolgiev and I.A.Likhtarev, Transport kinetics of tritium oxide in human body: In Health physics problems of internal contamination (1973) 255-261, Akademiai Kiado Budapest
- 19) W.Seelentag, Two cases of tritium fatality: In Tritium (1973) 267-280, Messenger Graphics
- 20) S.H.Sadarangani, S.G.Sahasrabudhe and S.D.Soman, Tritium excretion in man under tropical conditions: In Tritium (1973) 327-333, Messenger Graphics
- 21) M.Takigami and A.Nukasawa, Tritium concentrations in air and in urine of workers resulted from tritium handling: J.J.Health Phys.Soc. 8, 221-227 (1973)
- 22) 久松俊一; 日本における食品-人体間のトリチウム移行、平成7年度科研費補助金一般研究(C)研究成果報告書, 平成8年3月

ストロンチウム 90 (⁹⁰Sr)

表3 ストロンチウムの1日出納量および体内量

		日本人 ²⁾		欧米人	
Sr 元素の1日当たり					
摂取量	日常食	2.3 mg	食物・液体	1.9 mg ²⁾	
体内量		430 mg	全身(骨格)	320 mg ²⁾	
1日当たり排泄量					
			尿	0.34 mg ²⁾	
			糞	1.5 mg ²⁾	
			毛髪	0.2 μg ²⁾	
Sr の胃腸管吸収率					
			食物および可溶性物質		
			成人	30 % ¹⁾	
			1-15 歳	40 % ¹⁾	
			0 歳	60 % ¹⁾	

表4 骨格、骨構成組織等の質量と骨格中カルシウム質量⁴⁾

(単位:g)

	35 歳男	35 歳女	15 歳男	15 歳女	10 歳	5 歳	1 歳	新生児
骨格	10,000	7,800	7,950	7,180	4,500	2,430	1,170	370
骨	5,500	4,000	4,050	3,700	2,300	1,260	590	170
活性骨髄	1,170	900	1,080	1,000	630	340	150	50
不活性骨髄	2,480	1,800	1,480	1,380	630	160	20	0
軟骨	1,100	900	1,140	920	820	600	360	130
その他*	250	200	200	180	120	70	50	20
歯	50**	40**				(10)***		
骨格中Ca	1,180	860	830	760	460	240	100	28

歯、骨膜、血管を含む。**永久歯 ***乳歯

引用文献

- 1) ICRP: Annual Limit on Intake by Workers, ICRP Publication 30, Part 1, Annals of ICRP 2 (3/4), 1979
- 2) Tanaka, G. et al: Reference Japanese Man - II. Distribution of strontium in the skeleton and in the mass of mineralized bone, Health Phys., 40, 601-604, 1981
- 3) ICRP: Basic Anatomical and Physiological Data for Use in Radiological Protection: The Skeleton, ICRP Publication 70, Annal of ICRP 25 (2), 1995
- 4) ICRP: Report of the Task Group on Reference Man, ICRP Publication 23, Pergamon Press, Oxford, 1975

ヨウ素 131 (¹³¹I)

表5 甲状腺重量 (g) - (1)

文献番号	1	1	2	2	3	4	5	5	6	6	7	7	8	8
性別	男	女	男	女	男女	男女	男	女	男	女	男	女	男	女
例数	291	238	628	470	117	48	98	79	1660	1216	33	31	812	362
胎児	1.41	1.25	0.76	0.63		0.65			1.09	1.11				
			1.39	1.37		0.88			1.19	1.39			1.03	
			1.78	1.21			1.94	2.85						
1~10歳	1.85	1.84	3.80	2.40	3.00				2.18	2.61				
	3.85	3.15	7.27	5.14		2.33			4.92	5.27				
11~20歳	8.40	5.89	8.30	8.88	8.00	8.10	14.53	11.34	8.65	8.97	8.10	9.90		
			16.68	14.01	21.00	22.00	10.60		14.42	13.73	12.10	13.80		
21~30歳	14.45	13.90												
			17.57	15.58					17.34	15.98				
			15.30	18.87	17.22	24.00	14.86	17.23	14.66	18.68	18.52	18.40	13.80	18.73
						15.27							18.43	16.60
31~40歳	17.47		19.04	17.50	24.00	15.57	16.43	13.93	19.71	17.15	14.30	11.80	19.46	19.26
			18.43	17.53		16.56			19.87	19.44			18.73	17.12
41~50歳			19.74	18.41			15.37	14.89	19.57	18.80	17.60	17.70	18.99	16.18
			19.18	17.09					19.81	16.68				
51~60歳	17.50	17.00	18.61	16.82	21.00		14.82	13.08	18.29	17.45	15.30	13.70	17.36	15.80
			16.93	14.52					19.76	16.85				
61~70歳	12.90	18.38	16.26						17.75	17.79			17.61	14.10
			17.91	11.30	21.00				17.58	16.45				
71~80歳	12.70		12.14	17.13										
			12.7	9.81		14.03	14.23	14.35	19.58	15.41	15	22.2	10.59	12
									16.06	14.07				
81~									11.67	11.5				
平均(文献9)	18.6	17							15.96	14.53	19.07	17.61	16.89	14.3
													18.8	17.2

表6 甲状腺重量 (g) - (2)

文献番号	1	2	2	3	3
性別	男女	男	女	男	女
例数	48	90	79	33	31
胎児	0.140				
0歳	0.301				0.323
1~10歳	1.206		1.267	1.997	
11~20歳	11.220	12.349	10.000	12.057	9.257
				18.269	17.054
21~30歳	17.078	12.091	12.985	25.208	14.791
31~40歳	17.654	13.249	11.158	18.623	14.025
41~50歳	16.799	11.966	11.209	22.316	15.986
51~60歳	11.750	11.730	6.895	18.572	10.303
71~80歳	10.529	8.716	7.234	16.246	10.400
平均 (20~60歳 ⁹⁾	14.903	12.227	10.795	22.286	14.579
ICRP30 (成人)	19.630				

表7 ヨウ素の1日摂取量

ヨウ素の摂取量 (mg)	文献番号
1~4	30
1~2	31

表8 甲状腺の取り込み率

例数	年齢	取り込み率	文献番号
85	3-10	0.22	13
80	3-14	0.23	18
31	子供	0.25	16
47	成人	0.12	14
81	10-49	0.17	17
	50-79	0.19	17
400	10歳以下	0.21	19
77	49歳以下	0.22	20
	50歳以下	0.17	20
197	不明	0.19	21
17	22-23	0.19	22
ICRP	全年齢	0.30	23

表9 甲状腺における生物学的半減期

例数	半減期, 幅	半減期 (平均値)	文献番号
35		33	13
119	10-40	20	17
1		34	27
3	18-43		28
11	13-33	52	25
2	30, 40	35	24
		40	31

ICRP Publ.56 ²³⁾	3か月齢	11.2	23
	1歳	15	
	5歳	23	
	10歳	58	
	15歳	67	
	成人	80	

引用文献

- 堀沢治吉：甲状腺に関する研究、殊に重量的関係において。日本病理学会誌，9：115, 1991
- 福士政一：甲状腺の病理解剖的方面，日本病理学会誌，14:3, 1924
- 執行作弥：甲状腺の形態に関する研究，福岡医科大学誌，17:924, 1926
- 野坂綱定：甲状腺沃度含有量に関する研究，日本内科学誌，14:814, 1926
- 三井圭造：甲状腺のヨード含有量に就いて，東京医学会誌，46:1679, 1931
- 引地義男：日本人の甲状腺重量に関する研究，東北医学誌，16:87, 1932
- 田中正雄：沃度代謝の研究，十全会誌，42:2580, 1937
- Aimi, S. et al., Studies on the weight and size of internal organs, Acta Pathol. Japonica, 2: 173, 1952.
- 吉沢康雄：日本人の甲状腺に関する正常値について，保健物理，11, 123, 1976.
- 野坂綱定：甲状腺沃度含有量に関する研究，日本内科学誌，14:814, 1926
- 三井圭造：甲状腺のヨード含有量に就いて，東京医学会誌，46:1679, 1931
- 中島博徳：健康及び各種疾患小児の甲状腺Jod摂取率，小児科診療，22, 378, 1959.
- 中村良文：甲状腺 ¹³¹I 摂取率検査成績，島根医学，3, 619, 1966.
- 中村良文：甲状腺の¹³¹I摂取率曲線に関する研究，米子医学会誌，16, 580, 1965.
- 久保政次他：小児甲状腺 ¹³¹I 摂取率，血漿 ¹³¹I 転換率，尿中 ¹³¹I 排泄率に関する研究，日本小児科学会誌，62, 914, 1958.
- 越山勝夫：¹³¹I による甲状腺機能とJod代謝の臨床的研究，内科宝函，9, 381, 1962.
- 岡部長広：小児期の放射性Jodを用いた甲状腺機能に関する研究，東邦医学会誌，8，99, 1961.
- 木下文雄他：正常者及び各種甲状腺疾患の ¹³¹I 甲状腺摂取率の再検討，Radioisotopes, 15, 359, 1966.
- 石突吉持他：老年者における甲状腺機能，老年病，4, 302, 1960.
- 藤田順一他：最近一年間の甲状腺摂取率測定の集計，医療，16, 137, 1962.
- 飯野史郎他：海草類摂食の甲状腺 ¹³¹I 摂取率に及ぼす影響，日本内分泌学会誌，34, 58, 1958
- ICRP Publ.56 Part-1: Age dependent doses to members of the public from intakes of radionuclides, 1989
- M. Uchiyama et al.: Radioiodine Retention by 2 Japanese Male Adults After A Single Oral Dose, J. Radiat.Res., 23,358,1982
- 泉 幸男他：ヨウ素-131の甲状腺沈着割合と有効半減期，保健物理，7，213, 1972.
- 阿武保郎，村上寅男：¹³¹I による診断および治療時における甲状腺の摂取率曲線について，ホルモンと臨床，5，997, 1957.
- Tanaka, S. et al.: Protection of thyroid gland and total

body from radiation delivered by radioactive iodine, in "Diagnosis and Treatment of Deposited Radionuclides" ed. by Kornberg, H.A. and Norwood, 1968. Excerpta Medica, Amsterdam.

28. 浜本 研他：各種放射性医薬品の体内分布について，核医学，7，392，1970.
29. 長瀧重信：正常日本人の甲状腺機能一特にヨード摂取量との関係について一，医学のあゆみ，72，621，1970.
30. 山本通子他：日本人のヨード摂取量，医学のあゆみ，108，53，1979.
31. 横山直方：日本人のヨード摂取量と甲状腺機能，保健物理，30，243，1995.
32. 甲斐倫明：日本人の甲状腺における放射性ヨウ素の生物学的半減期に関する考察，保健物理，18，3，1983.

セシウム-137 (¹³⁷Cs)

セシウム代謝モデルおよび被ばく線量算定関連モデルのデータベースを収集した。

1) 胃腸管からの吸収率

本研究では全年齢層、両性に共通して、

- ①水溶液として摂取 1
- ②その他の形態で摂取 0.75 と設定した。

ICRPPubl. 30 には、塩化セシウム及びその他の通常存在するセシウム化合物の胃腸管からの吸収率が 100%と記載されている¹⁾。Rundo は ¹³²CsCl 水溶液を経口摂取した 10 名について、最初 3 日間の糞便中排泄は摂取量の 1.7%と報告している²⁾。これは ¹³²Cs の胃腸管吸収率がほぼ 100%であることを示している。

しかし水溶液と異なる形状で与えられた場合、セシウムの胃腸管吸収率は若干低下することも報告されている。フォールアウト ¹³⁷Cs を含む食品を摂取させ、排泄物中の ¹³⁷Cs を測定して、Rundo は胃腸管から血中へ移行する ¹³⁷Cs は 90%以上であることを報告している²⁾。Lieden は、トナカイ肉に含まれる ¹³⁷Cs は約 50%が血中へ移行することを全身計測の結果から推定している³⁾。組織への結合の強さの観点から、Eyman はフォールアウト由来の ¹³⁷Cs を取り込んだ魚肉から通常の調理法により 10%の消失率を、120 日間汚染させて調製した魚肉からはより大きい消失率 70%を観察している⁴⁾。さらに ICRPPubl. 56 には reference 2, 3 に加え、チェルノブイリ事故影響の観察から Henrich の平均 78%をも記載してある。しかしながらこの勧告書においても、ICRP は放射線防護の精神から安全側にたちセシウムに関して完全吸収を意味する 1 を勧告している⁵⁾。

2) 器官残留モデル

本研究では全年齢層、性に共通して、(1)式のモデルを採用した。

$$R(t) = a \cdot \exp(-\lambda_1 t) + (1-a) \cdot \exp(-\lambda_2 t) \quad (1)$$

残留関数が実験的に確定されている器官はない。そこで唯一モデルが確立された、全身に対する (1) 式で近似さ

れる残留モデルを、全ての器官に対してかつ全年齢層、性に共通して適用する。

この式で a と 1-a はそれぞれ速度定数 λ_1 と λ_2 とに対応している。日本人について a と 1-a が測定された例はきわめて少ない⁶⁾。そこで本研究では ICRPPubl. 56⁵⁾ に示された数値を採用して、年齢別の a と 1-a とについて表 10 の数値を適用する。

表 10 残留関数の構成比⁵⁾

年 齢	構成比 (%)	
	Component 1 a	Component 2 1-a
3ヶ月齢	—	100
1歳	—	100
5歳	45	55
10歳	30	70
15歳	13	87
成人	10	90

3) 生物学的半減期

表 11 生物学的半減期

3ヶ月齢	13日
1歳	26日
5歳	35日
10歳	54日
15歳	80日
成人男子	90日
成人女子	60日

上記(1)式のフラクシオン a に対応する生物学的半減期 T_1 は成人男子においてはごく短いことが知られている。そしてこのパラメータの測定には放射性セシウムの摂取が必要条件である。Richmond らが 4 名について観察した結果を表 12 に示した⁷⁾。

表 12 フラクシオン a に対応する生物学的半減期 T_1

パラメータ	被験者1	被験者2	被験者3	被験者4	平均値
a	14.95	12.19	12.89	10.62	13.34
λ_1 (/日)	-0.4978	-0.4756	-0.6444	-0.6940	-0.4988
T_1 (日)	1.39	1.46	1.13	1.00	1.39

ICRP は放射線防護の観点から a と T_1 に対して過大評価となるパラメータ値、0.1 と 2 日を与えている^{1, 5)}。このような実験の実施は我が国ではきわめて困難であり、飯沼らが成人男子について測定した例だけで⁶⁾、十分な情報が得られていない。そこで本研究では ICRP の数値を適用した。

上記(1)式のフラクシオン 1-a に対応する生物学的半減期 T_2 については 1 回投与実験以外に、高汚染地域で体内に蓄積したフォールアウト ¹³⁷Cs をヒューマンカウンタで経時的に測定した結果を解析したり、平衡時に体内の蓄積量と 1 日に排泄された尿あるいは摂取した食餌中の ¹³⁷Cs との比から決定できるので、諸外国では豊富なデータが得られている。チェルノブイリ事故に関連しても多くのデー

タが得られている。データが豊富な成人男子に限定して、1 回投与実験以外のデータについて比較すると、表 13 に示したように日本人の生物学的半減期は短い傾向がある。米国と英国のデータは日本の報告値よりかなり大きい、イタリアおよび西ドイツからも 100 日を越える生物学的半減期の平均値が報告されている^{8,9)}。

表 13 フラクシオン 1-a に対応する生物学的半減期 T_2

国名	生物学的半減期 T_2 (平均値:日)	引用文献
日本	85	10,11,12)
フィンランド (ラップ)	64	13,14,15)
アメリカ	121	16,17,18,19,20)
イギリス	108	2, 21, 22)

ICRP はコーカシアンを対象に数値を設定しているため、表 13 から明らかなように設定された数値は日本人に適用するにはかなり過大となっている。これは的確な被ばく線量推定の方法論を開発する本研究の目標とは相容れない。本課題では日本人について得られた 85 日を第一の候補として選択する。

この半減期観察以後 20 年余を経て、チェルノブイリ原子力発電所事故が発生して、ソ連邦やヨーロッパに激しい放射能汚染が発生した。日本にもこれら諸国より 1 桁から 2 桁低い放射能汚染が生じた。この状況を利用して、高放射能汚染地域からの帰国者の ^{137}Cs 体内量を計測して生物学的半減期を決定した。個々の生物学的半減期は広い範囲に分布するが、平均値は 100 日、極端に長い 2 例を除くと 95 日が得られた²³⁾。1960 年代に得られた結果¹⁰⁾との差異を解析して統計学的な有意差を認めなかった。そこで 1960 年代と 1980 年代の両データを併せて解析し、生物学的半減期の平均値として 90 日を得た²³⁾。これを日本人成人男子の生物学的半減期として本研究では採用することとした。

日本人の他の年齢層に対する生物学的半減期は、内山が 3 例の成人女子について成人男子より短い傾向を見出した²³⁾以外、乳児に対する生物学的半減期を除くと論文としては見あたらない。当研究では各国からの報告例を集めて、体重への回帰を解析した (2) 式で表される Cryer and Baverstock の式²⁴⁾を用いて半減期を推定した。日本人成人男子について 85 日が算定され、生物学的半減期 T_2 と体重 m との関係はこの (2) 式で適切に推定された。

$$T_2 = (1.14 \pm 0.13)m + (4.6 \pm 7.3) \approx 1.27m + 11.9 \quad (2)$$

生物学的半減期 T_2 と体重 m との関係は他にも Eberhardt²⁵⁾ や Leggett²⁶⁾ も解析しているが、Cryer and Baverstock の (2) 式がより適切な結果を与えた。

乳児については、飯沼らの報告値²⁷⁾が日本人についての唯一のもので、生後 80 日から 180 日では平均 13 日の半減期である。この数値は生後 6 か月までの生物学的半減期としては、他国から報告されている 6.6~33 日とよく一致

している。日本の乳児については、Leggett モデルが同じ 13 日を与えるが²⁶⁾、乳児を含まないデータを用いて構築された Cryer and Baverstock モデル²⁴⁾ Eberhardt モデル²⁵⁾ は、それぞれ 22 日と 21 日の過大評価値を与えた。

4. 移行速度

表 14 移行速度 (d^{-1})

3ヶ月齢	-0.0533
1歳	-0.0267
5歳	-0.0198
10歳	-0.0128
15歳	-0.00866
成人男子	-0.00770
成人女子	-0.0116

本研究では、放射性核種環境移行解析プログラムの移行マトリックスに使用するために、上記のパラメータ値を設定した。

\log_2 を生物学的半減期で割って得られた商が、移行速度である。したがって、生物学的半減期を得ると同一の手法で得られるパラメータである。このパラメータ値は全身に分布後に排泄される速度定数である。実効線量を求めるためには、その器官において ^{137}Cs が壊変する総数が必要である。しかし単独の器官について生物学的半減期を測定した例はない。そこで全身に分布後に排泄される速度定数を、全身以外の全ての器官から排泄される速度定数にも適用する。

4) 環境移行マトリックス (^{137}Cs 人体代謝部分)

例として成人男子の場合を表 15 に示す。

表 15 環境移行マトリックス (^{137}Cs 人体代謝部分)

摂取	COMP1	COMP2	尿	糞	生物学的半減期
			0.25	2 ⁺¹	90 ⁺¹
各コンパートメントへの分配比					
摂取	1				
COMP1	0.1 ⁺²	1			
COMP2	0.9 ⁺²		1		
尿			0.87		
糞			0.13	1	

(注)

a、(1-a)、 T_1 、 T_2 は年齢に対応した数値を下記から選択する。
+1: T_1 については 3ヶ月齢、1歳、5歳、10歳、15歳、成人男子、成人女子に対して、なし、なし、9.1日、5.8

日、2.2日、2日、2日である。また、 T_2 については 3ヶ月齢、1歳、5歳、10歳、15歳、成人男子、成人女子に対して、13日、26日、35日、54日、80日、90日、60日である。

+2: a については、3ヶ月齢、1歳、5歳、10歳、15歳、

成人男子、成人女子に対して、0, 0, 45, 30, 13, 10, 10 %とする。1-a については3ヶ月齢、1歳、5歳、10歳、15歳、成人男子、成人女子に対して、100, 100, 55, 70, 87, 90, 90 %とする。

以外は、例えば小腸に入ったセシウムが標的器官へ移行する割合など、直接必要とされる情報は何も与えられていない。

5) 乳児体重モデル

ICRP Publ. 30 モデルにおいては、上表のカラムについて、小腸から血液へ失われることなくセシウムが移行する

表 16 に、本研究で用いたモデルを示した²⁸⁾。

表 16 乳児体重²⁸⁾モデル

日齢	体重(g)								
1	3152	21	3750	41	4731	61	5480	81	6112
2	3049	22	3800	42	4779	62	5514	82	6136
3	3011	23	3851	43	4826	63	5548	83	6160
4	3029	24	3901	44	4874	64	5582	84	6185
5	3039	25	3952	45	4922	65	5616	85	6209
6	3066	26	4002	46	4970	66	5650	86	6233
7	3094	27	4052	47	5004	67	5684	87	6258
8	3094	28	4103	48	5038	68	5718	88	6282
9	3145	29	4153	49	5072	69	5752	89	6306
10	3195	30	4204	50	5106	70	5786	90	6331
11	3245	31	4254	51	5140	71	5820	91	6355
12	3296	32	4302	52	5174	72	5854	92	6379
13	3346	33	4350	53	5208	73	5888	93	6404
14	3397	34	4397	54	5242	74	5922	94	6428
15	3447	35	4445	55	5276	75	5956	95	6452
16	3498	36	4493	56	5310	76	5990	96	6477
17	3548	37	4540	57	5344	77	6014	97	6501
18	3599	38	4588	58	5378	78	6039	98	6525
19	3649	39	4636	59	5412	79	6063	99	6550
20	3699	40	4683	60	5446	80	6087	100	6574
日齢	体重(g)								
101	6599	121	7000	141	7340	161	7580	181	7814
102	6623	122	7018	142	7352	162	7592	182	7825
103	6647	123	7037	143	7364	163	7604	183	7837
104	6671	124	7056	144	7376	164	7616	184	7848
105	6696	125	7075	145	7388	165	7628	185	7860
106	6720	126	7093	146	7400	166	7640	186	7872
107	6738	127	7112	147	7412	167	7652	187	7883
108	6757	128	7131	148	7424	168	7663	188	7895
109	6776	129	7149	149	7436	169	7675	189	7906
110	6794	130	7168	150	7448	170	7686	190	7918
111	6813	131	7186	151	7460	171	7698	191	7930
112	6832	132	7205	152	7472	172	7709	192	7941
113	6851	133	7224	153	7484	173	7721	193	7953
114	6869	134	7243	154	7496	174	7733	194	7964
115	6888	135	7261	155	7508	175	7744	195	7976
116	6907	136	7280	156	7520	176	7756	196	7988
117	6925	137	7292	157	7532	177	7767	197	7999
118	6944	138	7304	158	7544	178	7779	198	8010
119	6263	139	7316	159	7556	179	7791	199	8022
120	6981	140	7328	160	7568	180	7801	200	8033

引用文献

1. ICRP 30 Part 1, Annals of the ICRP, Vol. 2, Nos. 3-4, pp.116 (1978).
2. J. Rundo, The metabolism of biologically important radionuclides, IV. A survey of the metabolism of cesium in man, Brit. J. Radiol., 37: 108 (1964).
3. K. Liedén, ¹³⁷Cs burden in Swedish Laplanders and Reindeer, Acta Radiologica Stokh., 56:237 (1961)
4. L.D.Eyman, Changes in ¹³⁷Cs concentration in Fish during Preparation for Human Consumption, Health Phys., 28: 476 (1975).
5. ICRP 56, Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides, Part 1 Annals of the ICRP, Vol. 20: No. 2, pp.53-58 (1989).
6. T.linuma, T.Nagai,T.Ishihara,K.Watari and M.Izawa, Cesium turnover in man following single administration of ¹³²Cs 1. Whole body retention and excretion pattern, J. Radiat.Res., 6: 73 (1965).
7. C.R.Richmond, J.E.Furchner and W.H.Langham, Long-term Retention of Radiocesium by Man, Health Phys., 8: 201 (1962).
8. C.F.Clemente, A.Mariani and G.P.Santaroni, Sex differences in Cs metabolism in Man, Health Phys., 21: 709 (1971).
9. E.J. Huycke and E.Oberhausen, Measurement of cesium-137 in the normal person, In: Assessment of Radioactivity in Man, Vol. 2, 135, IAEA, Vienna (1964).
10. M.Uchiyama, Estimation of ¹³⁷Cs Body Burden in Japanese II. The Biological Half-life, J.Radiat.Res., 19: 246 (1978).
11. M.Fujita, A.Yabe, J.Akaishi and S.Ohtani, Relationship between injection, excretion and accumulation of fallout cesium-137 in man on a long-term scale., Health Phys.,12: 1649 (1966).
12. N.Yamagata, Balance of Potassium, Rubidium and Caesium between Japanese People and Diet and Assessment of their Biological Half-times. Nature, 196:83 (1962).
13. J.K.Miettinen, Measurements of caesium-137 in Finnish Lapps in 1962-63 by a mobile whole-body counter, In: Assessment of Radioactivity in Man, Vol. 2, 193, IAEA, Vienna (1964).
14. Y.Naversten and Liden, Half-life studies of radiocesium in humans, ibid. 79.
15. E.Hassanen & J.K.Miettinen, The body burden of ¹³⁷Cs in people of southern Finland 1961-1963, ibid. 183.
16. G.M.Ward and J.E.Johnson, Balance of Cesium-137 and Potassium, and Whole-Body levels in young male subjects, Am. J. Cli. Nutr., 21:149 (1968).
17. E.C.Anderson, R.L. Schuch, W.R.Fisher and W.Langham, Radioactivity of People and Foods, Science 125: 1273 (1957).
18. R.D.Lloyd, W.S.Zundel, C.W.Mays, W.W.Wagner, R.C.Pendleton and R.L. Aamodt, ¹³⁷Cs Half-times in normal, in dystrophic and in pregnant humans, Research in Radiobiology, University of Utah Report COO-119-234, 297 (1966).
19. R.C.Pendleton, C.W.Mays, R.D.Lloyd and B.W.Church, A trophic level effect on ¹³⁷Cs concentration, Health Phys., 13: 88 (1965).
20. R.D.Lloyd, C.W.Mays, B.W.Church, R.C.Pendleton and S.F.Mays, Does the elimination rate of cesium in humans change with the season? Health Phys.,18: 623 (1970).
21. D.H.Marshall and L.Burkinshaw, Relationship between the concentration of cesium-137 in milk and man, Nature 240: 571 (1972).
22. M.P.Taylor, J.Vennert and D.M.Taylor, Retention and excretion of caesium-137 by man, Phys. Med. Biol., 7: 157 (1962).
23. M.Uchiyama, Reevaluation of Caesium Biological Half-life of Japanese, J. Environ. Radioactivity (in press).
24. M.A.Cryer and K.F.Baverstock, Biological half-life of ¹³⁷Cs in man, Health Phys., 23: 394 (1972).
25. L.L.Eberhardt, Relationship of cesium-137 half-life in humans to body weight, Health Phys., 13: 88(1967).
26. R.W. Leggett, Predicting the relation of Cs in individuals, Health Phys., 50:747, (1986).
27. T.A.linuma, S. Yashiro, T. Ishihara, M. Uchiyama, T. Nagai and N. Yamagata, Estimation of internal dose in human fetus and newborn infants due to caesium-137, In: "Radiation biology of the fetal and juvenile mammal," Proceedings of the ninth annual Hanford Biology Symposium at Richland, Washington, May 5-8, 1969, ed. by M.R.Sikov and D.D.Mahlum, December 1969.
28. 乳幼児身体発育値 平成2年 乳幼児身体発育調査結果報告書 厚生省児童家庭局母子衛生課監修 財団法人 母子衛生研究会発行。

② 食品を介する放射性核種摂取

湯川雅枝、内山正史（人間環境研究部）、武田 洋（第4研究グループ）

Intake Model of Radionuclides through Food

M. Yukawa and M. Uchiyama (Division of Human Radiation Environment),

H. Takeda (Environmental and Toxicological Sciences Research Group)

Abstract

A model for estimating daily dietary intake of radionuclides was created for the purpose of determination of internal radiation dose for Japanese through oral ingestion of the radionuclides. The model was prepared for suckling and others separately due to their different eating habits. The related and necessary data were collected from the several databases and analyzed for the model. The daily dietary intakes of ^{137}Cs and ^{90}Sr were estimated for adults in 1985, 1986, 1987 and 1992 on the nationwide average using a standard diet model. In 1992, the daily dietary intakes were calculated on various age groups and different sexes. These results were compared with the values obtained from the duplicate diet method. In the case of suckling, the contribution rate of breast milk and cow's milk to the intakes of radionuclides were considered, since the main food for the suckling is milk.

The models for children and adults have not be enough evaluated on the property since the unfit and uncertainty of the databases used on this stage. The calculation model on the radiation dose for the suckling according to ingestion of breast and cow's milk was verified with the other model. The daily dietary intake model for the suckling will be incorporated into the whole model.

[モデル]

1. 緒言

放射性核種による内部被ばくには経口摂取による被ばくと経気道摂取その他がある。本研究では経口摂取による被ばくにより日本人が受ける線量を推定するために、放射性核種の経口一日摂取量推定モデルを設定し、それに関連するデータ及びパラメータを収集解析した。食習慣に著しい変化が認められるために、乳児期とそれ以降の時期とで別個のモデルを設定した。

2. 研究方法

2-1. 乳児期を除く1日総摂取量モデル

アンケート方式による厚生省の食品摂取量調査に基づく「国民栄養の現状」¹⁾のデータを引用して食品群別1日摂取量モデル（標準食モデル）を作成し、このデータと放射能調査研究の成果に基づく Radioactivity Survey Data in Japan²⁾の食品中放射性核種濃度を用いて得られる食品群別の1日摂取量を推定し、それら食品群別放射性核種1日摂取量の和として表される経口摂取による放射性核種の1日摂取量モデルを設定した。

食品群を構成する食品の全てについて放射能濃度が測定されているわけではない。実測された放射能と比較してモデルの妥当性を検証する観点から、摂取する食品群は ^{90}Sr 、 ^{137}Cs が測定されている穀類、緑黄野菜、乳類、大根、キャベツ、白菜、海産魚A、海産魚B、海産魚C、軟体類、日本茶、海草とした。摂取量の性差が食品群別に記載されている場合にはそれを用い、記載のない場合は「平成6年度版国民栄養の現状」記載の総摂取量の男女比からそれぞれの摂取量を推定してモデルに組み込んだ。

陰膳方式で収集した試料（日常食）を分析した放射能調査研究、Radioactivity Survey Data in Japan²⁾の成人男子による放射性核種1日摂取量全国平均値と比較して、このモデルで得られる放射性核種1日摂取量全国平均値の妥当性を検討した。比較した推定放射性核種1日摂取量は摂取重量、放射性核種濃度のいずれについても全国平均値を計算して得られた数値をモデルに適用して得られた。

年齢群別の食品摂取量は、環境科学技術研究所が実施している調査報告書³⁾を基に乳児（1歳児中心）、幼児（4歳児中心）、成人（16歳以上）の分類を原則とした。

さらに京都大学他の陰膳方式で採取された日常食中の関連元素、特に ^{131}I についてはヨウ素を放射化学分析、PIXE分析、その他の分析法で定量して、その濃度から比放射能を用いてこの食品群別摂取量を検証することを試みた。

2-2. 乳児期の1日摂取量モデル

乳児期の食生活は他の年齢層とは著しく異なる。さらに乳児期の成長は極めて急速でありその放射性核種による被ばく線量を推定するためには放射性核種の1日摂取量の日変化が必要である。そこで乳児の食生活における特徴を文献的に調査して乳児期の放射性核種摂取量モデルを設定した。乳児は栄養法により完全母乳栄養児、母乳と人工栄養との両方で育てられる混合栄養児及び完全人工栄養児の3群に分類されるため、この3栄養児群が包含されるモデルとした。また人工栄養児、混合栄養児さらには後述するように母乳栄養児も摂取する可能性がある粉乳については特に、生産・流通モデルも設定した。

3. 結果と考察

3-1. 乳児期を除く1日総摂取量モデル

平成6年度版「国民栄養の現状」による食品摂取量に基づき、Radioactivity Survey Data in Japanの食品別 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の濃度とから、これらの放射性核種の1日摂取量の全国平均推定値を1985年、1986年、1987年については表1~3に、1992年については全国平均推定値（表4）に加えて、より詳細に年齢階層、性別に表5~8に示した。

表1 放射性核種の1日摂取量モデル1
(全国平均値 1985年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	1347.7	0.094	127	0.072	97.0
1. 米	306.0	0.013	4.0	0.052	15.9
2. 小麦粉	84.4	0.199	16.8	0.037	3.1
3. 乳類	123.0	0.088	10.8	0.180	22.1
4. 大根	66.8	0.266	17.8	0.032	2.1
5. キャベツ	64.0	0.500	32.0	0.104	6.7
6. 白菜	28.6	0.022	0.6	0.007	0.2
7. 海水魚 A *2	22.5	0.019	0.4	0.163	3.7
8. 海水魚 B *2	30.7	0.014	0.4	0.241	7.4
9. 海水魚 C *2	6.2	0.012	0.1	0.206	1.3
10. 貝類	17.0	0.009	0.2	0.053	0.9
11. 淡水魚	12.3	1.080	13.3	0.152	1.9
12. 日本茶	3.0	1.070	3.2	0.950	2.9
13. カメ	5.5	0.048	0.2	0.028	0.2
14. *3	777		99.8		68.3
15. *4	57.1		78.8		70.4

表4 放射性核種の1日摂取量モデル4
(全国平均値 1992年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	1365.1	0.060	81.2	0.055	74.8
1. 米	285.0	0.010	2.8	0.020	5.6
2. 小麦粉	92.1	0.080	7.3	0.010	0.9
3. 乳類	129.0	0.026	3.3	0.338	4.4
4. 大根	75.9	0.174	13.2	0.129	9.8
5. キャベツ *1	58.4	0.144	8.4	0.049	2.9
6. 白菜 *1	31.6	0.240	7.6	0.097	3.1
7. 海水魚 A *2	21.5	0.006	0.1	0.163	3.5
8. 海水魚 B *2	31.1	0.006	0.2	0.163	5.1
9. 海水魚 C *2	7.9	0.006	0.0	0.163	1.3
10. 貝類	22.7	0.003	0.1	0.041	0.9
11. 淡水魚	13.5	0.628	8.5	0.174	2.4
12. 日本茶	3.0	0.740	2.2	0.733	2.2
13. カメ	5.6	0.032	0.2	0.028	0.2
14. *3	777		54.0		42.1
15. *4	56.9		66.5		56.3

表2 放射性核種の1日摂取量モデル3
(全国平均値 1986年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	1347.7	0.084	113.0	0.179	241.0
1. 米	306.0	0.009	2.8	0.062	19.0
2. 小麦粉	84.4	0.141	11.9	0.172	14.5
3. 乳類	123.0	0.088	10.8	0.580	71.3
4. 大根	66.8	0.234	15.6	0.078	5.2
5. キャベツ *1	64.0	0.796	50.9	0.517	33.1
6. 白菜 *1	28.6	0.070	2.0	0.011	0.3
7. 海水魚 A *2	22.5	0.014	0.3	0.231	5.2
8. 海水魚 B *2	30.7	0.014	0.4	0.234	7.2
9. 海水魚 C *2	6.2	0.011	0.1	0.360	2.2
10. 貝類	17.0	0.005	0.1	0.147	2.5
11. 淡水魚	12.3	1.630	20.0	0.492	6.1
12. 日本茶	3.0	2.450	7.3	53.8	161
13. カメ	5.5	0.031	0.2	0.096	115
14. *3	777		122		328
15. *4	57.1		108		136

表5 放射性核種の1日摂取量モデル5
(成人男子 1992年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	1430.2	0.060	85.1	0.055	78.4
1. 米	321	0.010	3.2	0.020	6.3
2. 小麦粉	66.2	0.080	5.3	0.010	0.7
3. 乳類	97.6	0.026	2.5	0.034	3.3
4. 大根	79.5	0.174	13.8	0.129	10.3
5. キャベツ *1	61.2	0.144	8.8	0.049	3.0
6. 白菜 *1	33.1	0.240	7.9	0.097	3.2
7. 海水魚 A *2	22.5	0.006	0.1	0.163	3.7
8. 海水魚 B *2	32.6	0.006	0.2	0.163	5.3
9. 海水魚 C *2	8.3	0.006	0.1	0.163	1.4
10. 貝類	23.8	0.003	0.1	0.041	1.0
11. 淡水魚	14.1	0.628	8.9	0.174	2.5
12. 日本茶	3.0	0.74	2.2	0.733	2.2
13. カメ	5.9	0.044	0.2	0.028	0.2
14. *3	769		53.3		42.9
15. *4	53.8		62.6		54.75

表3 放射性核種の1日摂取量モデル3
(全国平均値 1987年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	1347.7	0.106	143	0.192	257.0
1. 米	306.0	0.010	3.21	0.028	8.6
2. 小麦粉	84.4	0.155	13.1	0.034	2.9
3. 乳類	123.0	0.076	9.3	0.382	46.9
4. 大根	66.8	0.203	13.6	0.030	2.0
5. キャベツ *1	64.0	0.280	17.9	0.096	6.1
6. 白菜 *1	28.6	0.468	13.4	0.189	5.4
7. 海水魚 A *2	22.5	0.019	0.4	0.210	4.7
8. 海水魚 B *2	30.7	0.006	0.2	0.239	7.3
9. 海水魚 C *2	6.2	0.009	0.1	0.231	1.4
10. 貝類	17.0	0.019	0.3	0.062	1.1
11. 淡水魚	12.3	0.682	8.4	0.362	4.5
12. 日本茶	3.0	1.220	3.7	4.48	13.4
13. カメ	5.5	0.044	0.2	0.052	0.3
14. *3	777		83.6		105
15. *4	57.1		58.5		40.75

表6 放射性核種の1日摂取量モデル6
(成人女子 1992年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	1252.8	0.060	74.5	0.055	68.7
1. 米	254.0	0.010	2.5	0.020	5.0
2. 小麦粉	92.3	0.180	7.4	0.010	0.9
3. 乳類	124.0	0.026	3.2	0.034	4.2
4. 大根	69.7	0.174	12.1	0.129	9.0
5. キャベツ *1	53.6	0.144	7.7	0.049	2.6
6. 白菜 *1	29.0	0.240	7.0	0.097	2.8
7. 海水魚 A *2	219.7	0.006	0.1	0.163	3.2
8. 海水魚 B *2	28.5	0.006	0.2	0.163	4.7
9. 海水魚 C *2	7.3	0.006	0.0	0.163	1.2
10. 貝類	20.8	0.003	0.1	0.041	0.8
11. 淡水魚	12.4	0.628	7.8	0.174	2.2
12. 日本茶	3.0	0.740	2.2	0.733	2.2
13. カメ	5.1	0.032	0.2	0.028	0.1
14. *3	719		50.4		39.0
15. *4	57.4		67.6		56.8

表7 放射性核種の1日摂取量モデル7
(幼児 1992年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	1000.8	0.060	59.5	0.055	54.8
1. 米	143	0.010	1.4	0.020	2.8
2. こんにゃく	66.2	0.080	5.3	0.010	0.7
3. 乳類	166	0.026	4.3	0.338	5.6
4. 大根	33.2	0.174	5.8	0.129	4.3
5. キャベツ *1		0.144		0.049	
6. 白菜 *1		0.240		0.097	
7. 海水魚 A *2	11.0	0.006	0.1	0.163	1.8
8. 海水魚 B *2	5.7	0.006	0.1	0.163	0.9
9. 海水魚 C *2	5.1	0.006	0.0	0.163	0.8
10. 貝類	8.5	0.003	0.0	0.041	0.3
11. 淡水魚	1.2	0.628	0.8	0.174	0.25
12. 日本茶		0.74		0.733	
13. ワカ	4.2	0.032	0.1	0.028	0.1
14. *3	404		16.6		12.7
15. *4	40.4		27.9		23.2

表8 放射性核種の1日摂取量モデル8
(乳児 1992年)

食品	摂取量 (g)	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
		(Bq/kg)	(mBq)	(Bq/kg)	(mBq)
全食品	683	0.060	40.7	0.055	37.5
1. 米	80	0.010	0.8	0.020	1.6
2. こんにゃく		0.080		0.010	
3. 乳類	136	0.026	3.5	0.338	4.6
4. 大根	11.3	0.174	2.0	0.129	1.5
5. キャベツ *1		0.144		0.049	
6. 白菜 *1		0.240		0.097	
7. 海水魚 A *2	5.0	0.006	0.0	0.163	0.8
8. 海水魚 B *2	3.5	0.006	0.0	0.163	0.6
9. 海水魚 C *2	2.2	0.003	0.0	0.163	0.4
10. 貝類	2.8	0.003	0.0	0.041	0.1
11. 淡水魚	0.5	0.628	0.3	0.174	0.1
12. 日本茶		0.74		0.733	
13. ワカ	0.8	0.032	0.0	0.028	0.0
14. *3	248		7.6		9.9
15. *4	36.3		18.8		26.5

表1から表8まで以下の注釈が同様に用いられている。

- *1 放射能濃度が不明のため、ほうれん草中の放射能濃度の1987年から1992年への減少率を乗じて推定した。
- *2 海産魚の摂取量分類と放射の濃度が異なるため、海産魚の放射能濃度の平均値を用いた。
- *3 食品群別摂取量から計算した全食品摂取量推定値
- *4 推定値の全食品からの摂取量に対する比, %

日常食を介する放射性核種の1日摂取量で規格化すると標準食を介する放射性核種の1日摂取量は、1986年を例外として⁹⁰Srで60~80%、¹³⁷Csで40~70%である。また標準食の1日摂取重量は、日常食の約60%である。すなわち標準食を構成する食品の放射能濃度を用いて放射性核種の摂取量を推定するためには、標準食が日常食の60%を集めて分析対象としていることに対する補正が必要である。この補正を行うと1985年の摂取量は過大評価となる。一方チェルノブイリ事故後2年間の¹³⁷Csはこの摂取率補正後もなお過小評価である。対象食品の放射能濃度の情報が欠如しているために、栽培状態が必ずしも類似しないものの放射能濃度の情報が得られている対象食品を用いて濃度を推定したこと、対象食品が購入され、摂取されるまでの過

程で生じる廃棄部分に含まれる放射能や調理による放射能の損失の評価及び市場において同種の輸入食料による放射性核種摂取量への寄与が評価されていないことが、この不整合の原因として推定される。

チェルノブイリ事故が発生した1986年は標準食を介しての放射性核種の1日摂取量は日常食相対値として⁹⁰Srで108%、¹³⁷Csで136%であった。摂取重量の不足を補正すると⁹⁰Srについては200%、¹³⁷Csについては300%の放射能摂取量となり、標準食からの放射能推定値が著しい過大評価となっている。チェルノブイリ事故によるフォールアウト中の¹³⁷Csは⁹⁰Srより圧倒的に多く、この相違が¹³⁷Cs摂取量をより大きく過大評価させたと考えられる。この過大評価は事故後早期におけるフォールアウトの沈着による食用作物の表面汚染を評価できずに摂取量に含める標準食法の特徴であろう。本研究ではこれらの標準食法による摂取量推定に関わる修飾要素を一括してパラメータαと仮称する。このパラメータαについては過去の核兵器実験フォールアウトデータやチェルノブイリ事故フォールアウトデータならびに輸入食品の摂取量に占める割合⁴⁾を詳細に解析して結論を出すことが必要である。暫定的に表9の数値をパラメータαとして摂取量推定に適用する。

表9 標準食手法による放射性核種1日摂取量とその日常食相対評価値

比較時期	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
	全摂取量 mBq/day	標準食*1 %	全摂取量 mBq/day	標準食*1 %
1985年	99.8	78.8	68.3	70.4
1986年	122	108	328	136
1987年	83.6	58.5	105	40.7
1882年	54.0	62.6	42.1	54.7

* 1: 日常食で規格化した相対値

1992年には小児と乳児についても標準食から⁹⁰Srと¹³⁷Csとについて1日摂取量を推定した。摂取重量について日常食の約40%の1日摂取量であり、不整合の程度は成人より大きく、この為⁹⁰Srと¹³⁷Csとの放射能摂取量推定値も日常食からの摂取量と比べて非常に少なく幼児で17%と13%、乳児では8%と10%であった(表10)。

表10 年齢層別の標準食手法による放射性核種一日摂取量とその日常食相対評価値

比較時期	⁹⁰ Sr		¹³⁷ Cs	
	全摂取量 mBq/day	標準食*1 %	全摂取量 mBq/day	標準食*1 %
乳児	7.6	18.8	9.9	26.5
幼児	16.6	27.9	12.7	23.2
成人女子	50.4	67.6	39.0	56.8
成人男子	53.3	62.6	42.9	54.7

* 1: 日常食で規格化した相対値

本研究では乳児、幼児の年齢の層別および摂取量の基盤を青森県に置いたが、食品摂取に地域的特性があることを考慮すると、基盤としたデータの普遍性について再評価を必要とする。また食品群が成人の食習慣に準じて設定されているため、乳幼児の場合に離乳食や果汁および間食を相対的に多量に摂取することに配慮した食品群の設定が必要である。

京都大学他の陰膳方式で採取された日常食中の関連元素濃度から比放射能を用いて推測した⁹⁰Sr、¹³⁷Csおよびヨウ素の1日摂取推定量を青森、秋田、新潟、鹿児島(1991年)の順に表11~14に、青森、鹿児島、沖縄、福岡(1992年)の順に表15~18に示した。

表11 日常食を介する⁹⁰Sr、¹³⁷Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの1日摂取量 (1991年 青森県)

	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	16,000	18,400	69.5			153
最小値 (ppm)	0	0	0			0
メディアン (ppm)	6,190	1,110	0			1.01
平均値 (ppm)	6,082	1,463	4.63			6.46
試料数	364	414	263			174
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,462.3	1,462.3	1,462.3			1,462.3
元素の1日摂取量 (mg)	2,227	399	1.67			2.32
比放射能				0.0295	0.1400	
放射性核種1日摂取量 (Bq)				0.0657	0.0559	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.0961	0.0817	

- *1: 陰膳法により大妻女子大学が収集した15試料の平均値
- *2: 東北6県の平均値
- *3: 平均値から推定
- *4: ⁹⁰SrのCaに対する比放射能(Bq/gCa)あるいは¹³⁷CsのKに対する比放射能(Bq/gK)で「サーベイデータ」に記載された2地点の平均値が用いられた。

以下、表18までこれらの注記が用いられている。

表12 日常食を介する⁹⁰Sr、¹³⁷Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの1日摂取量 (1991年 秋田県)

	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	14,000	4,420	21.6			65.3
最小値 (ppm)	0	0	0			0
メディアン (ppm)	6,450	1,060	5.19			1.71
平均値 (ppm)	14,563	1,161	5.88			5.71
試料数	193	193	19			65
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			0.246
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,462.3	1,462.3	1,462.3			1,462.3
元素の1日摂取量 (mg)	2,320	381	2.11			2.05
比放射能				0.0765	0.1250	
放射性核種1日摂取量 (Bq)				0.177	0.0477	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.260	0.0697	

表13 日常食を介する⁹⁰Sr、¹³⁷Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの1日摂取量 (1991年 新潟県)

	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	10,770	4,250	9.27			23.6
最小値 (ppm)	4,320	517	0			0
メディアン (ppm)	6,630	1,200	0			1.56
平均値 (ppm)	6,773	1,503	2.34			3.64
試料数	24	33	20			21
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			0.246
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,462.3	1,462.3	1,462.3			1,462.3
元素の1日摂取量 (mg)	2,385	432	0.843			1.31
比放射能				0.0190	0.200	
放射性核種1日摂取量 (Bq)				0.0453	0.0863	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.0663	0.126	

表14 日常食を介する⁹⁰Sr、¹³⁷Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの1日摂取量 (1991年 鹿児島県)

	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	7,280	6,750	141			52.4
最小値 (ppm)	0	146	0			0
メディアン (ppm)	3,780	1,635	0			2.06
平均値 (ppm)	3,244	1,925	5.71			6.10
試料数	45	60	30			30
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			0.246
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,335.8	1,335.8	1,335.8			1,335.8
元素の1日摂取量 (mg)	1,242	537	1.88			2.00
比放射能				0.0427	0.160	
放射性核種1日摂取量 (Bq)				0.0300	0.0860	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.0401	0.115	

表15 日常食を介する⁹⁰Sr、¹³⁷Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの1日摂取量 (1992年 青森県)

	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	25,000	2,640	14.1			
最小値 (ppm)	3,200	0				
メディアン (ppm)	7,900	1,070				
平均値 (ppm)	10,314	1,194				
試料数	23	23				
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			0.246
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,462.3	1,462.3	1,462.3			1,462.3
元素の1日摂取量 (mg)	2,842	385	0.0			0.00
比放射能				0.0295	0.140	
放射性核種1日摂取量 (Bq)				0.0838	0.0539	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.123	0.0788	

表 16 日常食を介する ^{90}Sr 、 ^{137}Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの 1 日摂取量 (1992 年 鹿児島県)

	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	26,400	7,580	15.1			12.7
最小値 (ppm)	0	0	0			0
メディアン (ppm)	5,960	1,725	0			1.05
平均値 (ppm)	6,669	2,346	2.19			2.80
試料数	37	46	23			23
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			0.246
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,335.8	1,335.8	1,335.8			1,335.8
元素の 1 日摂取量 (mg)	1,958	567	0.719			0.92
比放射能				0.0300	0.160	
放射性核種 1 日摂取量 (Bq)				0.0588	0.0907	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.0785	0.121	

表 17 日常食を介する ^{90}Sr 、 ^{137}Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの 1 日摂取量 (1992 年 沖縄県)

	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	18,700	3,180	6.37			41
最小値 (ppm)	0	0	0			0
メディアン (ppm)	6,010	1,495	0			5.2
平均値 (ppm)	6,861	1,598	0.460			6.37
試料数	41	21	21			
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			0.246
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,335.8	1,335.8	1,335.8			1,335.8
元素の 1 日摂取量 (mg)	1,975	491	0.151			2.09
比放射能				0.0600	0.150	
放射性核種 1 日摂取量 (Bq)				0.0295	0.0296	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.0394	0.0396	

表 18 日常食を介する ^{90}Sr 、 ^{137}Cs およびヨウ素、カリウム、カルシウムの 1 日摂取量 (1992 年 福岡県)

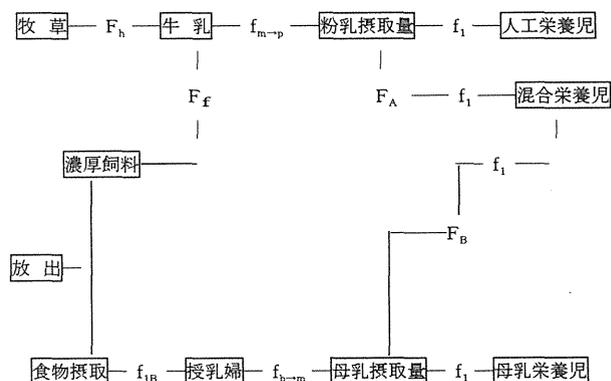
	K	Ca	Sr ³	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I
最大値 (ppm)	14,000	3,360	40.4			101
最小値 (ppm)	0	0	0			0
メディアン (ppm)	4,070	838.5	0			36.4
平均値 (ppm)	4,193	1,009	2.73			35.2
試料数	69	78	35			34
水分 (%) *1	75.4	75.4	75.4			75.4
乾物 (%)	0.246	0.246	0.246			0.246
日常食摂取量 (g/人/日) *2	1,335.7	1,335.7	1,335.7			1,335.7
元素の 1 日摂取量 (mg)	1,337	276	0.896			11.6
比放射能				0.0242	0.120	
放射性核種 1 日摂取量 (Bq)				0.0324	0.0331	
日常食の放射性核種濃度 (Bq/kg)				0.0432	0.0442	

この陰膳方式すなわち日常食について、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の 1 日摂取量推定値は、全国平均値でそれぞれ 52mBq/日と 51mBq/人であり、表 4 数値 (^{90}Sr 、 ^{137}Cs それぞれ 81mBq/日/人と 75mBq/日/人) よりも両核種ともに若干低い。地方による差異は明確ではないが南で摂取量の低い傾向がある。いずれも食品群の摂取量の地域差と関連づけて、原因を解明する必要がある。

3-2. 乳児期の 1 日摂取量モデル

3-2-1 乳児の放射能摂取推定モデル

乳児の放射能摂取推定モデルを図 1 に示した。このモデルはミルクが主食である乳児期にのみ適用できる。離乳の時期には個人差がある。また時代や地域などの社会的特性によって離乳の時期が影響されることに配慮しなければならない⁴⁾。本研究では生後 6 か月間を乳児期と定義した。離乳準備として開始される離乳食は成人の摂取する食品とは質的にかなり異なり、被ばく線量推定には配慮が必要であるが本研究では具体的にモデルを設定することはできなかった。したがって離乳確立後の幼弱期には、ミルクの摂取比率が成長過程で異なることに配慮しつつ、成人と同じ食品摂取経路で被ばくするモデルを適用する。



- F_h : 牧草から牛乳 (生乳) への放射性核種の移行速度係数
- f_{m-p} : 牛乳 (生乳) から育児用調製粉乳への放射性核種の移行速度係数
- f_1 : 乳児胃腸管における放射性核種の吸収率
- F_f : 濃厚飼料から牛乳 (生乳) への放射性核種の移行速度係数
- F_A : 全摂取量中に人工栄養よりの摂取量が占める割合
- F_B : 全摂取量中に母乳よりの摂取量が占める割合
- F_{1-B} : 摂取食品から授乳婦体内への放射性核種の移行速度係数
- F_{b-m} : 授乳婦体内から母乳へ 1 日に分泌される放射性核種の比率

図 1 乳児の放射能摂取推定モデル

図 1 から自明であるが、乳児の摂取食品数は少ないので、放射能汚染乳製品の摂取制限ならびに汚染が生じる以前の製品や汚染を免れた国からの輸入品の積極的な流通などの介入措置や行政指導により、環境の汚染の進行にもかかわ

らず急速で且つ明確な被ばくの低減が期待できる。これが放射性核種による環境汚染で生じる乳児被ばく線量の特徴である。

この乳児の摂取量モデルで F_h と F_f はそれぞれ牧草及び濃厚飼料から乳牛に摂取された放射性核種が牛乳へ移行する移行係数である。 $F_{m \rightarrow p}$ は生乳から粉乳を製造する時点で移行する放射性核種の比率である。 f_{1a} は授乳婦により摂取された食物中の放射性核種が授乳婦体内へ移行する比率である。 $F_{b \rightarrow m}$ は授乳婦の体内へ移行した放射性核種が1日間に母乳中に分泌される比率である。 f_1 は乳児に摂取されたミルク中の放射性核種が乳児体内へ移行する比率であり、母乳栄養児、混合栄養児、人工栄養児の間で差がないものと仮定する。これらのパラメータについては地域的特性がないものと仮定する。 F_A と F_B は乳児が摂取する母乳と粉乳(牛乳)との割合である。この割合は育児方法によって変化し、また乳児の成長段階によっても変化している。さらに乳児の生まれた時代や都市、農村の違いでも変化が生じる⁵⁾。

放射性核種は環境中を移行して陸圏、水圏の飼料生物に蓄積し、加工されて濃厚飼料に移行する。濃厚飼料に利用される飼料生物は多様であるので、このコンパートメントが加わっていることを暗黙の了解として示すために、放出と濃厚飼料コンパートメントを点線でつないで示した。また牛乳コンパートメントの前に乳牛コンパートメントが必要であるが、当研究では牛乳中への放射性核種の移行速度係数が与えられていれば十分であるために乳牛コンパートメントと牛乳コンパートメントを一つのコンパートメントにまとめて牛乳コンパートメントの名称で示してある。放射性核種の牛乳コンパートメントへの移行に牧草摂取と濃厚飼料摂取の二つの経路がある。この二つの経路の割合である F_h と F_f の相対的規模は同一地域でも季節変化があり、地域間にも大きな差異がある地域特性を持つパラメータである。このようにして生産された牛乳が育児用粉乳に加工されて乳児に消費されるまでの流通に関するモデルを粉乳生産・流通モデルとして図2に示した。

このモデルは粉乳の原料である生乳が集積される「生乳需要コンパートメント」、集積された生乳から乳児に与えられる調製粉乳が生産されて貯蔵される「調製粉乳生産コンパートメント」、貯蔵された調製粉乳が市場に流通して消費される「流通消費コンパートメント」の3コンパートメントで構成される。注意すべきは生産された生乳の一部が調製粉乳生産用として移出され、多くは生乳生産地とは別の地域で調製粉乳が生産され、そこから他の地域へ移出されることである⁶⁾。

千葉県、茨城県、東京都について、生乳需要コンパートメントのサイズは、生産量がそれぞれ 328,583t、197,469t、26,765t、移出量がそれぞれ 170,191t、113,896t、586,513t*、移入量がそれぞれ 239,828t (10 都道県)、68,731t (10 都道県)、847,267t (25 道県) となっている。移入・移出量は暦年、月ごとに変化しているのが実状で、汚染発生地域と被ばく線量算定の対象とされた地域とこの需給の地域との関係の組み合わせに配慮することが被ばく線量を算定するに当たり必要である⁶⁾。生乳需要コンパートメントは地域ごとにサイズが異なるが、東京のサイズはきわめて大きい。調製粉乳について、生産量は

55,407,116kg (平成3年) である。

調製粉乳生産コンパートメントはきわめて少ない地域に限定されている。調製粉乳の生産工場は平成2年は7工場であった。

その内訳は

- 関東地方 3 群馬県、埼玉県、東京都に各1工場
- 甲信越地方 3 長野県に2工場、山梨県に1工場
- 近畿地方 1 兵庫県に1工場

このように被ばく線量推定を対象とする地域として千葉県、茨城県、東京都のそれぞれのコンパートメントについて上述のような地域的特性があり、関連する生乳生産コンパートメント、調製粉乳生産コンパートメントの数もまた異なる。 λ_{RM-MB} および λ_{MB-CC} の速度定数は各地域に固有の数値となるが、本研究ではその数値は得られていない。しかし腐敗しやすい食品であることから生産過程に長時間をかけることはないと考えられるので、 λ_{RM-MB} は $0.059 \sim 0.2d^{-1}$ 程度と推測される。 λ_{MB-CC} については保存のきく状態に製造されているので比較的小さな速度定数、例えば 0.0175 (標準偏差 0.0270) が千葉市では観察された。市場で購入して生産時期と比較する調査研究がさらに必要である。

3-2-2 完全人工栄養児の調製粉乳摂取モデル

人工栄養児に対する調乳は製品に記載される月齢別粉乳重量に準拠して行われるのが実状である。すなわち同一月齢内では同一重量の粉乳を調整して与え、次の月齢に入ると調乳される粉乳の重量は不連続的に増加する。このモデルでは乳児が与えられたミルクを残すことなく摂取することを仮定する。したがって粉乳日摂取量を月齢毎に不連続点を持つが同じ月齢の中では同一水準を維持する階段状モデルで近似する。

3-2-3 完全母乳人工栄養児の母乳摂取モデル

日本人について母乳の1日分泌量及び乳児による1日摂取量の観察例をデータベースに示した^{7,8,9)}。1986年の東京愛育病院で行われた出産後14日間の調査研究(1)⁷⁾と東郷正美教授を中心に国立病院で実施された調査(2)^{8,9)}からモデルを設定した。この栄養法の特徴として母乳の分泌量が不足する場合は人工栄養による補充が必要に応じて行われる。母乳と補充される人工乳の量がそれぞれ把握されていないと、放射能による汚染の状況が異なるこの2つの経路で運ばれて乳児体内に侵入した放射性核種からの被ばく線量を正確に推定することはできない。

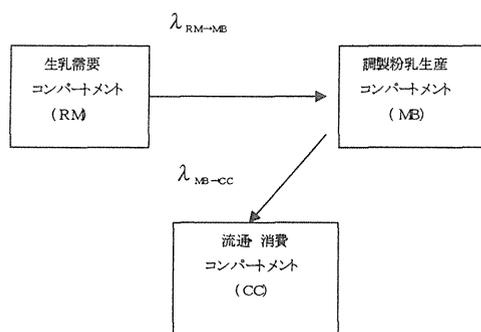


図2 育児用調整粉乳の生産流通モデル

$\lambda_{RM \rightarrow MB}$ は0.059~0.2 程度

$\lambda_{MB \rightarrow CC}$ は1998年の千葉市で行った少数調査例では、0.056~0.011d⁻¹

食品摂取経路では素材の収穫から食品として消費されるまでに多くの人為的過程を通過するため、社会科学的考察なしに的確な摂取量の推定はあり得ない。

(1)は生後14日まで日齢ごとに測定したデータであるが、母親の母乳分泌量のデータがない。また、人工栄養追加量の記載もない。愛育病院は母乳栄養確立にきわめて熱意のある施設である。よってこの施設で観察された栄養方法間の比率は母乳栄養に偏っていて(2)が母乳栄養児のミルク摂取状態の実態により近いものと推察される。

1976年データと1992年データで共通の生後5日目のミルク摂取量を比較する。1976年は母乳のみを332ml摂取、1992年は母乳186mlに加えてミルク132ml、合計318mlを摂取している。両者のミルク摂取量はほぼ同一と言える。母乳栄養児が母乳のみを摂取しているのではないことに注意を払わなければならないが、母乳児について14日齢までは(1)(表19)を、15日齢以降は(2)(表20)を1日ミルク摂取量モデルとする。外国における観察例でも分泌量は乳児の生育段階を追って増加し上に凸の形状を示す¹⁰⁾。しかしながらこの分泌量の形状と放射性核種の量との関係は明確ではない。この研究は経口摂取された¹³⁷Csが母乳へ分泌される濃度を長期間測定しているまれな例であるので、当研究ではこの結果を引用して授乳婦により1日に摂取された¹³⁷Csが摂取量の30%だけ母乳中に分泌されて、その全量を乳児が摂取する状況が生後6ヶ月終了まで全期間を通じて続いているモデルを設定した。この仮定はさらに検討する必要がある。この前提で授乳婦の核種の1日摂取量をINとすると1日に分泌される母乳に含まれ、乳児に摂取される核種の量MIは0.3*IN(¹³⁷Cs母乳中への分泌量モデル1)として推定される。授乳婦による放射性核種の1日摂取量データが得られていない場合、成人男子の摂取量データIMおよび成人男子との所要エネルギー比、RN/M(成人男子の11%増)²⁾から授乳婦による放射性核種の1日摂取量を推定する(IN=RN/M*IM)。よってこの場合は乳児に摂取される核種の量MIは、MI=0.3*RN/M*IM(¹³⁷Cs母乳中への分泌量モデル2)を用いて推定する。

なお、⁹⁰Sr、¹³¹Iに関しては授乳婦の核種の1日摂取量と1日に母乳に分泌される量との比が¹³⁷Csとは異なるが、本研究では得られていない。

表19 母乳摂取(生後0~14日)⁷⁾…母乳摂取量モデル1

生後日数 日	母乳 分泌量 ml/day	母乳 摂取量 ml/day	母乳 摂取率 %	摂取回数 回	粉乳母乳 追加量 ml	母乳 寄与率 %	乳児数 人
0	データなし	0	データなし	0	データなし	データなし	300
1	データなし	8	データなし	2.9	データなし	データなし	300
2	データなし	52	データなし	5.9	データなし	データなし	298
3	データなし	150	データなし	6.7	データなし	データなし	297
4	データなし	251	データなし	6.9	データなし	データなし	297
5	データなし	332	データなし	7	データなし	データなし	283
6	データなし	379	データなし	7	データなし	データなし	246
7	データなし	478	データなし	7	データなし	データなし	172
8	データなし	483	データなし	7	データなし	データなし	122
9	データなし	499	データなし	7	データなし	データなし	73
10	データなし	482	データなし	7	データなし	データなし	48
11	データなし	518	データなし	7	データなし	データなし	31
12	データなし	515	データなし	7	データなし	データなし	21
13	データなし	524	データなし	7	データなし	データなし	14
14	データなし	540	データなし	7	データなし	データなし	8

表20 母乳摂取(生後5~181日)^{8,9)}…母乳摂取量モデル2

生後日数 日	母乳分泌量 ml/day	母乳摂取量 ml/day	母乳摂取率 %	摂取回数 回	粉乳追加量 ml	母乳寄与率 %	乳児数 人
5	186±78	186±78	100	7.0±1.0	132±57	58.4±7.1	3
15	480	480	100	8.0	0	100	1
30	554±113	554±113	100	9.7±2.3	140±242	84.3±24.2	3
47	818±469	657±194	88±17	7.4±1.4	80±130	93.8±11.8	7
60	817±180	817±180	100	8.0±2.0	20±35	97.1±4.9	3
91	725±94	725±94	100	8.0±2.6	0	100	3
120	818±228	818±228	100	7.3±2.3	0	100	3
153	773±122	773±122	100	6.7±0.6	0	100	3
181	600±5	600±5	100	5.0	0	100	2

4. 結論

乳児以外の年齢層に対する放射性核種摂取量モデルを設定した。比較した放射性核種濃度1日摂取量データが異なる目的で実施されたプロジェクトの成果であり、当研究への適用には質的に十分ではなくモデルの妥当性について結論は出ていない。測定精度に確信の持てる試料の入手が期待できる地域を対象に的確に設計された計画に従って検証実験を実施することが必要である。

乳児の放射性核種摂取量モデルを設定した。現段階では全体コードへの組み込みは未着手である。牛乳、母乳から出発した摂取量に基づく線量計算ルーチンについては別途モデルで検証を終え結果を発表した^{11,12)}。全体コードへの組み込みの実行および関連パラメータである母乳分泌量とその日変化、乳児の母乳摂取量と日変化、母乳分泌量不足の場合に補充する粉乳摂取量と日変化、母乳中の放射能濃度とその日変化、さらにはこれらの量の地域や年代による変化などについて統計的解析に十分な量の知見を収集することが今後の課題として残されている。

[参考文献]

- 1) 国民栄養の現状
- 2) Radioactivity Survey Data in Japan
- 3) 平成7年度版再処理施設環境放射能総合調査報告書
- 4) 農林水産物の防疫 主要100品目の国内・海外事情
JETRO 日本貿易振興会
- 5) 母乳哺育 メディサイエンス社 (1983)
- 6) 平成3年 牛乳 乳製品統計 平成4年8月 農林水産省統計情報部
- 7) 松島富之助 新生児栄養法の選び方 周産期医学 6 581-589 昭和51年6月(愛育病院データ)
- 8) 米山京子 母乳栄養児の発育と母乳からの栄養素摂取量 平成9年3月 発育の時系列解析で得られる健康情報とその伝達及び活用 平成6年度~平成8年度科学研究費補助金(基盤研究(A)(1)) 研究成果報告書 研究代表者 神戸大学発達科学部教授 東郷正美 66-75.
- 9) 東郷正美 私信
- 10) AARKROG, A. (1963) Caesium-137 from Fallout in Human Milk: Nature 197 667-668.
- 11) 米原英典、三橋俊彦、内山正史 チェルノブイリ事故による日本人乳児の¹³⁷Cs内部被ばく線量評価(1) 日本放射線影響学会第39回大会講演要旨集 286 大阪 1996.
- 12) 米原英典、三橋俊彦、内山正史 日本人乳児における¹³⁷Cs内部被ばく線量評価日本保健物理学会 第32回研究発表会 要旨集 78 1997.

論文発表

1. Yukawa, M., Kimura, A., Watanabe, Y. and Sakurai, S.: Distribution of elements in bean sprout determined by PIXE analysis. Int.J.PIXE, 5, 69-77, 1995.
2. Masae Yukawa, Yoshito Watanabe and Yoshikazu Nishimura: Application of PIXE Technique to Determination of Trace Elements in Diet and Comparison with NAA and ICP-AES, International Journal of PIXE, Vol.6, Nos. 1& 2 (1996) 395-403.
3. Masae Yukawa, Yoshito Watanabe, Yoshikazu Nishimura, Kunio Shiraishi, Hisao Kawamura and Shiro Sakurai: Application of PIXE, NAA and ICP Techniques to the Determination of Trace Elements in Food and Diet Samples, Proceedings of an International Symposium on Harmonization of Health Related Environmental Measurements Using Nuclear and Isotopic Techniques. (IAEA-SM-344/12,1997) Yukawa, M., Watanabe, Y. and Nishimura, Y.: Application of PIXE technique to determination of trace elements in diet and comparison with NAA and ICP-AES. Int.J.PIXE,6, 395-403, 1996.
4. Yukawa, M., Watanabe, Y. and Nishimura, Y.: Determination of trace elements in mate using PIXE analysis. Int.J.PIXE, 6, 505-509, 1996

[口頭発表]

1. 米原英典、三橋俊彦、内山正史 チェルノブイリ事故による日本人乳児の¹³⁷Cs内部被ばく線量評価(1) 日本放射線影響学会 第39回大会 講演要旨集 286 大阪 1996.
2. 米原英典、三橋俊彦、内山正史 日本人乳児における¹³⁷Cs内部被ばく線量評価 日本保健物理学会 第32回研究発表会 要旨集 78 1997.

[データベース]

1. 緒言

環境から農林水産物を経口摂取して人体内に移行した放射性核種の蓄積によって受ける線量を評価する計算コードを開発することが本特別研究の目的の一つである。このためI-5-2-1で年齢層、性別に平均的日本人について農林水産物中の放射性核種濃度から、放射性核種の一日程口摂取量推定するモデルを設定した。用いられているパラメータや関連するパラメータにつき下記のデータベースを作成した¹⁾。食品群中の⁹⁰Srと¹³⁷Csの濃度、トリチウムの食品中濃度、2)食品群中の安定元素濃度、とくにヨウ素濃度、3)乳児の一日摂取量および集団線量を算定する見地から、濃度に関連する事項に分けてデータベースを作成した。紙幅が限定されるのでその概要のみを記載する。記載できなかったデータの詳細は放射線医学総合研究所ネットワークでアクセスできる型式にして保存する予定である。

2. データベース作成方法

2-1. 食品群中の⁹⁰Srと¹³⁷Csの濃度および関連事項

以下のデータはDOS (Windows95) およびのマッキントッシュの2方法で、それぞれExcelでフロッピーディスクに入力されている。

環境物質の放射性核種濃度に関する我が国の組織的な放射能調査研究の成果を公表してきた「Radioactivity Survey Data in Japan」(放射線医学総合研究所監修 科学技術庁)¹⁾のうち、1963年から1992年のデータVol.3~Vol.103の中で陰膳方式で収集した試料(日常食)を分析した1日全摂取量および食品について⁹⁰Sr、Ca、¹³⁷Cs、Kの濃度データを抽出してデータベースを作成した。なお、Vols. 41, 43, 46, 47, 48, 49のデータは数値の信頼性に疑問のあることが明らかにされているため、このデータベースには含めていない。食品の放射性核種濃度を基盤に検証可能な推定された成人の1日放射性核種摂取量を検証可能にするために、摂取する食品を穀類、緑黄野菜、乳類、大根、キャベツ、白菜、海産魚A、海産魚B、海産魚C、いか、たこを含む軟体類の代表としての貝類(甲殻類もここに含める)、淡水魚、日本茶、海藻の13カテゴリに再分類してそれぞれの1日摂取量と放射性核種濃度についてデータベースを作成した。これらのデータベースは、(1)オリジナルデータファイル(SURVEY DATA式)、およびデータ関連事項ファイル(2)年間平均値とその標準偏差データファイル(SURVEY統計)および関連事項ファイルに大別されている。データベースの構成を図1に示した。

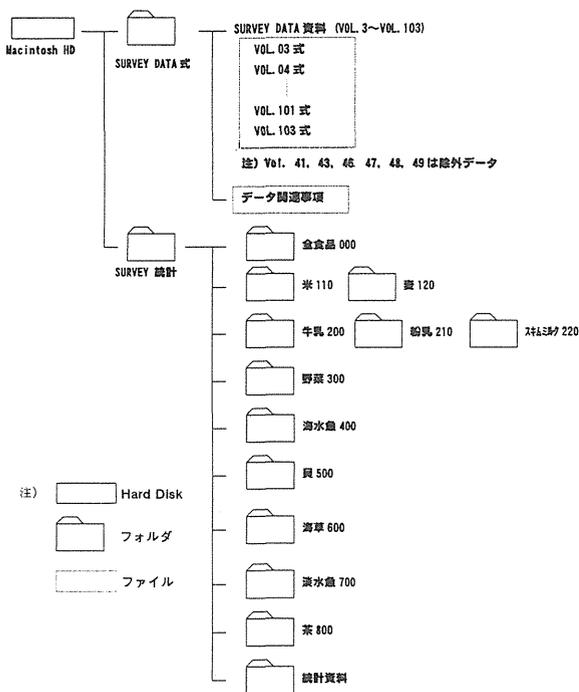
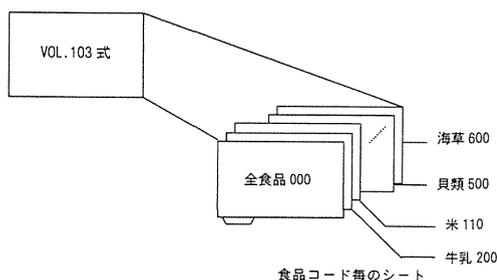


図1 データベースの構成

2-1-1. SURVEY DATA 式

Radioactivity Survey Data in Japan (以下サーベイデータと略称)のオリジナル資料を巻ごとに一つのファイルにまとめた。後述する食品コードごとに一枚のシートを作成し、その集合として一つのファイルが構成されている(図2)。



SURVEY DATA 資料を上記のように VOL 毎のフォルダーにまとめてある。各 VOL フォルダーは、食品コード毎のファイルのシートによって構成されている。

図2 SURVEY DATA 式 フォルダの一例 (VOL. 103式フォルダー)

関連する事項についてもファイルを作成した。内容は1) データフォーマットと使用している単位(表1)、2) 県コード(表2)、3) 食品コード(表3)、に分類されている。

表1 データフォーマットと単位

西暦	月	生産地/消費食品コード	県コード	灰分	Ca	K	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs
				g	mg	mg	pC	Bq
y	mm	000(日常食)	A	A	A	A	A	A
y	mm	100(穀類)	B	B	B	B	B	B
y	mm	200(牛乳)	B	B	B	B	B	B

1: 生産地 1~47 A-日摂取量
2: 消費地 B 試料1kgまたは1リットル当たり

表2 県コード

道	県	県コード	都	府	県	県	県	県	県
北海道	1	埼玉県	11	岐阜県	21	鳥取県	31	佐賀県	41
青森県	2	千葉県	12	静岡県	22	島根県	32	長崎県	42
岩手県	3	東京都	13	愛知県	23	岡山県	33	熊本県	43
宮城県	4	神奈川県	14	三重県	24	広島県	34	大分県	44
秋田県	5	新潟県	15	滋賀県	25	山口県	35	宮崎県	45
山形県	6	富山県	16	京都府	26	徳島県	36	鹿児島県	46
福島県	7	石川県	17	大阪府	27	香川県	37	沖縄県	47
茨城県	8	福井県	18	兵庫県	28	愛媛県	38		
栃木県	9	山梨県	19	奈良県	29	高知県	39		
群馬県	10	長野県	20	和歌山県	30	福岡県	40		

表3 食品コード

日常食	0	海水魚	400	A	420	マコガレイ	
穀類	100			A	421	メバル	
米	110			B	430	アジ	
麦	120	111	玄米	B	431	サケ	
牛乳	200			B	432	ブリ	
粉乳	210			B	433	ムロアジ	
スギムミルク	220			C	440	サバ	
野菜	300			C	441	イワシ	
根菜	310	310	大根	C	442	ボラ	
		315	たまねぎ	C	443	イカナゴ	
		319	他の根菜	C	444	カツオ	
葉菜	320			C	445	キビナゴ	
		321	漬け菜	C	446	コシロ	
		322	辛し菜	C	447	カタクテイワシ	
		323	大根葉				
		325	ほうれん草	貝類	500		
葉菜	330			二枚貝	510	511	アサリ
		330	白菜		510	512	ウチムラサキ
		332	キャベツ		510	513	オオアサリ
海水魚	400	A	410	カレイ	510	514	コダマガイ
		A	411	アイナメ	510	515	ハマグリ
		A	412	アマダイ	520	520	カキ
		A	413	イシモチ(グチ)	530	530	ササエ
		A	414	カサゴ	540	540	ホタテガイ
		A	415	キス	550	550	ムラサキイガイ
		A	416	キントキダイ	560	560	シヤコガイ
		A	417	クロダイ			
		A	418	マダイ	610	610	ホンダワラ
		A	419	ハタハタ	620	620	ワカメ
				海草	600		
				巻き貝	700		
				淡水魚	700		
				茶	800		

2-1-2. SURVEY 統計

Radioactivity Survey Data in Japan (サーベイデータ)のオリジナル資料をもとに食品コード別に作成された、年ごとの⁹⁰Srおよび¹³⁷Csの平均値と標準偏差からなるファイルとそのグラフにより構成される。

関連事項ファイルは1) 摂取量ファイル(国民栄養の現状²⁾)、2) 食品の国内生産高および輸入量ファイル(農林水産物の貿易³⁾)、3) 穀類ファイルで構成されている。

2-1-2-1 摂取量ファイル

1日に摂取する放射性核種の量を推定するためには食品毎に放射性核種濃度と摂取する重量との情報が必要である。しかし「サーベイデータ」に放射性核種濃度が記載されていない多数の食品がある。これらの放射性核種濃度を代替するために、表3を修正して放射性核種濃度の報告値のある食品を基に国民栄養の現状²⁾の分類を再編成した食品群を設定した。表4は新たに設定した食品群とそれらに含まれる国民栄養の現状²⁾に記載されている食品との関係を示している。

表4 放射能摂取量推定のための食品群分類

SURVEY DATA 食品群 国民栄養の現状による食品 ²⁾		
食品群	コード番	
日常食	(000)	総量
米	(110)	穀類
ほうれんそう	(325)	緑黄色野菜、きゅうり
乳製品	(200)	乳類
大根	(310)	大根、タマネギ、タマネギその他つけもの
キャベツ	(332)	キャベツ、その他野菜
白菜	(330)	白菜、葉類つけもの
海水魚A	(410, 420)	タイ、カツ、魚介練製品、魚肉ハム、ソーゼージ
海水魚B	(430)	
海水魚C	(440)	マグロ
貝類	(500)	軟体動物(貝類、いか、たこ)、甲殻類(かに)
ワカメ	(620)	海藻類
淡水魚	(700)	その他生魚
日本茶	(800)	日本茶

手法の妥当性を検討するために、1985年の国民栄養の現状²⁾に記載された人口15万以上の都市における1人1日当たりの食品摂取量を表4に従って食品群毎に再計算して、各分類中の食品の放射性核種濃度が、放射能濃度が記載されている食品の放射性核種濃度と等価であると仮定して、1985、86、87年について食品摂取量から⁹⁰Sr、¹³⁷Csの1日摂取量を推定し日常食からの放射性核種摂取量と比較した。食品群別にも⁹⁰Sr、¹³⁷Cs1日摂取量を算出し、1日総摂取量に対する食品群別摂取量の比率を求めた。

2-1-2-2 食品の国内生産高および輸入量

摂取量へ輸入品が占める寄与は年々増加している。この割合についても食品群ごとにデータベースを作成した³⁾。食品の国内生産高と輸入量について、1989年を例に表5に示した。米などごく少数以外は食品の輸入率は年々増加の傾向にある。

表5 食品の国内生産量及び輸入量(1989年)³⁾

	国内生産量 (kt)	輸入量 (kt)	合計 (kt)	国内産比率 (%)	輸入品比率 (%)
穀類	11,731	27,662	39,393	29.8	70.2
米	10,347	50	10,397	99.5	0.5
小麦	985	5,182	6,167	16.0	84.0
大麦	371	2,087	2,458	15.1	84.9
いも類	7,566	530	8,096	93.5	6.5
豆類	455	4,682	5,137	8.9	91.1
野菜	16,146	1,527	17,673	91.4	8.6
緑黄色野菜	1,725	82	1,807	95.5	4.5
その他野菜	14,421	1,445	15,866	90.9	9.1
果実類	5,210	2,641	7,851	66.4	33.6
肉類	3,559	1,514	5,073	70.2	29.8
卵類	2,423	45	2,468	98.2	1.8
乳製品	8,134	2,175	10,309	78.9	21.1
魚介類	11,120	3,310	14,430	77.1	22.9
生鮮・冷凍	1,813	1,870	3,683	49.2	50.8
塩干・薫製	4,623	601	5,224	88.5	11.5
かんずめ	525	23	548	95.8	4.2
海藻類	159	68	227	70.0	30.0
砂糖類	3,089	2,250	5,339	57.9	42.1
油脂類	2,364	506	2,870	82.4	17.6
きのご類	329	37	366	89.9	10.1

2-1-2-3 穀類ファイル

1960年から5年おきに1985年まで、その後は毎年1990年まで日本で消費される主な穀類(米、小麦、大麦、トウモロコシ)について生産、輸入、食糧供給率、自給率等の

統計が時系列として、変化のグラフとともに入力されている。図3にその推移を示した。

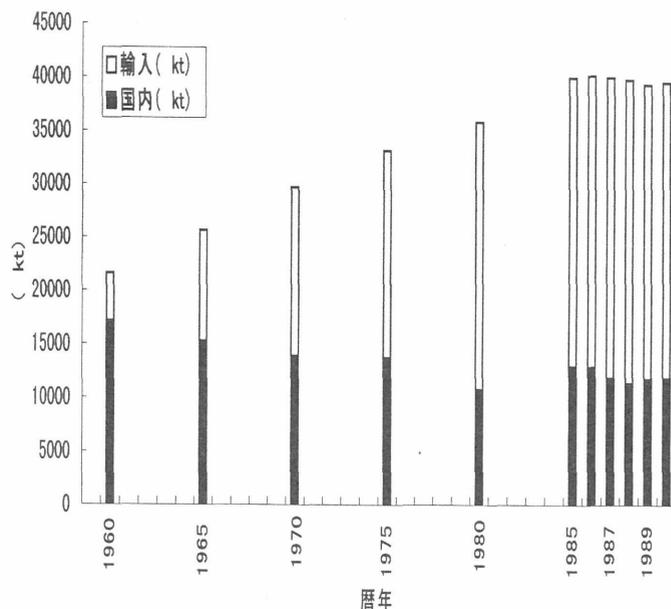


図3 穀類消費量の推移

2-2. 食品群中の元素濃度のデータベース

人体内での代謝に関わる問題として主要な食品群別の食品摂取量と元素の摂取量データベースを「国民栄養の現状」²⁾に基づき作成した。また実験的に京都大学他の陰膳方式で採取された日常食中の放射性核種関連元素、特に¹³¹Iの摂取に関連してヨウ素を、放射化学分析、PIXE分析、その他の分析法で定量してそれぞれの元素の1日摂取量につきデータベースを作成した。

2-3. 乳児の一日摂取量データベース

乳児の成長は極めて急速であり事故時にその放射性核種による被ばく線量を推定するためには放射性核種1日摂取量の日変化が必須である。このため乳児の成長とミルクの1日摂取量、集団被ばく線量推定に資するため育児用調製粉乳の生産や流通に関連するパラメータ、育児用調製粉乳の生産と消費について、文献学的に、一部は実地調査によってデータベースを作成した。

3. 結果と考察

データはフロッピーディスク上にマッキントッシュ、あるいはDOS(ウィンドウズ95)によりExcelで記録されているのが現状である。将来的には各端末からネットワークを介してアクセスできる状態に変換していくことが望まれる。

3-1. 幼児期以降の年齢層における1日摂取量データベース

表6は「サーベイデータ」¹⁾のうち、日常食の⁹⁰Srと¹³⁷Cs濃度その他の情報を巻毎に収録したオリジナルデー

タの例である。ソフトウェア Excel で作成されているので、必要に応じて各種の計算を容易に行える。表 6 から日常食を介して 1 日に摂取する ^{90}Sr と ^{137}Cs の暦年の全国平均値と標準偏差を計算して表 7 に示した。事故あるいは核実験直後のフォールアウトの激しい時期における放射性核種の経口摂取量に少なからぬ寄与がある葉菜の放射性核種汚染の状況を表 8、図 4 に、主食である米については表 9 に示した。

表 8 葉菜中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg) の推移

暦年	^{90}Sr 平均	^{90}Sr 標準偏差	^{137}Cs 平均	^{137}Cs 標準偏差
1963	5.858	6.234	4.138	2.370
1964	4.820	4.492	2.791	2.289
1965	3.602	3.797	1.729	1.325
1966	2.641	1.694	0.943	0.828
1967	1.324	1.063	0.421	0.359
1968	3.312	2.698	0.841	0.770

表 6 日常食中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 摂取量 (「サーベイデータ」1) オリジナルデータ)

yy	mm	生/消	食品	Ash(g)	Ca(mg)	K(mg)	^{90}Sr (pCi)	^{90}Sr (Ba)	^{137}Cs (pCi)	^{137}Cs (Ba)	備考
63	7	000	2	13.9	392	1008	13.8	0.511	37.9	1.402 P12	全食品UAD
63	7	000	4	18.5	443	1461	10.8	0.400	70.2	2.597 P12	全食品UAD
63	6	000	5	21.0	534	1455	42.6	1.576	97.9	3.622 P12	全食品UAD
63	6	000	8	20.2	323	1339	7.4	0.274	70.1	2.594 P12	全食品UAD
63	7	000	11	25.0	295	1434	6.9	0.255	114.2	4.225 P12	全食品UAD
63	6	000	14	22.4	327	1900	10.9	0.403	86.0	3.182 P12	全食品UAD
63	7	000	17	13.8	572	1258	6.3	0.233	42.5	1.573 P12	全食品UAD
63	7	000	18	15.7	390	1297	6.3	0.233	48.5	1.785 P12	全食品UAD
63	8	000	22	12.8	258	1231	6.7	0.322	61.4	2.272 P12	全食品UAD
63	7	000	23	13.9	386	1129	9.8	0.363	34.9	1.291 P12	全食品UAD
63	7	000	26	21.0	441	1719	19.8	0.733	92.4	3.419 P12	全食品UAD
63	8	000	28	14.7	168	1241	6.8	0.252	39.5	1.462 P12	全食品UAD
63	7	000	30	10.1	343	880	4.4	0.163	34.0	1.258 P12	全食品UAD*1
63	6	000	31	17.6	548	1506	23.1	0.855	94.8	3.508 P12	全食品UAD
63	6	000	33	18.8	520	1323	9.4	0.348	55.6	2.057 P12	全食品UAD
63	6	000	34	12.8	389	1361	12.3	0.455	82.1	3.038 P12	全食品UAD*1
63	6	000	39	14.8	368	1272	14.5	0.537	73.2	2.708 P12	全食品UAD
63	6	000	42	14.4	537	1209	9.4	0.348	51.5	1.906 P12	全食品UAD
63	7	000	46	12.3	444	999	9.2	0.340	41.4	1.532 P12	全食品UAD
63	7	000	2	27.3	620	1829	37.0	1.369	75.9	2.808 P13	全食品RAD
63	7	000	4	20.8	366	1554	30.0	1.110	68.5	2.535 P13	全食品RAD
63	6	000	5	26.7	351	1254	41.4	1.532	50.9	1.883 P13	全食品RAD
63	6	000	8	19.4	476	1181	8.5	0.315	49.8	1.843 P13	全食品RAD
63	7	000	11	15.2	350	1464	8.0	0.296	35.8	1.325 P13	全食品RAD
63	7	000	14	17.6	347	1478	10.0	0.370	59.8	2.213 P13	全食品RAD
63	7	000	17	12.9	388	999	10.4	0.385	29.9	1.106 P13	全食品RAD
63	6	000	18	16.3	321	1560	10.8	0.400	54.1	2.002 P13	全食品RAD
63	8	000	22	15.6	240	1589	6.7	0.322	71.8	2.657 P13	全食品RAD
63	7	000	23	13.9	330	1347	6.3	0.233	43.1	1.595 P13	全食品RAD
63	6	000	26	18.4	385	1134	7.9	0.292	43.0	1.591 P13	全食品RAD
63	8	000	28	12.9	305	1146	5.4	0.200	39.5	1.462 P13	全食品RAD
63	7	000	30	12.3	291	1031	2.7	0.100	40.0	1.480 P13	全食品RAD
63	6	000	31	17.1	773	1500	26.8	0.922	59.7	2.209 P13	全食品RAD
63	6	000	33	14.6	386	1151	7.6	0.281	35.0	1.295 P13	全食品RAD
63	7	000	34	14.9	406	1397	11.9	0.440	57.0	2.109 P13	全食品RAD*2
63	6	000	39	14.8	437	1312	9.9	0.366	87.0	3.219 P13	全食品RAD
63	6	000	42	18.6	752	1453	13.4	0.496	83.0	3.071 P13	全食品RAD
63	7	000	46	13.5	356	1437	9.9	0.366	81.9	3.030 P13	全食品RAD
63	7	000	2	10.1	384	730	8.4	0.311	31.0	1.147 P13	全食品RCD
63	7	000	4	11.6	236	862	10.7	0.396	41.1	1.521 P13	全食品RCD
63	6	000	5	10.3	423	677	7.4	0.274	59.9	2.216 P13	全食品RCD
63	6	000	8	13.5	612	1118	6.4	0.237	63.1	2.335 P13	全食品RCD
63	7	000	11	6.7	184	792	3.9	0.144	22.1	0.818 P13	全食品RCD
63	7	000	14	10.6	102	1243	6.4	0.237	52.3	1.935 P13	全食品RCD
63	7	000	17	8.7	227	706	7.5	0.276	20.3	0.751 P13	全食品RCD
63	6	000	18	9.7	195	1027	9.1	0.337	34.8	1.288 P13	全食品RCD
63	8	000	22	9.6	178	1217	5.4	0.200	42.3	1.565 P13	全食品RCD
63	7	000	23	8.8	180	836	3.7	0.137	31.4	1.162 P13	全食品RCD
63	6	000	26	7.9	243	716	3.5	0.130	31.1	1.151 P13	全食品RCD
63	8	000	28	11.3	321	1217	7.8	0.289	44.5	1.647 P13	全食品RCD
63	7	000	30	7.3	224	658	3.0	0.111	31.8	1.177 P13	全食品RCD
63	6	000	31	4.5	246	462	6.4	0.237	24.5	0.907 P13	全食品RCD
63	6	000	33	7.7	337	572	6.7	0.248	56.6	2.094 P13	全食品RCD
63	7	000	34	10.6	251	1090	8.9	0.329	54.0	1.998 P13	全食品RCD*2
63	6	000	39	10.3	485	1408	9.4	0.348	49.5	1.832 P13	全食品RCD
63	6	000	42	7.4	296	671	4.4	0.163	31.4	1.162 P13	全食品RCD
63	7	000	46	7.0	226	614	5.6	0.215	27.0	0.939 P13	全食品RCD

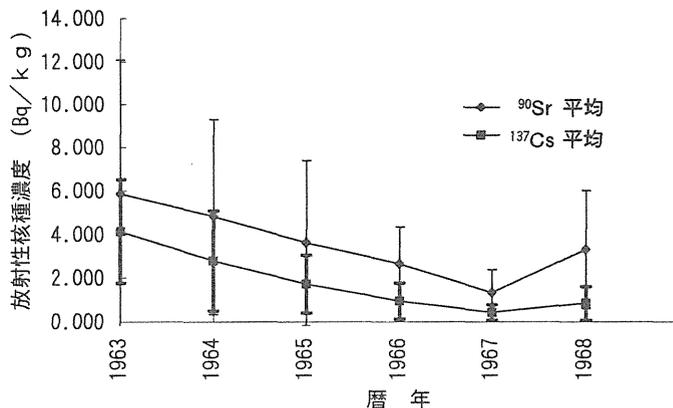


図 4 葉菜中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度の推移

表 9 粉乳中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg) の推移

暦年	^{90}Sr		^{137}Cs	
	平均(Bq/kg)	標準偏差(Bq/kg)	平均(Bq/kg)	標準偏差(Bq/kg)
1978	0.025	0.016	0.201	0.150
1979	0.026	0.014	0.139	0.117
1980	0.031	0.029	0.115	0.000

暦年	生産地			
	^{90}Sr 平均(Bq/kg)	^{90}Sr 標準偏差(Bq/kg)	^{137}Cs 平均(Bq/kg)	^{137}Cs 標準偏差(Bq/kg)
1980	0.019	0.008	0.044	0.028
1981	0.020	0.012	0.081	0.054
1982	0.007	0.005	0.077	0.105
1983	0.013	0.009	0.052	0.083
1984	0.012	0.006	0.039	0.053
1985	0.010	0.009	0.045	0.083
1986	0.006	0.005	0.057	0.091
1987	0.012	0.007	0.022	0.023
1988	0.010	0.010	0.064	0.133
1989	0.006	0.005	0.038	0.086
1990	0.009	0.006	0.031	0.081
1991	0.006	0.005	0.028	0.053

暦年	消費地			
	^{90}Sr 平均(Bq/kg)	^{90}Sr 標準偏差(Bq/kg)	^{137}Cs 平均(Bq/kg)	^{137}Cs 標準偏差(Bq/kg)
1980	0.020	0.015	0.094	0.083
1981	0.016	0.010	0.091	0.065
1982	0.013	0.008	0.096	0.084
1983	0.014	0.008	0.041	0.040
1984	0.013	0.009	0.053	0.045
1985	0.014	0.009	0.055	0.072
1986	0.010	0.015	0.064	0.073
1987	0.009	0.006	0.031	0.029
1988	0.011	0.010	0.030	0.032
1989	0.008	0.006	0.032	0.029
1990	0.008	0.006	0.026	0.025
1991	0.008	0.006	0.022	0.020

表 7 日常食を介する ^{90}Sr と ^{137}Cs の 1 日摂取量 (成人、Bq/日)

暦年	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr SD	^{137}Cs SD
1963	0.543	2.447	0.341	0.844
1964	0.652	3.929	0.224	1.154
1965	0.556	1.525	0.282	0.675
1966	0.485	0.917	0.225	0.61
1967	0.376	0.847	0.231	0.284
1968	0.370	0.504	0.173	0.189
1969	0.333	0.524	0.187	0.313
1970	0.261	0.36	0.184	0.167
1971	0.240	0.31	0.117	0.112
1972	データ不	データ不	データ不	データ不
1973	データ不	データ不	データ不	データ不
1974	データ不	データ不	データ不	データ不
1975	データ不	データ不	データ不	データ不
1976	データ不	データ不	データ不	データ不
1977	データ不	データ不	データ不	データ不
1978	0.180	0.219	0.088	0.092
1979	0.139	0.157	0.057	0.058
1980	0.350	0.115	0.048	0.059
1981	0.128	0.139	0.054	0.125
1982	0.114	0.119	0.044	0.09
1983	0.106	0.084	0.045	0.035
1984	0.099	0.089	0.037	0.089
1985	0.094	0.072	0.037	0.047
1986	0.084	0.109	0.03	0.02
1987	0.106	0.191	0.057	0.138
1988	0.077	0.084	0.028	0.045
1989	0.072	0.084	0.027	0.045
1990	0.070	0.068	0.03	0.044
1991	0.064	0.063	0.029	0.039
1992	0.060	0.056	0.026	0.044

トリチウムの食品中の濃度を、自由水中トリチウム (TFWT) と有機結晶型トリチウム (OBT) 別に表 10 に⁴⁾、表 11, 12 には精白米^{5), 6)}、表 13, 14 には未精白米中の濃度⁶⁾を示した。

表10 秋田市における1985年に集められた食物試料中のトリチウム濃度

(Hisamatsu et al. 53, 287-293, 1987)

試料	TFWT		OBT	
	Bq/L	mBq/d	Bq/L	mBq/d
精白米	3.8±0.4	86±9	2.2±0.4	230±40
糖	1.9±0.4	68±14	3.0±0.4	110±15
ポテト	1.7±0.4	81±20	1.9±0.4	17±4
砂糖	—	—	(0.4±0.4)	(2.5±2.5)
菓子類	2.0±0.4	2.9±0.6	0.91±0.37	13±5
豆類	1.8±0.4	75±17	3.5±0.4	43±5
香辛料	0.52±0.39	9.3±7	4.5±0.4	14±1
果物	1.2±0.4	160±50	1.8±0.4	27±6
緑黄色野菜	1.5±0.4	71±19	1.8±0.4	3.4±0.7
その他の野菜	0.51±0.37	93±68	2.2±0.4	19±4
海藻	—	—	0.65±0.34	1.3±0.7
魚/貝類	0.0±0.4	0±16	1.2±0.3	18±5
肉/鳥	1.9±0.4	87±18	2.2±0.5	31±7
卵	2.0±0.4	57±11	2.6±0.4	15±2
乳製品	1.9±0.4	190±40	2.0±0.6	17±5
オイル	—	—	3.0±0.3	36±4
計	1.3±0.1	980±110	2.2±0.2	600±50

()内の値は信頼限界 (p<0.05) 以下の結果を示している。

表11 1985年に日本の25県から集められた精白米中のトリチウム濃度

(Inoue, Y. and Iwakura, T. J. Radiat. Res. 31, 311-323, 1990)

サンプル番号	採取地	TFWT	OBT
		(Bq/L)±2SD	(Bq/L)±2SD
東北日本			
1	北海道	3.28±1.01	2.18±1.03
2	秋田	2.28±0.99	0.15±1.01
3	秋田	1.59±1.09	2.51±0.94
4	秋田	1.94±1.08	1.87±0.94
5	秋田	1.89±1.08	2.57±0.59
6	宮城	2.13±0.97	0.36±1.06
7	新潟	2.97±1.01	2.36±0.94
8	新潟	3.16±1.06	2.94±0.94
9	新潟	3.15±1.06	2.26±0.94
10	福島	2.74±0.99	1.36±1.07
11	茨城	3.12±1.00	2.87±1.04
12	長野	2.08±0.99	1.11±1.03
13	福井	1.59±0.98	1.93±0.94
14	福井	4.70±1.01	4.26±1.01
15	千葉	3.89±1.01	0.32±1.19
平均値		2.70±0.89	2.35±0.81
南西日本			
16	愛知	2.49±0.99	1.04±0.93
17	兵庫	2.29±0.97	2.24±1.10
18	鳥取	3.32±0.99	1.52±1.09
19	岡山	3.33±0.99	0.79±0.92
20	島根	2.60±1.00	1.83±0.94
21	島根	0.00±1.07	1.37±0.93
22	島根	1.75±0.98	1.03±0.93
23	山口	2.63±0.99	1.68±1.06
24	高知	3.16±1.00	1.87±0.88
25	福岡	2.29±1.00	0.29±0.92
26	福岡	2.94±0.99	0.53±1.05
27	福岡	3.90±1.01	2.81±1.42
平均値		2.79±0.61	1.71±0.57
全平均値		2.74±0.77	2.08±0.78

表12 1985年に日本の25県から集められた精白米中のトリチウム濃度

購入時期	含水量 %	トリチウム濃度(Bq/L)	
		TFWT	OBT
1985 5月	10.3	3.8±0.4	2.2±0.4
1986 4月	11.8	2.5±0.2	1.7±0.2
1986 11月	12.4	1.2±0.2	1.5±0.2
1987 5月	11.9	1.6±0.2	1.5±0.2
1987 8月	11.4	1.4±0.2	1.1±0.2
1987 11月	11.5	1.6±0.2	1.0±0.2
1988 2月	12.6	1.1±0.2	1.8±0.2

表13 秋田県と福岡県での未精白米中 OBT 濃度

地域	採取年	OBT(Bq/L)
秋田県	秋田市	1980 1.5±0.4
		1982 1.5±0.3
		1984 0.68±0.32
		1985 (0.14±0.29)
		1990 (0.36±0.22)
		1991 0.46±0.21
男鹿田村	1979 4.7±0.5	
	1983 1.9±0.4	
	1988 (0.41±0.25)	
	1988 0.72±0.24	
	1990 1.1±0.2	
	1991 0.44±0.21	
大曲市	1981 3.0±0.4	
	1981 3.0±0.4	
福岡県	筑後市	1980 3.1±0.4

表14 1988年に秋田市で集められた未精白米中のトリチウム濃度

サンプル番号	含水量 %	トリチウム濃度(Bq/L)	
		TFWT	OBT
AL-1	20.3	1.4±0.2	0.89±0.19
AL-2	20.1	1.3±0.2	0.85±0.19
T-1	14.4	1.9±0.2	0.71±0.20
O-1	20.5	2.0±0.2	1.3 ±0.20
O-2	18.6	2.1±0.2	0.94±0.20
O-3	19.3	2.0±0.2	1.3 ±0.2
O-4	22.9	1.9±0.2	1.1 ±0.2
平均値	19.4	1.8±0.3	1.0 ±0.2

3-2. 食品群中の安定元素濃度、とくにヨウ素濃度のデータベース

実験学的に京都大学他の陰膳方式で採取された日常食中の関連元素の1日摂取量のデータベースを作成した例はI-5-2-1の表11-18に示してある。各元素についての代表値は平均値やその変動についての検討が終了していないので設定できていない。

3-3. 乳児期における1日摂取量データベース

3-3-1 育児用調製粉乳1日摂取量

育児用粉乳(調製粉乳)は母親の判断で成長時期にあわせて適切な量と濃度に調乳される。通常は選択した調製粉乳の缶蓋裏に記載されている粉乳量に従って調乳している。乳児の状態により母親の判断で調乳した一部を残したり、追加して与えたりする場合もある。しかしその実態は明らかでない。調製された粉乳を完全に摂取することを前提にしたモデルを設定したので、生後の日齢と摂取粉乳量との関係を表15に示した。

表15 育児用調整粉乳摂取量

生後日数	育児用調整粉乳生産会社			
	MJ社	MO社	YK社	平均
2	21.0	23.6	22.5	22.4±1.3
3	31.5	35.4	33.8	33.6±2.0
4	42.0	47.3	45	44.8±2.7
5	52.5	59.1	56.3	56.0±3.3
6	63.0	70.9	67.5	67.1±4.0
7	73.5	82.7	78.7	78.3±7.6
10	-	94.5	-	-
15	-	99.0	-	-
8~15	84.0	96.8	90.0	90.3±6.4
5~30	105.0	117.0	108.0	110.0
0~60	126.0	126.0	126.0	126.0
0~90	144.0	142.5	135.0	140.5±4.8
90~120	157.5	157.5	150.0	155.0±4.3
120~150	165.0	165.0	165.0	165.0
150~180	165.0	165.0	180.0	170.0±8.7
180~210	172.5	-	144.2	-

調製量: g / 日

3-3-2 育児用調製粉乳生産会社の市場シェア

粉乳中の放射性核種濃度は調製粉乳生産会社の間で異なるので、入手の容易さは乳児の被ばく線量に直結する。そこで育児用調製粉乳の3大生産会社の市場占有率を表16に示した。長期間には若干の変動はあるもののこの3社で約90%の市場を占有している⁷⁾。

表 16 市場占有率⁴⁾

MJ社	MO社	YK社	合計
38.70%	21.90%	30.90%	91.50%

4) 酒類食品産業の生産・販売シェア
日刊経済通信社 293-296

3-3-3 λ_{RM-MB} 生乳需要コンパートメントから調製粉乳生産コンパートメントへの移行速度定数

調製粉乳の製造工場は1976年には全国で12工場があったが、1991年の調査では6工場に集中化されている。その内訳は群馬、埼玉、東京、兵庫、山梨に各1工場、長野に2工場である。原産地の異なる生乳がこの6工場で育児用調製粉乳に加工されるのである。1991年の総生産量は55,407,116kgで年間を通じて4,000,000~5,500,000kgの安定した供給となっている⁸⁾。そこで当研究では生乳需要コンパートメントから調製粉乳生産コンパートメントへ常時安定した生乳の供給が行われていることを仮定した。ワールドチェーンの発達もあり、隔日に集荷された生乳は1~3日さらに北海道からは長時間7日をかけて調製粉乳生産工場へ運ばれ所要の検査を経て粉乳生産へ移る。搾乳から調製粉乳が製品となるまで最短で4日、最長で17日間を要することになる¹⁰⁾。したがって λ_{RM-MB} は0.059~0.25d⁻¹であるが、被ばく線量を算定する地域で購入される調製粉乳の生産工場とそこへ集荷される生乳の生産地域との距離により所要時間は変化する。

千葉、茨城、東京への生乳需給の状況を表17,18に示した¹¹⁾。原乳生産地から粉乳生産工場のある群馬、埼玉、東京までの輸送所要時間についてはなお調査が必要である。

表 17 生乳需給(1991年)

移出都道府県	移入都県		
	千葉	茨城	東京
北海道	18	1,079	107,048
青森			28,555
岩手			60,756
秋田			7,768
福島		668	56,805
宮城	6,402		25,857
山形	1,352		14,101
茨城	50,463		26,618
栃木	1,143	4,907	87,338
群馬	2,812	443	149,610
埼玉	2,684	2,886	89,556
千葉		12,243	77,282
東京	169,478	42,436	
神奈川	922	518	4,642
山梨			6,005
長野	546		58,257
新潟		1,596	4,400
静岡			3,183
愛知			2,343
兵庫			20,072
岡山		5,048	2,014
徳島			5,045
福岡			2,260
佐賀			4,614
熊本			1,363
鹿児島			1,677
生乳移出量	170,191	113,896	586,513
生乳移入量	239,828	68,731	847,267
生乳生産量	328,583	197,469	26,765

単位トン

表 18 生乳の列車輸送所要時間(推定値)

	群馬	埼玉	東京	山梨	長野	兵庫
移入生乳量(トン)	75,000	310,291	826,925	19,063	95,409	135,206
延べ移出荷重輸送日	16,258	39,937	396,573	4,314.5	27,833	29,500
平均日数	0.22	0.13	0.48	0.23	0.29	0.22
牛乳移出都道府県数	19	21	27	4	17	31

仮定 1)

引用文献 5)の生乳精算量は都道府県別にその総量が記載されていて、それより下位の行政単位別の詳細データについての記載がない。そこで生産された全ての生乳が都道府県県庁所在地に集められ、そこを起点にして粉乳加工工場のある都県の県庁に時速30kmで終日運転で輸送される。

仮定 2)

北海道の輸送状態に関しては、地方の中心都市に集められ加工工場のある都県の県庁所在駅まで輸送されることとする。引用文献 5)には生乳データはない。よって旭川、釧路、室蘭、札幌にその近郊で生産された生乳が集荷されるものとする。累計集積量はこの5地点で異なると考えられるが、適切なデータがないために累積集積量に差がないものとする。

仮定 3)

都道府県毎に生産させた生乳から育児用調整粉乳の製造に向けられる比率は不明である。そこで生産された生乳の全量が粉乳加工に用いられるとして計算を行った。私信 6) に関して検討すべき問題点

1) 酪農家から都道府県庁所在地まで生乳を輸送する所要時間の推定

生乳は隔日に集荷される。そして飲用乳は1~3日で調製される。したがって1~3日が育児用調製粉乳用生乳の集荷にも必要であると推定される。この時間は酪農場と集荷場との距離で決まるので、各酪農場から輸送起点駅までの累積距離あるいは輸送時間の情報が必要であるがデータは入手していない。

2) 育児用調製粉乳加工前の検査所要時間

生乳を育児用調製粉乳へ加工する前に細菌数や乳成分の吟味があり、その後粉乳へ加工される。3~7日が必要である。

3) 結論 搾乳から育児用調製粉乳加工終了までの所要時間

この生乳の集荷所要時間と加工前生物検査および粉乳への加工のための4.5~10.5日は、調整粉乳生産コンパートメントから流通・消費コンパートメントへ製品が移動する所要時間である。したがって移行速度係数、 λ_{MB-CC} は0.095から0.222と推定される。このパラメータは地域特性が強いと考えられるので今後の検討が必要である。代表値を設定するには到っていない。

3-3-4 調製粉乳生産パートメントから流通・消費コンパートメントへの移行速度係数、 λ_{MB-CC}

被ばく線量を算定する地域と3-3-3で述べた7カ所の育児用調製粉乳生産工場からの育児用調製粉乳の供給との関係はかなり固定されていると考えられる。流通・消費コン

パートメントのサイズおよび育児用調製粉乳が生産され市場に流通する期間は、そのコンパートメントが包含している地域の乳児人口に依存して決まる。茨城県、東京都については行っていないが、千葉市で育児用調製粉乳の製造日と市場流通時期について随時調査した結果を表 19 に示した。製造月に購入が可能になる場合から 4 か月遅れで市場に流通する場合まであり、平均 57 日、標準偏差 37 日であった。したがって λ_{MB-CC} は 0.0175 (標準偏差 0.0270) d^{-1} であったがさらに調査数を増して、的確な λ_{MB-CC} を把握する必要がある。

表 19 育児用調製粉乳の購入機会調査
製造時期
粉乳生産会社

調査年月日	ME	YK	MO
1988 5 31	1988 5 13	1988 4 19	1988 3 9
経過日数	18	42	83
1988 7 20	1988 5 20	1988 5 7	1988 6 23
経過日数	61	74	27
	1977 5 9	72	
経過日数	1988 7 19	1988 6 9	1988 7 22
経過日数	55	95	52
1988 11 ¹⁾	1988 7 19	1988 9 5	1988 10 12
	1988 7 19	1988 9 5	1988 10 12
	1988 7 19	1988 9 5	1988 10 12
経過日数	119	71	36
	1988 9 8	1988 9 5	1988 10 12
	1988 9 8	1988 9 5	1988 10 12
	1988 9 8	1988 9 5	1988 10 12
経過日数	68	71	34
1988 12 14	1988 11 10	1988 11 2	1988 11 26
	1988 11 10	1988 11 2	1988 11 26
	1988 11 10	1988 11 2	1988 11 26
経過日数	34	42	18
	1988 12 1	13	
経過日数		1988 12 2	12
経過日数		12	

1) 11月15日を仮定。
平均 53.6日
標準偏差 29.1日

3-3-5 母乳摂取量

この栄養法の特徴として母乳の分泌量が不足する場合は人工栄養による補足が必要に応じて行われる。母乳と補足される人工乳の量がそれぞれ把握されていないと放射能による汚染の状況が異なるこの2つの経路で運ばれて乳児体内に侵入した放射性核種からの被ばく線量を正確に推定することはできない。しかし生後6ヶ月程度の長期間日々の観察を継続した例はない。

日齢14日までのデータ⁷⁾を表20に、日齢5日から181日まで断続的に測定されたデータ^{11,12)}を表21に示した。

表 20 母乳摂取量-1 (生後14日まで)¹⁰⁾

日齢	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
例数	300	300	298	297	297	283	246	172	122	73	48	31	21	14	8
平均摂取量(r)	0	8	52	150	251	332	379	478	483	499	482	518	515	524	540
平均哺乳回数	0	2.9	5.9	6.7	6.9	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7
最大摂取量(r)	0	115	210	430	575	760	845	800	810	790	735	785	660	730	690
最小摂取量(r)	0	0	0	0	10	170	120	175	160	245	250	320	360	350	425

1回の哺乳量推定(ml) = (120~110) + 月齢 × 10
1日摂取量推定式(ml) = (生後日数-1) × 10 (小山武夫の式)

表 21 母乳摂取量-2 (生後5~181日)^{11,12)}

日齢	5	15	30	47	60	91	120	153	181
母乳分泌量(r186±78)	480	554±113	818±469	817±180	725±94	818±228	773±122	600±5	
母乳摂取量(r186±78)	480	554±113	657±194	817±180	725±94	818±228	773±122	600±5	
母乳摂取率(%)	100	100	100	88±17	100	100	100	100	100
摂取回数(回)	7.0±1.0	8.97±2.3	7.4±1.4	8.0±2.0	8.0±2.6	7.3±2.3	6.7±0.6		5.0
粉乳追加量(r132±57)	0	140±242	80±130	20±35		0	0	0	0
母乳寄与率(%)	958.4±7.1	100	84.3±24.2	93.8±11.8	97.1±4.9	100	100	100	100
乳児数(人)	3	1	3	7	3	3	3	3	2

表 22 日常食を介して摂取された¹³⁷Csの母乳への分泌率¹³⁾

観察期間	試料	¹³⁷ Cs 分泌量/摂取量 pCi/gK	¹³⁷ Cs, pCi	母乳/日常食 比 pCi/gK	日常食中の ¹³⁷ Csの 母乳1ℓ中への移行率%	
1962年3月	母乳	9.2±0.2	6±1	1.9±0.1	0.43±0.08	32±6
	日常食	4.9±0.2	14±1			
1962年9月	母乳	27.4±1.5	9±2	1.1±0.1	0.17±0.04	28±7
	日常食	24.2±0.5	53±5			

1961年10月出産、1961年11月から1962年9月まで母乳の¹³⁷Csを測定。母乳の分泌量と乳児の摂取状況は、1962年8月中旬までは1日平均約1.3リットルの分泌率で約3/4リットルを乳児が摂取した。1962年9月に入り母乳の分泌は急激に減少し、ほぼ停止した。

引用したデータの内訳を示す。

- 1) 1976年データ引用文献¹⁰⁾
- 2) 宮崎 叶の調査 母乳哺育(1983)サイエンス社¹⁰⁾
- 3) 日齢40~61(1990年1ヶ月検診)1日摂取量を1回だけ測定した例^{11,12)}
- 4) 日齢5~208で3~6回測定した例(1992年)^{11,12)}
- 5) 日齢5~1年以上(1989~1990年)^{11,12)}
- 6) 日齢70から56日間^{11,12)}

1976年データ¹⁰⁾と1992年データ¹¹⁾で共通の生後5日目のミルク摂取量を比較する。1976年は母乳のみを332ml摂取。1992年は母乳186mlに加えてミルク132ml、合計318mlを摂取している。両者のミルク摂取量はほぼ同一と言える。母乳栄養児が母乳のみを摂取しているのではないことに注意を払わなければならないが、母乳児について14日齢までは(1)を、15日齢以降は(2)を1日ミルク摂取量モデルとする。

3-3-6 母乳への放射性核種の分泌

放射性核種の摂取量が把握されていて、母乳への放射性核種の分泌状況を長期的に追跡した事例は日本にはない。外国においてもその例は極めて限られているが、分泌量は乳児の生育段階を追って増加し上に凸の形状を示す(表22)¹³⁾。しかしながらこの分泌量の形状と放射性核種の量との関係は明確ではない。この研究は経口摂取された¹³⁷Csが母乳へ分泌される濃度を長期間測定しているまれな例であるので、当研究ではこの結果を引用して連続摂取状態では、授乳婦により1日に摂取された¹³⁷Csが摂取量の30%だけ母乳1リットル中に分泌されて、その全量を乳児が摂取する状況が生後6ヶ月終了まで全期間を通じて続いているモデルを設定した。

¹³⁷Csで汚染した肉を1回摂取した場合のその母乳への

移行は7日目に7.7%, 4週間後まで直線的に増加し、累積で摂取量の約10%となっている¹⁴⁾。

ルーマニアにおいて15名の授乳婦についてチェルノブイリ事故による放射能汚染調査を行い、摂取され全身コンパートメント(体重56kg)に達した¹³⁷Csの0.14が母乳コンパートメントへ入り $\lambda=0.014d^{-1}$ (生物学的半減期50日に相当)でこのコンパートメントから出ていくモデルが報告されている¹⁵⁾。十分時間がたてば母乳中に摂取レベルの約10%の¹³⁷Csが母乳中に分泌されると計算される。これはLiedenの結果とほぼ一致する。

3-3-7 関連パラメータについて検討課題

引用文献¹⁶⁾に示唆されているが、乳児の成長と乳児栄養法、乳児栄養法の地域差、社会環境と乳児栄養法については長い時間経過によって変化し、それにより乳児の放射性核種摂取量に変動を与えることが明らかなパラメータであるので全体像を把握するための研究により具体的な数値を決定していく必要がある。

引用文献

1. Radioactivity Survey Data in Japan
2. 「国民栄養の現状」
3. 農林水産物の貿易
4. Hisamatsu et al., J. Radiat. Res., 53, 287-293, 1987
5. Inoue, Y. and Iwakura, T. ibid. 31, 311-323, 1990
6. 久松俊一 日本における食品-人体間のトリチウム移

行、平成7年度科研費補助金一般研究(C)研究成果報告書平成8年3月

7. 酒類食品産業の生産・販売シェア 日刊経済通信社 293-296 (平成3年版)
8. 平成3年 牛乳 乳製品統計 平成4年8月 農林水産省統計情報部
9. 農林水産省畜産試験場 三橋俊彦からの私信
10. 松島富之助 新生児栄養法の選び方 周産期医学 6 581-589 昭和51年6月 (愛育病院データ)
11. 米山京子 母乳栄養児の発育と母乳からの栄養素摂取量 平成9年3月 発育の時系列解析で得られる健康情報とその伝達及び活用 平成6年度~平成8年度科学研究費補助金(基盤研究(A)(1))研究成果報告書 研究代表者 神戸大学発達科学部教授 東郷正美 66-75.
12. 東郷正美 私信
13. A. AARKROG (1963) Caesium-137 from Fallout in Human Milk: Nature 197 667-668.
14. K.Lieden (1961) Cesium-137 levels in human milk after a single oral intake of 8,300pCi cesium-137: Acta Radiologica, 56, 237.
15. E. Gattavecchia, S.Ghini, D.Tonelli, G. Gori, G. Cama and E. Guerresi (1989) CAESIUM-137 LEVELS IN BREAST MILK AND PLACENTAE AFTER FALLOUT FROM THE REACTOR ACCIDENT AT CHERNOBYL: Health Phys., 36 246-248.
16. 母乳哺育 (1983) サイエンス社

II. 長半減期核種の環境挙動と公衆被ばくに関する研究 概況

中村 清 (那珂湊放射生態学研究センター)

Environmental Behavior of Long-lived Radionuclides and the Public Exposure.

K. Nakamura (Laboratory for Radioecology)

本中課題では、被ばく線量推定モデルを構築する程には、パラメーターの研究成果が整っていない長半減期核種について、環境動態や代謝データを蓄積することを目的とした。

原子力利用の進展によって環境への移行が想定される人工放射性核種である超ウラン元素や ^{99}Tc 等は現在環境中のレベルが低いため、データの出にくいものもあった。陸上試料やダスト、食品試料等では、昨今の平常時には被ばく線量の重要な部分を占めるUやTh等の自然放射性核種の研究も行われた。結果はデータベースとして整備される予定である。

II-1では陸上試料について、高分解能ICP-質量分析装置を使用しての、Pu, U, Thの分析法の検討から始められた。その結果、土壌、水試料、植物中のU, Thの分析値が得られ、特に土壌試料については ^{239}Pu と ^{240}Pu の分別定量が可能となった。Iと ^{99}Tc については土壌から植物への移行係数がトレーサー実験により求められ、特に水稲への移行係数が低いことが示された。

II-2では海洋試料中の ^{99}Tc および $^{239,240}\text{Pu}$ の濃度の測定が行われた。日本沿岸での分布範囲が広く濃縮係数の高い褐藻であるウミトナリについて、 ^{99}Tc の濃度を測定し、各水域について比較検討した。その結果、日本海北部の試料でや

や高濃度であり、黒潮の影響の強い九州や千葉県で低い傾向が観察され、 ^{137}Cs のウミトナリ中の濃度が各地の試料で差が少ないことを考えると同じ様に海水に溶存する核種であるが、その挙動は異なると思われた。

II-3では、経口摂取による被ばくと吸入被ばくに関わる核種の動態について研究が進められた。 ^{232}Th , ^{238}U の各種食品からの寄与率が求められ、 ^{232}Th では魚介類が50%, ^{238}U では海藻類44%, 魚介類30%と日本では水産食品の寄与率の高さが示され公衆被ばくの推定に配慮が必要と思われる。またヒジキ食品を調整し、成人男子における ^{99}Tc の出納実験を行った結果、見かけの吸収係数が約0.5と推定された。吸入被ばく関係では、大気中のダストの ^{226}Ra その他のAMADが新しい測定値により推定された。

以上のように環境挙動と公衆被ばくに関して各種の重要な成果が得られたが、パラメーターが充分揃ったという状況にない。なお、大気、陸圏、水圏、人体食品等各環境それぞれについて重要視される核種は異なるため、研究成果について核種が統一されていないことはやむを得ない点がある。緊急時の予測のためには、Pu, Am, Np, Cm等のパラメーターが必要であり、研究の更なる発展が望まれる。

II-1 陸圏における分布と挙動に関する研究

村松康行、内田滋夫、柳澤啓、吉田聡、田上恵子、坂内忠明

(第4研究グループ)

Distribution and Behaviour of Long-lived Radionuclides in the Terrestrial Environment

Y. Muramatsu, S. Uchida, K. Yanagisawa, S. Yoshida, K. Tagami and T. Ban-nai

(Environmental and Toxicological Sciences Research Group)

Abstract

In order to understand the distribution and behaviour of long-lived radionuclides in the terrestrial environment, we have developed analytical methods for ^{129}I , ^{99}Tc , ^{238}U , ^{232}Th and $^{239,240}\text{Pu}$ and determined these nuclides in several environmental samples. We also carried out laboratory experiments using radiotracers to establish transfer parameters.

The neutron activation analysis was applied for the determination of ^{129}I and obtained data on the levels of the nuclide in environmental materials collected from Tokai-mura and other areas in Japan. Because of the long half-life of ^{129}I , stable iodine (^{127}I) was also analyzed as an analog to understand the environmental behaviour of ^{129}I . The nuclides ^{99}Tc , ^{238}U , ^{232}Th and $^{239,240}\text{Pu}$ were determined by ICP-MS after chemical treatments. Effective procedures for separating Tc was developed by using solvent extraction method. Plutonium was separated from the matrix by ion-chromatography. Concentrations of ^{238}U and ^{232}Th were determined in variety of soils, plants and environmental waters.

Parameters important for the assessment of the above-mentioned nuclides were also obtained, e.g. soil-solution distribution coefficient and soil-plant transfer factor for various agricultural crops (including rice). Soil-to-plants transfer factors of ^{129}I and ^{99}Tc were determined for rice and several vegetables through laboratory experiments using radiotracers. Transfer factors of ^{129}I and ^{99}Tc were determined from the analytical results of these nuclides in soils and in several vegetables. By radiotracer experiments, we found that both iodide (I^-) and iodate (IO_3^-) were, in general, highly adsorbed on soils, specifically soils with high organic matters (e.g. Andosol). Microorganisms were found to play an important role in the fixation of these nuclides on soil.

1. 緒言

原子力燃料サイクルに関する環境安全評価を行う場合、

長半減期核種の環境における分布と挙動についての情報が必要である。しかし、長半減期核種に関連するデータは非常に少ない。本研究では、種々の長半減期核種 (U , Th , ^{129}I , ^{99}Tc , Pu) の環境試料中の濃度を調べ、環境における分布と動態について解明することを目的とする。また、環境中での移行を予測するためのパラメータ値を得る。

研究を行うに当たってまずはじめに、どのようなデータがすでにあるのか、また、どのようなデータが不足しているのかを調べた。その状況を踏まえ、環境中での濃度に関するデータやパラメータ値を実験により求めた。

詳しくは本文の中で述べるが、本研究ではまず最初に分析法の検討に重点をおき、目的核種(元素)を極微量の濃度まで精度良く測定できる方法を確立した。そして、 U , Th , ^{129}I , ^{99}Tc などの長半減期核種について環境中での濃度と分布に関する新しいデータを出すことができた。 U と Th について多くの分析データが得られたが、これは ICP-MS (ICP-質量分析法) を有効に活用したことによる。 Pu や ^{99}Tc についても ICP-MS を用いた有効な分析法を開発することができた。 ^{129}I については放射化分析法によった。また、長半減期核種の環境中における動態(あるいは移行)を評価する上で必要な様々なパラメータ値を提供することができた。

ここでは本研究で得られた成果を「長半減期核種の分析と環境における分布の解明」と「長半減期核種の環境移行パラメータの設定」の2つに大きく分け、関連する主要なデータ、新たに行った実験、得られた成果等について報告する。また、他の関連する研究課題(グループ研究、電源特会研究等)で得られた成果も含める。コンパートメント間の移行速度についても試算した。最後の結論の部分では、長半減期核種について得られた分布に関するデータやパラメータ値をまとめる。

2. 研究方法

本研究では環境試料中の長半減期核種分析法の開発や環境移行を予測する上で必要なパラメータ値を出すための様々な実験を行った。そのため、各種の分析法や実験法をここにまとめて「研究方法」として記すとわかりにくくなる

ので、以下の「結果と考察」の章で各話題ごとに研究方法も加えまとめることとする。

3. 結果と考察

3. 1. 長半減期核種の分析と環境における分布の解明

ここではヨウ素-129 及び安定ヨウ素 (^{127}I)、ウラン、トリウム、プルトニウム、テクネチウムの分析及び環境試料について得られた結果を述べる。参考のために、Table-1 にこれら対象とした核種の半減期等をまとめる。

Table 1

Information on half-lives for some selected isotopes of I, U, Th, Pu and Tc

	Isotopes	Half-life	Abundance
Iodine	I-127	stable	100%
	I-129	1.6×10^7 y	
	I-131	13 d	
Uranium	U-234	2.45×10^5 y	0.0055%
	U-235	7.04×10^8 y	0.720%
	U-238	4.47×10^9 y	99.2745%
Thorium	Th-232	1.405×10^{10} y	100%
Plutonium	Pu-239	2.41×10^4 y	
	Pu-240	6.56×10^3 y	
Technetium	Tc-99	2.11×10^5 y	

3. 1. 1 ヨウ素-129 及びヨウ素-127

ヨウ素-129 は半減期が 1600 万年と長半減期核種の代表格である。この核種は核実験や原子力施設(特に再処理施設)に起因して環境中に放出される。NCRP (1983)の推定では原子力発電にともない発生する使用済み核燃料に含まれるヨウ素-129 の量は世界全体として西暦 2000 年までに 3700Ci に達するとしている。半減期が非常に長いことから長期的な視点から環境挙動を評価しなければならない。また、長いタイムスケールでは安定ヨウ素と同様な挙動を取ると考えられるので、安定ヨウ素をアナログとした研究も大切である。

ヨウ素-129 の分析法は、環境中でのレベルが低いこともあり、また、放出されるベータ線のエネルギーも低く分析が難しい。そのため、諸外国でもヨウ素-129 の分析を行うことができる研究機関は少ない。文献を調べる限り、環境試料中のヨウ素-129 の分析値が出されているのは米国では主としてハンフォード施設周辺(Brauer & Strebin 1982)である。施設周辺で高い値が報告されており、特に土壌中の値が高い。ヨーロッパでは、ドイツのカールスルーエ再処理施設周辺(Schütterkoph & Pimpl 1982)のデータが出されており、一般環境よりレベル的に高い値が報告されている。

分析法としては、放射化分析法が主として用いられている。液体シンチレーションを用いた方法で測定しているデータもあるが濃度が低く精度がよいデータは期待できない。その他の方法として直接測定法である低エネルギーの γ 線(x 線)測定用 Ge 半導体検出器(LEPS や LOAX)を用い Xe の x 線を測定する方法は簡便であるが、検出感度は

悪い。最近では加速器質量分析器を用いた方法も開発されたが、特別な加速器が必要であり、施設及び費用の面で一般的ではないといえよう。本研究で用いた中性子放射化分析法は感度的にも優れ、適当な中性子フラックスを持った研究炉を利用できれば低濃度の分析が可能である。この方法は以前の経常研究や放射能調査でも用いたが、その後分析法に改良を加えたこともあり、ここでは ^{129}I の放射化分析法を総括する。また、分析結果は以前得られたデータも含め本報告書の中でまとめる。

^{129}I は濃度が低いことから、中性子照射前にヨウ素の分画を分離精製する必要がある。分析法は、照射前の分離操作と照射後の分離操作及び測定からなる。ここでは、固体試料の例として土壌の分析操作を中心に概要を述べる(詳しくは、Muramatsu & Ohmomo 1983; Muramatsu & Yoshida 1995a)。

試料(約 100g)に収率トレーサーとして ^{125}I (半減期 60 日)を加えてから石英二重管の内管(内径 28mm)に入れる。それを外管(内径 40mm)に取り付け、燃焼装置を用いて加熱する。Fig. 1 に装置の概要を示す。加熱時に発生するガスを十分に分解するために石英管の外管に白金線をまわす石英ウールと共に入れておく。その部分を第 2 番目の管状炉で加熱する。炉の温度はともに 1000°C に設定した。酸素の流量は内管 100~200ml/m、外管 200~300ml/m である。電気炉は自動的に移動させ効率よく試料を加熱する(加熱時間は 1~2 時間)。ヨウ素の分画(^{127}I と ^{129}I)は気化しガス状となり試料から分離され、トラップ部で捕集される。トラップは 2 段からなり、それぞれ以下の溶液を入れておく。

第 1 段目: KOH (6g) + Na_2SO_3 (1g) + H_2O (140ml)

第 2 段目: KOH (6g) + Na_2SO_3 (1g) + H_2O (70ml)

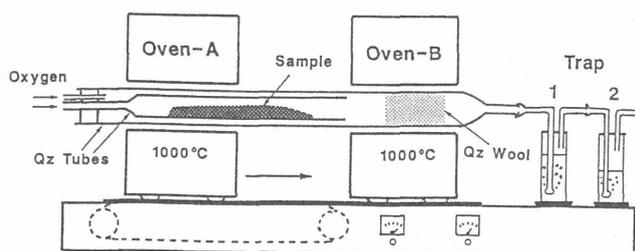


Fig. 1 Combustion apparatus for the separation of I-127 and I-129

通常、第 1 段目でほとんどが捕集されるため、その後の分離には 1 段目の溶液のみを使用する。溶液中にトラップされたヨウ素をさらに分離生成するためには溶媒抽出法を用いる。溶媒としては四塩化炭素を使用した。(しかし、四塩化炭素はオゾン層を破壊するガスとして今後使用が制限されることもあり、その他の有機溶媒も検討した結果、トルエンも使用できることが明らかになった。ただし、トルエンは四塩化炭素と異なり比重が水よりも軽いので、分離の時試料溶液の上にくるので注意が必要である。)まずは、試料溶液に硝酸を加え酸性にした後、分液ロート(200ml)に移し、四塩化炭素(トルエン)(25ml)を加え亜硫酸ナトリウム(5%)を少しずつ添加し I^- を I_2 にする。分液ロートを振ることにより、発生した I_2 は四塩化炭素(ト

ルエン)に溶ける。抽出操作を繰り返し、二回目の四塩化炭素(トルエン)相と一回目の四塩化炭素(トルエン)相と一緒にする。

次に、亜硫酸ナトリウム溶液(1%、0.1ml)をこの四塩化炭素(トルエン)相(50mlの分液ロート)に純水(10ml)に添加し振とうすることにより水相にヨウ素をI⁻として逆抽出する。水溶液はビーカー(20ml)に移し、ホットプレート上で加熱し液量を減らす。マイクロピペットを用い小形石英アンブル(内径4mm、長さ50mm)に移す。石英アンブルは、溶液が揮発しないように気を付けながらバーナーで封をする。(水試料など溶液の照射前の分離操作は、イオン交換樹脂を用い分離する方法もあるが、KOHとNa₂SO₃を加え濃縮してから、上記のように溶媒抽出法を用い分離することが可能である。)

既知量の¹²⁷Iと¹²⁹Iを含んだ標準試料も同様にアンブルに入れ、試料を含んだアンブルと一緒にポリイミド製のカプセルに入れる。それを、研究炉で熱中性子を照射する(1時間前後)。照射により生成する核種は以下の通りである。

- (a) ¹²⁹I(n, γ)¹³⁰I 半減期:12.4時間
- (b) ¹²⁷I(n, γ)¹²⁸I 25分
- (c) ¹²⁷I(n, 2n)¹²⁶I 13日

照射後10時間程度放置(冷却)し、放射線のレベルを下げる。更に、妨害核種を除くため、以下の化学操作を行う。照射済みアンブルを折り、ビーカーに移し純水(50ml)KI溶液(I⁻:20mg程度)とNaOH(1N, 1ml)とKBr(1000ppm, 1ml)を加え、シリンジを用い針でアンブルの中に液を送り良く洗う。試料溶液からのヨウ素分画の分離は、照射前の操作と同様な溶媒抽出法を用いた。つまり、試料溶液に硝酸を加え酸性にした後、分液ロート(100ml)に移し、四塩化炭素(トルエン)(30ml)を加える。そこに、亜硝酸ナトリウム溶液(5%、1ml程度)を添加し、I⁻をI₂にかえ、振とうしながらヨウ素の分画を抽出する。次に、四塩化炭素(トルエン)相に純水(30ml)と亜硫酸ナトリウム溶液(1%、0.5ml)を加え水相にヨウ素の分画を逆抽出する。不純物が多い場合はこれらの抽出・逆抽出操作を2回繰り返し、不純物を除く。

最終的には、塩化パラジウム溶液を加え、ヨウ化パラジウム(PdI₂)の沈殿を作る。沈殿はガラスフィルター上に濾別し、純水及びアルコールで洗った後、100℃で30分程度乾燥させる。それをガンマ線測定用試料とし、Ge半導体検出器で測りスペクトルを得る。得られたスペクトルの例をFig.2に示す。¹²⁹Iの定量に用いたピークは、¹³⁰Iの418.0keV、536.1KeV及び739.4KeVであった。また、¹²⁷Iの定量には、¹²⁶Iの388.6KeV、491.3KeV及び753.8KeVを用いた。¹³⁰Iの668.5KeVと¹²⁶Iの666.2KeVはともに比較的大きなピークであるがエネルギーが低いため分離が難しいので使用には注意が必要であろう。

この分析法は科学技術庁の放射能測定シリーズ26(平成8年)に¹²⁹Iの一つとして取り入れられた。また、IAEAが比較標準試料IAEA-375(チェルノブイリ事故による汚染土壌)を用いて行った比較分析(Muramatsu & Yoshida 1995a)も良い結果を得た(Table-2)。

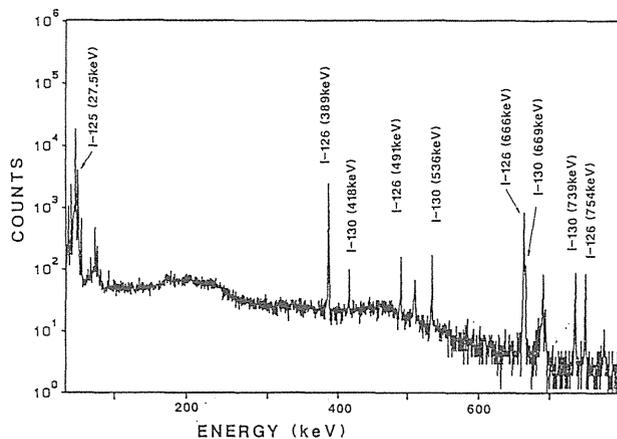


Fig. 2 Gamma-ray spectrum for NAA of I-127 and I-129

Table 2

Analytical results on the concentrations of ¹²⁹I, ¹²⁷I and ¹³⁷Cs, and ¹²⁹I/¹²⁷I ratios in a soil sample (IAEA Soil-375) contaminated by Chernobyl fallout.

	¹²⁹ I (mBq kg ⁻¹)	¹²⁷ I (mg kg ⁻¹)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I (ratio)	¹³⁷ Cs (Bq kg ⁻¹)
Run-1	1.65	1.28	1.88 x 10 ⁻⁷	5150
Run-2	1.60	1.30	1.79 x 10 ⁻⁷	5240
Run-3	1.56	1.50	1.51 x 10 ⁻⁷	5070
Mean	1.6 ± 0.05	1.36 ± 0.12	1.72 x 10 ⁻⁷	5180 ± 52
IAEA *	1.7	-	-	5281

* IAEA recommended value: ¹²⁹I was described as 12.2 x 10⁸ atom g⁻¹.

この分析方法により、東海村及びその周辺で採取した環境試料(合計約50試料)に関して得られた結果をTable-3にまとめる(データは以前の研究で得られた結果も合わせて示す)(Muramatsu & Ohmomo 1986; Muramatsu et al. 1990a; Muramatsu & Yoshida 1995a)。¹²⁹I濃度は、森林土(松林や杉林の土壌)で高い傾向にあり、水田と畑土では同程度であった。森林土が高いのは、森林のフィルター効果のため、大気中に放出された¹²⁹Iが樹冠に沈着し、それが雨水で洗われたり、また落葉することにより森林土壌に加わり、濃度が空地の土よりも高くなったと考える。松葉でも採取時期や場所によっては土壌と同程度の濃度を示す試料もあった。これら環境試料中の¹²⁹Iの起源は、大気圏核実験により放出されたものと、再処理施設のスタックから放出されたものの2つが主である。東海村及びその周辺で採取した表層土壌中でのいちばん高い¹²⁹I濃度は、約0.18Bq/kg(乾土)である。この値は他の地域の濃度よりも高い傾向にあるが、¹³⁷Csの我が国の表層土壌の一般的な値(数10Bq/kg)に比べて非常に小さい。土壌中の¹²⁹I及び¹²⁷Iの深度分布を見ると、¹²⁷Iは探さによる差があまりないが、¹²⁹Iは表層土壌(特に0~5cm)に多くが保持されている(Fig.3)。¹²⁹Iの分析データは数的に見てまだ十分とは言えないが、環境に放出された場合上述したような分布をとる傾向にある事が認められた。日本における¹²⁹Iの他

Table 3

Ranges of the concentrations of ^{129}I and ^{127}I in environmental samples collected around Tokaimura (T) and the other areas in Japan (C)

Sample Location	*	n	^{129}I (mBq/kg)	^{127}I (ppm)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio
Pine needles	T	7	1.2 - 32	0.24 - 0.41	$56 - 1800 \times 10^{-8}$
	C	1	< 0.04	0.09	$< 7 \times 10^{-8}$
Precipitation	T	4	0.002 - 0.11	0.0025 - 0.0034	$12 - 500 \times 10^{-8}$
	C	1	0.0005	0.0066	1.1×10^{-8}
Soils					
Forest	T	5	11 - 180	5.7 - 32	$6.6 - 97 \times 10^{-8}$
	C	4	0.13 - 0.78	3.2 - 36	$0.1 - 0.7 \times 10^{-8}$
Wheat field	T	4	1.2 - 14	17 - 59	$0.3 - 9.9 \times 10^{-8}$
	C	1	< 0.07	46	$< 0.1 \times 10^{-8}$
Rice paddy	T	5	0.9 - 13	1.6 - 15	$1 - 25 \times 10^{-8}$
	C	1	< 0.06	1.2	$< 0.8 \times 10^{-8}$
Seaweeds	T	9	< 0.1 - 17	4.8 - 68	$0.1 - 9.9 \times 10^{-8}$
	C	3	< 1.5	23 - 320	$< 0.1 \times 10^{-8}$

(Note)

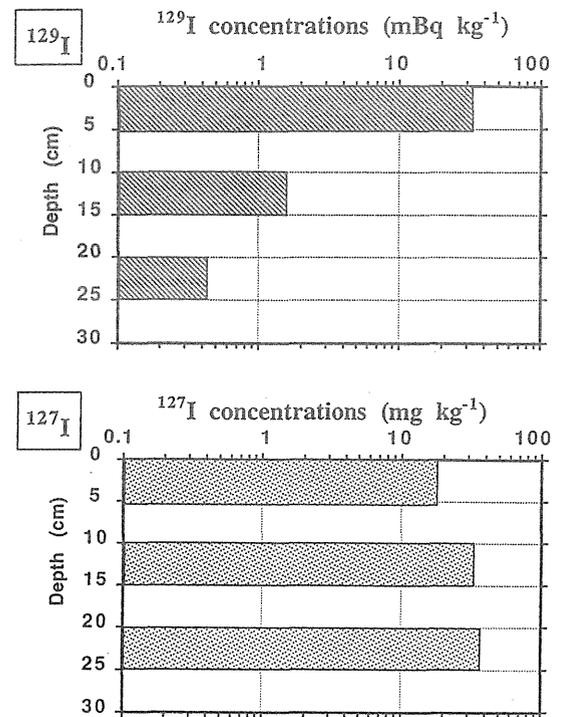
* ; T : Samples collected around Tokaimura.

C : Samples collected from the other areas in Japan.

n ; Number of samples analysed.

Rain water, pine needles and seaweeds : wet basis. Soil : dry basis.

Soils collected under 10 cm are not included in this table.

Fig. 3 Vertical distributions of ^{129}I and ^{127}I in soil collected from Tokaimura.

のグループの分析例としては、 Seki et al. (1990) の報告もある。

$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を見ると、松葉と雨水で特に高い傾向にあった。それは、 ^{129}I は大気中に放出されるが、そこでの安定ヨウ素 (^{127}I) の濃度が低いため $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比は高くなる一方、土壌など安定ヨウ素濃度が高い試料では、 ^{129}I の濃度がある程度高くても $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比は低くなる。

海藻中の ^{129}I が全て海水から供給されると考えると、海藻の種類に関係なく $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比はほぼ同じと考えられる。海水中の ^{127}I 濃度は約 50ppb と高いため、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比は極低い (10^{-10} 以下) と推定される。しかし、分析結果から、海藻の種類により大きな差があることが分かった。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比が高い傾向にあったのはフノリであり、次にヒジキであった。ワカメでは検出限界以下 ($< 10^{-9}$) であった。フノリとヒジキは海岸の岩場の潮間帯に生育するため、引き潮の時には長時間大気にさらされている。特に、フノリは潮間帯の上部に生育するため大気との接触時間は長い。これらのことから考えると、潮間帯に生育する海藻については、海洋からだけではなくガス状放射性ヨウ素の大気からの直接沈着経路も無視できないであろう。

米についても ^{129}I の分析を試みたが、濃度が非常に低いため検出できなかった。RI を用いたトレーサー実験 (後述) で求めた、土壌-植物移行係数 (0.0019) と水田土壌中の ^{129}I の濃度 (東海における分析値: 13mBq/kg) から計算すると、0.02mBq/kg 程度という値が得られ、米中の ^{129}I 濃度は非常に低いことが推定された。

この節のはじめにも述べたが、 ^{129}I は半減期が非常に長いので長期的に見ると環境中で安定ヨウ素 (^{127}I) と同じような挙動をとる。そこで、 ^{129}I の環境中での分布を予測するためのアナログとして安定ヨウ素の分析法も開発し、環

境試料の分析データを出した。(一部は電源特会予算やグループ研究の一環として行っている。)

安定ヨウ素の分析も難しく、環境試料に関するデータは不足しているのが現状である。分析法を検討した結果、以下の方法で分析を行うと良い結果が得られた (Schnetger & Muramatsu 1996; Muramatsu & Wedepohl 1998)。分析操作の概要は以下の通りである。水試料については濾過後、 Na_2SO_3 溶液を少量加えヨウ素の化学形を I とした。それを ICP-MS で測定した。土壌など固体試料の場合は、ヨウ素を分離し溶液試料としなければならない。そこで、試料 (0.1~2g) を磁製のボート上にのせ、 ^{125}I (収率トレーサ) と五酸化バナジウム (酸化剤) とを加え混ぜ合わせ、石英管中に入れ酸素ガス気流中で加熱 (約 1000°C) した。揮散してきたヨウ素を TMAH (Tetramethyl ammonium hydroxide) 溶液 (1%) 及び Na_2SO_3 (100ppm 溶液) の混合溶液のトラップに吸収させた。最終的にはその溶液を ICP-MS で分析し定量した。検出感度は、溶液として 0.2ppb または、固体試料として 2ppb 程度であった。

水試料について、東海村、ひたちなか市、水戸市で採取した雨水、各地で採取した河川水、湖沼水、水道水、温泉水中に含まれるヨウ素を測定した (比較として他のハロゲン元素も分析した)。結果は Table-4 に示す。ヨウ素のレベルは約 1ppb であった。雨水中のヨウ素はひたちなか市の海岸で採取したものが少し高い傾向にあったが、他の地点で採取したものとそれほど大きな差はなかった。しかし、塩素と臭素は海岸に近いほど高かった。そのため、I/C1 比と I/Br 比は海岸から遠ざかるほど大きい値を示した。同じハロゲン元素でもヨウ素は塩素や臭素と比べその挙動が大きく違うことがここでも示された。河川水や湖沼水中のヨウ素の値は、雨水よりは少し高い傾向にあった。参考

として温泉水の値を示すがヨウ素や塩素の値は桁違いに高い。雨水や河川水・湖沼水中のヨウ素のレベルが分かり、再処理施設から大気中に ^{129}I が放出された場合の環境挙動を調べる上で貴重な基礎データを得た。また、今まではヨウ素の挙動を塩素や臭素と同様に考える傾向があったが、ヨウ素は他のハロゲン元素とかなり異なった挙動をとることが明らかになった。ここでは、情報が少なかった種々の環境水中のヨウ素濃度についての新しい知見を得ることができた。これらのデータは放射性ヨウ素の挙動を予測する上でも役立つ。

我が国の主要な土壌群のヨウ素の分析値を Table-5 に示す (Muramatsu & Yoshida 1993 など)。畑 (又は森林) の黒ボク土中のヨウ素濃度 (約 30ppm) が特に高いことが認められた。黒ボク土は火山灰を起源とし、そこに有機物がたまり分解して黒色を呈している。また、土壌の無機成分としてアロフェンを含む。黒ボク土の母岩である火山灰と同質の火山岩石中のヨウ素の値も表に示してあるが、0.004 ~ 0.03ppm 程度である。つまり、黒ボク土は母材に比べ約

千倍ヨウ素を濃縮していると考えられる。この黒ボク土壌への濃縮メカニズムを解明することは、長寿命核種であるヨウ素-129 の環境移行を予測し評価する上で大変重要である。これに関する考察は後で述べる。同じ黒ボク土でも、畑土 (又は森林土) と水田土を比べると水田土の値は明らかに低い。これは、水田では湛水状態で稲を栽培するため、微生物の作用でヨウ素が土壌溶液に溶けだし、その結果ヨウ素濃度が低下したと考えられる。また、水田土壌として一般的な灰色低地土でもヨウ素濃度は平均で 1.6ppm 程度と低い。Yuita らの研究でも水田土のヨウ素濃度が低いことを報告している (Yuita et al. 1982a; 1982b)。

大気中のヨウ素の化学形別分析も行った (Yoshida & Muramatsu 1995)。方法は、エアサンプラーにより形態別にヨウ素を捕集し、それを放射化分析で測定した。約 1 年間 1 ~ 2 ヶ月毎に採取した試料について得られた結果の平均値は次の通りである。東海村では、粒子状ヨウ素: 1.1ng/m³、ガス状無機ヨウ素 (I₂, HOI など): 1.9ng/m³、ガス状有機ヨウ素 (CH₃I など): 10.9ng/m³ であった。ま

Table 4. Concentrations of iodine, bromine and chlorine in various natural water samples.

Samples and sampling locations	Concentrations			Ratio	
	I (ppb)	Br (ppb)	Cl (ppm)	I/Cl (x10 ⁻³)	I/Br
Rain water					
July 1993:					
Hitachinaka (0.05 km from the coast)	2.0	44	14	0.14	0.045
Tokai-mura (1 km from the coast)	1.7	10	3.0	0.57	0.17
Tokai-mura (5 km from the coast)	1.6	7.1	2.3	0.70	0.23
Mito (15 km from the coast)	1.5	5.7	1.5	1.0	0.26
November 1993:					
Hitachinaka (0.05 km from the coast)	2.6	114	36	0.072	0.023
Tokai-mura (1 km from the coast)	1.5	42	11	0.14	0.036
Tokai-mura (5 km from the coast)	1.3	19	6.0	0.22	0.068
Mito (15 km from the coast)	1.4	13	3.9	0.36	0.11
River water					
Chikumagawa/Nagano	2.9	27	9.2	0.32	0.11
Nakagawa/Ibaraki	6.1	65	15	0.41	0.094
Futamatagawa/Aomori	3.9	78	17	0.23	0.050
Lake and swamp water					
Kusharoko/Hokkaido	4.0	55	30	0.13	0.073
Shiretokogoko/Hokkaido	1.8	56	14	0.13	0.032
Kidoike/Nagano	2.0	9.0	2.1	0.95	0.22
Maruike/Nagano	15	27	8.2	1.8	0.56
Akogigaura/Ibaraki	3.2	82	13	0.25	0.039
Takahokonuma/Aomori	7.6	1400	415	0.018	0.005
Tap water					
Shari/Hokkaido	0.7	23	6.4	0.11	0.030
Tokai-mura/Ibaraki	3.0	43	15	0.20	0.070
Nagoya/Aichi	1.4	20	6.0	0.23	0.070
Fukuoka/Fukuoka	6.0	111	25	0.24	0.054
Hiroshima/Hiroshima	2.3	31	7.6	0.30	0.074
Osaka/Osaka	6.7	105	13	0.52	0.064
Ichikawa/Chiba	9.1	204	25	0.36	0.045
Hitachinaka/Ibaraki	4.9	77	12	0.41	0.063
Hot spring water					
Yuzawa/Niigata	91	290	104	0.88	0.31
Kumanoyu/Nagano	171	313	103	1.7	0.55
Zao/Yamagata	57	379	309	0.18	0.15
Shiragane/Hokkaido	148	1480	665	0.22	0.10
Seawater (Holland 1978)					
	60	67000	19350	0.003	0.001

Table 5. Iodine concentration in major soil types in Japan and in the possible parent materials

Sample types*	Code	Sampling location	ppm I (dry)
Upland soils			
Andosols (Andosols)	F-007	Mito/Ibaraki	32.6
	F-015	Shiojiri/Nagano	26.0
	F-025	Kimotukigun/Kagoshima	24.2
	F-045	Rokkasho/Aomori	44.9
	F-064	Kawasaki/Kanagawa	33.0
		Mean (5)	32.1
Yellow soils (Orthic Acrisols)	F-017	Toyohashi/Aichi	11.3
	F-021	Fukuyama/Hiroshima	2.8
	F-068	Takayama/Gifu	11.8
		Mean (3)	8.6
Rice paddy soils			
Gray lowland soils (Dystric Fluvisols)	P-013	Kumagaya/Saitama	0.63
	P-015	Mito/Ibaraki	1.93
	P-028	Oomagari/Akita	1.64
	P-038	Koriyama/Fukushima	2.76
	P-050	Kashihara/Nara	0.92
		Mean (5)	1.58
Andosols (Andosols)	P-14	Imaichi/Tochigi	8.3
	P-30	Misawa/Aomori	15.8
	P-32	Morioka/Iwate	11.9
	P-60	Chikugo/Fukuoka	6.9
		Mean (4)	10.7
Gley soils (Dystric Gleysols)	P-012	Kumagaya/Saitama	1.32
	P-042	Gamougun/Shiga	1.46
	P-068	Nakakannbaragun/Niigata	2.08
		Mean (5)	1.62
Possible parent materials for soils			
Basalt		JB-1 (GSJ)**	0.028
Andesite		JA-2 (GSJ)**	0.004
Granodirite		JG-1 (GSJ)**	0.005

* Soil names recommended by FAO/UNESCO are described in brackets.

** Rock samples are standard rocks of Geological Survey of Japan (GSJ).

た、ひたちなか市の海岸近くでは、粒子状ヨウ素：2.2ng/m³、ガス状無機ヨウ素(I₂, HOI など)：2.6ng/m³、ガス状有機ヨウ素(CH₃I など)：12.8ng/m³であった。これらの値を見ても、大気中の安定ヨウ素の化学形態は有機形が主であることが分かる。

3.1.2 ウラン及びトリウム

自然界に存在するウランの同位体は ²³⁸U (半減期：4.47x10⁹年、存在比：99.2745%)、²³⁵U (半減期：7.04x10⁸年、存在比：0.720%)、²³⁴U (半減期：2.45x10⁵年、存在比：0.0055%)である。また、トリウムの自然界に存在する同位体は ²³²Th (半減期：1.405x10¹⁰年、存在比：100%)である。これらの同位体の娘核種は多く被曝線量を考えるとき重要となってくる。しかし、ここでは娘核種は扱わず、環境中に存在するウランとトリウムについて述べる。

ウランとトリウムの分析値は我が国においても古くから報告されている。しかし、探鉱や地球化学の分野での研究が主で、環境試料中の濃度に関する報告はそれほど多くない。その中でも、Yamagata & Iwashima (1967)は多くの土壌中のウランとトリウムについての分析しており、我が国の未耕地土壌の平均値は、U で 1.3ppm、Th で 5.6ppm で

あると報告している。これらのデータは我が国の土壌中のバックグラウンド濃度を知る上で重要である。しかし、分析試料は未耕地土壌が主であり、水田や畑土についての分析値は少ない。そこで、ここでは我が国の農耕地におけるウランとトリウムの濃度を把握する目的で、日本各地から種々の代表的な土壌を採取し分析を行った。

また、水試料や植物試料においてもウランとトリウムの分析値はそれほど多くない。特に、我が国の主食である米についてのこれらの核種についての分析データは極限られている。そこで、ここでは、水試料や各種の農作物についての分析データをとることを試みた。

ウランとトリウムの分析法は、アルファ線測定法、娘核種のガンマ線を測定する方法、放射化分析法、比色法などがある。しかし、前処理法が煩雑であったり、検出感度に問題があったりして、低濃度の分析は簡単ではない。ここでは ICP-MS を用いる方法について検討し、環境試料の分析へ応用した。ICP-MS のメリットは、検出感度に優れている点と、同時に他の元素の分析も可能である点があげられる。

分析法の詳細は Yoshida et al. (1996)に述べている。ここでは、分析操作の概要を述べる。

水試料については、0.22 μm のメンブラン濾紙で濾過し

た後、硝酸(高純度硝酸、多摩化学 AA-100)を加え、3%溶液とした。(長期間保存するときは5%程度の硝酸溶液にしたほうが目的元素の濃度変化は少ない。) 固体試料については、粉末状態にした試料(約100mg)をテフロン容器に入れ、硝酸、ふっ化水素酸、過塩素酸を加え、マイクロウェーブオープンで加熱分解した。酸の量は試料の種類により異なり、例えば土壌試料では、硝酸(7ml)、ふっ化水素酸(3ml)、過塩素酸(0.5ml)である。また、植物試料では、まず硝酸(7ml)とふっ化水素酸(1ml)を加えマイクロウェーブオープンで加熱分解した後に過塩素酸(0.5ml)を加えた。これは、有機物と過塩素酸が共存すると発火する恐れがあるためである。

マイクロウェーブオープンで分解した後、それをホットプレート(ホットブロック)上で蒸発乾固した。次に、硝酸に溶かし、さらに希釈した。硝酸の濃度は3%とし、定容した。測定時のドリフトなどを補正するための内部標準としてBi、In、Rh(20ppb)を添加した。

ICP-MSの測定にはYOKOGAWA PMS-2000を用いた。検出下限値は、U、Thで溶液中の値として1ppt(1pg/ml)以下であった。これは土壌中のこれらの元素を分析するのに十分な感度である。地質調査所が作成したJB-1、JG-1、JR-2、JA-2等の比較標準物質を使用し分析の質を確かめたところ、保証値と大変良い一致を示した。

土壌の分析は吉田が中心になり行った(Yoshida et al. 1998)。得られた結果をTable-6に示す。表には、日本各地で採取した77試料についてのU、Thの分析値を土地の利用形態別にまとめている。また、参考として幾つかの希土類元素(La、Ce、Yb、Lu)の分析データも同時に示す。77試料の平均値は、Uで2.3ppm、Thで7.0ppmであった。土地の利用形態別に見ると、Thについては畑土壌、水田土壌、森林土壌の3種は平均値としてみるとほぼ同じであるが、Uについては畑土壌や水田土壌が森林土壌よりも濃度が高い傾向が認められた。水田土壌のUが高い傾向にある。これは、農耕地に添加されたリン酸肥料中のUの影響かと思われる。

Table 6. Statistics of the concentrations of U, Th and some rare earth elements for each type of soil utilization and all soil samples (in ppm, dry).

Soil utilization	n		U	Th	La	Ce	Yb	Lu
Upland field	25	min	0.84	2.16	5.10	14.20	0.79	0.13
		max	4.09	16.20	42.50	92.50	2.89	0.42
		median	2.28	6.21	16.60	35.80	1.92	0.28
		mean	2.27	7.19	19.00	41.30	1.95	0.29
		std*	0.89	3.79	9.30	20.70	0.47	0.07
Paddy	22	min	1.61	2.92	9.73	20.80	1.43	0.21
		max	4.60	13.30	28.90	62.30	2.95	0.43
		median	2.81	7.15	18.50	44.20	2.01	0.29
		mean	2.87	7.29	18.30	42.10	2.09	0.31
		std*	0.79	2.61	5.20	11.80	0.40	0.06
Forest	12	min	0.24	1.55	4.87	11.40	0.98	0.14
		max	4.41	21.70	51.10	84.80	4.99	0.78
		median	1.41	4.99	15.40	30.20	2.05	0.32
		mean	1.68	7.93	20.00	41.60	2.20	0.33
		std*	1.07	5.74	14.20	26.30	1.09	0.17
Open	18	min	0.17	0.40	1.20	2.46	0.12	0.02
		max	3.63	19.50	50.70	116.00	4.14	0.60
		median	1.96	4.72	10.80	21.90	1.83	0.26
		mean	1.91	5.56	15.70	33.50	1.81	0.26
		std*	1.16	4.48	13.90	27.90	1.06	0.16
All	77	min	0.17	0.40	1.20	2.46	0.12	0.02
		max	4.60	21.70	51.10	116.00	4.99	0.78
		median	2.28	5.84	16.40	35.30	1.95	0.28
		mean	2.27	6.95	18.20	39.80	2.00	0.29
		std*	1.04	4.04	10.50	21.40	0.74	0.11

*std: standard deviation

土壌の種類別にまとめた結果を Table-7 に示す (Yoshida et al. 1998)。それを見ると、Th は黄色土や赤色土に高い傾向があった。一方、泥炭土や砂丘未熟土は低い傾向にあった。黄色土が高い値を示すのは、その母岩が花崗岩であり Th 等を多く含んでいるためと推定される。

同じく花崗岩中に多く含まれる U については Th ほど明らかな土壌の種類による違いは見られなかった。これは、上述したように農耕地に添加されたリン酸肥料に含まれる U の影響かと思われる。このことは、津村・山崎 (1993) も指摘している。

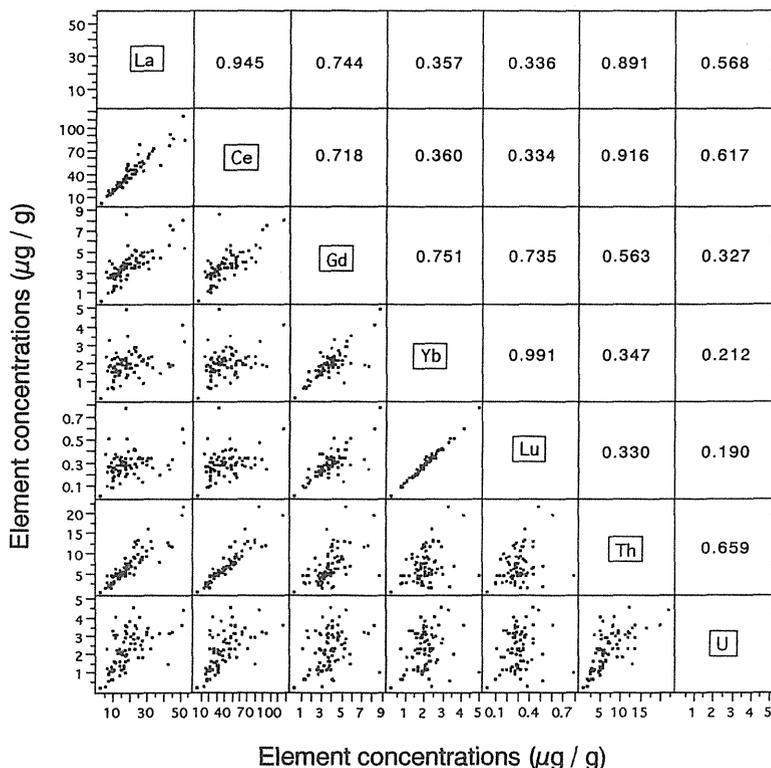
Table 7. Mean concentrations of lanthanide elements, Th and U ($\mu\text{g/g}$) for each soil type.

Soil type	n		U	Th	La	Ce	Yb	Lu
Andosols	30	mean	2.02	4.97	15.00	30.90	2.12	0.31
		std*	0.98	2.02	6.90	11.90	0.53	0.08
Gray Lowland soils	12	mean	2.94	8.29	20.10	47.60	2.08	0.31
		std*	0.80	2.30	4.30	7.80	0.43	0.07
Brown Forest soils	8	mean	2.41	7.70	17.00	41.90	1.68	0.25
		std*	0.82	3.80	8.90	24.10	0.62	0.09
Red soils	8	mean	2.79	12.40	31.40	64.40	2.64	0.40
		std*	1.22	6.40	15.90	31.80	1.37	0.21
Yellow soils	6	mean	2.50	9.97	27.20	55.20	1.88	0.28
		std*	0.64	3.02	13.60	27.20	0.28	0.04
Gley soils	4	mean	2.91	7.11	16.50	43.30	2.08	0.31
		std*	0.53	1.77	4.50	11.40	0.19	0.03
Sand-dune Regosols	4	mean	0.59	2.97	8.53	17.90	1.14	0.17
		std*	0.25	1.33	3.23	6.10	0.82	0.14
Peat soils	3	mean	1.12	2.56	6.48	15.80	1.11	0.16
		std*	1.04	2.39	5.57	14.10	0.89	0.13
Gray Upland soils	2	mean	2.31	8.92	18.40	44.70	1.55	0.22
		std*	0.01	6.05	18.30	35.10	1.23	0.18

*std: standard deviation

ICP-MS による分析では、U、Th だけでなく他の微量元素も検出された。そこで他の元素の定量値と U、Th の値に相

関があるか比較した。Fig. 4 に希土類元素(ランタノイド)との相関を示した。この図から、Th は La や Ce といった



軽希土元素と比較的良好な相関を示した。しかし、同じ希土類元素でも Gd、Yb など重希土元素とは相関を示さなかった。このことは、Th、La、Ce といった元素はイオン半径が大きく、土壌の母材である岩石ができるときに同じような比をもって取り込まれたためと考えられる。一方、Gd、Yb などの重希土元素はイオン半径が小さいため、Th と異なった挙動をとる。U も Th と同様にイオン半径が大きいが、上述したとおり肥料からの混入があるため軽希土元素との相関はそれほど良くなかった。

Fig. 4. Scatterplot matrix for U, Th, La, Ce, Gd, Yb and Lu for 77 Japanese soils and their correlation coefficient

農作物の試料は、茨城県東海村周辺で採取し、同時に農作物が生育していた土壌もサンプリングした(後の章で述べるが、U、Thの土壌-植物移行係数の測定にも使用する)。凍結乾燥した後、米についてはそのまま、また、その他の試料については均一性を高めるためにミキサーにて粉碎した。米を粉碎しなかったのは、米中の元素濃度は特に低いためミキサーからの汚染が生じるのを防ぐためであった。また、米の試料量は1 gと多いため均一性もほぼ問題ないと考えられる。野菜試料等については試料量として0.1~0.3gを使用した。得られた分析結果をTable-8に示す。得られた分析値(乾燥重量)は、キャベツで U: 1.4ppb、

Th: 2.7ppb、ニンジンで U: 1.1ppb、Th: 4.2ppb、ヤマイモで U: 0.44ppb、Th: 3.0ppb であった。白米中の U、Th濃度はさらに低い傾向にあった。

低濃度の U、Th、I の分析法が確立したので、それを用いて六ヶ所村や東海村で採取した、地下水、河川水と湖沼水に含まれる U、Th の定量を行った(Table-9)。その結果、U濃度は2~2130ppt、Th濃度は0.4~8.7ppt、I濃度0.6~30ppbであった。特にUの濃度範囲は大きく、汽水湖である尾駱沼が特に高い値を示した。これは、汽水湖では海水が混じっており、海水中の高いU濃度を反映して尾駱沼で高いUの値が観測されたと考える。

Table 8 Analytical results of U, Th, Ce and La in vegetables and rice (ppb, on a dry weight basis)

Sample	Number of Determination	U *ppb*	Th *ppb*	Ce *ppb*	La *ppb*
Chinese cabbage	1	0.43	1.1	11.8	14.7
Cabbage	Mean (3)	1.36	2.7	19.3	24.1
Carrot	Mean (2)	1.12	4.2	13.4	15.5
Radish	1	0.37	4.0	4.2	8.9
Sweet potato	1	0.16	2.1	1.3	2.1
Spinach	1	2.44	3.0	36.8	68.6
Yam	Mean (2)	0.44	3.0	5.2	7.3
Rice	Median (15)	0.024	0.17	0.62	0.30
Leaf vegetables (Chinese cabbage, cabbage & spinach)	Mean	1.41	2.2	22.6	35.8
Root vegetables (Carrot & radish)	Mean	0.75	4.1	8.8	12.2
Potato (Sweet potato & yam)	Mean	0.30	2.6	3.2	4.7

Table 9 Analytical results of U and Th in water samples

	Number of samples	U (ppt)		Th (ppt)	
		Mean	Range	Mean	Range
River waters (Rokkasho-mura)	5	7.6	2.0 ~ 19	3.3	1.1 ~ 6.7
Ground waters (Rokkasho-mura)	7	74.0	5.0 ~ 137	2.1	0.4 ~ 8.0
Lake waters (Rokkasho-mura)	10	350.0	5.0 ~ 2130	3.4	0.8 ~ 8.7
Rain waters (Tokai-mura)	20	3.5	0.5 ~ 12	2.9	0.2 ~ 8.7
Rain waters (Hitachinaka, at coast)	12	6.2	1.8 ~ 16	2.7	0.7 ~ 8.6
Soil solutions (different areas) [soil : water=1 : 1]	11	30.0	1.5 ~ 110	34.0	4.0 ~ 174.0

3.1.3 プルトニウムの分析

環境中における Pu の濃度と動態を調べることは、原子燃料サイクルに係わる環境安全評価を行う上で大変重要と考えられる。我が国での環境試料(土壌など)の分析例としては山本らの報告がある(Yamamoto et al., 1983; 山本 1991)。Pu の分析は主として、アルファースペクトロメトリー法により行われているが、環境濃度は非常に低いため、分析操作に時間と手間がかかる。また、スペクトロメトリー法では、 ^{239}Pu と ^{240}Pu はエネルギーが近いので分離測定は難しい。本研究では、土壌試料を中心に分離濃縮法を検討し、ICP-MS を用い ^{239}Pu と ^{240}Pu の測定を行った。また、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比も求めた。

Pu は核燃料物質であるためたとえ極少量を使用する場合でも規制を受ける。そこで、装置の排気部分にはフィルターボックスを取り付け大気中へ移行しないようにする等の整備をし使用許可を得た。Pu の分離を以下の方法により検討した。まず、試料を 500°C で加熱し、有機物を分解した後、硝酸で抽出した。その溶液をイオン交換樹脂(Dowex 1x8)または抽出クロマトグラフィー(TEVA)に通し Pu の分離濃縮を試みた。収率トレーサーおよびスタンダードとして ^{242}Pu を用いた。測定には四重極型 ICP-MS(Yokogawa PMS-2000)を用いた。

本分析法による ^{239}Pu の検出下限値は、試料溶液中の濃度として、 0.07mBq/ml (または 0.03 ppt 程度)であった。実際の土壌では、試料 20g を用いた場合、 0.1mBq/g (乾燥)程度の濃度まで測定可能であった。IAEA が作成した種々の比較標準試料を分析した結果、推奨値としてあげられている $^{239,240}\text{Pu}$ の値と良い一致を示した。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比については、IAEA の試料では推奨値がなく、その他の試料でもデータが非常に少ない。

我が国で採取した土壌の分析例としては、秋田の森林土壌で、 ^{239}Pu : 0.84Bq/kg 、 ^{240}Pu : 0.52Bq/g 、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比 : 0.168 という値が得られた。また、茨城県の水田土では ^{239}Pu : 0.24Bq/g 、 ^{240}Pu : 0.16Bq/g 、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比 : 0.171 であった。さらに、長崎西山地区の表層土では、濃度的にはこれより 1 桁程高く、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は逆に 0.04 以下と低い値であった。これは、プルトニウム爆弾の影響のため低い同位体比を示したものと推定される。(プルトニウムの分析に関してはグループ研究等で続けている。)

今回の研究結果から見ても、環境中の Pu の分析に ICP-MS 法は大変有効と考えられ、今後、環境安全研究やモニタリングへの応用も期待できる。また、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比も測定できることから、Pu の汚染源の同定や環境動態の解明などにも利用可能である。

3.1.4 テクネチウム-99

テクネチウム-99 は純ベータ放出核種である。ベータ線のエネルギーが低い($E_{\text{max}}=292\text{keV}$) ためバックグラウンド放射線の影響を受けやすい。また、半減期が長いので放射能は低く、大量の試料を必要とするため、試料からの分離にも手間が掛かる。そのため、環境レベルでの測定例は世界的に見ても極限られている。そこで、放射能調査研究やグループ研究等の一環として、田上および内田らが ICP-MS 法を用いた分析法の開発を行った。本特別研究と

も関係するので、以下に分析法の概要と得られたデータを簡単に紹介する(Tagami & Uchida, 1993, 1995, 1996, 1997)。

供試料として土壌(表層土壌) $300\text{--}500\text{g}$ (乾)を用い、まずは有機物を分解するため電気炉で 450°C で灰化する。次に、燃焼装置に入れ酸素気流中で約 1000°C で加熱する。揮発してきた Tc を炭酸カリウムのトラップ溶液に捕集する。水溶液からテクネチウムを溶媒抽出法(シクロヘキサン)により分離する。それを逆抽出し、最終的には硝酸酸性溶液として ICP-MS (Yokogawa, PMS-2000)を用い測定した。検出下限値として、 0.03mBq/ml (0.05 ppt) という低い値まで測定できることが分かった。この方法を用い、田上および内田らが日本の土壌の分析を行っているところである。分析例としては、水田土壌で $0.02\text{--}0.11$ Bq/g (乾) というデータが得られている。

3.2. 長半減期核種の環境移行パラメータの設定

この章では、長半減期核種の環境移行を解明し評価するために必要な様々なデータ(パラメータ値等)について、本研究で得られた実験結果を中心にまとめる。

3.2.1 ヨウ素-129

ヨウ素は必須元素であり、甲状腺の機能に重要な役割を果たしている。放射性ヨウ素を体内に取り込んだ場合、甲状腺に濃縮される。放射性ヨウ素の環境中における挙動と人への移行経路を調べることは、再処理施設から放出される核種の環境安全を評価する上で重要である。特に、 ^{129}I は長半減期核種であるため長期的な視点から環境中での挙動を評価する必要がある。しかし、ヨウ素は種々の化学形をとるため、環境中での挙動は複雑であり、知見が充分得られているとは言えない。

ヨウ素-129 の環境中から人への移行を評価する場合、主として次の経路を考える必要がある。

- (1) 土壌 \Rightarrow 農作物 \Rightarrow 人
- (2) 大気 \Rightarrow 農作物 \Rightarrow 人
- (3) 大気 \Rightarrow 牧草 \Rightarrow 牛乳 \Rightarrow 人

この中で、(1)の土壌から農作物については、今まで対象とした核種は半減期が8日の ^{131}I であったため、土壌が汚染されても数カ月間放置する事により ^{131}I は減衰するので、土壌は再び農作物の栽培に利用できる。そのため、ヨウ素の土壌から農作物への移行に関するデータは必要とされなかった。しかし、 ^{129}I の場合は、半減期が長いので時間が経っても放射能の減衰は期待できないので、土壌から農作物への移行を評価しなければならない。その目的で使用されるパラメータとして、土壌-植物間移行係数(Transfer Factor : TF)があげられる。土壌中での挙動を知るためのパラメータとしては、土壌-溶液間の分配係数(Kd)が大切である。また、本研究を行っていく中で土壌-植物系からヨウ素が大気中へ揮散することが明らかになったので、その点についても考察を加える。

上述(2)の大気から農作物への移行を評価する上で大切なパラメータは、沈着速度(Deposition Velocity)である。また、これに関連して、大気から牧草への沈着速度も西欧など牛乳や乳製品の消費量が多い国々では重要であるとみなされている。しかし、日本においては、乳製品の消費量

は西欧に比べ大きく下回るため、他の農作物への沈着経路の方が大切と考えられる。葉菜への沈着係数は我が国においても、Nakamura & Ohmomo (1980)が求めている。主食である米については、前回の特別研究で基礎的なデータを得た。本研究では、以前のデータも含めまとめる。

3.2.1.1 土壌-植物移行係数

土壌から農作物への放射性核種(又は安定元素)の移行を推定するためのパラメータとして最も重要なものは、土壌-植物移行係数(Transfer Factor: TF)である。これは、植物中の放射性核種(又は安定元素)の濃度を土壌中の濃度で割った値として定義される。¹³¹I の場合は、土壌が汚染されたとしても、半減期が短いことからしばらく放置し減衰を待つことができる。¹²⁹I は半減期が非常に長く、また、上述したように土壌に濃縮する傾向があるため、土壌から植物への移行に関するデータを得ることはとても大切である。ヨウ素の移行係数についての情報はそれほど多くない。筆者等は、放医研東海施設のバイオトロンを用いて、¹²⁵I をトレーサーとして土壌に添加し、各種植物への取り込みに関する RI トレーサー実験を行った(Muramatsu et al. 1989; Muramatsu et al. 1993; 1995; 村松 1996)。実験に使用した土壌は、野菜では畑土として最も一般的な黒ボク土であり、水稲については、黒ボク土以外にも水田土壌として一般的な灰色低地土も用いた。

得られたデータを Table-10 にまとめる。キャベツやコマツナなどの葉菜の移行係数は 0.01 前後であり、IAEA (1982)の農作物可食部一般についての値である 0.02 と同程度であった。しかし、米(白米)への移行係数は 0.002 と 1桁低かった(玄米の値は 0.006)。我が国の場合農作物に占める米の割合が多いことから、もしも、IAEA の値(農作物一般に対する)を用いるとすると、過大評価につながる。

また、イモ類ではさらに低い値が認められた。このように移行係数が植物の種類により大きく異なることから、農作物の可食部に種類ごとの値を設定することが、精度の高い安全評価を行う上で必要であろう。また、土壌の種類も移行係数を左右する重要なファクターの一つである。黒ボク土は前に述べたように、ヨウ素に対する吸着力が高いため、畑植物への移行係数は灰色低地土などに比べて小さい傾向にある。しかし、水田においては、還元作用が関係するため両者の土壌では大きな差はなかった。

土壌から植物への元素の取り込みは、土壌溶液中の濃度と関係すると考えられる。水稲を栽培する過程での土壌溶液中の放射性ヨウ素濃度の変化を調べた(Muramatsu et al. 1989; 1996a)。その結果、栽培初期は、添加したヨウ素のトレーサー(¹²⁵I)のほとんどが土壌に吸着され、土壌溶液中の濃度は低かった。しかし、水稲の成長と共に ¹²⁵I の濃度が増加することが認められた。この土壌溶液中の ¹²⁵I 濃度の変化は、Eh(酸化還元電位)の低下と関係していることが明らかになった。一方、比較として同時に設置した無作付の土壌(稲を植えず水のみ加えた)では、顕著な ¹²⁵I の濃度の増加は見られなかった。また、稲わらやグルコースなど微生物の栄養となる物質を加えた無作付土壌では、微生物の活動により酸素が消費され酸化還元電位の急激な低下が認められた。Eh の値が下がることが土壌溶液中にヨウ素が溶け出す原因と推定される。これらのことから、湛水状態で稲を植えることで微生物の根圏域の活動が盛んになり、土壌の還元状態が発達し、その結果、土壌に吸着した ¹²⁵I が溶出すると考えられる。水田土壌では、湛水状態で水稲の栽培を行うことから、土壌中のヨウ素は溶け出し易くなり、そのことが前述した水田土壌中のヨウ素濃度が低い原因になっていると思われる。又、稲を刈り取ることで水田土壌からヨウ素が取り除かれる効果もある(Uchida & Muramatsu 1995)。

& Muramatsu 1995)。

放射性ヨウ素の植物への経根吸収は、その化学形態により大きく異なる。水耕栽培により ¹²⁵I⁻と ¹²⁵IO₃⁻ のコマツナへの取り込みを見たところ、I⁻の方が IO₃⁻ の形態に比べて数倍以上取り込まれ易いことが分かった²⁹⁾。また、I⁻について見ると、植物が若い時期のほうが濃縮率は高く、一方、IO₃⁻では植物の生育段階による差はそれほど大きくなかった。

3.2.1.2 土壌への吸着

土壌中でのヨウ素の移行のし易さ、つまり吸着の程度は土壌-溶液分配係数(distribution coefficient, Kd)で表すことができる。この Kd (l kg⁻¹)は、「土壌中の核種濃度」を「土

Table 10 Transfer factor (TF) and transfer velocity* (preliminary) of iodine for agricultural crops (on a wet weight basis)

	Crops	TF	Cultivation period (day)	Transfer velocity*
Cereals	Rice (unpolished)	0.006	120	5.0E-05
	Rice (polished)	0.002	120	1.7E-05
Leaf vegetables	Cabbage	0.0016	60	2.7E-05
	Chinese cabbage	0.0013	60	2.2E-05
	Spinach	0.0022	50	4.4E-05
	Komatsuna	0.012	40	3.0E-04
Fruit vegetables	Tomato	0.0003	90	3.3E-06
Root vegetables	Carrot	0.0009	60	1.5E-05
	Burdock	0.0005	60	8.3E-06
Potatoes	Sweet potato	0.0002	90	2.2E-06
	Yam	0.0003	100	3.0E-06
Beans	Soybean (dry)	0.0029	100	2.9E-05
IAEA(1982)	Different crops	0.02	(no data)	

*Transfer velocity (activity ratio per day) was defined as "TF" divided by "whole cultivation period".
However, the values are still preliminary.

壤溶液中の核種濃度」で割った値である。ヨウ素の Kd を、バッチ実験法により、I⁻ と IO₃⁻ の 2 つの化学形について調べた我が国の農耕地土壌 68 試料で Kd を実験的に求めた結果を Table-11 に示す (Yoshida & Muramatsu 1998)。範囲は、I⁻ で 1.1~10200 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 、IO₃⁻ で 2.1~8210 $\mu\text{g kg}^{-1}$ と大きな幅があることが分かった。中央値は、I⁻ で 525

$\mu\text{g kg}^{-1}$ 、また、IO₃⁻ で 437 $\mu\text{g kg}^{-1}$ であった。土壌の種類では、黒ボク土で高い値がみられ、続いてグライ土、褐色森林土であった。また、砂質土は I⁻ も IO₃⁻ も大変低く、平均値では 20 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 以下であった。なお、黒ボク土の中央値は、I⁻ で 1610 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 、IO₃⁻ で 1480 $\mu\text{g kg}^{-1}$ であった。

Table 11. Distribution coefficients (K_d ; $\mu\text{g kg}^{-1}$) and sorption percentages (%) of different types of Japanese soils for I⁻ and IO₃⁻

Soil type	n	K_d - I ⁻		K_d - IO ₃ ⁻		Sorption % - I ⁻		Sorption % - IO ₃ ⁻		
		wet	auto-claved	wet	auto-claved	wet	auto-claved	wet	auto-claved	
Andosols	20	Median	1610.0	4.3	1480.0	19.5	98.9	20.1	98.8	52.9
		Mean	2580.0	8.7	2220.0	22.0	97.5	23.3	96.9	52.0
		Std	2880.0	17.8	2460.0	14.8	3.7	15.1	4.4	12.9
Gray Lowland soils	14	Median	413.0	2.0	412.0	7.2	96.9	12.3	97.0	36.2
		Mean	473.0	2.3	440.0	8.3	92.7	14.4	92.9	36.4
		Std	401.0	1.5	320.0	4.6	0.8	4.3	1.2	9.2
Red and Yellow soils	10	Median	209.0	1.6	217.0	19.7	94.1	9.1	94.3	61.6
		Mean	493.0	1.8	366.0	43.8	92.2	10.7	87.3	58.0
		Std	689.0	1.1	484.0	57.8	5.9	6.9	13.4	25.6
Gley soils	5	Median	1540.0	2.2	1190.0	9.0	99.0	12.2	98.7	35.9
		Mean	1580.0	2.2	1060.0	8.1	96.3	11.9	95.0	33.4
		Std	1220.0	1.2	943.0	3.4	6.0	5.0	6.5	8.6
Brown Forest soils	3	Median	1290.0	4.8	1120.0	48.9	98.9	24.8	98.8	77.3
		Mean	1210.0	4.7	1060.0	43.4	92.0	31.7	91.3	65.6
		Std	251.0	0.2	345.0	26.0	25.4	15.2	25.0	23.3
Sand-dune Regosols	3	Median	8.5	0.7	7.9	3.0	43.8	0.5	42.6	22.1
		Mean	16.0	0.7	14.1	4.1	43.9	3.9	45.2	26.5
		Std	19.9	0.9	16.1	3.1	34.5	6.3	29.2	14.7
Volcanogenous Regosols	2	Mean	3180.0	17.1	1040.0	383.0	99.2	38.6	97.5	91.2
Peat soils	1		5590.0	11.4	5650.0	13.4	99.2	20.1	99.2	23.1
Others or unknown	10	Median	230.0	1.3	133.0	10.7	94.4	7.5	90.3	45.8
		Mean	264.0	2.3	207.0	11.9	88.9	12.3	87.1	42.8
		Std	205.0	3.3	232.0	7.3	3.0	19.6	5.9	16.0
All samples	68	Median	525.0	2.4	437.0	12.4	97.4	13.9	96.8	48.0
		Min	1.1	0.1	2.1	1.8	9.5	0.0	17.4	14.5
		Max	10200.0	83.3	8210.0	616.0	99.8	75.2	99.8	94.9
		Mean	1310.0	4.8	1070.0	30.5	92.1	16.8	90.9	47.4
		Std	1980.0	10.5	1690.0	78.5	14.1	12.5	14.3	19.8
	Geometric mean	451.0	2.4	361.0	13.6	89.6	13.4	89.0	43.2	

吸着に及ぼす pH の影響を調べたところ、pH が低いほうが吸着し易いことが認められた。

土壌を前処理として、オートクレーブにかけたり加熱すると、I⁻ の Kd の値は大きく減少する現象が見られた。このことから、吸着に熱を加えることにより変化するもの、つまり、土壌中の微生物やそれらが出した酵素などが関与している可能性もある (Muramatsu et al. 1990b)。

黒ボク土は火山灰を母材とした有機物に富んだ土壌で、我が国の畑地に占める割合が一番大きい。上に述べたように、ヨウ素 (I⁻ 及び IO₃⁻) に対し高い吸着力を示すことから、雨水等降下物により土壌表面に加わったヨウ素は安定・放射性同位体を問わず表層土壌に保持され易いと考えられる (Muramatsu et al. 1990b; Yoshida et al. 1992)。

雨水を通じて土壌に加わるヨウ素の量を以下の通り推定

した。筆者等の雨水の分析結果 (茨城における 1 年間の平均) よりヨウ素濃度は雨水中で 1.8ppb、それに年間降水量 1400mm (水戸における値) を掛け合わせると、1cm² 当たりの年間のヨウ素の湿性沈着量は約 250 ng となる。表層土壌へのヨウ素の沈着経路としてはこのほかに、ガス状ヨウ素が植物に乾性沈着して、それが土壌に加わる経路が考えられる。黒ボク土の生成過程で、ススキの草原ができ有機物が蓄積したと考えて、大気中のヨウ素濃度 (I₂: 2.7 × 10⁻⁶ ng cm⁻³、CH₃I: 14 × 10⁻⁶ ng cm⁻³)、ススキについて推定した沈着速度 (稲の葉の値から推定すると、I₂: 0.6 cm s⁻¹、CH₃I: 0.006 cm s⁻¹)、ススキの生育期間 (5 ヶ月) より乾性沈着量を試算したところ 1cm² 当たり約 20mg となった。この値は、湿性沈着の推定値の約 8% であり、土壌へのヨウ素の蓄積は降水を通じての湿性沈着経路からの寄

与のほうが大きいと思われる。ただし、エアロゾルやダストなどに吸着したヨウ素についてはここでは考慮していないが、例えば、森林などトラップ効果がある場合については無視できないと思われる。

3.2.1.3 土壌-植物系からのヨウ素の揮散

土壌に添加した放射性ヨウ素が植物を通じて大気中に揮散することが認められた (Muramatsu et al. 1989; Muramatsu & Yoshida 1995b)。ポット栽培では、添加した放射性ヨウ素の約 8% が栽培期間中に大気中に放出された。土壌に添加した化学形は無機形 (I⁻) であったが、揮散した形態は有機形に変化していた。さらに詳しい化学形をガスクロマトグラフィー法により調べたところ、化学形は主として CH₃I であることが明らかになった。揮散量を水稲とオート麦で比べた結果を Fig. 5 に示す。図から分かるように湛水状態で栽培した水稲からの揮散のほうが畑状態で栽培したオート麦 (エンバク) に比べ 1 桁以上高かった。揮散量は開花期の少し前が特に高い傾向にあった。

無作付の土壌からの揮散も認められたが、植物を植えたほうが顕著に高いことが分かった。無作付でも、湛水状態の土壌からのほうが畑状態のものより揮散量は大きかった。CH₃I の水田における生成過程は次の様に考える。稲の生長とともに、土壌に吸着していたヨウ素 (I⁻ 又は IO₃⁻) が溶け出す。土壌微生物の作用により (又は methyl halide transferase 等の酵素の働き) CH₃I が作られ、それが、水稲の根で吸収され、茎を通じて大気中に出て行く と推定される。上述の CH₃I の揮散の図は、水稲からのメタンの発生のパターンとも似ており、何らかの関係があるかと思われる。ヨウ素の植物からの揮散経路は、今までは殆ど無視されてきた。しかし、水田や湿地帯における放射性ヨウ素の移行を解析・評価する上で無視できないと考える。

土壌中ヨウ素がメチル化され、有機ヨウ素となり土壌-植物系から大気中に揮散する量を実験結果から見積もった。水田からのヨウ化メチルの平均的な放出量の推定値は、年間、1 平方メートル当たり 18mg という値が得られた。

3.2.1.4 大気から植物への沈着

ガス状ヨウ素の植物への沈着の程度を表すパラメータとして、沈着速度 (Deposition Velocity) が用いられている。沈着速度には単位面積の土地に生育する植物への沈着量で表す V_g と、単位重量当たりで表す V_D がある。牧草など地表を覆っている植物に関しては、地表の面積当たりで表す V_g が適しているが、葉菜等に関しては栽培密度なども場所により大きく異なることから、V_D を用いる方が良いと考えられる。また、穀類などは V_D の他にも粒当たりの沈着速度 (V_s) で表すこともある。Table-12 にそれらをまとめる (Uchida et al. 1988; 1991; Muramatsu et al. 1996b)。V_g、V_D、V_s は栽培密度や粒当たりの重量を加味することにより変換できる。

欧米では、放射性ヨウ素の汚染経路として、大気⇒牧草⇒牛乳⇒人が重要視されており、牧草への沈着速度に関するデータが多く出されている。前にも触れたが、我が国の場合は、欧米に比べ乳製品の摂取量が少ないため、牧草ではなく、米や野菜等の農作物からの経路が重要である (Nakamura & Ohmomo 1980)。¹³¹I (半減期: 8 日) による汚

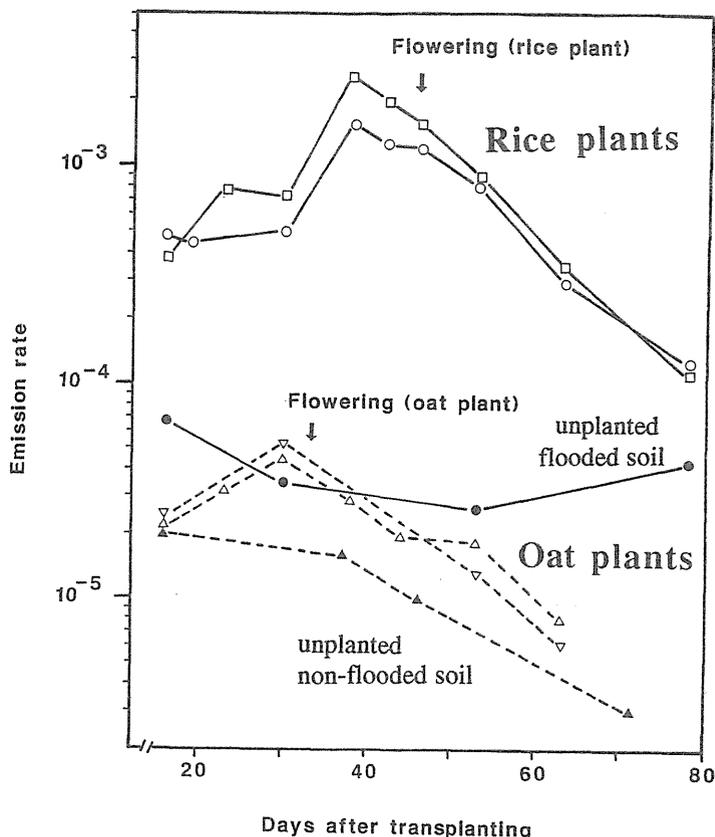


Fig. 5

Variation of organic iodine emission rate with time from rice (○, □) and oats (△, ▽) plants, unplanted flooded soil (●) and unplanted non-flooded soil (▲)

Table 12. Definition of deposition velocities (V_g, V_s and V_D) used in this study.

$$V_g (\text{cm s}^{-1}) = \frac{\text{Amount of iodine deposited on plant grown per unit area of ground}}{\text{Iodine concentration in air} \times \text{exposure time}}$$

$$V_D (\text{cm}^3 \text{g}^{-1} \text{s}^{-1}) = \frac{\text{Amount of iodine deposited on unit weight of plant}}{\text{Iodine concentration in air} \times \text{exposure time}}$$

$$V_s (\text{cm}^3 (100 \text{ grains})^{-1} \text{s}^{-1}) = \frac{\text{Amount of iodine deposited on unit grain number}}{\text{Iodine concentration in air} \times \text{exposure time}}$$

染の場合、米は保存がきくため半減期の短い ¹³¹I は数カ月放置すれば減少してしまう。そのため、米へのヨウ素の沈着速度に関するデータを取る必要はなかった。しかし、¹²⁹I に関しては半減期が長いので保存することによる減少は期待できない。また、我が国の場合米の摂取量が多いため、米からの寄与を把握しておくことが大切である。

そこで、筆者らは、CH₃I 及び I₂ の水稲への沈着速度を放牧研那珂漢支所にあるヨウ素チェンバーを用いて調べた。前特研でも米への沈着速度に関するデータを取ったが、今回は新たに得られたデータも合わせてまとめる (Table-13)。この表から見ると、単位重量当たりの水稲の籾への沈着速度 (V_D) は、CH₃I (0.005 cm³ g⁻¹ s⁻¹) のほうが I₂ (0.15 cm³ g⁻¹ s⁻¹) に比べてはるかに小さいことが分かる。つまり、

ヨウ素の化学形の違いにより水稻の籾に沈着する量が大きく異なり、 I_2 のほうが CH_3I よりも数百倍沈着し易い。Nakamura & Ohmomo (1980)によると、ハウレン草など葉菜の場合も、 I_2 のほうが CH_3I よりも 2 桁ほど沈着速度が大きい。

Table-13 Deposition velocities for CH_3I and I_2 to rough rice during the fruiting stage (mean value)

Chemical species	V_D $cm^3 g^{-1} s^{-1}$	V_s $cm^3(100 \text{ grains } s)^{-1}$	V_g $cm s^{-1}$
CH_3I	0.00048	0.00090	2.7×10^{-5}
I_2	0.15	0.44	8.7×10^{-3}

次に、籾内での分布を Table-14 に示す。 I_2 で曝露した場合、沈着したヨウ素のわずか 2 %程度が白米に存在し、ほとんどが籾殻に付着していることが分かった。一方、 CH_3I の場合は、平均 38%が白米に存在していた。白米に入る割合は、曝露時期によっても異なり、糊熟期の後半の方がそれ以前よりも大きいことが認められた。これは、籾が熟して乾いてくると表面にヒビが入り、中に浸透する割合が大きくなることに原因すると考える。

Table-14 Distribution ratio of iodine in rice grains exposed to CH_3I and I_2 during the fruiting stage (mean value)

Chemical species	Distribution ratio of iodine in rice grains		
	Rough rice	Brown rice	Polished rice
CH_3I	1.0	0.49	0.38
I_2	1.0	0.05	0.02
Weight ratio	1.0	0.82	0.72

以上のことから、水稻の籾でも葉菜においても沈着速度はの方が CH_3I よりも 2 桁またはそれ以上大きいことが明らかである。籾については、可食部である白米まで浸透する割合がヨウ素の化学形によって大きく異なり、白米に入る割合は、沈着速度とは逆に、 CH_3I の方が I_2 よりも 20 倍近く大きいことが分かった。大気中でのヨウ素の化学形態を把握しておくことが、植物への沈着量を精度良く推定する上でも大切である。

3.2.2 テクネチウム-99

テクネチウムの種々の野菜及び米への移行係数に関する研究は、柳澤が中心になり ^{95m}Tc を用いたトレーサ実験により進めた (Yanagisawa and Muramatsu 1993; 1995; 1997)。詳しい実験方法や得られた値についての詳細は、

柳澤の文献を参照されたい。ここでは、結果の概要のみについて述べる。

各種野菜について得られた移行係数を Table-15 に示す(前回の特別研究で得られたデータも一緒にまとめた)。レタスの移行係数は他の農作物と比較して高い値が得られた。すでに求められている他の葉菜の移行係数と比較するとハウレンソウ(2.4)あるいはコマツナ(1.1)に近い値であった。果菜類ではピーマン(0.03)、ナス(0.01)およびインゲン(0.02)ではほぼ同程度の移行係数が得られた。これらは以前の研究で得られているトマトの移行係数 0.03 と良く一致した。本研究で得られたハナヤサイの移行係数は 0.1 であり、レタスのような葉菜よりは低い値であった。芋を可食部とする作物についてはサトイモでは 0.09 およびナガイモでは 1 であった。これらと以前に得られたサツマイモの移行係数(0.03)と比較するとナガイモの移行係数がほかの芋よりも高いことが示唆された。ダイズでは完熟した種子を採取したために生物重量にもとづいた移行係数は求められなかったが、インゲンの乾/生比より推定するとインゲンよりも高い値である。

陸稲と水稻の玄米における移行係数を比較すると、前者の方がはるかに大きいことが認められた。これは水稻では湛水するために土壤の還元化が進み、7 価の過テクネチウム酸イオン(TcO_4^-)として添加したテクネチウムが還元されて 4 価の水に不溶性の化学形に変化し、イネに吸収されにくくなったためであろうと考える。畑では還元状態が水田のように進まず、テクネチウムは水溶性(TcO_4^-)で土壤溶液中に存在するため、陸稲には吸収され易い。その結果陸稲の移行係数が高くなったと考えられる。

土壤に添加したテクネチウムの大部分が土壤に固定される理由としては土壤有機物質との結合、 TcO_2 等への変化に伴う沈殿、および微生物の作用による固定などが考えられる。遠心管に灰色低地土を 20g、 $^{95m}TcO_4^-$ 、グルコース 10mg および水 40ml を加えて 2 ヶ月間培養した後、水溶性のテクネチウムを遠心分離してゲル濾過クロマトグラフィーで分析した。その結果、湛水土壌の土壤溶液中に存在するテクネチウムは水溶性土壤有機物との結合体として存在することが示唆された。黒ボク土と比較して灰色低地土の方が土壤溶液中のテクネチウム濃度が高いのはテクネチウムと結合する水溶性有機物の濃度が高いことによると考えられる。水田土壤におけるテクネチウムの挙動を考える場合、テクネチウム-土壤有機物結合体の生成とイネへの移行は極めて重要であるが土壤-植物系における挙動は殆ど研究されていないため、今後その点についても研究を進める必要がある。

3.2.3 その他の長半減期核種

核種が土壤から植物へ取り込まれる割合(移行係数)を調べる方法として、RI トレーサ実験の他に、元素分析による方法がある。つまり、土壤とそこで栽培された植物(農作物)を採取し、それぞれに含まれる元素の分析を行い、その結果より移行係数(TF)を求める方法である。

ここでは U、Th と Ce について得られたデータをまとめる。(Ce は Pu と化学的挙動が似ており、Pu のアナログとしてしばしば用いられている。) 前の章で、東海村で採取した植物及びそれが生育した土壤の分析を ICP-MS で行っ

Table 15 Transfer factor (TF) and transfer velocity* (preliminary) of Tc for agricultural crops (on a wet weight basis)

	Crops	TF	Cultivation period (day)	Transfer velocity*
Lowland rice	Unpolished rice	0.00005	120	4.2E-07
	Unpolished rice (Gray lowland soil)	0.0006	120	5.0E-06
Upland rice	Unpolished rice	0.02	120	1.7E-04
Leaf vegetables	Cabbage	0.3	60	5.0E-03
	Chinese cabbage	0.1	60	1.7E-03
	Spinach	2.4	50	4.8E-02
	Komatsuna	1.1	40	2.8E-02
	Lettuce	5	70	7.1E-02
	Seri	0.4	50	8.0E-03
	Seri (Gray lowland)	0.07	50	1.4E-03
Fruit vegetables	Tomato	0.03	90	3.3E-04
	Egg plant	0.01	90	1.1E-04
	Sweet pepper	0.03	90	3.3E-04
Root vegetables	Carrot	0.3	60	5.0E-03
	Burdock			
	Onion	0.05	90	5.6E-04
Potatoes	Sweet potato	0.03	90	3.3E-04
	Taro	0.09	100	9.0E-04
	Yam	1	100	1.0E-02
Beans	Soybean (dry)	0.8	100	8.0E-03
	Kidney bean	0.02	70	2.9E-04
IAEA (1982)	Different crops	5	(no data)	-

*Transfer velocity (activity ratio per day) was defined as "TF" divided by "whole cultivation period". However, the values are still preliminary.

についての作物/土比(移行係数値)が求まった。得られた値を作物の可食部のタイプによりまとめて平均を取ったところ以下のような(詳しくは Table-16 を参照)。つまり、葉菜類では U:0.0005、Th:0.0005、根菜類では U:0.0002、Th:0.0008、芋類では U:0.0001、Th:0.0005 であった。多くの元素に関して移行係数値は、白米 < イモ類 < 根菜類 < 葉菜類の順に大きい傾向にある。しかし、ここにはデータは示していないが、Zn については、白米の値も比較的大きい。これは、Zn は種や植物の若い部分に多いことが知られており、白米に多いのもそのことに関係しているのであろう。

U、Th、Ce などについては、土壌の全分析を行っているため、粘土鉱物内の元素の寄与も含まれており、トレーサー実験で得られる値より小さい傾向にあると思われる。しかし、その効果を加味しても U、Th、Ce の米への移行は非常に小さいと言えよう。U や Pu などアクチニド元素は、還元状態で原子価数が下がり不溶化するため、特に水田土壌など微生物の活動により還元状態が発達した(Eh が低い)環境では、土壌溶液への溶解も低下し、それが水稲への移行係数が低いことの一因となっていると考える。つまり、還元状態では土壌中での移動や植物への移行

が低下すると予想される。(上で述べたが、ヨウ素の場合は逆に還元状態が進むと土壌中で動き易くなる。)

たが、そこで得られた分析値より移行係数を計算で求めた。つまり、植物中の U (または Th) の濃度を土壌中の(または Th) の濃度で割った値である。

Table-16 に作物/土比(移行係数に相当)を計算した結果を示す。米の中の U、Th 等の元素濃度と土壌中のそれとの関係を調べたところ、U、Th 及び Ce について見ると、土壌中の含有量と米の中の濃度とは必ずしも良い相関を示しているとは言えない。しかし、ばらつきは大きいものの、他の元素(Zn などの必須元素等)と比べると、米/土比(TF 値に相当)は非常に小さい(U:0.00001, Th:0.00003, Ce:0.00002)。このことから、土壌中の U、Th などのアルファ核種、及び、Ce などの Pu と挙動が似ている元素の土壌から植物への移行は大変低いことが確認できた。これらの結果から推定すると、アルファ核種の土壌から米(精白米)への移行係数(TF)は 0.0001 程度またはこれ以下といえよう。

野菜等については、ホウレンソウ、キャベツ、ハクサイ、ダイコン、ニンジン、サツマイモ、サトイモで U と Th に

4. 移行速度

今回の環境特別研究の中課題 [1] のグループは、環境移行・線量推定コード設定のために必要なパラメータのデータベースを作成することが目標の一つであったが、中課題 [2] のグループは現在のところデータが非常に少ない長半減期核種を扱うためデータベース作成までは目的としていなかった。しかし、せっかくデータが得られたのでそれを用い、パラメータ(移行速度)を計算しまとめた。

しかし、土壌から農作物(植物)への移行速度(Transfer velocity)を求めるに当たっては次に述べるような大きな問題があった。土壌から農作物への移行は通常、移行係数(Transfer factor, TF)で表す。つまり、移行係数とは、収穫時における「農作物中の放射性核種の濃度」を「土壌中の放射性核種の濃度」で割った値(比)で表す。しかし、移行速度とは時間の関数であるため、時間当たりの移行量

が表せなければならない。ここでは、土壌から農作物(植物)への移行速度は、「移行係数」を「栽培期間」で割った値とした。葉菜類は地上部を殆ど食用とできるのでこれでよいと思われる。しかし、水稻に関しては、米粒が出来るのは栽培期間の後半であり、土壌からの直接移行と茎葉部に蓄積していた放射性核種の移行も考えられる。また、トマトなどの果菜では栽培の後半に何度も収穫できる。このようなことから、栽培期間は最初からなのか又は可食部が出来る期間のみなのか決めかねる。ここでは、前者の全栽培期間を用いて移行速度を試算した。

土壌から農作物(植物)への移行速度の計算結果は、ヨウ素については Table-10 の右のカラム、テクネチウムについては Table-16 の右のカラムに示す。これらはいくまでも試算で得られた値であり、実際の使用に当たっては上記の問題点を考慮に入れなければならない。

また、ガス状放射性核種(I_2 , CH_3I の化学形)の大気から水稻(米)への移行速度は沈着速度(Deposition velocity)と同じであり、Table-13 に示してある。

(A)沈着速度: Table-13 を参照

(B)移行速度: Table-10 と Table-16 の右のカラムを参照

(C)揮散: 3.2.1.3 を参照

— : データが無い

5. 結論

長半減期核種の陸圏における分布と挙動に関するデータは非常に少ない。そこで、本研究では、 ^{129}I 、U、Th、Pu、 ^{99}Tc について環境試料に適応可能な分析法を検討した。それらの方法を用い実際の環境試料の分析データを出し、環境中での分布についての情報を蓄積した。また、環境中での核種の挙動を理解するための RI トレーサー実験を行った。その結果、土壌-植物-大気系を中心に移行メカニズムに関する多くの知見が得られた。そして、陸圏における核種の挙動(移行)を理解しまた評価する上で必要なパラメータ値を設定した。

以下に、分析データとパラメータ値について得られた主な結果をまとめる。また、今後の課題についても記す。

(a) ヨウ素-129

放射化分析法を用い、土壌等の試料で ^{129}I をフォールアウトレベルまで測定可能な方法を確立できた。この分析法は、平成 8 年に出された科学技術庁「放射能測定シリーズ 26」に ^{129}I の分析法の一つとして採用された。

分析データとしては、東海村及び周辺で採取した、土壌、松葉、雨水、海藻についての値が得られた。他の地域で採取した試料を分析した結果と比べると、東海村の値は高い傾向にあった。しかし、一番高い濃度を示した東海村の土壌の値でも 0.18Bq/kg 程度であり、Cs-137 の値と比べても極低い値であった。ただし、ヨウ素は土壌に吸着する傾向にあるので今後も調査を行う必要がある。

安定ヨウ素についても土壌、水試料および大気について多くの分析データが得られた。これらは、 ^{129}I のアナログとしても利用できるであろう。

ヨウ素-129 の環境移行パラメータとしては次の値が得られた。

Table 16. Plant/soil concentration ratios of U, Th, Ce and La for vaegetables and rice (on a dry weight basis)

Plant		U Ratio	Th Ratio	Ce Ratio	La Ratio
Chinese cabbage	1	0.00014	0.00022	0.00045	0.00109
Cabbage	Mean (3)	0.00044	0.00055	0.00074	0.00179
Carrot	Mean (2)	0.00036	0.00086	0.00051	0.00115
Radish	1	0.00012	0.00083	0.00016	0.00066
Sweet potato	1	0.00005	0.00042	0.00005	0.00015
Spinach	1	0.00079	0.00061	0.00141	0.00508
Yam	Mean (2)	0.00014	0.00063	0.00020	0.00054
Rice	Median (15)	0.000009	0.000032	0.000021	0.000014
Leaf vegetables (Chinese cabbage, cabbage & spinach)	Mean	0.00046	0.00046	0.00087	0.00265
Root vegetables (Carrot & radish)	Mean	0.00024	0.00084	0.00034	0.00090
Potato (Sweet potato & yam)	Mean	0.00010	0.00053	0.00012	0.00035

土壌-植物移行係数 (TF)

水稻(玄米) :	約 0.006
水稻(白米) :	約 0.002
葉菜類:	約 0.01
果菜類:	約 0.003
根菜類 (芋類を含む) :	約 0.005

なお、移行速度についての行列(マトリクス)は以下のよう考える。

コンパートメント	大 気	土 壌	植 物
大 気		—	(C) 揮散
土 壌	—		—
植 物	(A) 沈着速度	(B) 移行速度	

土壌-溶液分配係数 (Kd)

我が国の農耕地土壌 68 試料で Kd を実験的に求めた結果以下の通りであった。

範囲:	I ⁻	1.1~ 10200 ℓ kg ⁻¹
	IO ₃ ⁻	2.1~ 8210 ℓ kg ⁻¹
中央値:	I ⁻	525 ℓ kg ⁻¹
	IO ₃ ⁻	437 ℓ kg ⁻¹

黒ボク土で高い値がみられ、続いてグライ土、褐色森林土であった。また、砂質土は I⁻も IO₃⁻も大変低く、平均値では 20 ℓ kg⁻¹ 以下であった。なお、黒ボク土の中央値は、I⁻ で 1610 ℓ kg⁻¹、IO₃⁻ で 1480 ℓ kg⁻¹ であった。

沈着速度

I₂ と CH₃I とで沈着速度に大きな差が認められ、前者の方が後者に比べ 100 倍以上大きな値であった。

米(籾)への沈着速度(重量当たり)は次の通りである。

I ₂ :	0.15 cm ³ mg ⁻¹ s ⁻¹
CH ₃ I :	0.00048 cm ³ mg ⁻¹ s ⁻¹

また、籾内における白米部分へのヨウ素の分布は次の通りである。

I ₂ :	2%
CH ₃ I :	38%

土壌-植物系からのヨウ素の揮散

土壌中に加わった放射性ヨウ素がメチル化され、有機ヨウ素となり土壌-植物系から大気中に揮散することが認められた。水稲からの揮散が特に大きい。実験で得られた値から計算して、水田からのヨウ化メチルの平均的な放出量の推定値は以下の値である。

年間 1 平方メートル当たり: 18 mg

(b) ウランとトリウム

ICP-MS を用いることにより U、Th は溶液中の濃度として 1ppt 程度まで測定できる極微量分析法を確立することができた。

土壌、植物、水試料について U、Th の分析データが得られた。特に土壌については、日本各地で採取した土壌試料中の分析値を出し、我が国における U と Th の分布を知ることができた。また、U/Th 比の解析や他の微量元素(希土類元素など)との比較などより、農耕地の U 濃度は、リン酸肥料の添加によって不純物として含まれる U が加わり、濃度が上昇した可能性が指摘された。

U、Th については、農作物及びそれが生育していた土壌の分析値から移行係数を求めた。その結果、移行係数(濃度比)は、葉菜類では U:0.0005、Th:0.0005、根菜類では U:0.0002、Th:0.0008、芋類では U:0.0001、U:0.0005 であった。米(精白米)については U:0.00001、Th:0.00003 とともに非常に小さい値であった。

(c) プルトニウム

Pu の分析は、イオン交換などにより分離・濃縮した後、ICP-MS で測定する方法を開発した。従来行われていたような放射能測定法(アルファスペクトロメトリー)よりも簡便で、感度的にも同等又はそれ以上の結果が得られた。この方法の最大の利点は、Pu 同位体別に測定できることで

ある。つまり、²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比が求まり、汚染源の特定や、環境挙動の解明に役立つ。分析例としては、秋田の森林土壌で、²³⁹Pu : 0.84Bq/kg、²⁴⁰Pu : 0.52Bq/kg、²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比: 0.168 という値が得られた。また、茨城県の水田土壌では ²³⁹Pu: 0.24Bq/kg、²⁴⁰Pu: 0.16Bq/kg、²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比: 0.171 であった。さらに、長崎西山地区の表層土では、濃度的にはこれより 1 桁程高く、²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比は 0.04 以下と低い値であり、プルトニウム爆弾の影響が現れていた。

Pu の土壌から植物への移行については、Ce などの Pu と挙動が似ている元素で得られた分析データから推測すると、米(精白米)への移行係数(TF)は 0.0001 程度あるいはそれ以下といえよう。

(d) テクネチウム-99

試料を加熱し Tc を気化させトラップした後溶媒抽出法で分離濃縮し ICP-MS で測定する方法を確立した。従来のベータ線測定法に比べて、精度及び感度的に優れている。検出下限値として、0.03mBq/ml (0.05 ppt) という低い値まで測定できることが分かった。溶液中の濃度として 1ppt 程度まで測定できる極微量分析法を確立することができた。我が国の水田土壌について得られた分析値は、0.02~0.011Bq/kg である。現在さらにデータを増している(他の研究課題)。

RI トレーサ実験により得られた ⁹⁹Tc についての主なパラメータ値は以下の通りである。

土壌-植物移行係数 (TF)

米(水稲玄米)	0.00005~0.0002
米(陸稲玄米)	0.006~0.02
葉菜	0.1~5
果菜	0.03~0.1
根菜(芋類を含む)	0.03~1

畑地ではテクネチウムは可溶性の 7 価で存在するため野菜に取り込まれやすいと推定される。一方、水田のような湛水状態になっている土壌では還元状態が進んでおり、テクネチウムは 7 価から 4 価に還元され不溶性になるため、水稲に取り込まれにくいと考える。

また、⁹⁹Tc の土壌から植物への移行メカニズムを調べる研究も行った。

コンパートメント間の移行速度を試算した結果を「4. 移行速度」の章にまとめた。(結論の中には値は記していない。)栽培期間の取り扱いなどいくつかの問題点があり、実際の使用に当たっては注意が必要である。

以上述べたように、長半減期核種である ¹²⁹I、U、Th、⁹⁹Tc、Pu について、環境中での分布と挙動を推定するための様々なデータを、本研究を通じて得ることができた。本研究で得られた移行パラメータは、我が国の特性に合った現実的な安全評価を行う上で活用できると考える。特に、水稲への核種の移行や水田における挙動に係わるデータは有効利用が期待される。米への移行係数は多くの核種において野菜などよりも小さい傾向にあることが明らかになった。我が国の場合農作物に占める米の割合が多いことから、もしも、IAEA (1982) などの推奨値(農作物一般に対する)を用いるとすると、過大評価につながる可能性がある。水稲に関するデータは諸外国では殆ど出されていないため、

アジアの国々にも有益な情報となりうる。

Pu や ^{99}Tc の分析データはまだ少ないので、今後更にデータを集める必要がある。Pu の分析に ICP-MS を用いれば一般の土壌(表層)でも 10g 程度で Pu を検出できる。しかし、たとえ環境試料に含まれているレベルでも Pu として測定すると、許可を取っている施設でなければならない(我々が使用した施設では Pu の使用許可を取っている)。今後この方法が一般的に広まるには、極微量の Pu を扱う規制の緩和が望まれる。

長半減期核種の環境移行について今後精度の高い評価を行うには、それぞれの核種について長い時間スケールを考え、環境挙動のメカニズム等の更に詳しい知見を得ることが大切である。また、関連する安定元素をアナログとして研究を進めることも有効であろう。

[参考文献]

Brauer, F.P. and Strebien, R. S. Jr.: In Environmental Migration of Long-lived Radionuclides (IAEA-SM-257). IAEA (ed.), IAEA, Vienna, 1982, p. 465.
IAEA: IAEA Safety Series No. 57, IAEA, Vienna (1982).
科学技術庁：放射能測定シリーズ 2 6「ヨウ素-1 2 9」(1996).
Muramatsu, Y. and Ohmomo, Y.: *Sci. Tot. Environ.*, **48**, 33-43 (1986).
Muramatsu, Y., Uchida, S., Sumiya, M., Ohmomo, Y. and Obata, H.: *Water, Air and Soil Pollution*, **45**, 157-171 (1989).
Muramatsu, Y., Uchida, S. and Ohmomo, Y.: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **138**, 377-384 (1990a).
Muramatsu, Y., Uchida, S., Sriyotha, P. and Sriyotha, K.: *Water, Air and Soil Pollution*, **49**, 125-138 (1990b).
Muramatsu, Y. and Yoshida, S.: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **169**, 73-80 (1993).
Muramatsu, Y. and Yoshida, S.: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **197**, 149-159 (1995).
Muramatsu, Y., Uchida, S. and Ohmomo, Y.: *J. Radiation Research*, **34**, 214-220 (1993).
Muramatsu, Y., Yoshida, S. and Ban-nai, T.: *J. Radioanal. Nuclear Chemistry, Articles*, **194**, 303-310 (1995).
Muramatsu, Y., Yoshida, S., Uchida, S. and Hasebe, A.: *Water, Air and Soil Pollution*, **86**, 359-371 (1996a).
Muramatsu, Y., Uchida, S., Sumiya, M. and Ohmomo, Y.: *Health Phys.*, **71**, 757-762 (1996b).
Nakamura, Y. and Ohmomo, Y.: *Health Phys.*, **38**, 307-314, and **38**, 315-320, (1980).
NCRP, NCRP Report No. 75, National Council on Radiation Protection and Measurement, Bethesda (1983).
Schnetger, B. and Muramatsu, Y.: *Analyst*, **121**, 1627-1631 (1996).
Schütterkopf, H. and Pimpl, M.: In Environmental Migration of long-lived Radionuclides (IAEA-SM-257). IAEA (ed.), IAEA, Vienna, 1982, p. 395.
Seki, R., Kimura, E., Takahashi, T. and N. Ikeda: *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **138**, 17-31 (1990).
Tagami, K. and Uchida, S.: *Radiochim. Acta*, **63**, 69-72 (1993).
Tagami, K. and Uchida, S.: *J. Radioanal. Nucl. Chem.*,

Articles, **197**, 409-416 (1995).
Tagami, K. and Uchida, S.: *Appl. Radiat. Isot.*, **47**, 1057-1060 (1996).
Tagami, K. and Uchida, S.: *Environ. Pollut.*, **95**, 151-154 (1997).
津村・山崎: *Radioisotopes*, **42**, 265-272 (1993).
Uchida, S., Muramatsu, Y., Sumiya, M., Ohmomo, Y., Yamaguchi, S., Obata, H. and Umebayashi, M.: *Health Phys.*, **55**, 779-782 (1988).
Uchida, S., Muramatsu, Y., Sumiya, M. and Ohmomo, Y.: *Health Phys.*, **60**, 675-679 (1991).
Uchida, S. and Muramatsu, Y.: *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **353**, 141-147 (1995).
Yamagata, N. and Iwashima, K.: *Health Phys.* **13**, 1145-1148 (1967).
Yamamoto, M., Komura, K. and Sakanoue, M.: *J. Radiat. Res.*, **24**, 237-249 (1983).
山本：放医研セミナー報文集、NIRS-M180, 105-116 (1991).
Yanagisawa, K. and Muramatsu, Y.: *Radiochimica Acta*, **63**, 83-86 (1993).
Yanagisawa, K. and Muramatsu, Y.: *J. Radiation Res.*, **36**, 171-178 (1995).
Yanagisawa, K. and Muramatsu, Y.: *Russian Journal of Radiochemistry*, **39**, 375-378 (1997).
Yanagisawa, K., Muramatsu, Y. and Ban-nai, T.: *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **226**, in printing (1998).
Yoshida, S., Muramatsu, Y. and Uchida, S.: *Water, Air and Soil Pollution*, **63**, 321-329 (1992).
Yoshida, S. and Muramatsu, Y.: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **196**, 295-302 (1995).
Yoshida, S. and Muramatsu, Y.: *Proceedings of International Symposium on Radioecology 1996*.
"Ten Years Terrestrial Radioecological Research Following the Chernobyl Accident", Österreichische Bodenkundlichen Gesellschaft, Heft **53**, 207-214 (1996).
Yoshida, S., Muramatsu, Y., Tagami, K. and Uchida, S.: *Int. J. Environmental Analytical Chemistry*, **63**, 195-206 (1996).
Yoshida, S., Muramatsu, Y., Tagami, K. and Uchida, S.: *Int. J. Environmental Analytical Chemistry*, in press (1998).
Yoshida, S. and Muramatsu, Y.: unpublished data (1998).
Yuita, K., Nobusawa, Y., Shibuya, M. and Aso, S.: *Soil Sci. Plant Nutr.*, **28**, 315-336 (1982a).
Yuita, K., Akabe, S., Shibuya, M. and Aso, S.: *Soil Sci. Plant Nutr.*, **28**, 499-515 (1982b).
その他：電源特別会計研究報告書(村松康行、内田滋夫、吉田聡、坂内忠明、田上恵子)
アルファ廃棄物処理処分対策技術に関する評価報告書放医研(1992-1995).
大型再処理施設環境安全研究 放射性廃液試験の技術評価「放射性核種の化学形を考慮した環境安全評価」報告書放医研(1996-1997).

[研究発表(関連研究も一部含む)]

原著論文(欧文)：

1. Y. Muramatsu, S. Uchida and Y. Ohmomo : Root-uptake of

- radioiodine by rice plants, *J. Radiat. Res.*, **34**, 214-220 (1993).
2. K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: Transfer factor of technetium from soil to vegetables, *Radiochimica Acta*, **63**, 83-86 (1993).
 3. S. Yoshida and Y. Muramatsu: Accumulation of radiocesium and basidiomycetes collected from Japanese forests, *Sci. Tot. Environ.*, **157**, 197-205 (1994).
 4. Y. Muramatsu, K. Tagami and S. Uchida: Levels of artificial radionuclides and uranium in rain water collected from Ibaraki (Japan) following the Toms-7 accident in Russia, *J. Radioanal. Nuclear Chem., Letters*, **188**, 305-311 (1994).
 5. Y. Muramatsu and S. Yoshida: Volatilization of methyl iodide from the soil-plant system, *Atmospheric Environment*, **29**, 21-25 (1995).
 6. Y. Muramatsu, S. Yoshida and T. Ban-nai: Tracer experiments on the behavior of radioiodine in the soil-plant-atmosphere system, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **194**, 303-310 (1995).
 7. Y. Muramatsu and S. Yoshida: Determination of I-129 and I-127 in environmental samples by neutron activation analysis (NAA) and inductively coupled mass spectrometry (ICP-MS), *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **197**, 149-159 (1995).
 8. S. Yoshida and Y. Muramatsu: Determination of organic, inorganic and particulate iodine in the coastal atmosphere of Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **196**, 295-302 (1995).
 9. Y. Muramatsu, S. Yoshida, S. Uchida and A. Hasebe: Iodine desorption from paddy soil, *Water, Air and Soil Pollution*, **82**, 1-13 (1995).
 10. K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: Transfer of Technetium from soil to paddy and upland rice, *J. Radiat. Res.*, **36**, 171-178 (1995).
 11. K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: Transfer of technetium in the soil-rice plant System, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **197**, 203-210 (1995).
 12. S. Yoshida and Y. Muramatsu, K. Tagami and S. Uchida: Determination of major and trace elements in Japanese rock reference samples by ICP-MS, *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, **63**, 195-206 (1996).
 13. Y. Muramatsu, S. Uchida, M. Sumiya and Y. Ohmomo: Deposition velocity of gaseous organic iodine from the atmosphere to rice plants, *Health Phys.*, **71**, 757-762 (1996).
 14. K. Tagami and S. Uchida: Microbial role in immobilization of Tc in soil under waterlogged conditions, *Chemosphere*, **33**, 217-225 (1996).
 15. K. Tagatmi and S. Uchida: Analysis of Technetium-99 in soil and deposition samples by inductively coupled plasma mass spectrometry, *Appl. Radiat. Isot.*, **47**, 1057-1060 (1996).
 16. B. Schnetger *and Y. Muramatsu (*Visiting scientist from the Univ. , Oldenburg, Germany): The analysis of halogens, with a special reference to I, in geological and biological samples using pyrohydrolysis for preparation and ICP-MS and IC for measurement, *Analyst*, **121**, 1627-1631 (1996).
 17. K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: Transfer of technetium from soil to plant, *Russian Journal of Radiochemistry*, **39**, 375-378 (1997).
 18. S. Yoshida and Y. Muramatsu: Determination of major and trace elements in mushroom, plant and soil samples collected from Japanese forests, *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, **67**, 49-58 (1997).
 19. T. Ban-nai, Y. Muramatsu, S. Yoshida, S. Uchida, S. Shibata, S. Ambe, F. Ambe and A. Suzuki: Multitracer studies on the accumulation of radionuclides in mushrooms, *J. Radiat. Res.*, **38**, 213-218 (1997).
 20. K. Tagami and S. Uchida: Concentration of Global Fallout ⁹⁹Tc in Rice Paddy Soils Collected in Japan, *Environmental Pollution*, **95**, 151-154 (1997).
 21. S. Uchida and K. Tagami: Separation and concentration of technetium using a Tc-selective extraction chromatographic resin. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **221**, 35-39 (1997).
 22. S. Uchida and K. Tagami: Improvement of Tc Separation Procedure using a Chromatographic Resin for Direct Measurement by ICP-MS. *Analytica Chimica Acta*, **357**, 1-3 (1997).
 23. K. Yanagisawa, Y. Muramatsu and T. Ban-nai: Behaviour of technetium in paddy soils, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **226**, 221-223 (1997).
 24. S. Yoshida, Y. Muramatsu, K. Tagami and S. Uchida: Concentration of lanthanide elements, Th and U in 77 Japanese Surface soils. *Environment International*, **24**, 275-286 (1998).
- 原著論文・邦文集(和文) :
1. 村松康行 : 環境における ¹²⁹I の挙動、放医研環境セミナー報文集、No.23、NIRS-M-113、57-68 (1996)
 2. 村松康行、吉田聡: ICP-MS による環境試料の多元素分析、放射線科学、**40**、164-170(1997)
 3. 吉田 聡 : 日本の土壌に対するヨウ素の吸着について、環境中微量物質の挙動パラメータ検討専門研究会報告書、京都大学原子炉実験所、KURRI-KR-1、65-66 (1996)
 4. 柳澤 啓 : ⁹⁹Tc の土壌から農作物への移行と土壌中における挙動について. 鈴木 讓・河村日佐男 編、長半減期核種の環境動態と線量評価、放医研環境セミナーシリーズ No.23、P.91、放射線医学総合研究所(1996)
- 口頭発表(国際学会) :
1. Y. Muramatsu, S. Yoshida and S. Uchida: Behaviour of iodine in the atmosphere-soil-plant System. International Workshop on Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters, Tokyo, Feb. 1996.
 2. T. Ban-nai, Y. Muramatsu, S. Yoshida and K. Yanagisawa : Radiotracer experiments on the uptake of radionuclides by mushrooms and vegetables. International Symposium on Ionizing Radiation "Protection of the Natural Environment", Stockholm, May 1996.
 3. S. Yoshida, Y. Muramatsu and S. Uchida: Soil-solution distribution coefficients, K_{ds}, of I⁻ and IO₃⁻ for 51 Japanese

- Soils. Sixth International Conference on the Chemistry and Migration Behavior of Actinides and Fission Products in the Geosphere, Sendai, 1997. 10.
4. Y. Muramatsu, T. Ban-nai, S. Yoshida, and S. Uchida: Transfer of Some Radionuclides and Trace Elements from Soil to Plant. *International Meeting on Influence of Climatic upon Behavior of Radioactive Elements*. Rokkasho Village, Japan, 1997. 10.
 5. S. Uchida and K. Tagami: Concentrations of Global Fallout ^{99}Tc and ^{137}Cs and Their Behaviour in Rice Paddy Fields. International Conference on Radiation Dosimetry and Safety, Taipei, Taiwan, R.O.C., 1997. 3.
 6. K. Tagami and S. Uchida: Use of a Combustion Apparatus for Low-level ^{99}Tc separation from soil samples. Rapid radioactivity Measurements in Emergency and Routine Situations. Teddington, U. K., 1997. 10.
- 口頭発表(国内学会) :
1. 坂内忠明、柳澤啓、村松康行 : 放射性核種の土壌から野菜への移行、第 31 回理工学における同位元素研究発表会、東京、1994. 7.
 2. 石田和由、村松康行、内田滋夫、吉田聡 : 放射性ヨウ素の土壌への吸着に及ぼす共存元素の影響、第 31 回理工学における同位元素研究発表会、東京、1994. 7.
 3. 柳澤 啓 : テクネチウムの土壌から農作物への移行、理研シンポジウム、RI トレーサーの新利用技術'94、和光市、1994. 3.
 4. 柳澤 啓・村松康行 : 湛水条件下におけるテクネチウムの土壌から農作物への移行、第 32 回理工学における同位元素研究発表会、東京、1995.7.
 5. 柳澤 啓 : 作物による土壌中 ^{99}Tc の吸収挙動について、第 23 回放医研環境セミナー、千葉、1995.11.
 6. 坂内忠明、村松康行、柳澤啓 : 放射性核種の農作物への移行に及ぼす土壌の種類の影響、第 32 回理工学における同位元素研究発表会、東京、1995. 7.
 7. 柳澤啓、村松康行 : 湛水条件下におけるテクネチウムの土壌から農作物への移行、第 32 回理工学における同位元素研究発表会、東京、1995. 7.
 8. 村松康行、吉田聡、田上恵子、内田滋夫 : 土壌及び植物中の U、Th 並びに微量元素について、日本放射線影響学会第 38 回大会、千葉、1995. 11.
 9. 村松康行、吉田聡:土壌-植物-大気系における微量元素及び放射性物質の挙動について、日本地球化学会年会、清水、1995. 11.
 10. 吉田聡、村松康行、内田滋夫 : 日本の土壌に対するヨウ素 (I^- と IO_3^-) の吸着、日本地球化学会年会、清水、1995. 11.
 11. 村松康行 : 環境における ^{129}I の挙動、放医研環境セミナー、千葉、1995. 12.
 12. 内田滋夫、田上恵子 : 水管理下における水田土壌中の Tc の吸着挙動、日本原子力学会 1995 年秋の大会、東海村、1995. 10.
 13. 吉田聡、村松康行 : 森林内の植物・きのこにおける放射性セシウムと微量元素、1996 年度日本地球化学会年会、札幌、1996. 8.
 14. 村松康行、坂内忠明、柳澤啓、吉田聡、内田滋夫 : 土壌から植物への放射性 I、Cs、Sr、Tc、Mn、Co、Zn の移行に関する研究、日本放射線影響学会第 39 回大会、大阪(千里)、1996. 11.
 15. 田上恵子、矢吹貞代*1、内田滋夫、岡田昭彦*1 : 中国西北部の沙漠域における陸水中のウラン濃度レベルについて、理研シンポジウム生体微量元素'96、和光市、1996.3. (*1 理研)
 16. 柳澤 啓 : 開花期に添加したテクネチウムの土壌内における挙動とイネへの移行、第 34 回理工学における同位元素研究発表会、東京、1997. 7.
 17. 村松康行、内田滋夫、吉田聡、田上恵子 : ICP-MS を用いた土壌中の U、Th、Pu の分析、第 34 回理工学における同位元素研究発表会、東京、1997. 6-7.
 18. 坂内忠明、吉田聡、村松康行 : 放射性核種のキノコへの移行に関する RI トレーサー実験。日本農芸化学会 1996 年度大会、京都、1996.4.

II-2 海洋における分布と挙動に関する研究

平野茂樹*、山田正俊*、青野辰雄*、張 勁**、中村清*
(*那珂湊放射生態学研究センター、**科学技術特別研究員)

Distribution of Long-lived Radionuclides in the Marine Environment

Shigeki Hirano*, Masatoshi Yamada*, Tatsuo Aono*, Jing Zhang** and Kiyoshi Nakamura*
(*Laboratory for Radioecology, NIRS, **National Institute Post Doctoral Fellow)

Abstract

Distribution of long-lived radionuclides, ^{99}Tc and $^{239+240}\text{Pu}$ in the marine environment were studied for the assessment of radiation exposure to human from possible release of radioactive waste in nuclear fuel cycle.

Concentration of ^{99}Tc was determined in *Sargassum thunbergii* collected from various coasts of the Japanese Islands. The highest concentration was 1.5 Bq/kg raw in the algae collected in Hitachinaka City, Ibaraki Pref. the lowest was 4.5 mBq/kg raw in the sample from Chikura Town, Chiba Prefecture.

Seawater samples were collected from the Yamato Basin and the Tsushima Basin in the Japan Sea and the concentration of $^{239+240}\text{Pu}$ was 7.4 mBq/m³ in the surface water and increased with depth to a maximum value of 38.6 mBq/m³ at 500 m at the Yamato Basin station. The subsurface maximum may be produced by scavenging of $^{239+240}\text{Pu}$ in surface water and release of $^{239+240}\text{Pu}$ from settling particles

および ^{99}Tc が長寿命でそれぞれ、 2.6×10^6 、 4.2×10^6 および 2.1×10^5 年の半減期である。この中でも ^{99}Tc の質量数の同位体はウラン或いはプルトニウムの核分裂により高い収率で生成するためテクネチウムと言う場合にはこの ^{99}Tc をさすことが多い。

環境科学や人体被曝の観点から重要な事は水によく溶けて存在し地上に降ったものも雨水等で洗い流されて河川水に入り最終的には海に集まると予想されている点である。そして海藻に高い濃度で濃縮されることが知られてきた。日本人は海藻を食品として多く消費するのでそれらに含まれる量や地域差を知る事が重要になる。また日本の各地から集めた試料中の濃度を測定する事により地域差を知ること出来る。

海藻の中でも褐藻類に高い濃度で濃縮されヒジキでは海水の約5,000倍、アラメでは2,000倍、また食用にはならないがウミトラノオやヒバマタ等は1万から3万倍のテクネチウムを含有するが、現在の海水中のテクネチウムの濃度が低いので人体に及ぼす影響はほとんど無い。しかしながら、将来このテクネチウムが海洋に今より更に増加する事も考えられるので、本研究では日本各地からウミトラノオを採集して濃度を測定しその分布の現状を調査した。

1 緒言

原子燃料サイクルの確立に必要な環境安全評価を行う際に環境における長半減期核種の分布と挙動に関する知見が必要である。本研究ではフィールドから得た試料の分析測定により沿岸海域における長寿命の人工放射性核種の分布を検討しその挙動の予測を行う事を目的とする。

環境中における分布と挙動の予測を行った核種は ^{99}Tc 、および $^{239+240}\text{Pu}$ である。再処理施設の建設が予定されている青森県六ヶ所村沿岸から各種海洋試料を採取して分析測定を行い、比較検討のため他の海域から収集した試料についても分析測定を行った。

テクネチウムは全ての同位体が放射性の元素であり、周期律表には原子量が記載されてなく通常は一番長い半減期の同位体の質量数 98 が代わりに載っている。1937年にイタリアの科学者セグレが人工的に作り新元素として確認されて以来ウランの核分裂により比較的大きな割合で生成する事が知られた¹⁻³⁾。その後、主に米ソの核実験により他の核分裂生成物と共に地球上に広く存在するようになり、また原子力の平和利用が進み使用済み核燃料の再処理の廃液として放出されるため環境中の濃度が地域により異なる事も知られるようになった^{4,5)}。約30の同位体がこれまでに知られているがその多くは短寿命であり質量数 97、98

2 研究方法

ウミトラノオはホンダワラの類で九州から北海道まで日本各地の岩礁の有る海岸に生育しており、成長すると1m前後になる海藻である。従って、この海藻を指標生物として用いることにより各地の海水中のテクネチウム濃度を推定することが出来る。

日本の沿岸に分布するウミトラノオ中のテクネチウムの濃度は現在のところ非常に低いが、2~3kgの試料から分離し、精製して定量することが可能である。海藻は採取後110°Cで乾燥し、450°Cで灰化した後硝酸に溶解した。溶液から溶媒抽出法によりテクネチウムを分離し硫化第2銅と共沈させ径30mmの濾紙に捕集したものを乾燥後ステンレス皿にマウントし測定試料とした。 ^{99}Tc は0.292MeVの β 線しか放出しないので低バックグラウンドの β 線スペクトロメータを用いて計測した。

プルトニウムは原子力発電により質量数239と240の同位体が生成する。この2核種はアルファ線のエネルギーが接近しており、また半減期も2.4万年と6千余年なので通常のアルファ線計測では弁別できない、従って両核種を分けることなく239+240として便宜上扱う。この2核種は環境に放出され食品に移行するとヒトへの被曝線量が大きくなる

事が予想されるので重要視される。採取した海産生物の内、海藻は全量を、また魚類および軟体類は各部位に分別後、乾燥し、450°Cで灰化後、硝酸に溶解した。イオン交換法、リンモリブデン酸アンモニウム共沈法（AMP法）等により $^{239+240}\text{Pu}$ を分離精製し、測定用試料としアルファ線スペクトロメトリで計測した^{6,7)}。

3 結果と考察

図1の日本地図に各地のウミトラノオのテクネチウム濃度を示した。単位は mBq/kg wet である。これを見ると濃度は多少の変動が有るものの大きな差ではないが、青森県の日本海側で高く千葉県南房総で低い傾向がみられた。これは日本海が陸地に囲まれた縁辺海であるため陸地に降ったものが集められて濃度が高くなったと考えられる。濃度の高い青森県の日本海側と濃度の低い千葉県の値を比較すると約8倍の開きが有り、ウミトラノオの ^{137}Cs 濃度が各地の試料で3倍弱の開きでしかない事を考えると同じ様に海水に溶存する核種であるがその挙動は異なると考えらる。海水中の ^{137}Cs の濃度は3mBq/lでほぼ各地沿岸で一定で平衡に達していると考えられるがテクネチウムの場合はまだ平衡に達していないと考えられる。その原因としてはテクネチウムが酸素の存在する系では吸着しにくい化学形、すなわち-1価の過テクネチウム酸イオンであるのに対し、セシウムは+1価のイオンであり陸上にあつては土壤に吸着されやすいために雨水による海洋への流出が少ない、従って日本海のような陸地に囲まれた縁辺海ではテクネチウムは陸地からの寄与が大きくそのため日本海側で濃度が高く太平洋側で低くなると考えられる。

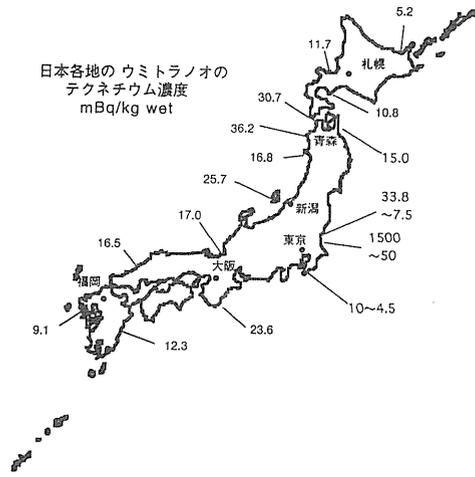


図1 日本各地のウミトラノオのテクネチウム濃度 mBq/kg wet

図1に示して有るように茨城県ひたちなか市のウミトラノオのテクネチウム濃度は他の地域とは異なり幾らか高く、また海水中の濃度も測定できるのでそれぞれの濃度の相関を検討する事が可能である。表1にひたちなか市におけるウミトラノオのテクネチウム濃度の経年変動をまた図2a~eに海水中の濃度の経時変化を示した。これらの図表からある程度の相関は見えるがかなり変動幅があり、不規則であるので濃縮係数を算出するにはデータとして足りない。

Table 1. Concentration of Technetium-99 in *Sargassum Thunbergii* in Hitachinaka City

	1993	1994	1995	1996	1997
Jan	64±17	470±98	92±6.7	53±5.8	109±32
Feb	60±8.4	540±120	179±11	78±18	49±16
Mar	129±60	458±53	321±24	107±21	39.7±13.4 34.1±9.3 69.3±6.45
Apr	123±24	294±58	238±26	94±21	55.4±7.5 72.6±6.43
May	126±37	406±59	162±20	143±12	242±8.0
Jun	221±65	585±39	215±41	409±30	263±70
Jul	1,160±130	436±63	199±9.4	240±50	230±16 240±33
Aug		1,250±240	496±54	160±25	230±16

しかしながら、海水中のテクネチウムがこのように変動する事は拡散によると思われまた蓄積傾向がほとんど無いことを示している。それは海水の濃度が下がるとウミトラノオの群落でもその濃度が下がるのが観察される事で分かる。

テクネチウムが海洋で底質や懸濁物に吸着しにくい傾向が顕著である。これはテクネチウムが長期間にわたり海水中に滞留し沈降しないことを意味する。従って、人体や環境へのテクネチウムの影響は海の体積が人間の作るテクネチウムの量に対して大きい小さいかと言う点に行きつく、すなわち無限大希釈が有効かどうかにかかっている。ウランとプルトニウムに必要なエネルギーのかなりの割合を将来も依存することになるならば無限大希釈は効かないと考えられるのでテクネチウムに関しては長期間の保管か或いは短半減期の核種に変換することを考える必要が有る。

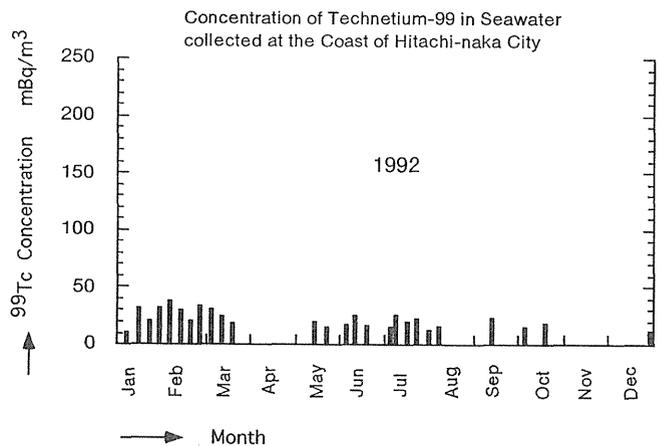


図2-a

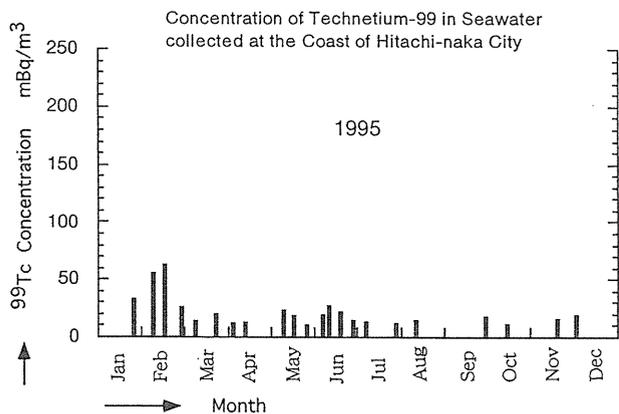
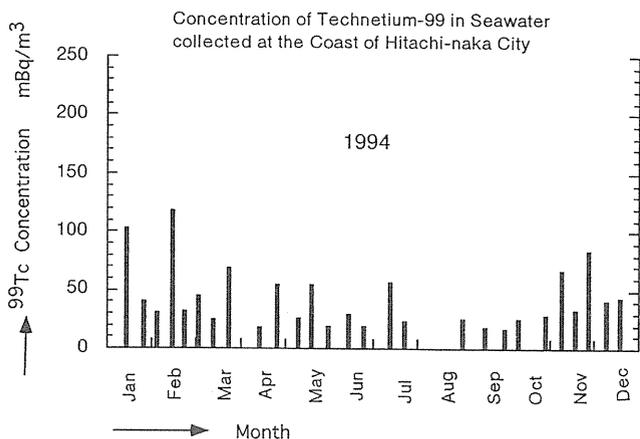
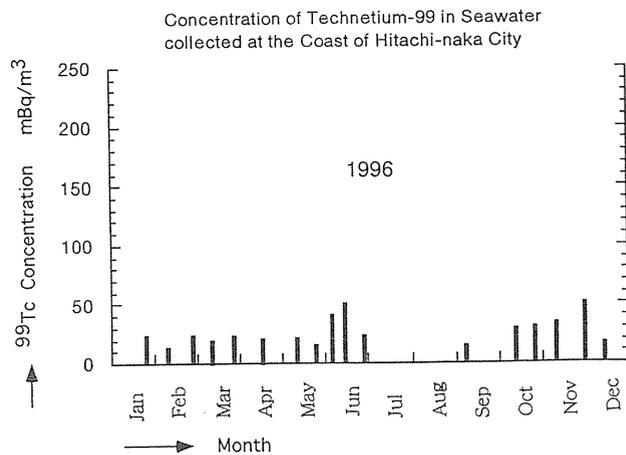
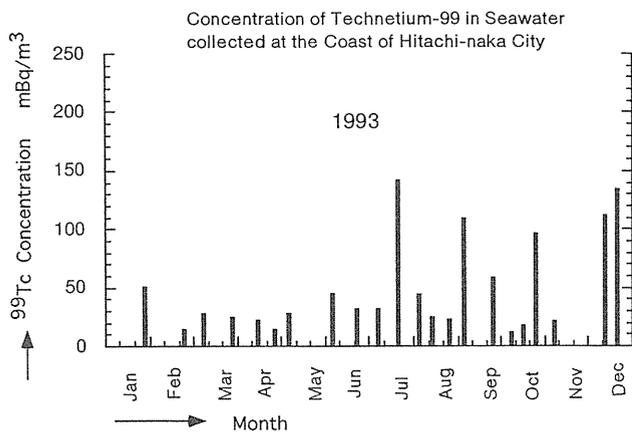
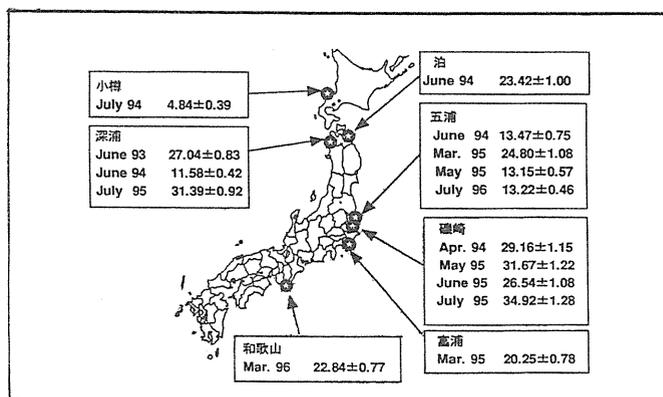


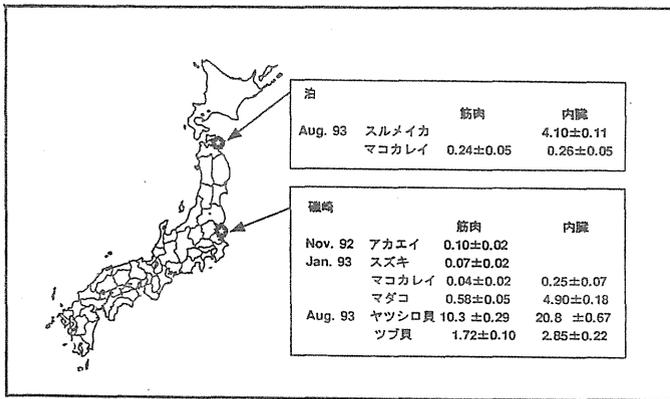
図3に日本各地沿岸のウミトラノオ中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度を示した。小樽で濃度が低いとその地域による濃度分布の差は観察されなかった。各地の海水のプルトニウム濃度の値がまだ一部しか得られていないがウミトラノオ中の濃度変動が小さい事から大きな変動は無いと考えられる。



日本沿岸におけるウミトラノオ(海藻)中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度分布 (mBq / kg-fresh)

図3

図4に各種海産動物のプルトニウム濃度を示した。種毎にその濃度に大きな差異が観察されるが、データ数が少なくこれに関しては更にデータを集積する努力が要求される。すなわち、現在日本国内では海水に超ウラン元素をトレーサとして添加し海産生物を飼育出来る施設は無く、データの集積にはもっぱらフィールドのデータに頼るしかない。



日本沿岸における魚貝類中の²³⁹⁺²⁴⁰Puの濃度分布
(mBq / kg-fresh)

図 4

海水中のプルトニウム濃度については日本海の大和海盆と対馬海盆で試料の採取を行い鉛直分布を調査した。その結果表面水では7.4mBq/m³であり深くなるにつれ濃度が増加し500mで最大値38.6mBq/m³を大和海盆で観察された。この最大値は表面水からプルトニウムがスキャベンジされる事により生じたと考えられる。日本海において海水カラム中の²³⁹⁺²⁴⁰Puの存在量は2つの海盆で各々86.6と85.2mBq/m³であり、日本海に入った総量の90%が海水カラム中に存在することがわかった。

4 結論

長半減期核種のうち⁹⁹Tc、²³⁹⁺²⁴⁰Puについて海洋における分布と挙動をフィールドからの試料の分析結果から検討を加えた。テクネチウムとプルトニウムについては海洋における分布と挙動の全体像を把握するにはまだデータが十分ではない。特にプルトニウムに関してはトレーサ実験が海洋生物についてなされていないので更にフィールドのデータを積み上げる必要がある。

参考文献

1) Golchert, N. W., Sedlet, J.: Radiochemical Determination of Technetium-99 in Environmental Samples. Anal. Chem. 41, 669 (1969).
2) UNSCEAR: Ionizing Radiation: Sources and Effects UN (1982)

3) Hirano, S., Matsuba, M., Kamada, H.: The Determination of Technetium-99 in Marine Algae. RADIOISOTOPES, 38, 186 (1989).
4) Mitchell, N. T.: Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles. Fish. Radio. Biol. Lab. Tech. Report, 9 (1973).
5) Hunt, G. J.: Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles, 1983. Aquat. Environ. Monitor Report, 12 (1985)
6) Nagaya, Y., Nakamura, K.: J. Oceanogr. Soc. Japan, 37, 135 (1981)
7) Nagaya, Y., Nakamura, K.: Bull. Japan Soc. Sci. Fish, 53, 873 (1987)

研究発表

1. Hirano, S. and Matsuba, M. ; Concentrations of Technetium-99 in Marine Algae and Seawater. Radiochimica Acta 63, 79-82 (1993)
2. Yamada, M., Aono, T. and Hirano, S. ; ²³⁹⁺²⁴⁰Pu AND ¹³⁷Cs DISTRIBUTIONS IN SEAWATER FROM THE YELLOW BASIN AND THE TSUSHIMA BASIN IN THE JAPAN SEA. J. Radioanal. Nucl. Chem. 210, No.1 (1996) 129-136.
3. Hirano, S., Yamada, M and Aono, T. : Concentrations of ⁹⁹Tc in *Sargassum thunbergii* around the Japanese Islands. AGU 1998 Fall Meeting, San Francisco, Dec. 1998.

口頭発表

1. 山田正俊、成田尚史、青野辰雄：1994年度日本海洋学会春季大会、大宮、1994.4.
2. 平野茂樹、山田正俊、青野辰雄：日本放射線影響学会第37回大会、福岡、1994.10.
3. 山田正俊、青野辰雄、平野茂樹、中原元和、中村良一、中村 清：日本放射線影響学会第37回大会、福岡、1994.10.
4. 山田正俊、成田尚史、青野辰雄：1995年度日本海洋学会春季大会、東京、1995.4.
5. 山田正俊、青野辰雄、成田尚史：1995年度日本海洋学会秋季大会、名古屋、1995.10.
6. 平野茂樹：第23回放医研環境セミナー、千葉、1995.12.
7. 山田正俊、青野辰雄：日本放射線影響学会第39回大会、大阪、1996.11.
8. 平野茂樹、山田正俊、青野辰雄：日本放射線影響学会第39回大会、大阪、1996.11.

II-3 食品等からの摂取と体内移行に関する研究

河村日佐男^{*1}、白石久二雄^{*1}、阿部道子^{*2,3}、黒瀧克己^{*1}、今井靖子^{*2}、渡利一夫^{*3}、西牟田守^{*4}、小村和久^{*4}

(^{*1}人間環境研究部、^{*2}養成訓練部、^{*3}特別研究員、^{*4}外来研究員)

Intake through Food and Air-borne Dust, and Transfer to the Human Body

H. Kawamura^{*1}, K. Shiraishi^{*1}, M. Abe^{*2,3}, K. Kurotaki^{*1}, K. Imai^{*2}, K. Watari^{*3},
M. Nishimuta^{*4}, and K. Komura^{*4}

(^{*1}Division of Human Radiation Environment, ^{*2}Division of Training School,
^{*3}Senior Research Counselor, ^{*4}Visiting Scientist)

Abstract

It is still an important subject of research to establish models and relevant database on their parameters for assessing internal doses to members of the public from long-lived radionuclides in the environment¹⁻⁶. In the present assignment, chemical analysis and/or measurement were intended to be done to clarify ingestion intake and uptake by the human body as well as occurrence and physical state in the air-borne dust of some of the radionuclides, i. e. Th, U, Tc, Pu, etc. The imminent purpose of the study was to obtain relevant parameters for estimating doses following ingestion and inhalation, that being suitable and realistic enough for Japanese and their environment.

Having been started by the above members, the

study was practically carried out in two separate subjects on the ingestion intake and inhalation and, therefore, will be described in two parts as follows.

1. 概要

環境の長半減期核種による公衆の内部被曝線量推定のためのモデルの確立および関連のデータベースの整備は引き続き重要なテーマである¹⁻⁶。本課題では、Th、U、Tc、Pu等の食品摂取における摂取量、体内への移行と蓄積、および大気からの吸入被ばくに関わる核種の存在量と存在状態などについて分析測定を行い、日本人および日本の現実に即した経口および吸入による被ばく線量の推定のためのパラメーターを求めることを目的として研究を行った。

上記の構成で出発したサブグループであるが、研究内容から、経口摂取に関わるテーマと吸入被ばくに関わるテーマとに分けて報告することにする。

① 食品からの摂取と体内移行

河村日佐男^{*1}、白石久二雄^{*1}、平野茂樹^{*2}、西牟田守^{*3}

(^{*1}人間環境研究部、^{*2}那珂湊放射生態学研究センター、^{*3}外来研究員)

Intake through Different Foods and Transfer to the Body

H. Kawamura^{*1}, K. Shiraishi^{*1}, S. Hirano^{*2}, M. Nishimuta^{*3}

(^{*1}Div. Human Radiation Environment, ^{*2}Laboratory for Radioecology, ^{*3}Visiting Scientist)

Abstract-To establish models and relevant parameters for estimating internal dose to members of the public, contribution of individual types of food in the Japanese diet in ingestion of natural Th and U, and

ingestion and excretion of Tc in a marine alga with respect to apparent absorption in the gastrointestinal tract were studied by chemical analysis and subsequent measurement of these nuclides by using ICP-

MS, AAS and low-background beta-ray spectrometry.

Relative contribution of fish and shellfish (ca. 50%) in the intake of ^{232}Th , was higher than those of other food categories. In the ingestion of ^{238}U , contributions of marine algae, and fish and shellfish, (ca. 44 and 30%, respectively) were dominant. Per caput intake was re-evaluated by the present study to be 3.2 and 12mBq for ^{232}Th and ^{238}U , respectively. Apparent absorption of ^{99}Tc in a marine alga, *Hijikia* species, which is a constituent often found in the Japanese diet, was estimated by a balance study in the male adult to be 0.5 or ca. 50%. Although this is not identical to f_1 of the ICRP, the data seems to be lower than $f_1=0.8$ for workers and supported by the recent value of $f_1=0.5$ for the general public. These data will contribute to examining parameters for estimating internal dose due to ingestion of long-lived natural and man-made radionuclides for members of the general public in Japan.

1. はじめに

(1) 食品からの長半減期核種（天然アルファ核種）の摂取における各種食品群の寄与

長半減期核種を中心に放射性核種並びに関連の安定同位体の日本人における摂取量の代表値の推定を目的として、これまでに日常食（または陰膳方式）により ^{226}Ra 、 ^{232}Th および ^{238}U の成人男子の1日当たり摂取量を推定し、日本人の自然放射性核種による内部被ばく線量の観点から重要な成果を得た^{6,7}。さらに、これらの核種がどのような食品を通じて摂取されているか、その摂取経路を明らかにすることが線量推定上も必要となった。ここでは、各核種の経口摂取における、いわゆるクリティカル経路、クリティカル食品を明らかにするため、マーケット・バスケット法を採用することによって各種食品群からの摂取量を推定することにした。食品群の分け方は、当初4食品群ついで18食品群とした。ICP-MS等による分析測定値から18食品群につき、 ^{232}Th 、 ^{238}U の摂取量と寄与率の代表値を推定評価した。

(2) 長半減期核種（ ^{99}Tc ）の体内移行のパラメータ

日本人の食事の重要な構成成分として海草があり、ある種の海草が ^{99}Tc を高度に濃縮することが見いだされている。日本人におけるTcによる内部被ばくの経路として、そのような海草の摂取が考えられるため、被ばく線量算定における体内移行パラメータが問題となった。ICRPでは、過テクネチウム酸塩 TcO_4^- に対する胃腸管吸収係数を与えているが、食品中のTcに対しては値がなかった¹。同様に、人における長半減期核種 ^{99}Tc の体内蓄積量推定のために必要な摂取量・排泄量の測定についても値がない。そこで、ヒジキを ^{99}Tc の摂取源として成人男子（2例計3回）におけるバランス・スタディ（出納実験）を行い、そのうちの1例については「みかけの吸収率」を求めた。

2. 研究方法

(1) 食品群別の摂取量

a. 4食品群の場合

1群：卵、乳製品、2群：魚肉類、豆類、3群：果実類、野菜類および4群：穀類、油脂類とした。厚生省国民栄養調査の統計データ7にもとづいて水戸市周辺より各種食品を採取し、予備実験として4群に分類した。試料は灰化・減容したのち、硝酸を用いて分解、溶液化し、ICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析法）による ^{232}Th および ^{238}U の定量を行い⁶、4食品群の摂取量と寄与率を推定した。

b. 18食品群の場合

18食品群の内訳は、1群：米類、2群：穀類、3群：芋類、4群：果実類、5群：菓子類、6群：油脂類、7群：豆類、8群：果実類、9群：緑黄色野菜類、10群：その他の野菜類、11群：きのこ類、12群：海草類、13群：調味・嗜好品類、14群：魚介類、15：群肉類、16群：卵類、17群：乳製品および18群：調理食品類である。

採取した食品はaと同様に化学的処理を行い、 ^{232}Th 、 ^{238}U を含む自然放射性核種および関連の安定同位体について、ICP-MSおよびICP-AES（誘導結合プラズマ発光分析法）により定量分析を行った。これらの結果から全摂取量に対する18食品群の寄与率を求めた。

(2) 海草からの ^{99}Tc 摂取量および排泄量

茨城県磯崎海岸で採取したヒジキを洗浄、煮沸、乾燥して乾燥ひじきとし、これからひじき食品を調製した¹⁰。すなわち、乾燥ひじきを水道水に浸して膨潤させ、浸漬に用いた水道水とともに、鉄製中華鍋に移し強火で、植物油と少量の野菜を加えていため、いわゆるひじき料理とした。この「ひじき」食品を4回ないし6回に分けて米飯など他の食品とともに摂取した。一定量の乾燥ひじきをとり ^{99}Tc の放射化学分析を行い、摂取量を推定した。また摂取日の前後の尿および糞を採取して同様に分析を行い排泄量を測定した。固体試料は熱風乾燥機で乾燥後、マッフル炉で乾式灰化を行ったのち、濃硝酸を用いて湿式分解を加え、溶液試料を調製した。 ^{99}Tc 放射化学分析法については共同研究者が海洋試料について開発した方法により行い、これらの値から見かけの吸収率を求めた。さらに、出納実験期間の人の生理学的な状態を把握するため、関連の必須栄養素の排泄量の測定を原子吸光分析等により行った。また、血液検査による血中成分の観察を行った。

3. 結果

(1) 食品からの ^{232}Th 、 ^{238}U 等の摂取量及び各食品群の寄与率

a. 4食品群の場合

分析結果から、国民1人1日当たりの4食品群からの ^{232}Th と ^{238}U の摂取量を推定し、ついで、各群の全体の摂取量に対する寄与率を計算した。その結果を表1に示す。

ThおよびUともに、第1群の全摂取量に対する寄与は小さく（2%以下）、第2群および第3群の寄与率が大きかった（24-47%および19-76%）。Thの場合、第4群（穀類、油脂類）の寄与も大きいことがわかった（27%）。しかし、大まかな分類のため、第2群に属する魚肉類と豆類とを別々に考慮できなかった。なお、 ^{226}Ra では、1群では7%であり、2、3および4群は約30%でほぼ同一の寄与を示

した。以上の結果から、以下のように可能な限り詳細な分類を行い、各種の食品の寄与を検討することとした。

表1. 日本人における4食品群のThおよびUの全摂取量に対する寄与率 (%)

食品群	²³² Th	²³⁸ U
1群：卵、乳製品	2	0.6
2群：魚肉類、豆類	24	19
3群：果実類、野菜類	47	76
4群：穀類、油脂類	27	4

b. 18食品群の場合

ThおよびUでは、海藻類、魚介類、種実類、調理食品類が高い濃度(湿重量あたり)を示し、油脂類、果実類、米類では濃度が低かった。国民1人1日当たり摂取量における各食品群の寄与率は、図1および2に示す。²³²Thの摂取に対する寄与率は、魚介類(50%)、緑黄色野菜類(9%)、調味・嗜好品類(6%)、豆類(6%)、海藻類(5%)の順であった。²³⁸Uの場合には、海藻類(44%)、魚介類(30%)の寄与率が特に高く、ついで豆類(5%)、緑黄色野菜(4%)、その他の野菜(3%)となった。ThおよびU共に、寄与率の低い食品群は、油脂類、種実類、卵類、きのこ類であった。日本食の場合は海産食品からの寄与が大きいことに特徴があることがわかった。また、18群の寄与率を4群にまとめなおしたところ、前述した4食品群による結果と同一傾向の寄与率を認めた。なお、国民1人1日当たりの摂取量は、²³²Thが3.2mBq及び²³⁸Uが12mBqと推定された。この値は日常食法(陰膳法)で求めた以前の値と比較して大きめであった。他の元素については、現在データを処理中である。このように通常の12食品群を上まわる18食品群分類を採用したため、様々な食品の各々の寄与がかなり詳細にわかった。また諸外国の報告例と比較すると、日本食における²³²Th等の摂取量がやや小さい傾向が指摘できる^{8,9}。なお、1年間に摂取する両核種による被ばく線量は、ICRP Publication 68の線量係数⁴を用いて推定した結果²³²Th 0.26μSv、²³⁸U 0.19μSvとなった。

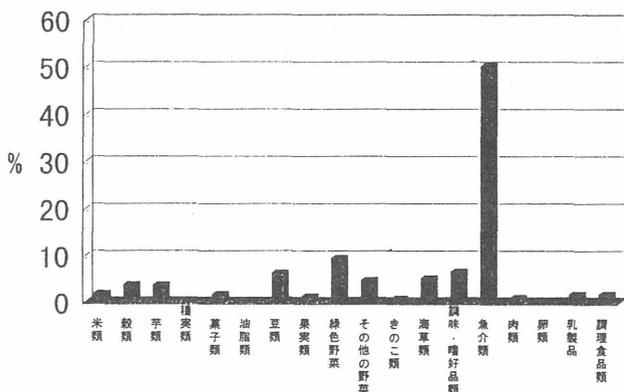


図1. 日本人の²³²Th摂取における18食品群の寄与率
Contribution of 18 food groups in intake of ²³²Th in Japanese.

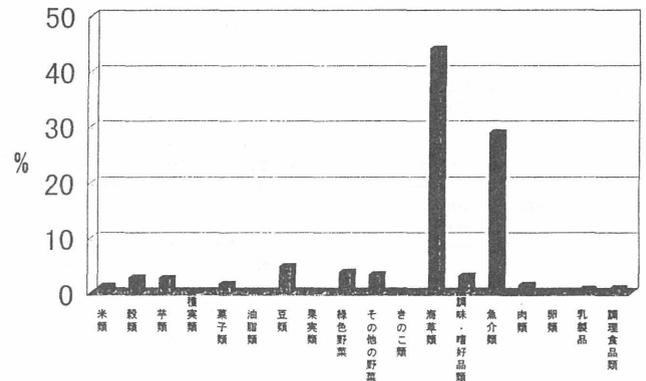


図2. 日本人の²³⁸U摂取における18食品群の寄与率
Contribution of 18 food groups in intake of ²³⁸U in Japanese.

(2) ⁹⁹Tcのひじき食品からの摂取及び排泄と胃腸管における見かけの吸収率

分析測定の結果を表2および図3に示す。この結果から、ひじき食品中の⁹⁹Tcのみかけの吸収率はおよそ0.5と推定された。この値は、ICRPの勧告した作業者に対する胃腸管吸収係数f₁の値0.8より若干小さかった¹⁰。ただし胃腸管吸収率と見かけの吸収率とは定義の上では同一ではなく、そのまま比較できない点に注意が必要である。なお、ICRPは現在、公衆に対してはより小さいf₁すなわち0.5の使用を勧告しているが³、本研究の結果はこれを支持するものと考えられる(表2)。

表2. 「ひじき」食品中の⁹⁹Tcのみかけの吸収率
Intake and excretion of ⁹⁹Tc in the "hijiki" food and apparent absorption.

摂取量(摂取期間中)	37 ± 5 mBq
排泄量(摂取開始後11日間)	糞 19 ± 3 mBq
	尿 2 ± 2 mBq
排泄量(摂取開始前3日間)	糞 1 ± 3 mBq
	尿 0.4 ± 3 mBq

$$\text{見かけの吸収率} = \frac{\text{「ひじき」からの摂取量} - \text{糞からの排泄量}}{\text{「ひじき」からの摂取量}} \approx 0.5$$

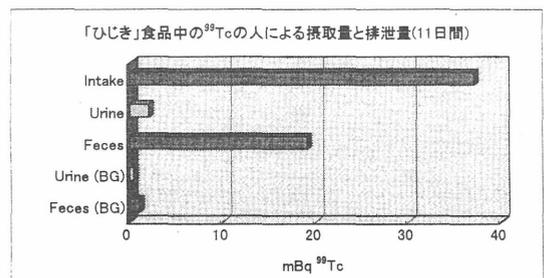


図3. 「ひじき」食品中の⁹⁹Tcの摂取量および排泄量
Intake and excretion ⁹⁹Tc in the "hijiki" food.

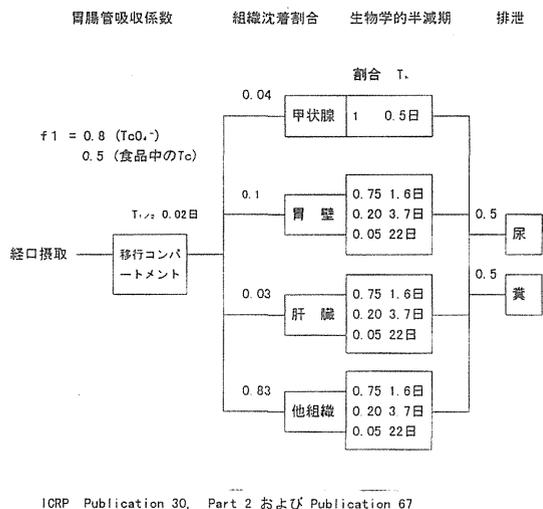


図4. テクネチウムのICRPによる代謝モデル
Metabolic model for Tc by ICRP.

4. 結論

環境中の天然の長半減期核種による公衆の被ばく線量の推定に関わる食品からの摂取量につき、実際の食品試料の分析測定を行った。その結果、 ^{232}Th および ^{238}U の日本人における各種食品群の寄与率を明らかにし、1日あたり摂取量の見直しを行った。人工の長半減期核種による公衆の被ばく線量の推定に関わる人体への移行・吸収については、ひじき食品中の ^{99}Tc を用いたバランス・スタディによる分析測定を行い、成人男子における見かけの吸収率を求めた。

今後、日本人の長半減期核種（アクチノイド等）の経口・吸入経路による被曝線量の算定上のパラメーターの整備に資するため、さらに詳細に検討を進める予定である。

5. 研究発表および参考文献

- 1) International Commission on Radiological Protection: Limits on intakes of radionuclides by workers, ICRP Publication 30, Part 1, Ann. ICRP 2, 1979.
- 2) International Commission on Radiological Protection: Basic anatomical and physiological data for use in radiological protection: The skeleton, ICRP Publication 70, Ann. ICRP 25 (2), 1995.
- 3) International Commission on Radiological Protection: Age-dependent dose to members of the public from intake of radionuclides: Part 2 Ingestion dose coefficients, ICRP Publication 67, Ann. ICRP 23 (3/4), 1993.

4) International Commission on Radiological Protection: Dose coefficients for intake of radionuclides for workers, ICRP Publication 68, Ann. ICRP 24 (4), 1993.

5) Kawamura, H., Yamamoto, M., Igarashi, Y., Shiraishi, K., and Ueno, K.: Naturally occurring ^{226}Ra concentrations in bone at various ages and α doses in adults, Health Phys. 61, 615, 1991.

6) Shiraishi, K., Igarashi, Y., Takaku, Y., Masuda, K., Yoshimizu, K., Nishimura, Y., Hongo, S. and Yamaguchi, H.: Daily intakes of ^{232}Th and ^{238}U in Japanese males, Health Phys. 63, 189, 1992.

7) Shiraishi, K., Yamamoto, M., Yoshimizu, K., Igarashi, Y., and Ueno, K.: Daily intake of alkaline earth metals in Japanese males, Health Phys. 66, 30-35, 1994.

8) Shiraishi, K. and Yamamoto, M.: Dietary trace radium-226, thorium-232 and uranium-238 intakes in Japanese and contribution of imported foods to internal doses. 4th Internat. Congr. Internat. Soc. for Trace Elements Res. in Humans, Taormina, Italy, 1995.9.

9) Shiraishi, K. and Yamamoto, M.: Dietary Th-232 and U-238 intakes for Japanese as obtained in a market basket study and contributions of imported foods to internal doses. J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 196, 89-96, 1995.

10) 河村日佐男、平野茂樹、西牟田守：日本放射線影響学会第38回大会、千葉、1995.11.

11) 白石久二雄、山本正儀：食品の輸入増加に伴微量放射性核種による内部被曝への影響、理研シンポジウム 生体微量元素 '96、和光市、1996.11.

12) 白石久二雄、田上恵子、山本正儀、村松康行：日本人による長半減期核種、 ^{232}Th と ^{238}U の食品群別摂取量への影響、第39回日本放射線影響学会、大阪、1996.11

13) Shiraishi, K.: Multielement analysis of foodstuffs and diet samples in relation to comparative evaluation in public hygiene, Internat. Workshop on Comparative Evaluation of Health Effects of Environmental Toxicants Derived from Advanced Technologies, Chiba, 1998.1

② 大気浮遊じん中の天然放射性核種の線量推定にかかわる物理的特性

阿部道子^{1,4}、黒瀧克己²、小村和久³、今井靖子¹、渡利一夫⁴

(¹養成訓練部、²人間環境研究部、³外来研究員、⁴特別研究員)

Physical States of Natural Radionuclides in the Air-borne Dust for Estimation of Inhalation Dose

Michiko Abe^{*1,4}, Katsumi Kurotaki^{*2}, Kazuhisa Komura^{*3}, Kiyoko Imai^{*1} and Kazuo Watari^{*4}

(*¹Division of Training School, *²Division of Human Radiation Environment,

*³Visiting Scientist, *⁴Senior Research Counselor)

Abstract - To approach realistic parameters in Japanese for estimation of inhalation dose using the ICRP model for respiratory system, physical states of natural radionuclides in the air-borne dust particles, i.e. AMAD and shape of particles, were studied by ultra-low background gamma-ray spectrometry, low-energy photon spectrometry (LEPS) and XMA or EPMA. The dust samples collected by impact samplers during the period from April 1986 to the middle of 1987 at NIRS, Chiba at ca. 20 m above the ground were used. The obtained AMAD includes uncertainty due to extremely low activity and limited counting time, and, therefore, presented as a "relative" AMAD. ²²⁶Radium, ²²⁸Th and ²²⁸Ra showed larger AMADs that might be attributable to resuspension of the ground surface soil. The AMAD for ²¹⁰Pb was smaller as that for ⁷Be previously obtained. Scanning electron microscopy by XMA showed widely varying shapes for dust particles of different particle sizes. These data may provide useful information on application of the ICRP model to members of the general public in Japan. However, Pu-239, 240 are yet to be determined. Analytical method for determining thorium content of the human liver, although deposited in an other exposure pathway, was also studied.

1. はじめに

日本人の吸入被ばく線量を現実に即し正確かつ精度良く推定するためには、日本における大気中放射性核種の存在量、粒度分布、化学形態などのパラメータを求めることが重要である¹⁻¹⁴。しかし大気中長半減期核種の濃度レベルは極めて低く、測定データも数少ないのが現状である。本課題では、長半減期(U, Th, Ra, Pb, Pu, Am, Npなどの放射性核種)を対象とし、存在量と粒度分布に関する実環境の測定データを蓄積し線量推定に資する事を目的とした。

浮遊じん試料は、主として千葉市放医研で長年にわたり一定条件下に採取したものの一部を用い、極微量放射能測定法として、極低バックグラウンドγ線スペクトロメトリおよびGe-LEPSによる計測を行って粒度分布を求め、粒子形状の観察には電子線プローブX線マイクロアナライザーを使用した。

2. 研究方法

2-1. 大気浮遊じんのサンプリング

浮遊じんは、放射線医学総合研究所第1研究棟(千葉県稲毛区穴川、北緯35°37分、東経140°06分、地表面からの高さ約20m)において、アンダーセン・ハイボリュームサンプラ(流量率566 l min⁻¹、粒径5段階、<1.1 μm、1.1~2.0、2.0~3.3、3.3~7、7 μm>)およびLP-40型低圧型インパクト(流量率40 l min⁻¹、粒径8段階)により、グラスファイバーフィルタを通して採取した。サンプリング基本単位は1週間、ろ過空気総量は平均5700 m³(範囲2500~6500 m³)であった。アンダーセンサンプラーでは約5年間にわたり試料を採取した。今回計測した試料の採取期間は1986年4月のチェルノブイル原子力発電所4号炉事故直前から1987年半ばまでであり、前半は事故により放出された種々の放射性核種がそのレベルは低いながら日本各地で観測された時期にあたる。

2-2. 放射能計測

計測システムは、主として旧尾小屋鉱山トンネル内(水深換算270m相当)に設置した、相対効率93.5%の同軸型Ge半導体検出器を備えた極低バックグラウンドγ線スペクトロメータを用いた。また、²¹⁰Pbの計測のため、同じ場所で低エネルギーγ線の計測に有効なGe-LEPSシステム(相対効率30%相当)を使用した。両システムのバックグラウンド計数は、それぞれ1.25 cpm (100-2700 keV)および0.77 cpm (20-1600 keV)であり、地上の良く遮蔽された計測システムに比べておよそ2桁低い。このバックグラウンド性能は、器材の自発放射線の低レベル化をはかり、4000mクラスの大深度地下計測室に設置したシステムのそれと同等である。

大気浮遊じん試料は、油圧器により圧縮、直径50 mmあるいは35 mmで、厚さ約2 mm、体積は元の10分の1以下の計測試料とし、検出効率を数倍程度高めた。計測時間は、試料数が膨大なため、1計測試料あたり基本的に2日とした。

2-3. 大気浮遊じん粒子形状の観察

大気浮遊じん粒子の形状等についてはTable 1に示す手法でサンプリングおよび観察を行った。粒度分布サンプラ

として、低圧型インパクトおよびマイクロアナライザ用インパクトを用い1994年6月屋内外でサンプリングを行った。これらの試料の一部をXMAの試料室に導入、電子線ビームで走査して多数の2次電子像（走査型電子顕微鏡写真）を得た。

Table 1. 大気浮遊じん中の粒子形状の観察方法
Method of observation of shapes
of the airborne dust particles.

1. サンプリング日時(1994年6月)および場所(放射線医学総合研究所)

屋外 場所 第1研究棟屋上(地上高 約20m)
日時 6月10日 12:12~12:15
屋内 場所 第1研究棟5階 環境衛生第1実験室
日時 6月10日 11:24~11:27

2. サンプリング機器

A. ロープレッシャ・インパクト LP-40型
吸引流量率: 40/min⁻¹ 捕集板: 14mm φ シリコンウエーハ
粒子サイズ分級 段 粒子サイズ領域(μm)
(8段分級) 1 6.2<
2 2.9~6.2
3 0.9~2.9
4 0.33~0.9
5 0.22~0.33
6 0.13~0.22
7 0.06~0.13
8 <0.06

B. BEM/EDX マイクロアナライザ用インパクト 型式MPS-3
吸引流量率: 2/min⁻¹ 捕集板: 14mm φ シリコンウエーハ
粒子サイズ分級 段 粒子サイズ領域(μm)
(3段分級) 1 2<
2 0.3~2
3 0.05~0.3

3. 粒子形状の観察

日本電子製走査型電子顕微鏡 JSM-733型
カーボン蒸着しない
倍率 3000×~10000×

3. 結果と考察

3-1. 天然および人工放射性核種の粒度分布の長期変動

3-1-1. "Relative" AMAD値について

得られたAMAD(空気力学的放射能中央径)の時間的経過を核種毎にFig. 1 Aおよび1 Bに示す。ひとつのAMADを求めるには5つの計数データを要する。試料の放射能レベルは全体に極めて低く、サンプルを1ヶ月まとめて計測する等の操作が必要な試料が多く、AMADを求めた期間には3日からほぼ1ヶ月までの幅が生じた。極低バックグラウンドのシステムで計測可能となったサンプルであるが、計数時間に限りがあり計数値の不確かさはかなり大きい。それゆえ、得られたAMAD値を厳密な意味で真の値と見ることはできない。AMAD値にかなり大きい差が見られる場合には、相

対的な大小の比較が可能なものと考えている。このため縦軸のAMADの値(μm単位)は参考のための"Relative" AMADと記載し、今後さらに検討を続けたい。

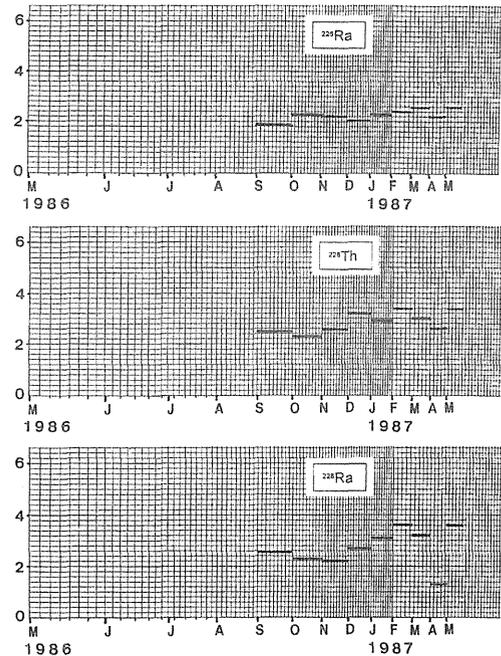


Fig 1A. 大気浮遊じん中の天然α線放出核種²²⁶Ra, ²²⁸Th および²²⁸Ra, の相対的AMAD値 - 1986年9月 - 1987年5月.

Relative activity median aerodynamic diameter (AMAD, μm) of ²²⁶Ra, ²²⁸Th and ²²⁸Ra, natural alpha-emitting radionuclides in the airborne dust samples, September 1986 - May 1987.

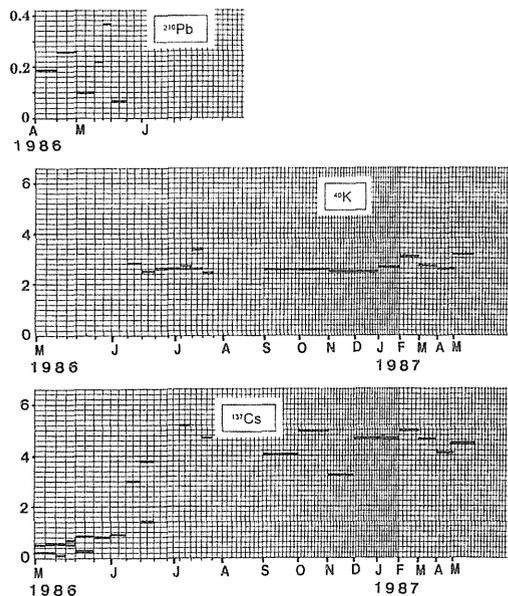


Fig 1B. 大気浮遊じん中の天然および人工β線放出核種²¹⁰Pb, ⁴⁰K および¹³⁷Cs, の相対的 AMAD 値 - 1986年4月 - 1987年5月.

Relative activity median aerodynamic diameter

(AMAD, μm) of ^{210}Pb , ^{40}K and ^{137}Cs , beta- and gamma-emitting radionuclides in the airborne dust samples, April 1986 - May 1987.

3-1-2. ^{226}Ra , ^{228}Th , ^{228}Ra および ^{40}K の粒度分布およびその時間的変動

^{210}Pb を除くいずれの天然放射性核種についても、1986年6月以降のAMADの1ヶ月値の時間的推移は、計測上の不確かさを考慮したうえで、ほぼ一定の平坦なレベルを保っていると見て良さそうである(Fig. 1 Aおよび1 B)。またこのレベル(^{226}Ra の1例で $2.9\mu\text{m}$ 、 ^{228}Th の1例で $2.4\mu\text{m}$)は土壌成分の舞上がり(resuspension)の特徴を示している。

Ra-228とTh-228は同一系列に属する。Fig. 1 Aに示す両者のAMADはほぼ同等と考えられ、ともに大地起源であることから、地表からの舞上がりの同等性で説明できる。

^{226}Ra のAMADはFig. 1 A上段に示すように、 ^{228}Ra 、 ^{228}Th のそれに較べレベルが低いように見えるが、現状では明確でない。この核種も大地起源であり、粒度分布の形成には、舞上がりが主要因であると言えよう。大地起源の ^{40}K のAMADの変動についても、同様に舞上がりが主要因であると見て良い(Fig. 1 B中段)。

3-1-3. ^{210}Pb の粒度分布の時間的変動

^{210}Pb のAMADの変動をFig. 1 B上段に示した。1986年4月下旬から5月中旬の期間に限り、1週間または3-4日毎のAMAD値を示した。大きなバラツキはあるものの、Pb-210のAMADは4月から5月にかけて同等のレベルと見なせる(参考値として $0.4\mu\text{m}$ 以下)。このレベルは自然状態のものと考えられ、Fig. 1 Aおよび1 B中段に示した ^{226}Ra 、 ^{228}Th 、 ^{228}Ra 、 ^{40}K のAMADのレベルよりかなり低い。このような傾向は ^7Be の観測でも認められ、大気中に主な起源を持つこれら核種に共通するところである²。サンプリング時間の短い試料でAMADが大きく変動した他の要因として、局地的、地域的な気象現象の影響も考えられる。

3-1-4. 人工放射性核種Cs-137の粒度分布の時間的変動

参考データとして、同期間に観察した ^{137}Cs のAMADの変動をFig. 1 B下段に示す。1986年5月から6月にかけては、観察を補完するため、バックグラウンドはやや高いが安定性にすぐれた放医研システムで、各試料につき精度を一定に確保するように時間をかけて計測した結果から求めたAMADをも示した。そのAMADは、5月初めにはかなり小さく6月中旬には明らかに増加し、6月下旬以降にある飽和値となる傾向が認められる。チェルノブイル事故放出核種の粒度分布の変化は重要な事柄であるが、本特研の課題外であるため考察は他の機会にゆずる。

3-2. 大気浮遊じん粒子の形状の観測

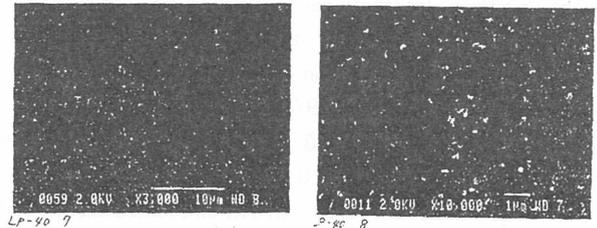
粒子形状観測用のサンプリングに有効なシリコンウェハ捕集板を選出した場合は、分解能が高く、また画像が鮮明であった。屋内外の一般の大気浮遊じん粒子が、サイズに伴い種々様々な形状(球状、柱状その他)を取ることがわかった(Fig. 2参照)。しかし高価な捕集版の数に限りがあり、また鮮明な画像を得るためには採取時間を短くする必要があったため、現段階では十分に系統的な結果は得ら

れていない。ICRP Publication 66の呼吸器モデルではダストの形状を考慮しており、これは重要なパラメータであるが、放射性核種との関連を含め今後の課題である。

① 低圧型インパクター(8段階)によるサンプリング

Stage 7 : $0.13 \sim 0.22\mu\text{m}$

Stage 8 : $0.06 \sim 0.13\mu\text{m}$



② マイクロアナライザーサンブラ(3段階)によるサンプリング

Stage 3 : $0.3 \sim 0.05\mu\text{m}$

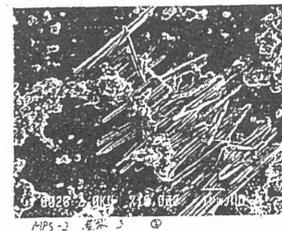


Fig. 2. 大気浮遊じんの典型的な形態を示す走査型電子顕微鏡像

Scanning electron microscopy images showing typical shapes of the airborne dust particles.

4. おわりに

放医研内の定点で30年以上の長期間にわたり連続して大気浮遊じんをHEPAグロス・サンプリングにより採取し、ある期間は粒度別サンプリングを行ってきた。1986年4月頃から約1年間の試料を用いて、 ^{226}Ra 、 ^{228}Th 、 ^{228}Ra 、 ^{210}Pb 等の粒度分布(AMAD)を求め、その時間的な変動状況を観測した。また、屋内外の浮遊じんにつき予備調査的に粒子形状の観察を行い、興味あるデータを得た。これらのデータにより、日本における公衆の吸入による被ばく線量推定のパラメータ検討の目的を部分的に達成したものとする。当初予定した $^{239,240}\text{Pu}$ などの放射化学分析は、前段階の γ 線および低エネルギー光子スペクトロメトリーに多大の時間を要し、期間内には困難であった。今後分析を進め1960年代を含む長期間の大気中放射性核種濃度の全体像を明らかにすることが望まれる。なお、日本におけるチェルノブイル事故放出核種の粒度分布の変化を観察し、公衆の吸入被曝推定における有益な知見を得たことを付記する。これらのほか、人体組織中に沈着したThの定量法等につき放射化学分析により検討し良好な結果を得ている¹⁵。

研究発表および参考文献

- 1) International Commission on Radiological Protection: Limits on intakes of radionuclides by workers, ICRP Publication 30, Part 1, Ann. ICRP 2, 1979.
- 2) International Commission on Radiological Protection:

Human respiratory tract model for radiological protection,
ICRP Publication 66, Ann. ICRP 24 (1-3), 1994.

- 3) 阿部道子、黒瀧克己、柴田貞夫、今井靖子、竹下洋、
渡利一夫、阿部史朗：日本放射線影響学会第36回大会、
広島、1993. 10.
- 4) Abe, M., Kurotaki, K., Shibata, S., Takeshita, H. and
Abe, S.: Proc. International Symposium on Application of
Isotope Techniques in Studying Past and Current
Environmental Changes in the Hydrosphere and the
Atmosphere, IAEA-SM-329/8, 35-42, 1993.
- 5) 今井靖子、竹下洋、阿部道子、渡利一夫：第37回放射
化学討論会、金沢、1993. 10.
- 6) Watari, K., Imai, K., Takeshita, H., and Hatsushiba, H.: J.
Nucl. Sci. and Technol., 31 (3), 253-254 (1994).
- 7) 阿部道子、阿部史朗：日本放射線影響学会第37回大会、
福岡、1994. 10.
- 10) 阿部道子：エアロゾル研究 10 (4), 283-288. 1995.
- 11) Abe, M., Abe, S. and Kurotaki, K.: 6th International
Symposium on the Natural Radiation Environment (NRE
VI), Montreal, Canada, 1995.6.
- 12) 小村和久：エアロゾル研究 10 (4), 276-282. 1995.
- 13) 小村和久：放射線医学物理48, 34-45, 1996.
- 14) 阿部道子、黒瀧克己、柴田貞夫、竹下洋、阿部史朗：
IAEA-SM-329/8, 35-42, 1998.
- 15) 北村清司*、今沢良章*、森本隆夫*、佐藤兼章*、樋口
英雄*、今井靖子、渡利一夫：9th Internat. Conf.
Modern Trends in Activation Analysis, Seoul, 1995. 5.

(*日本分析センター)