

放射線医学総合研究所



\*890000094\*

NIRS-R-3

## 海洋放射能調査研究報告書

—— 放射性核種 of 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 ——

RADIOECOLOGICAL STUDIES ON MARINE ENVIRONMENT  
Studies on Transfer of Radionuclides to Marine  
Organisms and Survey on Marine Food Consumption

October 1974



放射線医学総合研究所

National Institute of Radiological Sciences  
Anagawa, Chiba, Japan.

NIRS-R-3

# 海洋放射能調査研究報告書

—— 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 ——

RADIOECOLOGICAL STUDIES ON MARINE ENVIRONMENT  
Studies on Transfer of Radionuclides to Marine  
Organisms and Survey on Marine Food Consumption

October 1974

放射線医学総合研究所

National Institute of Radiological Sciences  
Anagawa, Chiba, Japan.

まえがき

I	海産生物による放射性核種の濃縮に関する研究	1
1.	研究の目的と概要	1
2.	海産魚による放射性核種の濃縮	2
2-(1)	海産魚による $^{85}\text{Sr}$ の濃縮と排出	3
2-(2)	〃 $^{60}\text{Co}$ 〃	5
2-(3)	〃 $^{65}\text{Zn}$ 〃	6
2-(4)	〃 $^{144}\text{Ce}$ 〃	8
2-(5)	〃 $^{106}\text{Ru}$ 〃	10
2-(6)	〃 $^{131}\text{I}$ 〃	11
2-(7)	シラスによる放射性核種の濃縮	14
3.	貝類による放射性核種の濃縮	16
4.	海藻類による放射性核種の濃縮	18
II	放射性核種の物理化学的挙動とその生物濃縮におよぼす影響に関する研究	22
1.	研究の目的と概要	22
2.	放射性セリウムの海水中における化学形態	23
3.	放射性ルテニウムの海水中における化学挙動と生物濃縮	26
III	放射性核種の濃縮におよぼす環境要因の影響に関する研究	32
1.	研究の目的と概要	32
2.	光、温度の影響	32
3.	共存安定元素、塩分濃度の影響	36
4.	懸濁物、底質の影響	41
IV	放射性核種の濃縮におよぼす生物学的要因の影響に関する研究	44
1.	研究の目的と概要	44
2.	海産魚による放射性核種の消化管吸収	45
3.	食物連鎖を通しての放射性核種濃縮	46
4.	生物の代謝活動と放射性核種濃縮	48
V	海水および海産生物中の安定元素の定量に関する研究	50
1.	研究の目的と概要	50
2.	微量安定元素の存在状態	50
3.	微量安定元素の定量法	51
4.	安定元素定量法による濃縮係数の算定とその評価	56
VI	水産食品の消費の実態調査	58
1.	実態調査の目的	58
2.	実態調査実施の経緯	58
3.	調査内容、方法および対象	58
4.	調査結果の概要	58
VII	総括	70
	あとがき、謝辞	73

## Introduction

I	Studies on concentration of radionuclides by marine organisms .....	1
1	Purpose and outline of the studies .....	1
2	Concentration of radionuclides by marine fishes .....	2
2-1	Concentration and excretion of $^{85}\text{Sr}$ by marine fishes .....	3
2-2	Concentration and excretion of $^{60}\text{Co}$ by marine fishes .....	5
2-3	Concentration and excretion of $^{65}\text{Zn}$ by marine fishes .....	6
2-4	Concentration and excretion of $^{144}\text{Ce}$ by marine fishes .....	8
2-5	Concentration and excretion of $^{106}\text{Ru}$ by marine fishes .....	10
2-6	Concentration and excretion of $^{131}\text{I}$ by marine fishes .....	11
2-7	Concentration of radionuclides by "Shirasu", immature anchovy .....	14
3	Concentration of radionuclides by shellfishes .....	16
4	Concentration of radionuclides by seaweeds .....	18
II	Studies on physico-chemical behavior of radionuclides and its influence on biological concentration .....	22
1	Purpose and outline of the studies .....	22
2	Chemical form of radioactive cerium in sea water .....	23
3	Chemical behavior of radioactive ruthenium in sea water and biological concentration .....	26
III	Studies on influence of environmental factors on concentration of radionuclides .....	32
1	Purpose and outline of the studies .....	32
2	Influence of light and temperature .....	32
3	Influence of co-existing stable elements and salinity .....	36
4	Influence of suspended matter and sediment .....	41
IV	Studies on influence of biological factors on concentration of radionuclides .....	44
1	Purpose and outline of the studies .....	44
2	Absorption of radionuclides through digestive tract by marine fishes .....	45
3	Concentration of radionuclides through food chain .....	46
4	Metabolic activity of organisms and concentration of radionuclides .....	48
V	Studies on determination of stable elements in sea water and organisms .....	50
1	Purpose and outline of the studies .....	50
2	Existing state of stable trace elements .....	50
3	Determination method for stable trace elements .....	51
4	Estimation and evaluation of concentration factors derived from stable elements determination .....	56
VI	Survey on marine food consumption .....	58
1	Purpose of survey .....	58
2	Progress of survey .....	58
3	Detail, method and subject of survey .....	58
4	Outline of results .....	58
VII.	Summary .....	70
	Remarks and acknowledgement .....	73

## まえがき

原子力委員会は、昭和41年7月7日、放射性廃棄物の海洋処分に関する調査研究を実施することを決定した。このため、研究計画実施方法等に関し、関連研究機関による検討の場として、(財)原子力安全研究協会に「放射性廃液の海洋放出調査特別委員会」を設けることとし、本研究所もこれに積極的に参加し、意見の交換をはじめ、調査研究の協力につとめてきた。

昭和43年度においては、茨城県那珂湊市に臨海実験場を設置することとなり、新組織を足立させるとともに、前年度から計画中の大型飼育水槽を含む新庁舎の完成がはかられた。このようにして、ラジオアイソトープ・トレーサー法による魚貝藻類への放射性核種の濃縮に関する研究、安定同位元素定量法による魚貝藻類への放射性核種の濃縮に関する研究、海産生物のモニタリング方法の開発に関する研究、沿岸海洋汚染に伴う人体の放射線被曝線量の推定に関する研究の4つのテーマについて、海洋調査研究を推進してきた。この間、国内関係諸機関との協力を緊密にするとともに、IAEAをはじめとする海外との情報交換等の充実をはかり、効果的な研究の実施につとめてきた。

海洋調査研究の第1期計画は昭和47年度までの5カ年になされ、個々の研究成果の多くは国内外の各種学会に発表されてきたが、本報告書は実験データを主体としてとりまとめて、若干の解説を付したものである。

この報告書に集録された研究は、右に記した研究者によってなされたものである。

佐伯 誠道	研究総括
小柳 卓	生物濃縮研究全般
大桃 洋一郎	食品消費実態調査全般
鈴木 浜治	安定元素定量法による生物濃縮、 R I トレーサー法による生物濃縮
石川 昌史	$^{106}\text{Ru}$ の海水中の化学形と生物濃縮
平野 茂樹	$^{144}\text{Ce}$ の海水中の化学形、R I トレーサー法による生物濃縮
中原 元和	R I トレーサー法による生物濃縮、 特に食物連鎖関係
石井 紀明	R I トレーサー法による生物濃縮、 特に海藻関係
池田 保	R I トレーサー法による生物濃縮
住谷 みさ子	食品消費実態調査
その他、食品消費実態調査については臨時研究補助員として次の方々の協力を得た。	
小原絹江、小原すみ江、住谷ふみ子、 中込みよ子(旧姓、比企)、中山光子(旧姓、青山)、 根本敦子、根本陽子、平野喜久江。	

---

M. Saiki:	General scientific manager on the project
T. Koyanagi:	Leader on transfer of radionuclides to marine organisms
Y. Ohmomo:	Leader on survey on marine food consumption
H. Suzuki:	C.F. obtained by radiation analyses of stable elements and also RI tracer method
M. Ishikawa:	Physico-chemical form of $^{106}\text{Ru}$ , connected with biological concentration
S. Hirano:	Chemical form of $^{144}\text{Ce}$ in sea water and also C.F. obtained by RI tracer method
M. Nakahara:	C.F. obtained by RI tracer method, chiefly connected with food chain
N. Ishii:	C.F. obtained by RI tracer method, chiefly connected with algae
T. Ikeda:	C.F. obtained by RI tracer method
M. Sumiya:	Survey on marine food consumption

# I 海産生物による放射性核種の濃縮に関する研究

## 1. 研究の目的と概要

海水中のある元素が海産生物中に移行し蓄積している様相を示す濃縮係数 (Concentration Factor, C.F.) という用語は、生物体の中のその元素の濃度の海水中における濃度に対する比率として定義され、その数値は海洋環境における放射性核種の生物学的な移行を論ずる場合、あるいは放射能で汚染された海産生物が水産食品として人体に与える内部被曝線量を推定する際などに、重要なパラメータの一つとして用いられている。

この係数は、生物および海水中の安定元素、またはフォールアウトに由来する放射性核種を定量することによっても算出されるが、いずれもその濃度が極めて低いために測定が困難な場合が多く、大きな誤差を招く原因ともなる。また、既存の安定元素と、あらたに導入された放射性核種との間に化学的形態の差があるような場合には、それらが同一の物理化学的、あるいは生物学的挙動をとるに到るまでにかなりの期間を要するようなことも考えられ、安定元素の濃度比が直ちにそれに対応する放射性核種による汚染度を評価するためのパラメータとして、適用しうるものであるかどうかにも問題がある。

更にまた、生物が元素を主として海水からの直接の取り込みによって濃縮する場合は、海水、生物双方の定常状態における元素濃度あるいは放射能強度を求めることにより濃縮係数を決めればよいが、食物連鎖や他の媒体を通しての濃縮が大きく寄与する場合には、その食餌などの基盤となる媒体の比放射能、あるいはそれらを消化、吸収する代謝率などが関与してくるため、生物がある元素または対応する放射性核種の濃度に関して、その環境との間で完全に平衡状態に達しているかどうかの判定はしばしば非常に困難となる。

一方、ラジオアイソトープ (R I) をトレーサーとして、水生生物の水槽飼育実験により濃縮係数を決定する方法は、特別に実験施設を必要とすること、実験期間内に完全な平衡状態を見極めるのが困難な場合が多いこと、実際の環境条件を模倣するのに限度があることなどの欠点はあるが、微量な元素の生物による取り込みや排出などが経時的に観察でき、また濃縮係数の値を左右するとと思われる生物学的要因や環境要因を個々にとりだして究明できる点などに大きな特色がある。

このように、それぞれ的手段または方法によって長ささまざまの特徴があり意義もあるが、各種の方法によって得られた従来の報告の結果は、同種の元素、同種の生物についても数値間に大きな開きがあり、それが方法の違いによるものか、研究者の異なることによるものかの判定はつけ難く、どの数値を採用すべきかということが実際への適用に際し常に問題とされてきた。

これらの問題の解明をはかるにあたって、放医研臨海実験場の大型、中型飼育水槽は、従来困難であった大型海産生物の R I 濃縮実験を可能としたものであるだけに、海産生物の長期飼育によってはじめて得られるデータなど、基礎的な資料を得つつ研究を推進してきた。つまり、できるだけ正常な状態のもとに飼育された海産生物が放射性核種をどの程度取り込み、それがどのように体内分布するかを経時的に観察することによって、平衡時における濃縮係数を算定していくことを主目的とし、海産生物としてはチダイ、イナダ、ヒラメなど 20 数種類のものについて、また R I としては  $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{60}\text{Co}$  など 11 種類について実験結果を得た。海水のみを基盤とした濃縮係数の意味に限度のあることは既述の通りであるが、その点に関しては後章でふれることとし、ここにはまず海水から生物への放射性核種の移行を主体として検討した実験の結果をとりあげた。

実験方法は生物の種類や R I の違いで多少の差はあるが、水槽は大部分循環濾過方式を採用し、海水 50 トンを収容した大型水槽には濾過面積  $7.2\text{ m}^2$  の濾過槽を、中型の 1 トン水槽には約  $0.5\text{ m}^2$  の濾過面積をもつ濾過槽を設置し、海砂、川砂、黒礫などを濾材として用いた。水温は通常  $20^\circ\text{C}$  に設定して温度調整装置により制御し、温度差の影響については別途検討した。水槽にはその他 10 L ないし 200 L の小型のものも用い、実験に応じて通気、濾過などを施した。R I トレーサーは特に化学形態の影響について検討した  $^{106}\text{Ru}$  などの場合をのぞき、大部分塩化物の形で購入した無担体の R I をそのまま希釈して海水に添加し、その濃度は海水および生物試料の放射能測定に必要な放射能強度から逆算し、海水 1 トン当り  $1\text{ mCi}$  をおおよそ目安とした。

R I の生物体への移行蓄積の経時変化については、海

水中の放射能濃度がほぼ安定したのちに投入した生物を経目的に数個体づつとりあげて、5～15の部位に解剖し、それぞれの放射能を測定することによって観察した。各試料はアクリル樹脂製試験管に入れ、ウェル型シンチレーション・カウンターを用いて計測し、生重量当りの放射能濃度を算出した。一方、同時に採取した飼育海水についても放射能濃度を測定し、各臓器、組織ごとに海水との間の放射能濃度比を求めた。測定時間は試料の放射能強度に応じ、標準偏差が10%以下になるように選択したが、魚類の軟組織への<sup>85</sup>Srや<sup>144</sup>Ceの取り込みのように濃縮が殆んどみとめられない場合などは、計数値が測定時のバックグラウンド・レベルしか得られないこともあり、標準偏差が100%を越す例もみられた。したがって放射能濃度比の値についても、極く低い値にはかなり大きい誤差を考慮する必要がある場合もあるが、報告中の個々の数値について一々標準偏差を付記することはしなかった。

海産生物による放射性核種の取り込みは、他でも述べる通り環境の各種要因のみならず、生物自身の生長や代謝活動によっても影響されることから、環境と生物間に平衡関係が成立するに到る時間はまちまちであり、濃縮

係数という用語は本来“定常状態における生物と環境水との元素の濃度比”のみに用いられるべきものと解されるが、本報告書においては、従来の研究報告の多くなって、平衡状態に達していない場合でも、前述の放射能濃度比、つまり下記の関係を濃縮係数として記載した。

$$\text{濃縮係数(C.F.)} = \frac{\text{水生生物中の放射性核種濃度}(\mu\text{Ci/g生})}{\text{環境水中の放射性核種濃度}(\mu\text{Ci/ml})}$$

すなわち、この報告中の個々の濃縮係数のデータは、汚染海水中での生育日数や飼育温度などの与えられた条件下において、その都度計算されたものであると理解していただきたい。

定常状態に達しているか否かの判定は前述したように困難であるが、核種や生物の種類に応じて、飼育実験期間としては数週間から数カ月をそれにあて、いくつかの実験については汚染生物を清浄海水中に移して放射性核種の体外排出状況をも併せて観測し、生物学的半減期を求めて放射能の排出率を算出した。また特に記述のある場合を除き、実験期間中は生物に投餌せず、餌の影響については放射能汚染経路の問題、あるいは代謝活動と放射性核種濃縮との関係などの面から別に検討した。

## 2. 海産魚による放射性核種の濃縮

日本人にとって、動物性蛋白質摂取量の半ば以上を占めるといわれる魚類への国民栄養上の高い依存度は、しばしば指摘される場所であるだけに、放射能汚染水産食品として人体への放射線内部被曝線量に寄与すると思われる海産生物の中でも、魚類の占める重要な役割を忘れることはできない。また、ビキニマグロ事件以来、放射能に限らず数多くの環境汚染物質に関して魚類が果している濃縮者としての役割も既に周知の通りである。しかしながら一方、海産魚による放射性核種の濃縮に関する知識は、従来、核爆発実験に由来する放射性降下物や、原子力施設から放出される放射性廃棄物などによる環境汚染のサーベイデータ、あるいは安定同位元素の定量値にもとづく推定、さらにはRIをトレーサーとする室内実験など、各種の手段によって求められて来たが、手段の違いによって得られた結果もまちまちであり、濃縮係数も他の海産生物の場合と同様にしばしば大きな較差を示し、特に有用魚介類として市場性も高い魚種、あるいは我々の日常生活に親しみ深い極く一般的な魚種についてのデータが、実験の困難さなどもあって、必ずしも充分には得られていない現状であった。

茨城沿岸海域のみを考えると、東海村沿岸の海産生物相についての調査結果によれば、魚種の数は約200種で殆んどすべての魚種が生息すると思われ、重要な種類だけでも80種に及ぶが、それらすべてについて実験するには極めて長期の研究年数を要することとなり、また人体内部被曝の推定に際して最も問題となる放射能汚染経路を考える場合には、おのづから魚種もしぼられてくることをも考慮し、代表的な魚種について重点的に実験を行なった。一方、室内でのRIトレーサー実験を行なうためには対象魚の水槽飼育が可能であることが前提条件であり、必要十分な実験期間を考慮すると、その点からもある程度は魚種の選定に制約が生じた。飼育の困難なもの一例としてシラスがあげられるが、別項に記した通り、重要魚種であるところから可及的に実験を強行したにもかかわらず、必ずしも充分な実験結果を得たとは言えない。

この章に掲げたのは、主として大型水槽を用いた実験の結果で、魚種はイナダ、スズキなどの回遊魚、ヒラメ、カレイなどの底生魚で通常大型の成魚を対象とし、RIトレーサーとしては、<sup>85</sup>Sr、<sup>60</sup>Co、<sup>65</sup>Zn、<sup>144</sup>Ce、

$^{106}\text{Ru}$ ,  $^{131}\text{I}$  を用いた実験の結果である。

放射性核種の選定理由や実験魚種および実験方法、実験の結果および考察を個々の放射性核種ごとに、以下に記述する。

(1) ストロニウム ( $^{85}\text{Sr}$ )

(a) 結 言

$^{90}\text{Sr}$  の魚類への濃縮係数は、比較的に大きい数値を示す安定元素定量法による数多くのデータを見ても、硬組織に 2 桁程度であり、主な可食部としての筋肉への移行蓄積は海水濃度より低く、濃縮は認められない。すなわち、陸上汚染に比べると海洋汚染では、 $^{90}\text{Sr}$  の食品汚染に与える寄与は概して少ないといえるが、放射性降下物のみでなく放射性廃液にも少量は含まれる核種であるため、 $^{90}\text{Sr}$  の魚類への移行の時間的変動 (取り込みと排出) と体内各部位別の蓄積の相違を調べ、廃液の希釈放流時における魚類汚染を把握するデータを得ることをはかった。

(b) 実験魚種および実験方法

茨城県沿岸で漁獲され、大洗町と磯崎町との両漁港に水揚げされた以下の生魚を用いた。

ヒラメ (Flounder) *Paralichthys olivaceus* (TEMMINCK & SCHLEGEL) 体長 315~425 mm, 体重 142~1270 g

インガレイ (Righteye flounder) *Kareius bicoloratus* (BASILEWSKY) 体長 247~430 mm, 体重 119~1073 g

アイナメ (Greenling) *Hexagrammos otakii* (JORDAN & STARKS) 体長 217~410 mm, 体重 163~810 g

スズキ (Sea bass) *Lateolabrax japonicus* (CUVIER) 体長 260~510 mm, 体重 172~413 g

ゴマノイ (Rockfish) *Sebastes nivosus* (HILGENDORF) 体長 225~292 mm, 体重 325~700 g

これらの成魚を予備飼育した後、健康な魚を選別し試験魚とした。実験飼育にあたっては、循環ろ過式の大型水槽に約 35 トンの海水を入れ、 $^{90}\text{Sr}$  のかわりに半減期の短い  $^{85}\text{SrCl}_2$  を 27.3 mCi 添加した。海水中の R I 濃度の変動が安定してから供試魚を投入した。投入後、経日的に 3 尾ずつ取り上げ、清浄海水に数分間入れたのち解剖し、各臓器および組織に分け、NaI(Tl) ウェル型シンチレーション・カウンターで放射能を測定した。生物の取り上げと同時に採取した海水の放射能

を測定し、生組織 1 g 当りの放射能と海水 1 ml の放射能との比を求め、これを濃縮係数とした。

また、ヒラメについては清浄海水における放射能の排出状況を観察した。すなわち、 $^{85}\text{Sr}$  を体内に取り込んでいるヒラメを清浄海水に戻して、生物体からの放射能の排出状況を経日的に求めた。

(c) 実験結果および考察

Fig. 1 に、時間的な取り込みの変動の例としてヒラメの結果を示した。 $^{85}\text{Sr}$  は、ウロコ、骨、エラなどのカルシウムに富む硬組織に主として取り込まれた。その中でもウロコは高く 150 日目まで C.F. は 6 を示し、次いで骨の 4.2、エラ・背ヒレの 1.7 の順であった。しかし、これらの組織の C.F. は、R I 飼育 150 日後でも、まだ平衡に達しないで上昇を続けることが観察された。それに反し、肝臓・筋肉などの軟組織の C.F. は低く 0.05 前後であり、早い時期に平衡に達することが認められた。

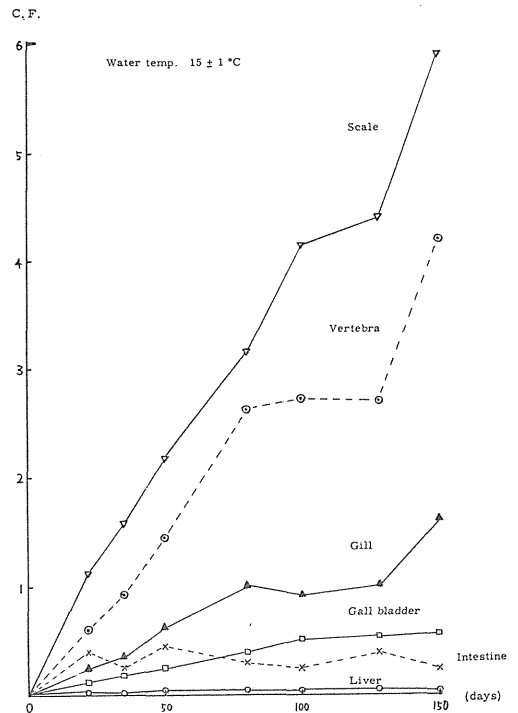


Fig. 1. Concentration of  $^{85}\text{Sr}$  by "Hiramé" *Paralichthys olivaceus*

この実験では、エラを通じての直接の取り込みを観察しているため、実験魚には餌を与えていない。したがって、腸内容物は腸からの排出物が主体と思われる。すなわち腸内容物



は白色または淡緑色で、すべての試料には認められなかったが、存在する場合は20~100という高いC.F.を示した。これは、ストロンチウムはカルシウムと同様に消化管への排出が大きいことによると考えられる。

胃・腸・幽門垂のC.F.に若干の変動があり、1以下ではあるが、概して高いC.F.を示したのは消化管内容物の存在に影響されたものであろう。

次に、取り込み50日目の5魚種のC.F.を、Table 1.に示す。肝臓・胃・腸・脾臓・筋肉などの軟組織およ

び血液では、魚種間の差は見られなかったが、ウロコ・骨などの硬組織では、実験魚種別の差が見られた。しかし、前記のように50日間では、これらの組織のC.F.は未だに平衡に達しなかったことから、魚種によってC.F.が異なると断定し得ない。また魚種よりも年令による差かも知れない。

次に、ヒラメの<sup>85</sup>Srの排出の経日的変化をFig. 2.に示す。この結果からC.F.の高かった組織の生物学的半減期を計算すると、胆のう16日、ウロコ23日、エラ82

Table 1. Concentration factors of <sup>85</sup>Sr by various organs of fishes at the fiftieth days.

Fishes	Hirame (Flounder) <i>Paralichthys olivaceus</i>	Ishigarei (Righteye flounder) <i>Kareius bicoloratus</i>	Gomasoi (Rockfish) <i>Sebastes nivosus</i>	Ainame (Greenling) <i>Hexagrammos otakii</i>	Suzuki (Sea bass) <i>Lateolabrax japonicus</i>
Liver	0.05	0.05	0.01	0.03	0.02
Stomach	0.10	0.09	0.03	0.16	0.07
Intestine	0.46	0.16	0.49	0.26	0.14
Gall-bladder	0.26	0.23	0.09	0.07	0.14
Kidney	0.02	0.10	—	0.07	0.13
Spleen	0.05	0.05	0.02	0.03	0.08
Gonad	0.08	—	0.03	0.09	0.01
Muscle	0.01	0.01	0.01	0.02	0.02
Scale	2.30	—	0.79	4.80	2.30
Skin	0.27	0.07	0.04	0.11	0.12
Gill	0.63	0.24	0.35	0.59	0.77
Vertebra	1.40	0.55	0.30	0.68	0.74
Dorsal fin	0.67	0.35	0.42	0.42	1.30
Blood	0.05	0.03	0.03	0.05	0.03

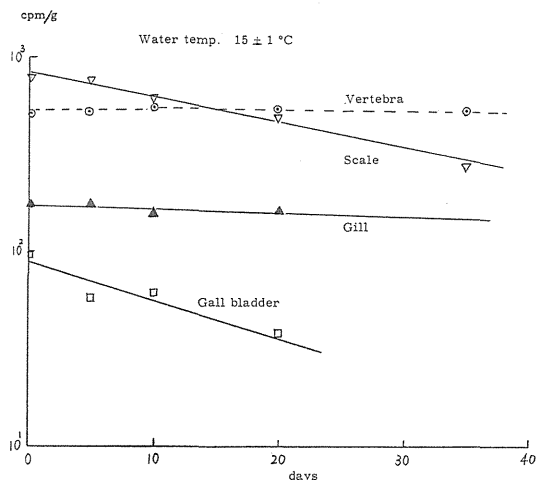


Fig. 2. Loss of <sup>85</sup>Sr by Hirame (Flounder) *Paralichthys olivaceus*

日、背椎骨229日となり、背椎骨からの排出はかなり遅いことが観察された。前記の取り込みのカーブとこの排出曲線とから、背椎骨の取り込み率と排出率を求め、その比率を求めると10~13程度の値が得られる。これがトレーサー実験で得られる平衡時のC.F.に相当するものと考え、増加を続けている背椎骨のC.F.は1年或いは1年半程度の飼育実験を行なえば、ほぼ平衡状態での値に到達するものと考えられる。また、この値は安定Srを定量することによって得られた魚の骨のC.F.10~40の値にもよく一致した。

#### References

- 1) Hiyama, Y. and M. Shimizu: On the concentration factors of radioactive Cs, Sr, Cd, Zn and Ce in marine organisms. Rec. Oceanogr. Works in Japan, 7, 43-77 (1964)
- 2) Reed, J.R. and D.J. Nelson: Radiostrontium uptake in blood and flesh in bluegills (*Lepomis macrochirus*). Proc. of Second Symposium on Radioecology, USAEC Rept. CONF-670503, 226-233 (1969)

(2) コバルト ( $^{60}\text{Co}$ )

(a) 緒言

$^{60}\text{Co}$  は海産生物への濃縮が著しく、特に可食部である軟組織に蓄積され易いので、放射線衛生上の見地から注目を要する代表的な核種の一つといえる。

この核種は核燃料、再処理施設の液体廃棄物としては問題が少ないようであるが、原子炉冷却水からは検出される可能性のある核種なので、魚類への移行機構につき観察した。なお  $^{60}\text{Co}$  の海産生物への移行については、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{144}\text{Ce}$  で検討されて問題を提起したと同様に、 $^{60}\text{Co}$  の海水中での化学形の変化や生物相互あるいは堆積物と生物の間における転移が問題となると考えられる。これらの点については別個に検討を進めているので、本章では海水から直接の移行を主体に観察した結果について記述する。

(b) 実験魚種および実験方法

大型海水循環水槽 (50トン容) に40トンの海水を満たし、トレーサーとして  $^{60}\text{Co}$  を塩化物の形で40mCi添加し、放射能の減少がほぼ安定したRI添加後、16日目にヒラメ、また24日目にイナダ (*Yellowtail*) *Seriola quinqueradiata* をそれぞれ30尾水槽に投入した。しかし、実験魚投入後も海水の放射能は減少を続けた。すなわちヒラメ投入時の海水の放射能は  $9.81 \pm 2.4$  cpm/mlであったが、最終時 (ヒラメ120日目) には  $1.02 \pm 0.9$  cpm/mlに減少し、 $^{60}\text{Co}$  が濾過材および濾過材中の好気性細菌あるいは水槽壁に長期間にわたって収着されつづける傾向が認められた。

したがって、慣例によって、C.F. は試料生物を取り上げたときの海水濃度を用いて計算した。飼育日数はヒラメ120日、イナダ50日であり、その間の各臓器、組織別の濃縮の経日的変化を追跡した。一方、ヒラメ、イナダを清浄海水に移して50日間飼育し、 $^{60}\text{Co}$  の排出状況を観察した。

(c) 実験結果および考察

Fig. 3.に見られるように、ヒラメを120日間飼育した結果では、肝臓を除いては大部分の部位が平衡に達している。肝臓の120日目の濃縮係数は6.27であり、腎臓の7.48と並んで高い濃縮を示している。筋肉への濃縮は低く、各部位のうちでは最小の濃縮係数1.7を示した。骨は筋肉よりも高く1.11であった。魚種による差を同じ50日飼育のヒラメとイナダとで比較してみると、全般的にヒラメの方が高く、肝臓ではヒラメの方が3倍以上高い濃縮係数を示した。排出実験の結果を肝臓、皮、骨の3部位について比較してみると、Fig. 4.でみら

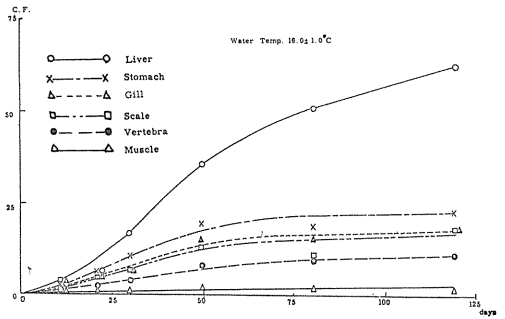


Fig. 3. Concentration of  $^{60}\text{Co}$  by Hiramé (Flounder) *Paralichthys olivaceus*

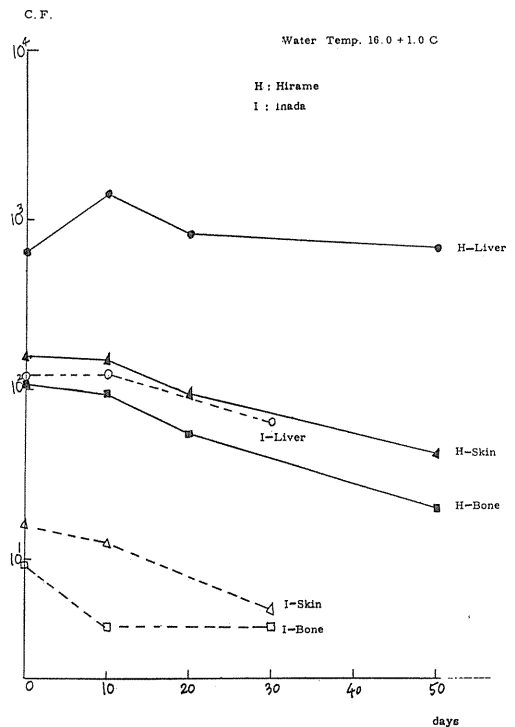


Fig. 4. Loss of  $^{60}\text{Co}$  by Hiramé (Flounder) *Paralichthys olivaceus* and Inada (Yellowtail) *Seriola quinqueradiata*

れるように肝臓からの排出は到って緩慢であるが、皮、骨の排出速度は比較的大きく、皮では25.0日の生物学的半減期を示した。

イナダではFig. 5.にみられるように50日飼育で肝臓を除く大部分の部位が平衡状態に達していると思われる。肝臓の濃縮係数は部位のうちでは最高の1.10を示しているが、可食部の筋肉にはほとんど濃縮がみられず、50日目の濃縮係数は0.4であり、濃縮実験期間中1.0

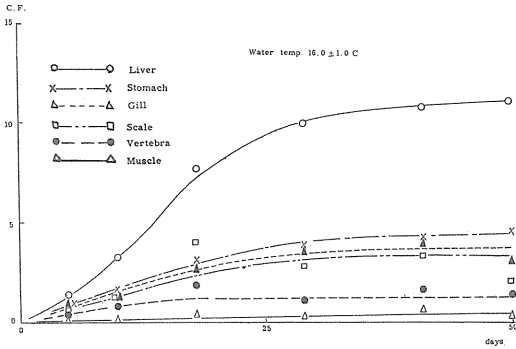


Fig. 5. Concentration of  $^{60}\text{Co}$  by Inada (Yellowtail) *Seriola quinqueradiata*

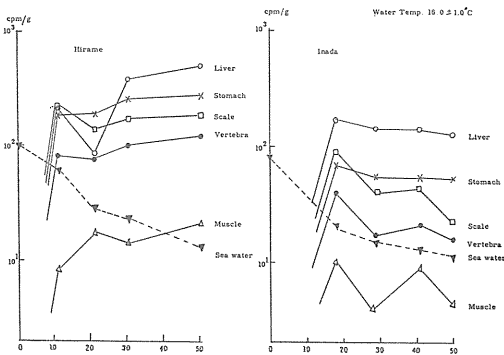


Fig. 6. Concentration of  $^{60}\text{Co}$  by Hiramé (Flounder) *Paralichthys olivaceus* and Inada (Yellowtail) *Seriola quinqueradiata*

以上を示す魚体はなかった。Fig. 6.は50日目までの濃縮傾向をcpm/gで示したものであるが、イナダでは海水の放射能の減少に伴って濃縮が減少しているのに対し、ヒラメではむしろ漸増傾向がみられた。この現象の違いは海水中の放射能濃度の減少にヒラメの排出が追いつかず、cpm/gでは増加しているものと考えられる。また、濃縮平衡に達する時間をイナダの場合と比べてみても、ヒラメはかなり遅いことが示されており、このことから、ヒラメとイナダとはその代謝速度にかなりの違いがあることが考えられ、それが $^{60}\text{Co}$ の取り込みにも反映されていると言えよう。

なお、各部位の濃縮係数をTable 2.に示した。

### (3) 亜鉛 ( $^{65}\text{Zn}$ )

#### (a) 緒言

$^{65}\text{Zn}$  はかつてのビキニ原爆汚染魚の放射能の主成分

Table 2. Concentration factors for  $^{60}\text{Co}$  by several organs of marine fishes

Fishes	Hiramé (Flounder) <i>Paralichthys olivaceus</i>	Inada (Yellowtail) <i>Seriola quinqueradiata</i>
Liver	62.7	11.0
Stomach	22.9	4.5
Intestine	18.8	2.3
Pyloic-caecum	18.5	2.8
Gall-bladder	8.8	9.4
Kidney	74.8	8.0
Spleen	36.3	4.4
Gonad	11.0	2.0
Muscle	1.7	0.4
Vertebra	11.1	1.4
Gill	19.1	3.0
Scale	18.4	2.1
Skin	15.4	3.3
Dorsal-fin	25.8	5.3

bred for 120 days    bred for 50 days

として検出された核種で、魚介類へ濃縮され易い代表的な核種としてあげられる。また、この核種は $^{60}\text{Co}$ と同様、原子炉冷却水のなかに誘導放射性核種として存在する可能性があるだけに、大型海産魚を用いて魚類の $^{65}\text{Zn}$ 汚染について検討を進めた。

#### (b) 実験魚種および実験方法

循環ろ過式の大形水槽に約40トンの海水を満し、 $^{65}\text{ZnCl}_2$ を41mCi添加した。水槽壁面やろ過砂への $^{65}\text{Zn}$ の吸着が考えられたので、さらにキャリアとして $\text{Zn}^{++}$ を10.9g添加し、海水中の放射能の経日的減少がほぼなくなった安定した状態になってから供試魚を投入した。

供試魚は、ヒラメ：体長300~400mm、体重300~800g

アイナメ：体長250~400mm、体重250~900g

イシダイ (Parrot Fish) *Oplegnathus fasciatus* TEMMINCK & SCHLEGEL 体長150~200mm、体重130~300gを使用した。

これらは、いずれも茨城県大洗および東海村沿岸で漁獲されたものである。

実験開始後、経日的に2~3尾ずつ取り上げ、清浄海水に数分間入れたのちに解剖し、肝臓、筋肉、骨などの15~16部位に分け、各部位の放射能をNaI(Tl)ウェル型シンチレーション・カウンターで測定した。魚試料と同時に取り上げた海水の放射能を測定し、魚と海水と

の放射能の比から濃縮係数を算出した。実験期間中の飼育水温は、 $20 \pm 1^\circ\text{C}$  に調節した。餌は魚が健康を保つ程度に週2回の割合で冷凍イワシを投与したが、投与直後にすみやかに摂餌するように与えているので、餌の汚染による影響は少ないといえよう。

(c) 実験結果および考察

R I とキャリアを添加後、約20日で海中の放射能は、ほぼ減少しなくなったが、添加量の95%余が壁面や河過砂に吸着することが観察された。

ヒラメについては70日間、イシダイ、アイナメにつ

いては100日間にわたっての取り込み実験を行なった。各部位の取り込みの傾向を、Fig. 7および7Aに示す。

部位別に見ると、肝臓、胃、腸などの消化器系の濃縮係数が高く、60~200を示した。一方、筋肉、骨、血液などは、3魚種とも低く3~10程度であった。

魚種間の差を、投入後50日目のデータで比較すると、ほぼ似た値を示し、 $^{60}\text{Co}$ の場合にみられたような差は認められなかったが、概してアイナメの濃縮係数は低い傾向にあった。

腸内容物は変動があるが、かなり高い値を示したことはZnも腸内排泄が盛んであることを示すと考えられ、

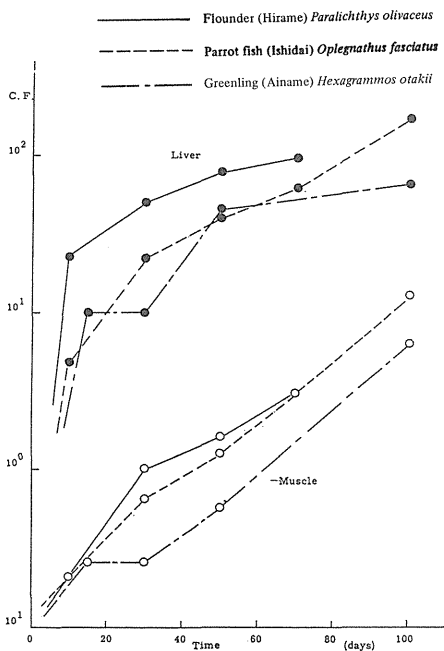


Fig. 7. Concentration of  $^{65}\text{Zn}$  by marine fishes.

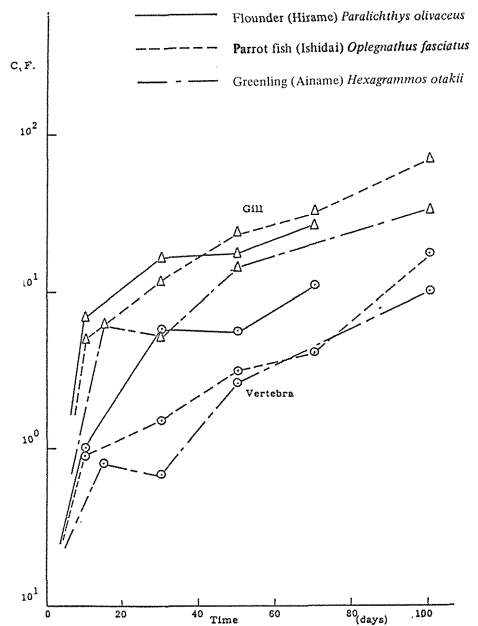


Fig. 7A. Concentration of  $^{65}\text{Zn}$  by marine fishes.

Table 3. Concentration factors of  $^{65}\text{Zn}$  by marine fishes at the fiftieth day

Organs	Fishes	Hirame (Flounder) <i>Paralichthys olivaceus</i>	Ishidai (Parrot fish) <i>Oplegnathus fasciatus</i>	Ainame (Greenling) <i>Hexagrammos otakii</i>
	Liver		78.1	40.0
Intestine		88.4	33.0	14.5
Kidney		27.6	33.7	17.1
Muscle		1.6	1.3	0.6
Gill		17.6	23.5	14.5
Vertebra		5.6	3.1	2.6
Blood		2.8	13.8	5.1
Gut contents		—	115.3	51.2

これは腸、幽門垂などの消化管の濃縮係数を見かけ上高くしている一因と考えられる。(Table 3)

100日間の実験では、完全に海水と魚との放射能が平衡状態になったとは言えないし、また本実験では<sup>65</sup>Znの水槽壁面や濾過砂への吸着防止のために、キャリアを加えているので、この影響についてもさらに検討を加えていきたい。

#### References

- 1) Kameda, K., M. Shimizu and Y. Hiyama: On the uptake of <sup>65</sup>Zn and the concentration factors on Zn in marine organisms. I. Uptake of <sup>65</sup>Zn in marine organisms. *J. Rad. Res.* **9**, 50-62 (1968)
- 2) Hiyama, Y. and M. Shimizu: On the concentration factors of radioactive Cs, Sr, Cd, Zn and Ce in marine organisms. *Rec. Oceanogr. Works in Japan*, **7**, 43-77 (1964)

#### (4) セリウム (<sup>144</sup>Ce)

##### (a) 緒言

<sup>144</sup>Ceは核爆発実験の放射性降下物による海水汚染の主成分としてあげられており、爆心地付近の汚染魚の放射性核種の主成分として検出されたこともあるが、生体内への吸収蓄積の生化学的行動は余り活発ではない。<sup>144</sup>Ce, <sup>141</sup>Ce, <sup>143</sup>Ceなどは使用済核燃料再処理施設および原子炉施設の廃水の構成成分としても主要なものであるため、<sup>144</sup>Ceのエラから魚体への直接吸収に関し検討を行なった。なお、<sup>144</sup>Ceの海底への沈降や生物体表などへの付着につき見知を得るための<sup>144</sup>Ceの海水中における挙動の究明に関しても実験したが、この点については後章に記載する。

##### (b) 実験魚種および実験方法

20トンの海水を満たした大型海水循環水槽にトレーサーとして無担体<sup>144</sup>Ceを20 mCi添加したところ、数時間で放射能の著しい減少がみられた。そのため10 mCi再添加するとともに、20 mgのセリウムの担体を加えた。しかし、なお数日にわたって放射能の減少がみられたので、クエン酸840 mg, EDTA-2Na 500 mgを加えた。そのためRI添加後15日目ではほぼ安定に達したので、供試魚のスズキ、イシダイ、ヒラメを各50尾ずつ水槽に投入した。なお飼育日数はスズキ:105日、イシダイ:106日、ヒラメ:83日であり、その間各臓器、組織別の濃縮傾向を経日的に観察した。

一方、イシダイについては106日目から清浄海水に移して、さらに56日間飼育し、<sup>144</sup>Ceの排出状況を観察した。

##### (c) 実験結果および考察

Fig. 8はスズキによる<sup>144</sup>Ceの濃縮を示したものであるが、直接、汚染海水と接しているエラ、ウロコなどで高い濃縮が認められた。また、内臓器管のうちでは肝臓に高い濃縮があった。

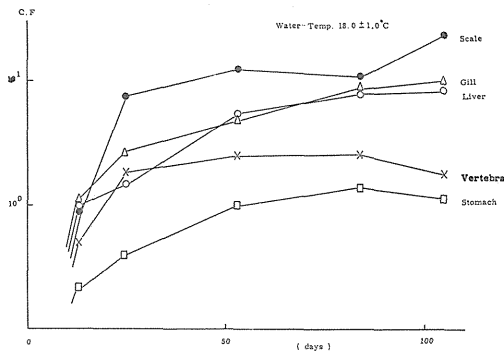


Fig. 8. Concentration of <sup>144</sup>Ce by Suzuki (Sea bass) *Lateolabrax japonicus*

海水と生体との放射能が平衡に達する期間については魚種による差が認められたが、スズキでは105日飼育でもまだ全般的に漸増傾向にあるが、骨についてはほぼ平衡に達しているものと思われる。

Fig. 9はイシダイの濃縮傾向を示したものであるが、106日飼育でも平衡に達している部位は少なく、特に肝臓、エラ、ウロコでは増加傾向を示した。106日目の肝臓の濃縮係数は7.74であり、スズキの場合の肝臓と比較すると9倍程度の高い濃縮を示した。

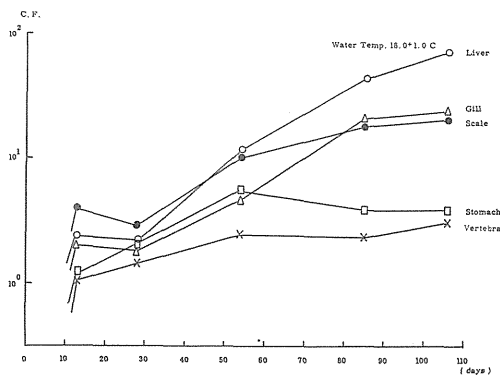


Fig. 9. Concentration of <sup>144</sup>Ce by Ishidai (Parrot fish) *Oplegnathus fasciatus*

Fig. 10. はヒラメの濃縮を示したものであるが、83日飼育ではいづれの部位も平衡に達していない。また、この実験では53日目のC.F. が低くなっており、それは生物の個体差によるものかと思われるが原因は不詳である。

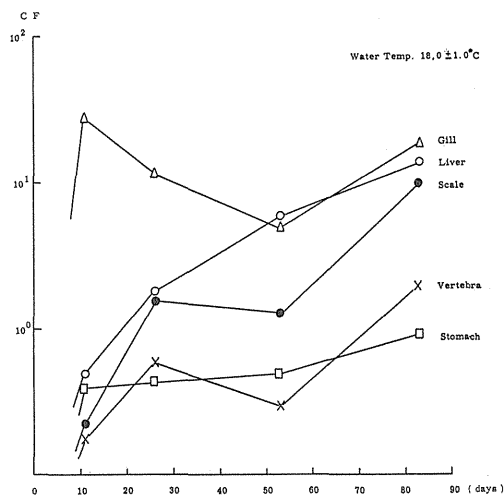


Fig. 10. Concentration of  $^{144}\text{Ce}$  by Hiramé (Flounder) *Paralichthys olivaceus*

Fig. 11. はイシダイを用いた  $^{144}\text{Ce}$  の排出に関する結果を示したものであるが、排出の速い部分と遅い部分があり、肝臓、ウロコではほとんど排出がみられなかった。

排出速度がほぼ一定したと思われる31日と56日のデータから生物学的半減期を求めると、Table 4. のような値がえられた。

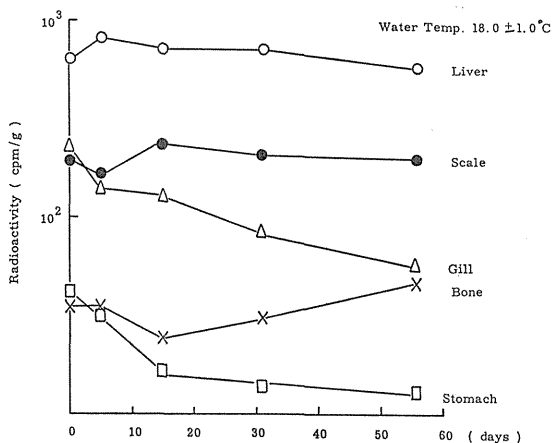


Fig. 11. Loss of  $^{144}\text{Ce}$  by Ishidai (Parrot fish) *Oplegnathus fasciatus*

Table 4. Biological Half lives for  $^{144}\text{Ce}$  in Ishidai (Parrot fish) *Oplegnathus fasciatus*

Organs	Tb (days)
Liver	85
Stomach	52
Scale	375
Bone	∞
Gill	46

この実験では長期の飼育実験を可能とするため、 $^{144}\text{Ce}$  の汚過槽などへの吸着を防ぐ意味で担体、クエン酸、EDTA-2Na の添加を行なった。この点に関しては自

Table 5. Concentration factors for  $^{144}\text{Ce}$  by several organs of marine fishes

Fishes	Suzuki (Sea bass) <i>Lateolabrax japonicus</i>	Ishidai (Parrot fish) <i>Oplegnathus fasciatus</i>	Hiramé (Flounder) <i>Paralichthys olivaceus</i>
Liver	8.3	77.4	14.3
Stomach	1.1	4.3	0.9
Kidney	4.0	*	11.9
Muscle	*	0.2	0.3
Scale	23.5	21.9	10.2
Bone	1.8	3.6	2.0
Gill	10.3	26.5	19.7
Spleen	2.1	0.3	2.9

\* unmeasured

然条件とは異なったものといえるが、放射性セリウムの生体への吸収と排出についての傾向につき、若干の新知見をえることができたと考える。

なお、Table 5 に 3 魚種の最終とりあげ日の濃縮係数を一覧表にして示した。

(5) ルテニウム ( $^{106}\text{Ru}$ )

(a) 緒言

$^{106}\text{Ru}$  は、使用済核燃料再処理施設から沿岸に放出されることがある液体放射性廃棄物の主成分として特に注目される。日本に建設中の再処理施設の廃液の放射能も、 $^{106}\text{Ru}$  ( $^{106}\text{Rh}$ ) が全放射能の半量近くになるものと見込まれており、イギリスのウィンズケール原子力施設では全放射能の 80% が  $^{106}\text{Ru}$  ( $^{106}\text{Rh}$ ) によることがある。この核種は、種々の化学形を示し、かつ化学形の変化が著しいことで代表的なものといえるので、市販の R I の化学形を示したのみでは正確な化学形を表したとはいえない。したがって、過去における濃縮係数の研究報告の大部分は化学形不詳のものといえる。

この報告は、再処理施設廃液の化学形の主なものとして考えられているニトロシル・ルテニウム・ニトロ錯塩に関するものである。なお、他の化学形の濃縮係数については、海水中における  $^{106}\text{Ru}$  の化学形変化に注目しながら検討した後章の実験結果を参照していただきたい。

(b) 実験魚種および実験方法

50 トンの海水循環水槽に、ニトロシル・ルテニウム・ニトロ錯塩の形に調整した  $^{106}\text{Ru}$  を約 40 mCi 添加し、海水の放射能が平衡に達したのち、ヒラメ、コチ (Flat head) *Platycephalus indicus* (LINNAEUS)、イナダを投入し、それぞれ 130 日、80 日および 50 日間飼育を行ない、その間における各臓器、組織別の経日的変化を追跡し、飼育海水中の放射能濃度との比を求めて濃縮係数を算出した。一方、ヒラメについては 130 日間汚染させたのち非汚染海水に移して、更に 90 日間飼育し、 $^{106}\text{Ru}$  の排出状況を観察した。また、 $^{106}\text{Ru}$  の濃縮機構と体内分布の状況を検討する目的で水槽飼育および筋肉注射によって、 $^{106}\text{Ru}$  を取り込ませたセイゴのオートラジオグラフを作成し観察をこころみた。

(c) 実験結果および考察

ヒラメによる  $^{106}\text{Ru}$  の取り込みは Fig. 12 に示されたとおりで、肝臓、腸管に最も濃縮が著しく、皮や筋肉などには極くわずしか取り込まれなかった。130 日間の飼育でも肝臓の  $^{106}\text{Ru}$  蓄積はなお増加する傾向がみら

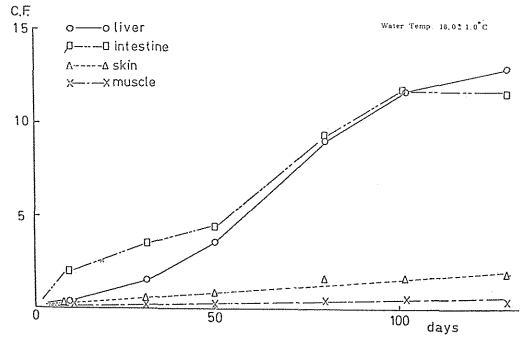


Fig. 12. Concentration of  $^{106}\text{Ru}$  by Hirame (Flounder) *Paralichthys olivaceus*

れるが、腸管ではほぼ平衡に達したようである。飼育 130 日における C. F. は肝臓で約 13、腸管で約 12 であるのにたいし、皮や筋肉では肝臓や腸管の約 1/10 であった。

コチの濃縮についての Fig. 13 からみると、飼育 80 日間では底生魚のヒラメと同様に濃縮の傾向はほとんど変わらず、腸管では 50 日目位で平衡に達したとみられるが、肝臓では平衡に達するにいたらなかった。また、濃縮係数の値でもほぼヒラメに近く、皮や筋肉およびその他の臓器についても濃縮は低く、同じ底生魚のヒラメと比較するとほとんど濃縮の傾向は変らなかった。

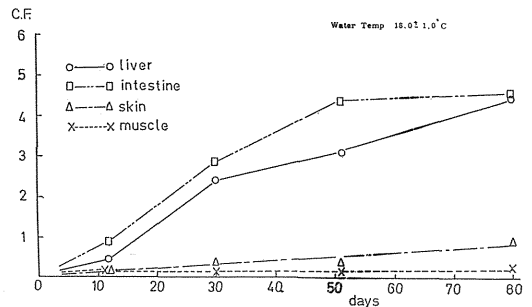


Fig. 13. Concentration of  $^{106}\text{Ru}$  by Magochi (Flat head) *Platycephalus indicus*

イナダの実験結果は Fig. 14 に示したとおりで、飼育日数が 50 日であり比較的短かったが、やはり肝臓への取り込みが著しく、実験期間中ほぼ直線的に上昇しているのに比べて、腸管はほぼ平衡に達した。また、他の臓器についても濃縮が少なく、50 日目の C. F. は底生魚のヒラメ、コチに比べて回遊魚のイナダでは約 1/2

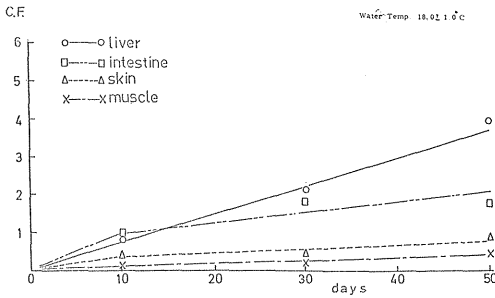


Fig. 14. Concentration of  $^{106}\text{Ru}$  by Inada (Yellowtail) *Seriola quinqueradiata*

程度の値を示した。

ヒラメを非汚染の清浄海水に移して、 $^{106}\text{Ru}$ の排出状況を観察した結果がFig. 15であるが、最も顕著な排出は腸管でみられ、放射能濃度は、ほぼ指数函数的に減少し、生物学的半減期は53.8日となり、比較的迅速な放射能の減少は主として消化管内容物の排泄などに起因するものと考えられ、取り込み実験でも腸管の高い濃縮係数は内容物の寄与がかなりあるものと推定される。一方、肝臓では全体の放射能の15%程度は初期に比較的早く失われるが、それ以降は全く減少がみとめられない。このことは、ごく一部が体内転移あるいは体外排出により失われるが、その大部分については排出され難

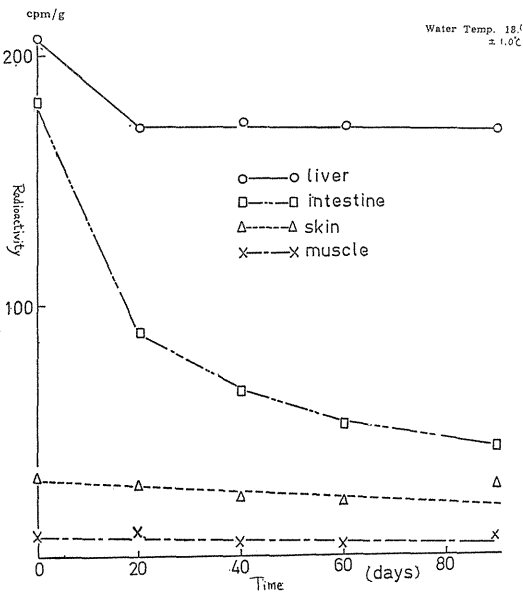


Fig. 15. Loss of  $^{106}\text{Ru}$  from Hirame (Flounder) *Paralichthys olivaceus*

い形で長期にわたって蓄積されるものと推定される。

また、オートラジオグラフを用いてセイゴの $^{106}\text{Ru}$ の体内分布を観察した結果をFig. 16に示した。同図はRIを添加した水槽中で100時間汚染させたものであるが、肝臓およびその他の内臓への濃縮がみられる。また、Fig. 17は同じ化学形のトレーサーを筋肉内に注射した場合であるが、5時間ですでに著しく肝臓への濃縮が認められ、29時間後では投与部位の筋肉への残存はわずかであり、体内における $^{106}\text{Ru}$ の転移は比較的早いことがわかった。 $^{106}\text{Ru}$ の腸管からの吸収は少ないことが哺乳動物によって示されているが、体内に一旦入ったものの転移と特定の臓器への蓄積性は、魚ではかなり活発であることがわかった。

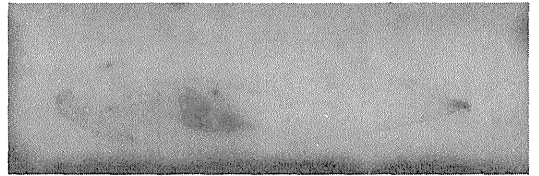


Fig. 16. Whole-body radioautograph of sea bass *Lateolabrax japonicus* contaminated with  $^{106}\text{Ru}$  in aquarium for 100 hours.

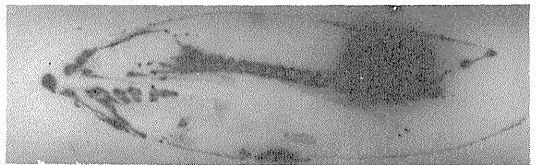
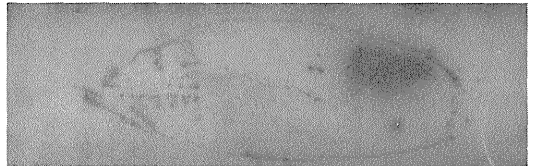


Fig. 17. Whole-body radioautograph of sea bass, contaminated with  $^{106}\text{Ru}$  by intramuscular injection. Five hours (top) and 29 hours (bottom) after injection.

## (6) ヨウ素 ( $^{131}\text{I}$ )

### (a) 緒言

$^{131}\text{I}$  ~  $^{138}\text{I}$  は原子炉冷却水ならびに使用済核燃料再処理施設の廃液の成分としてあげられる。また仮想事故



時において、原子炉から放出されることが予想される放射性核種のうちでも、生物親和性の高いヨウ素が環境から食品を通じて、人体に摂取され影響を与える可能性が最も高いものとして注目を要する。海産生物、特に褐藻類へのヨウ素の蓄積がいたって多いことは昔から知られているが、海産生物への濃縮機構に関しては不明の点が多く、海水に添加されたヨウ素の海産魚類への蓄積速度や排泄速度も不詳である。

(b) 実験魚種ならびに実験方法

大型実験水槽に約20トンの海水を満し、 $\text{Na}^{131}\text{I}$ を20mCi添加した。RI添加後、海水中の放射能濃度の経日的変化がなくなり安定してから魚を投入した。

供試魚は、スズキ：体長193~291mm, 体重430~740g

イナダ：体長300~380mm, 体重430~740g

ゴマソイ：体長190~260mm, 体重200~580gである。

実験期間中の飼育水温は、 $19 \pm 1^\circ\text{C}$ に調節した。餌は魚が健康を保つ程度に週2回の割合で冷凍イワシを投与したが、投与直後にすみやかに摂餌するように与えているので、餌の汚染による影響はいたって少ないといえよう。

投入後、経日的に3尾ずつ取り上げ、各臓器および組

織の濃縮係数を求めた。取り込みの実験と並行して、スズキ、ゴマソイについては汚染魚を非汚染の海水に戻しての排出実験も行なった。

(c) 実験結果および考察

3魚種の $^{131}\text{I}$ 取り込みの結果をFig. 18からFig. 20に示した。 $^{131}\text{I}$ の各組織、臓器への取り込みは、かなり速いことが認められた。ただし、他の核種での実験結果とは異なって魚投入後の5日から10日目に濃縮係数が最大になり、それ以後は減少する傾向が見られた。臓器の中では胆のうが極端に高い濃縮係数を示し、一番高くなった時で、ゴマソイでは735の値が得られた。ついで、胃、腸、幽門垂などの消化管が高く、10~100、その他の組織・臓器や血液では、10~20の間であった。一方、筋肉の濃縮係数は低く、3魚種とも2を越すことがなかった。上記の通り胆のうが高い濃縮係数を示したが、摂餌直後において胆汁が消化管に排出された胆のうでは、濃縮係数が低いことが観察された。このことから、胆汁中に $^{131}\text{I}$ が多いものと推定できる。

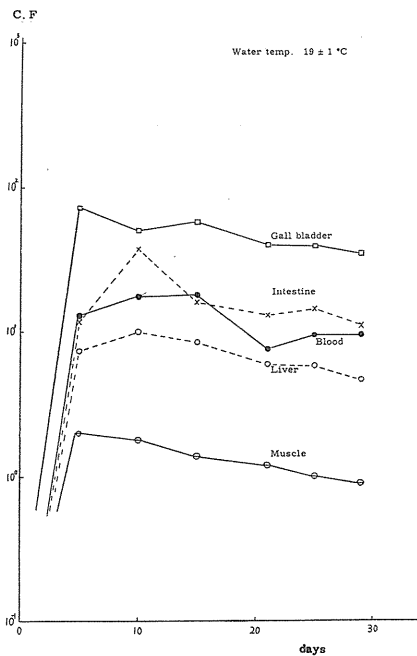


Fig. 18. Concentration of  $^{131}\text{I}$  by "Suzuki" *Lateolabrax japonicus*

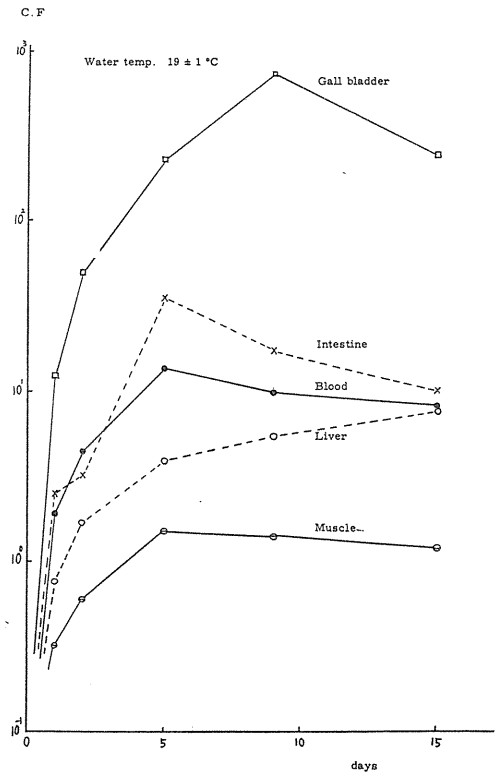


Fig. 19. Concentration of  $^{131}\text{I}$  by "Gomasoi" *Sebastes nivosus*

R I 添加海水飼育 5 日目の各組織、臓器の濃縮係数を、魚種別に Table. 6 に示した。魚種間の差では、胆のう、腎臓でイナダが、ウロコ、ヒレでゴマソイが高い濃

縮係数を示したのが目立った。それ以外では 3 魚種とも近似した値を示し、顕著な差は見られなかった。

$^{131}\text{I}$  の排出実験は、スズキ、ゴマソイの 2 魚種について行なった。その結果を、Fig. 21. 22. に示す。水温  $20^\circ\text{C}$  の飼育で、非汚染海水に移して 15 日目には約

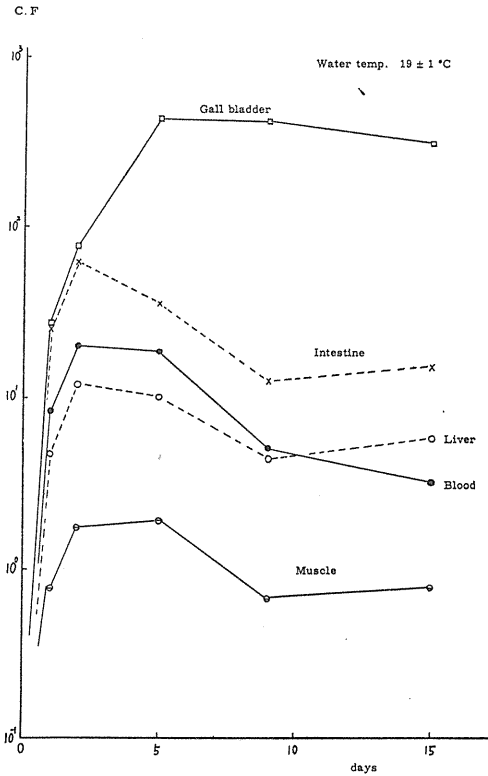


Fig. 20. Concentration of  $^{131}\text{I}$  by "Inada" *Seriola quinqueradiata*

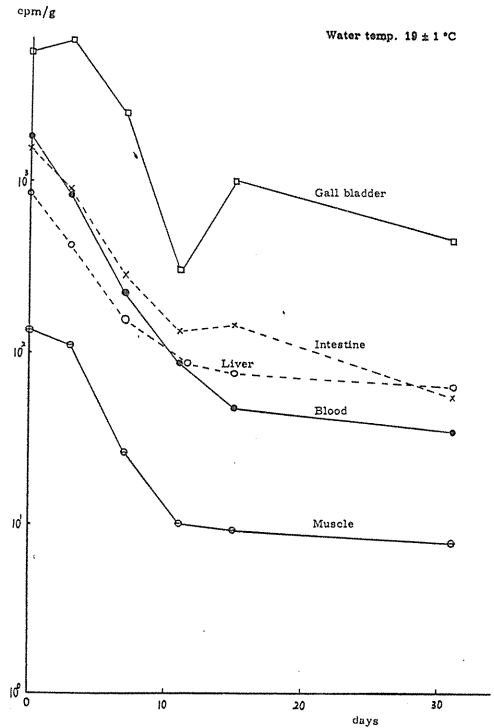


Fig. 21. Loss of  $^{131}\text{I}$  from "Suzuki" *Lateolabrax japonicus*

Table 6. Concentration factors of  $^{131}\text{I}$  by various organs of marine fishes at the fifth day

Fishes Organs	Suzuki (Sea bass) <i>Lateolabrax japonicus</i>	Inada (Yellowtail) <i>Seriola quinqueradiata</i>	Gomasoi (Rockfish) <i>Sebastes nivosus</i>
Liver	7.3	10.1	3.9
Intestine	11.7	35.2	34.9
Gall bladder	73.4	433.9	224.8
Kidney	7.4	42.9	8.6
Muscle	2.0	1.9	1.5
Scale	15.7	9.5	38.6
Skin	16.8	12.2	13.1
Gill	17.0	18.8	15.2
Bone	7.5	7.8	4.3
Dorsal fin	14.1	10.7	38.7
Blood	12.9	18.4	13.5
Intestinal contents	254.4	108.0	140.1

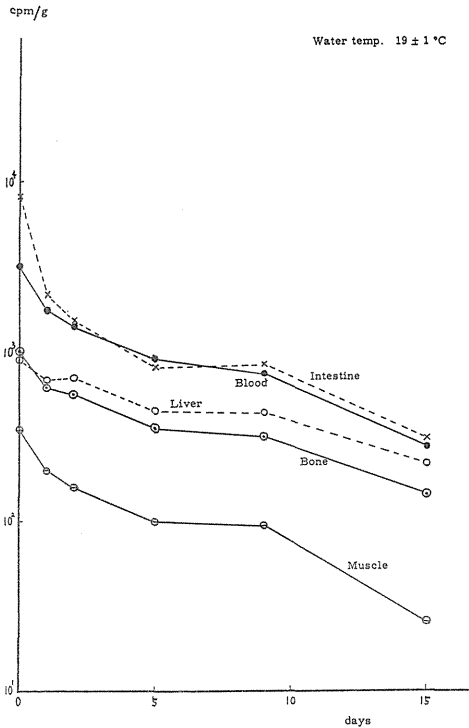


Fig. 22. Loss of  $^{131}\text{I}$  from "Gomasoi" *Sebastes nivosus*

90%以上が排出され、 $^{131}\text{I}$ の代謝は速いようであった。グラフを見ると、2~3の成分に分けられ、それをもとに筋肉の生物学的半減期を計算すると次のようになった。初期の極めて速く出る成分は、ゴマソイでは1.8日、それに続く成分は5.1日であった。スズキでは、ゴマソイのような初期の成分は顕著でなく、10日までの成分として2.8日が、その後のやや速い成分として5.8日が計算された。

取り込みのグラフで、5日から10日目にピークが表われた原因は不明であるが、海水中の $^{131}\text{I}$ の存在状態の変化によるものかも知れない。この点については、さらに検討を要するものと思われる。

#### References

- 1) Hiyama, Y. and J.M. Khan: On the concentration factors of radioactive I, Co, Fe and Ru in marine organisms. Rec. Oceanogr. Works in Japan, 7, 79-106 (1964)
- 2) Sugawara, K. and K. Terada: Iodine distribution in the western Pacific ocean. J. Earth Sci, Nagoya, 5, 81-102 (1957)
- 3) Tsunogai, S. and T. Henmi: Iodine in the surface water of the ocean. J. Oceanogr. Soc. Japan, 27, (2), 67-72 (1971)

## (7) シラスによる放射性核種の濃縮

### (a) 緒言

海産生物の中でも、シラスは沿岸海洋の放射能汚染にともなう人体への放射線内部被曝推定に際して、一つの重要な指標生物とされ、またときによっては原子力施設の安全審査などで仮のクリティカル食品として放射線影響の評価対象に採用されることがある。これはシラスが、それ自身游泳力に乏しく海流と共に移動するので放射能汚染水塊中に長く滞留する可能性のあることと、日本各地の沿岸でかなりの漁獲量があり、しかも全身が食用に供されるために他の魚種と違って骨や内臓などに取り込まれる放射性核種の濃縮も問題となることなどの理由にもとづいている。

シラスと総称されるものの中にもいくつかの魚種があり、その主体となすカタクチイワシ (*Anchovy*) *Engraulis japonica* (HOULTUYN) に関しても、大きさや分布、移動などの実態は季節的あるいは地理的にかなり複雑な変動を示すことが知られている。また茨城県沿岸は我が国でも有数のシラス漁場であり、その漁獲高でも千葉県以北では全体の大半を占めることが報告されている一方、沿岸住民の水産食品消費に関する実態調査においてもシラスの消費量はかなり高いことがわかっており、これらの事情からも、シラスの放射能汚染機構について詳細な実証的裏付けをする事の重要性が指摘される場所である。

しかしながら、シラスについて放射性核種の濃縮実験を行なう場合の大きな問題の一つに、その飼育の困難な点があげられる。特に自然海において卵期、仔魚期を過ぎた体長1~5cm程度の稚魚あるいは未成魚期のシラスを捕獲し、水槽内で正常に飼育するためには、損傷せずに稚魚を採取する方法をはじめとして、飼育時の水質や栄養などに関する条件や飼育装置あるいは設備に特別な工夫が必要と思われる。これらの点について、本研究においても度重なる検討を試みたが、まだ十分な成果を得るには到らなかった。したがって、実験結果にも不十分な点はあるが、数多くの実験のうち、とまかく2週間余にわたってシラスを生存飼育し得たものについて、RI濃縮および排出の実験結果を一部報告したい。

### (b) 実験方法

50Lの循環水槽に $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{95}\text{Zr}$ — $^{95}\text{Nb}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ をトレーサーとして添加し、放射能濃度がほぼ安定したのち、それぞれの水槽にシラスを投入した。以後、経時的にとりあげた個体について、全魚体の放射能を測定して海水の放射能濃度との比を求めると

共に、一部の実験においては魚の内臓部分とその他の部分とに大別して、それぞれの放射能を測定し、放射能の分布をしらべた。また、汚染シラスを清浄海水に移した時の排出状況も観察した。

(c) 結果および考察

Fig. 23 はシラスによる  $^{85}\text{Sr}$  および  $^{137}\text{Cs}$  の濃縮実験の結果を、飼育約 300 時間までの放射能濃度比の経時変化で示したものである。いずれの核種の場合も、実験中シラスの取り込みによる海水の放射能の減少は無視し得る量で、海水の放射能濃度はほぼ一定値を示した。 $^{85}\text{Sr}$  の濃縮は、24 時間位までの急激な濃度上昇として示され、その後は極く僅かな増加率を示すが、18 日目の濃

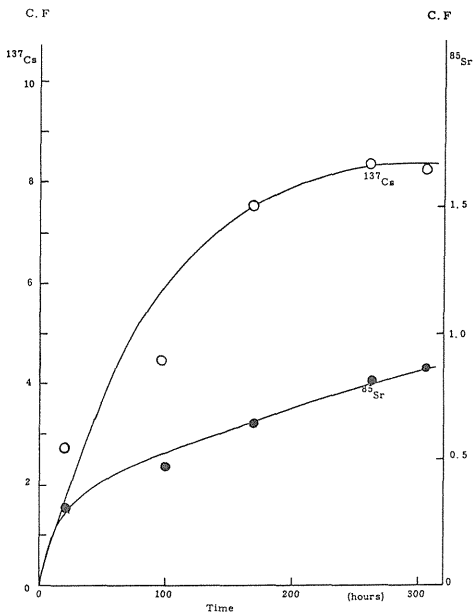


Fig. 23. Concentration of radionuclides by "Shirasu" immature Anchovy, *Engraulis japonica*

縮係数として 0.97 という値が算出された。この場合、内臓とそれ以外の部分とを比較すると、後者の濃縮係数は 0.7 ~ 0.8 前後のかなり安定した観測値を与えるのに対し、内臓ではバラツキが大きく、また時には著しく高い値を示すこともあって、全体の濃縮係数に大きく寄与していることが認められた。また、飼育中、明らかに異常と認められるような弱った個体では、正常なもの 2 ~ 10 倍の濃縮係数が得られ、生育状態によって濃縮係数が大きく左右される可能性を示したことは、トレーサー実験に先立って飼育条件の確立が必要なことを示唆するものと言えよう。

一方、セシウムについては、比較的早く濃縮平衡に近づくとみられるが、飼育 13 日目で計算した濃縮係数は 1.05 で、 $^{85}\text{Sr}$  にくらべると約 10 倍の値を示した。セシウムの場合も、内臓は他の部分に比較して 2 倍程度の高い濃縮係数を示したが、重量比を考慮に入れると全魚体の放射能に対する寄与は、6 ~ 12 % 程度にとどまるものと考えられる。

Fig. 24 は両核種の排出状況を比較したものであるが、いずれの場合にも初期の速い排出と、それに続く緩

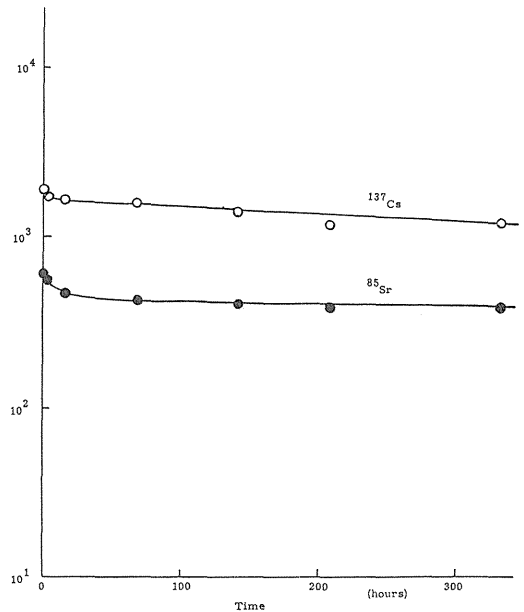


Fig. 24. Loss of radioactivities from "Shirasu", immature Anchovy, *Engraulis japonica*

慢な放射能の減少がみられ、 $^{85}\text{Sr}$  の場合、1 日目前後までの減少と 3 日以降の減少とを、それぞれの観測値から 2 つのコンポーネント  $T_1$ 、 $T_2$  にわけて生物学的半減期を算出すると、1.9 日および 8.3 2 日となる。全魚体の放射能に対する内臓の寄与が、汚染時には 11 ~ 18 % であったものが、清浄海水中に移った後には 1.2 ~ 1.8 % と減少する点からみて、初期の迅速な放射能の消失には腸管壁からの離脱や消化管内容物の排泄なども影響していると思われるが、他の魚種についてのストロンチウム濃縮、排出実験の結果にも見られるような肝臓からの迅速な排出なども含まれ、全体として代謝の速いブルーからの放射能の消失を示すとみられる。この比較的大きい排出率と、濃縮実験における初期の取り込み率との比は約 1 で、代謝の速いコンポーネントに関する限り、飼育

18日目に示された値を $^{85}\text{Sr}$ に対する濃縮係数の定常値とみなし得る。一方、長半減期で排出されるフラクシオンについて求められた排出率からは、平衡状態に到るに要する時間は550日以上と推定され、取り込み実験にみられる緩慢な増加率との比は5~10前後となるが、1年以上を経てシラス期を過ぎれば、ウロコの形成や骨の成長などから当然Sr代謝についても違いを生ずる筈であり、シラスに限って考える場合、そのような長期間後の定常値を採用することは不相当であろう。

$^{137}\text{Cs}$ に関しても、全魚体からの排出で4.2日および25.2日という長短二つの生物学的半減期が見られたが、全般に $^{85}\text{Sr}$ とくらべて、排出は迅速で、内臓と他の部位との放射能濃度の割合も排出の前後で特に変化がみられなかった。このことから、 $^{137}\text{Cs}$ については全魚体に関し比較的早い代謝での取り込みが考えられ、2週間の飼育ではほぼ定常的な濃縮係数を与えていると見ることができよう。ただし、 $^{137}\text{Cs}$ の場合には消化管よりの吸収を考慮すべきであり、餌を通しての取り込みによる濃縮係数への寄与を考えなければならない。

$^{144}\text{Ce}$ の濃縮は海産生物全般に表面吸着によるとみられるものが主体で体内への吸収は僅かであるが、シラス

の場合にも鱗の形成前の体表への吸着が大きく効いていられると思われる。トレーサー実験の結果でも、取り込みは極めて短時間の内に起る傾向がみとめられ、3日の飼育で約800の濃縮比を示したが、個体による差が大きく100倍ものひらきがみられた。殊に高い濃縮を示す個体では、通常全体の放射能の数%以下の低い分布しかみとめられない内臓の放射能濃度が80%以上をも占めるような例があり、 $^{144}\text{Ce}$ の海水中における化学形態や存在状態との関係なども考慮した上での検討が必要であろう。また、他の生物でも観察されるように、表面吸着された $^{144}\text{Ce}$ は清浄海水に移行した場合には短時間内に離脱するものと予想されるが、そのような物理化学的な性格の強い機構による濃縮や排出についても、取り込み率あるいは排出率を求めることによって濃縮係数を推定するためには、なお実験によるデータの集積が必要と思われる。

同様に表面吸着による汚染がシラスで大きいと思われる結果は、 $^{95}\text{Zr}$ — $^{95}\text{Nb}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ などの放射性核種でもみとめられたが、いずれの場合にも個体差が大きく、再現性にも乏しい結果で、有意の濃縮係数を算定するためには不十分であった。

### 3 貝類による放射性核種の濃縮

#### (a) 結 言

海産生物が放射性核種をすべて海水からだけ取り込むのではなく、餌や懸濁物、海底堆積物など種々の起源が考えられる場合、濃縮係数の定義に問題が生ずることは前に述べたが、特に通常水中に生息せず、底質中のデトリタスなどを食物とするような底棲生物では、水を基盤とする濃縮係数に対し、それ以外の放射能汚染経路がどの程度の寄与を示すかを明らかにしておく必要がある。海洋に導入された放射性核種の動向に対し、海水中的懸濁物やプランクトンをはじめ生物の屍体、あるいは脱けがら等は放射性核種の沈降に寄与すると考えられ、核種自身の沈澱や底質の持つ吸着能、イオン交換能などと相俟って、特定の海底への放射能の沈積は充分予想される場所である。一方、底棲生物の中でも貝類は一般に定着性で行動範囲もせまく、特に茨城沿岸海域は、アワビ、ハマグリ、アサリ等の重要な漁場で収穫量も多く、放射能汚染水産食品としての人体内部被曝への寄与という面でも重要な海産生物と考えられる。

多くの元素に対する濃縮係数が軟体類では魚類に比べて大きいことが知られているが、放射性核種としては、

核燃料再処理廃液や原子炉冷却水等に含まれて海洋への放出が予想される核分裂生成物および誘導放射性核種を対象とし、海水中でコロイドや粒子状の存在形態をとられると思われるもの、吸着性の大きいもの、プランクトンや底棲の藻類などによる濃縮係数が高いものを中心に、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{95}\text{Zr}$ — $^{95}\text{Nb}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ などをトレーサーとして、先ずそれらの海水から貝類への移行について観察した。その中、ハマグリを用いた実験の数例を以下にあげる。

#### (b) 実験生物および実験方法

50ℓの循環水槽に0.45μミリポアフィルターで濾過した海水を用い、トレーサーを添加して海水の放射能が平衡状態に達したのち、それぞれ水槽にチョウセンハマグリ (*Clam*) *Meretrix lamarckii* (D-ESHAYES) を投入、以後経時的に取り上げ、whole body、全可食部(全軟体部)および各臓器の放射能濃度を測定し、海水の放射能濃度との比を求めて濃縮係数を算出した。

(c) 実験結果および考察

Fig. 25. にみられるように  $^{60}\text{Co}$  の取り込みでは中腸線による濃縮が著しく、各臓器のうちで最も高い濃縮係数を示した。また、中腸線は平衡に達する時間も早く、すでに 14 日目ではほぼ平衡に達しているものと思われる。

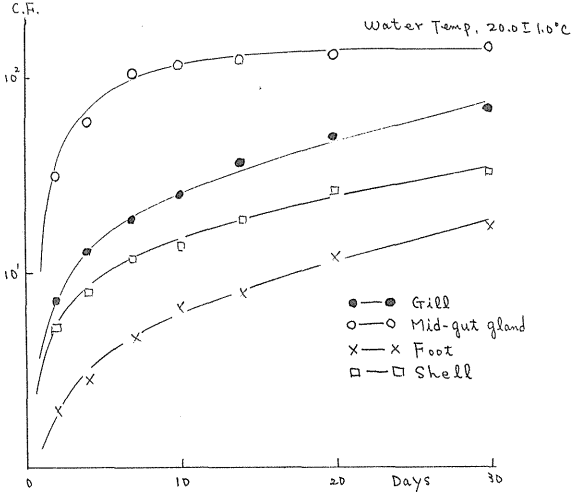


Fig. 25. Concentration of  $^{60}\text{Co}$  by Hamaguri (Clams) *Meretrix lamarckii*

他の臓器ではエラや足および貝殻などに多く取り込まれているが、30日間の飼育ではまだ平衡に達せず、なお増加する傾向を示した。30日間のC.F. は最も高い中腸線で144.3、エラで50.0、貝殻では31.4と高い値を示し、最も低い足でも17.5の取り込みを示した。また、貝殻の場合は  $^{60}\text{Co}$  が吸着されて高い値を示しているものと推定され、貝殻の表面を覆う殻皮の寄与も考えられる。

$^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$  の取り込みでは Fig. 26. にみられる

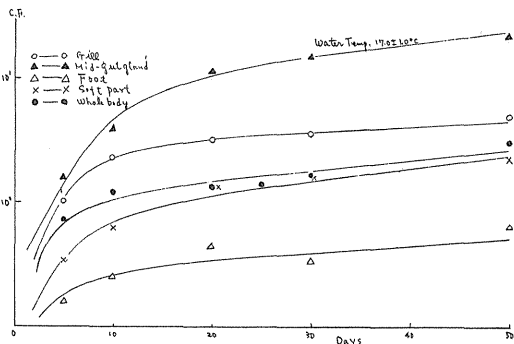


Fig. 26. Concentration of  $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$  by Hamaguri (Clams) *Meretrix lamarckii*

ように、中腸線において最も濃縮が著しく、足や入水管には極くわずかしき取り込まれない。50日間の飼育では中腸線でもなお増加する傾向がみられるが、その濃縮値は2.29と臓器の中で高い値を示し、エラで4.96、内臓は中腸線に比べて約1/7の3.0であった。また、その他の臓器については1.0以下と低い値を示したが、なお増加する傾向がみられた。一方、whole bodyとsoft partを比較すると、供試生物投入後20日目まではwhole bodyで濃縮が高い値を示しているが、以後50日目ではほぼ両者のC.F. が近づいている。これは、20日目までは  $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$  の貝殻への吸着が主体となり、それ以後は日数の経過と共にsoft partにも濃縮されることを示すものと思われる。

$^{137}\text{Cs}$  の取り込みでは Fig. 27. に示すように、各臓器ともほぼ類似した傾向で濃縮されているが、やはり中腸線において最も濃縮が著しく、次いで内臓や足の順に

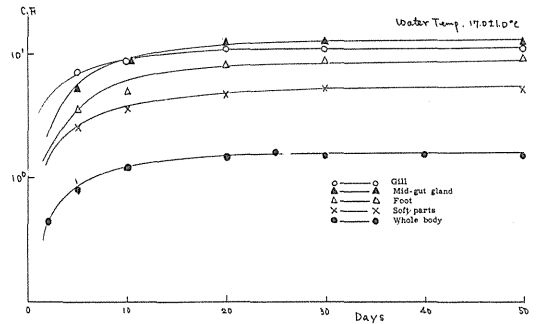


Fig. 27. Concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by Hamaguri (Clam) *Meretrix lamarckii*

濃縮係数が高い。しかし飼育50日目の値において、中腸線の10.5、エラの9.7、その他の各臓器でも最も低い値を示した外套膜で7.0と、各臓器別による差は僅かであり、また取り込みが比較的早くて、各臓器とも約20日目位ではほぼ平衡に達している。一方、50日目の濃縮値ではsoft partの5.0に比べて、whole bodyでは1.4と低く、 $^{137}\text{Cs}$  が貝殻にはほとんど吸着しないことを示すと考えられる。

$^{131}\text{I}$  : 海水に添加した放射性ヨウ素は  $^{131}\text{I}$  の物理学的半減期にしたがって減少を示すので、浚材や生物体排泄物などへの吸着は殆んど認められず、可溶性の状態が存在したと見られる。Fig. 28. に示すようにハマグリヨウ素の取り込みは、中腸線を除いて、可食部(全軟体部)および筋肉、内臓(中腸線を除く)では約30日間ではほぼ平衡に達した。しかし、中腸線での蓄積は実験期間中においては平衡に達するに到らず、さらに増加の傾

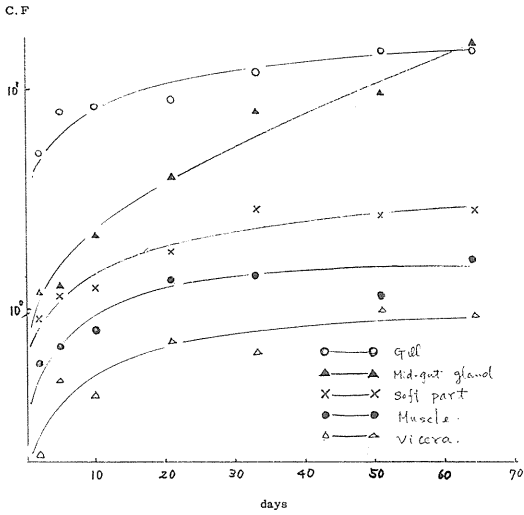


Fig. 28. Concentration of  $^{131}\text{I}$  by Hamaguri (Clams) *Meretrix lamarckii*

向を示し、約60日目の濃縮係数は1.6の値を示している。また、その体内分布もエラおよび中腸線に高い濃縮がみられ、一方、筋肉、内臓の部位ではその濃縮係数は約1の値を示している。これらの結果から、ハマグリにおけるヨウ素の取り込みはエラによる吸収が著しく、一旦代謝系に入ったヨウ素は他の核種とほぼ同様に、中腸線に蓄積する。可食部における濃縮係数は約3であることからみて、放射性ヨウ素による海洋汚染における底生性の二枚貝の汚染は著しく少ないものと考えられる。

$^{144}\text{Ce}$  : 飼育水槽中の  $^{144}\text{Ce}$  濃度は Fig. 29 に示したように実験期間中に指数関数的に減少するが、このことはトレーサーとして、3個の陽イオンの化学形で添加した  $^{144}\text{Ce}$  が水槽壁や濾過材および生物体からの排出物などに吸着されたことによると推定される。しかし、可

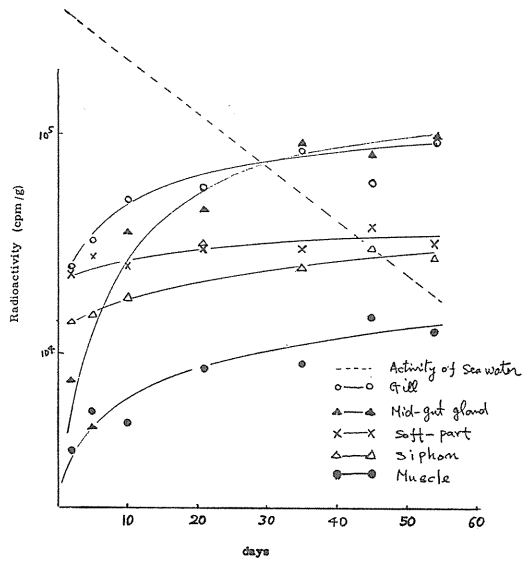


Fig. 29. Concentration of  $^{144}\text{Ce}$  by Hamaguri (Clams) *Meretrix lamarckii*

食部(軟体部)の放射性セリウムの濃度は20日前後から一定の濃度を示し、環境水中の濃度が減少しても、一旦体内に取り込まれたセリウムは排出されることなく、体内に蓄積されることを示している。また、可食部における体内分布は中腸線、エラ、入水管などに高い濃縮がみられ、これに反して足、筋肉などの部位では低い濃縮を示している。

これらの結果から、ハマグリは、入水管を通してセリウムを体内に取り込むが、一旦代謝系に取り込まれたセリウムは、長期間にわたって体内に蓄積し生物学的半減期が長いと考えられる。したがって、放射性セリウムは貝類の汚染を評価するにあたって重要核種の一つと考えられる。

#### 4. 海藻類による放射性核種の濃縮

##### (a) 緒言

海藻類といえども、その生理、代謝などは根本的に陸上植物と共通する所が多いと考えられるが、通常はほぼ水中にあり、養分の吸収が水を媒体として体の全表面で行なわれているのは、高等植物と大きく異なる点の一つである。

根と称される部分も付着作用のほかには陸上植物のような役目をもたず、簡単な構造の藻類では、体を構成す

る大部分の細胞がそれぞれ光合成をはじめとする物質代謝を行なっている。このことから、放射性核種の濃縮に関しても、特定の部位への移行蓄積はあまり考えられず、全体表からの取り込みが考えられる。また、このような無機代謝に伴う細胞膜を通しての能動的、または受動的な放射性核種の取り込み以外にも、藻類はその外見上の構造からも明らかなように複雑な然も広い表面積を有しているだけに、放射性核種をはじめ、多くの元素に対し

て表面吸着による取り込みを考慮する必要がある。従来報告されている海藻の元素に対する濃縮係数が全般に高い原因の一つとして、このことがあげられる。更に藻類は多くの魚貝類の食餌となり、食物連鎖での放射能濃縮に寄与することが大であるし、また藻類は1年生のものが多くだけに、その死後分解して一旦取り込んだ放射性核種を再放出する折に新たな汚染源ともなる。海洋における放射性核種の生物学的移行に果たす役割は大きい。水産食品としての海藻類の重要性は今更述べるまでもないことであり、植物体の殆んど全体が食用に供されるという点でも注目される。一方、のりやわかめ等の養殖は近来盛んで栽培漁業の源とも言われるべきものであるが、茨城県沿岸海域に関しても、岩礁地帯を中心にクロノリ、ヒジキ、フノリなど20数種の海藻類が分布しており、定着性であるこれら海藻が局地的な放射能汚染によって、水産食品として人体内部被曝線量に寄与する海産生物となる可能性は充分に考えられる。海藻類はその生育条件を左右する要因が多く、水槽飼育は特に難しいとされているが、上記のような重要性にかんがみ数種の藻類についてR I実験を行なった。

(b) 試験藻類および実験方法

大型海水循環水槽および小型水槽に $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{59}\text{Fe}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{60}\text{Co}$ を添加し、試験藻類としてはヒジキ (*Hijikia fosiforme*), アオサ (*Ulva pertusa*), ツノマタ (*Chondrus ocellatus*), ノリ (*Porphyra sp.*)を投入し、経日的な濃縮傾向を観察した。トレーサーのうち、 $^{106}\text{Ru}$ は化学形態の違いによる濃縮の差異を調べるためRu-chloro, RuNO-nitrato, RuNO-nitroの3形態に調製したのち添加した(注、調製法は後章参照)。実験期間中は栄養塩として、 $\text{KNO}_3$ ,  $\text{H}_3\text{PO}_4$ ,  $\text{NH}_4\text{CO}_3$ の適量を5日ごと添加補給した。

また、海藻類による無機成分の吸収は葉体表面で行なわれていると考えられているが、部位によってはその吸収能力に差異があることも考えられる。それを調べるため葉体を適当に切断して、部位別の濃縮傾向を観察した。

(c) 実験結果および考察

$^{131}\text{I}$ の濃縮を緑藻のアオサと褐藻のヒジキ、紅藻のツノマタとでその差異について調べた結果をFig. 30に示した。

ヒジキは他の2種の約2倍の濃縮を示しており、平衡に達する時間も早い。またヒジキの場合、先端部には他の部分より著しい濃縮がみられ、その濃縮係数は167時間目で1118であった。 $^{137}\text{Cs}$ の濃縮はFig. 31で

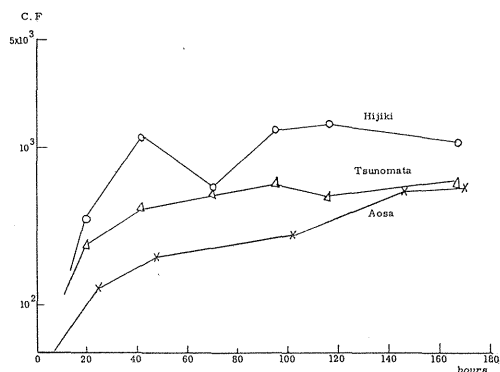


Fig. 30. Concentration of  $^{131}\text{I}$  by *Hijikia fusiforme*, *Tsunomata Chondrus ocellatus* and *Aosa Ulva pertusa*

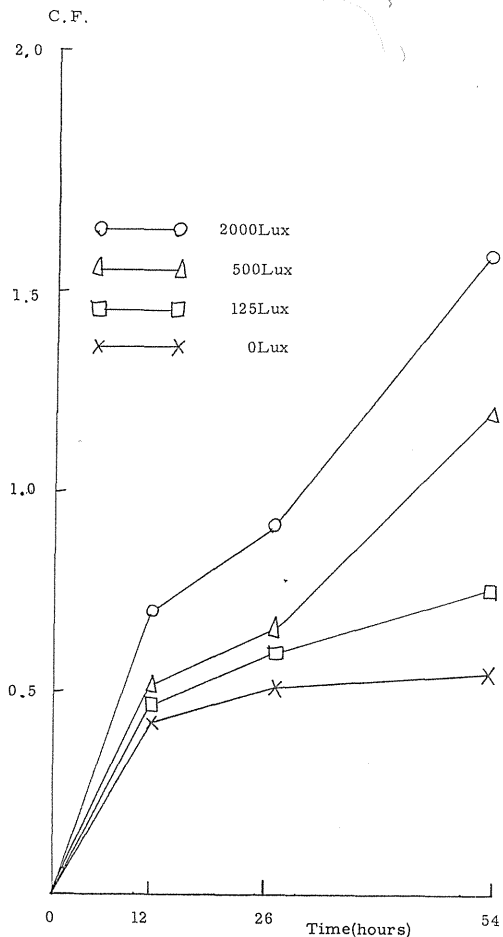


Fig. 31. Concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by *Hijikia fusiforme*



みられるように、光の強弱の影響を受け2000ルクスで飼育した場合と125ルクスで飼育した場合とを比較してみると、2000ルクスの濃縮係数は125ルクスの場合の2倍程度の値を示した。

これに対して、 $^{85}\text{Sr}$ の濃縮はFig. 32. でみられるように光の強弱の影響をほとんど受けていなかった。

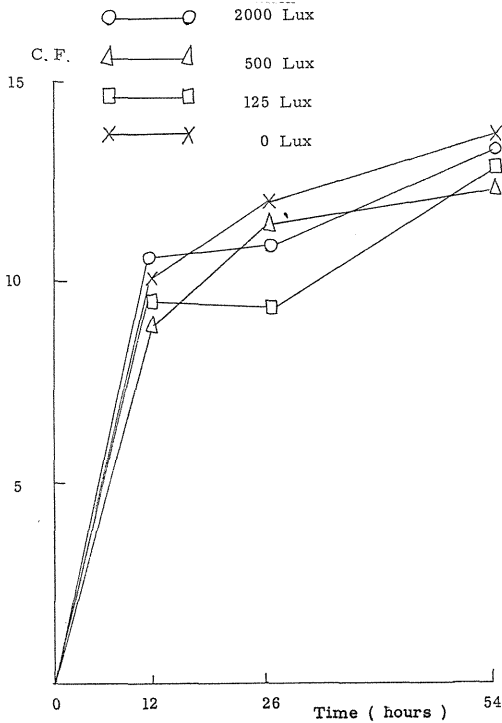


Fig. 32. Concentration of  $^{85}\text{Sr}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

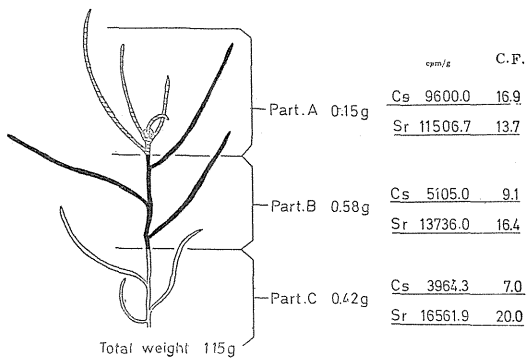


Fig. 33. Concentration of  $^{137}\text{Sr}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

Fig. 33 は部位別の濃縮を示したものであるが、 $^{137}\text{Cs}$ は先端部に高い濃縮がみられるのに対し、 $^{85}\text{Sr}$ は先端部に低く、下部に高い傾向がみられ、 $^{137}\text{Cs}$ とは逆の現象を示している。

$^{106}\text{Ru}$ の濃縮を、R I添加後数日たってからヒジキを投入した場合と、添加と同時に投入した場合とで比較してみた結果、前者ではFig. 34. に示したように、RuNO-nitroが最も高く、つづいてRuNO-nitrate、Ru-chloroとなったが、各形態の間に顕著な差異はみられなかった。また、25日飼育でも3形態とも濃縮は増加傾向にあり、平衡状態に達していない。一方、Fig. 35. はR I添加と同時にヒジキを投入した場合で、RuNO-nitrateとRu-chloroは同じ濃縮傾向を示しているが、RuNO-nitroの濃縮は5日目まではかなり低く、時間の経過とともに急速に他の

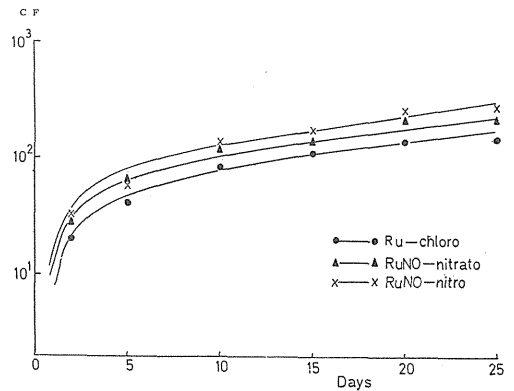


Fig. 34. Concentration of  $^{106}\text{Ru}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

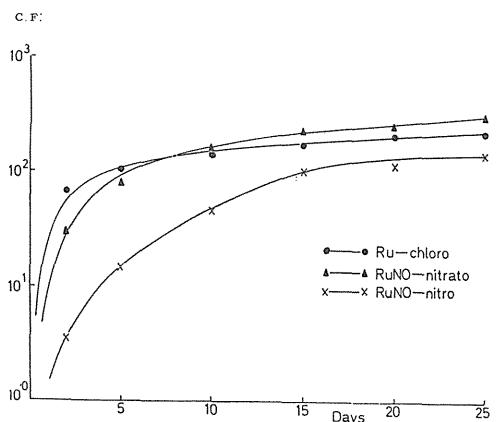


Fig. 35. Concentration of  $^{106}\text{Ru}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

形態の濃縮値に近づいていくが、25日飼育の濃縮値は150を示しており、海水中で比較的安定とみられるニトロ錯塩が最低値であることから、Ruの取り込みが大部分表面吸着によっていることを示している。

$^{59}\text{Fe}$ も海水中で分解され殆んどがコロイドや粒子状で存在することから、海藻への濃縮も大部分表面吸着によるものと考えられる。Fig. 36はノリによる $^{59}\text{Fe}$ の濃縮を図示したものであるが、吸着による海水中の放射能濃度の変動とノリの放射能濃度は短時間内によく対応し約1週間後には濃縮平衡に達し、その濃縮係数は魚類や貝類に比べ約2桁高い値となっている。

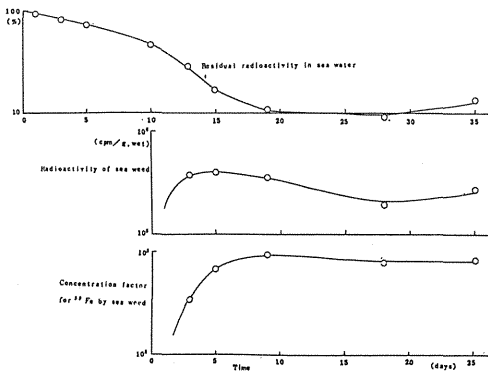


Fig. 36. Concentration of  $^{59}\text{Fe}$  by Sea-Weed (*Porphyra* sp.) tal

部位による濃縮に差異が表われる理由については核種ごとに考えなければならないが、ヒジキの場合先端部に近いほど生長に伴う光合成作用が盛んであり、無機成分の吸収も大きいことが考えられ、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{60}\text{Co}$ などは代謝過程で取り込まれ先端部により多く濃縮されるものとみることができる。

$^{85}\text{Sr}$ が先端部よりもむしろ下部に高く濃縮されている理由については、褐藻であるヒジキにはアルギン酸が多く含まれ、その分布は部位により異なると思われるが、存在形態としては細胞膜中で不溶性のカルシウム塩をつくっているというのが定説になっており、Caと類似の挙動をとるSrがアルギン酸の蓄積が多いとみられる厚い細胞膜を持つ下部に高く濃縮されるものと考えられる。

以上の実験結果のみをみても、海藻による放射性核種の濃縮には $^{85}\text{Sr}$ や $^{106}\text{Ru}$ 、あるいは $^{59}\text{Fe}$ のように殆んどが表面への物理化学的な吸着による物とみられるものと $^{131}\text{I}$ や $^{137}\text{Cs}$ 、あるいは $^{60}\text{Co}$ のように無機代謝の過程で濃縮されるものと考えられるが、いずれの機構においても放射性核種の海水中における物理化学的な存在形態とその生物への可給性、あるいは海藻の細胞内で考えられる原形質膜の透過性その他種々の内的要因等が相互に関与するものと考えなければならず、更に海藻の生態や構造、組成など種類による差に関しても考慮した上で、詳細な検討を進め、水産食品としての消費の実態とも併せて、放射能汚染水産食品としての寄与を明らかにすべきものと考えられる。

## II 放射性核種の物理化学的挙動と、その生物濃縮に 及ぼす影響に関する研究

### 1. 研究の目的と概要

海水中における放射性核種の物理的または化学的挙動についての研究は、既に多く報告されている。特に、核爆発実験により放射性降下物としてもたらされた核分裂生成物の形状あるいは動向や、原子力施設から環境に放出された放射性物質の移行や消長について、各種の検討が加えられ放射生態学的な解析が試みられている。それらに共通する問題点は、放射性核種がその起源によって種々の異なる物理化学的性状をもち、それぞれに個有の挙動を示すと共に、環境に既存する安定同位体や同族体との間にも、複雑な相互作用を示すことである。このような挙動が放射性核種の生物濃縮に対しても影響を及ぼすことは充分予想されるところであり、その重要性は内外の研究者によって指摘されている通りである。したがって、本研究ではまず放射生態学上の見地から、海洋環境中に導入された放射性核種の動向を物理的あるいは化学的な面から追求することを目的として、海水中で特に複雑な挙動をとると予想される核種の存在状態の究明をはかった。またさらに、それら放射性核種の存在形態の違いが、生物による取り込みに対して如何なる影響を及ぼすかについて検討をこころみた。

放射性核種の海水中における存在状態は、大別してイオン状、コロイド状、粒子状とされているが、それらの間に明確な境界を定めることは難しく、また海水中に導入された後の経過時間によって、いかなる物理的、化学的变化の過程をたどるかは数多くの環境要因に依存しており、そこに共存する無機、有機の物質との相互作用によっても種々の存在形態をとるものと考えられる。したがって放射性核種の中には海洋環境における物質循環の中に新たに加わってから、ある究極の形に落ち着くまでかなりの長時間を要する場合もあると思われる。

このような諸点を考慮すると、放射性核種の挙動と生物濃縮との関連は、物理的、化学的な時間変化と、生物学的な取り込み、あるいは体内新陳代謝の速さとの関係

において捕えるべきものと考えられる。

一方また、室内実験によって放射性核種の生物濃縮を観察しようとする場合、使用する R I トレーサーが如何なる化学形態のものであり、海水への添加後に如何なる存在状態に変化するかを明らかにしておくことは、実験結果の再現性を検討したり、実験結果を適切にフィールドの現象解明に役立たせるために必要であることは言うまでもない。

セリウムは核分裂生成物として、放射性降下物や放射性廃棄物中で重要な地位を占める  $^{144}\text{Ce}$ 、 $^{141}\text{Ce}$  などの放射性核種をもち、その海水中における存在形態は大部分が粒子状であるとされている。したがって、生物濃縮に対して有効な「可給態 (available) のセリウム」を溶存状のもののみと解するか、あるいは不溶性のものを含んだ全体と考えるかによって、濃縮係数にはかなり大きなひらきがでるのは当然である。このことは、濃縮係数の検討に際し、トレーサー実験の結果と安定セリウム分析による結果とを比較対照する場合にも問題を提起する。これらの問題を究明する手段の一つとして、この研究報告では、海水中に添加した  $^{144}\text{Ce}$  の物理化学的挙動を、主として濾過、イオン交換、溶媒抽出などの方法で追求した結果について述べた。

燃料再処理廃液の沿岸放出を考える時に最も重要視されている放射性ルテニウムも、化学的挙動の複雑さで広く問題とされている放射性核種である。本研究では、その化学形態の違いによる生物濃縮の差を、特に電気泳動的挙動の面から追求、検討した。

放射性核種の化学形態と生物濃縮との関係について重視すべき元素としては、この他にもコバルト、亜鉛など多く考えられ、また海水中の無機、有機の懸濁物や底質と結びついた形での生物濃縮も考慮する必要がある。これらの問題の一部について検討した結果は、別章で後述することとする。

## 2. 放射性セリウムの海水中における化学形態

### (a) 緒言

放射性の $^{141}\text{Ce}$ および $^{144}\text{Ce}$ は核分裂生成物中に重要な地位を占める放射性核種であるが、核爆発実験に由来するそれら核種の環境中における動向については既にいくつかの研究報告があり、海水中における存在状態としては、大部分が粒子状であるというGreendaleらの報告がよく知られている。一方、海水中の安定セリウムに関しても、その定量あるいは形態の追求が多くの研究者によって試みられ、海水中の懸濁物の果す役割や生物濃縮との関係などの重要性が指摘されている。これらの問題は放射性廃棄物に含まれて海洋に放出される放射性セリウムによる環境汚染の影響を考える場合にも当然重視すべき点であり、特にRITトレーサー実験、あるいはフィールドサーベイによって海産生物によるセリウム濃縮を追求する際に、海水中における物理・化学的挙動を明確に把握しておく必要があることは既述の通りである。セリウムはランタノイド元素の一つで3価と4価の原子価をとるが、水溶液中では3価のセリウムはpH 6付近から、4価のものはpH 3付近から加水分解を起すと言われており、通常pH 8前後の海水中では当然 $\text{Ce}^{3+}$ イオンも $\text{Ce}^{4+}$ イオンも加水分解していると考えられる。しかしながら、海水中の安定セリウムの濃度は水酸化セリウムの溶解度積より低く、また新たに放射性セリウムが加えられたとしても、溶解度積を超える濃度になるとは考え難い。一方、海水中に存在する多くの塩類や無機、有機の懸濁物や海底堆積物、更には生物との相互作用をも考慮に入れて、その海水中における形態の変化を考える必要があると思われる。

これらの観点から、トレーサーとして海水中に添加した $^{144}\text{Ce}$ の挙動を濾過、イオン交換、溶媒抽出などの手段によって追求した。

### (b) 方法

海水は茨城県沿岸で採取し、孔径 $0.45\mu$ のミリポアフィルターで濾過したもの、および未濾過のものにいずれも無担体の $^{144}\text{Ce}$ を塩化物の型で添加し、pHの調整は塩酸および炭酸ソーダによった。

まずセリウムの粒子生成状況を知るために、種々のpHに調整した $^{144}\text{Ce}$ 添加海水を経時的にミリポアフィルターで濾過し、フィルター上に捕捉された放射能の原海水中の放射能に対する比をもって沈澱率を算出した。こ

の際懸濁物の寄与についても検討した。また海底土への分配を検討する目的で、2種類の砂を用いバッチ法によって砂への吸着率を求め、その経時変化を追跡した。

一方、溶存していると考えられるセリウムについて、その化学形態を推定するため、イオン交換樹脂Dowex 50W×8、およびDowex 1×8に対する吸着挙動をバッチ法およびカラム法によって検討すると共に、キレート試薬テノイルトリフルオロアセトン(TTA)を用いベンゼンおよびキシレンによる溶媒抽出を行なって、分配比の動きを観察した。

### (c) 結果および考察

あらかじめ濾過した海水に $^{144}\text{Ce}$ を添加し、20日目に求めた沈澱率とpHとの関係はFig. 37の通りである。明らかに沈澱粒子が生成するのはpH 6付近からであり、pH 8前後では20~30%の沈澱率を示し、用いた3種のフィルターの孔径による差はみとめられなかった。Fig. 38は、ミリポアフィルターを通す海水

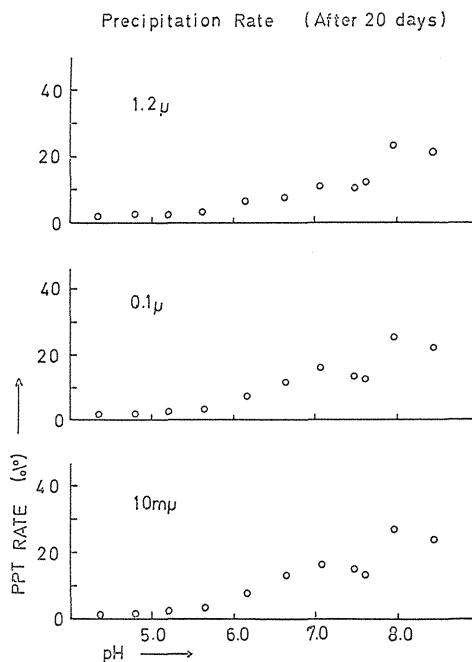


Fig. 37. Precipitation rate by membrane filter at the various pH of sea water.

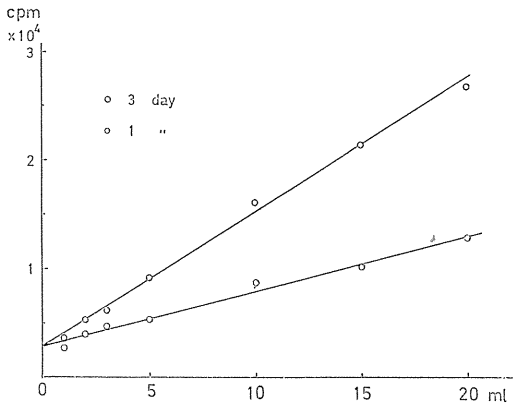


Fig. 38.  $^{144}\text{Ce}$  retained on millipore filter from sea water.

量の増加に伴う捕捉放射能の変化を示したものであり、2本の直線とも外挿値が原点を通らず、ミリポアフィルターへの吸着による放射能の捕捉があることがわかる。一方、未濾過海水の場合には Fig. 39. のようにフィルター

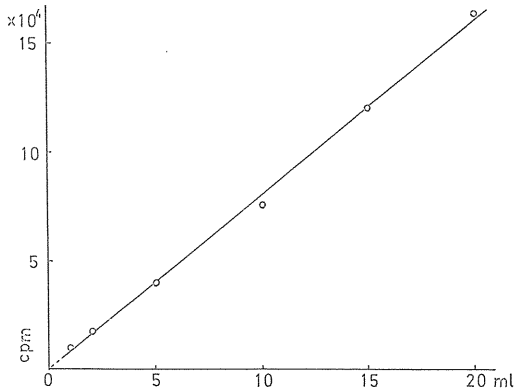


Fig. 39.  $^{144}\text{Ce}$  retained on millipore filter from natural sea water

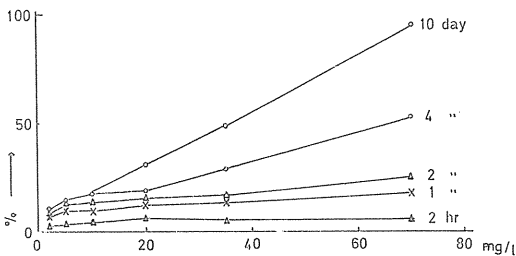


Fig. 40.  $^{144}\text{Ce}$  precipitation rate vs. variation of suspended matter.

への吸着が無視できることが示された。海水中の懸濁物の効果は Fig. 40. からも明らかであり、その含量が  $10\text{ mg/l}$  を超えると沈澱率が急激に増加することがわかった。

2種類の磯砂、黒磯および硅砂 ( $\text{SiO}_2$  85.5%,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  0.5%,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  6.8%,  $\text{CaO}$  2.6%,  $\text{MgO}$  0.4%, アルカリ 3.2%, 有機物 0.2%) に対する  $^{144}\text{Ce}$  の吸着は Fig. 41. に示した通りで、対照に用いた市販の試薬海砂 ( $\text{SiO}_2$  98.7%) に比べ前二者には 90% 以上の吸着率を示した。

フィルターによって捕捉される  $^{144}\text{Ce}$  が、懸濁物に吸着されたものであるか、或いはそれ自身の加水分解生成物としての粒子生成によるものであるかの判定は難しいが、沈澱率の増加が、 $^{144}\text{Ce}$  の海水への添加後の時間経過によって特に顕著でなく、20日後でも30%を超えぬことは、懸濁物の少ない海水中では  $^{144}\text{Ce}$  の大部分が溶存状態にとどまっていたことを示している。

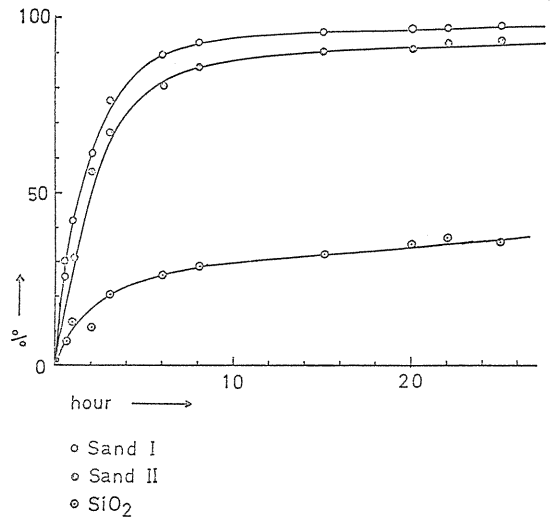


Fig. 41. Adsorption of  $^{144}\text{Ce}$  on the Sand.

陽イオン交換樹脂 Dowex 50W×8 に対する分配係数 ( $K_d$ ) は Fig. 42. に見られる通り、pH への依存性は 6 以下ではみられず、それ以上では急激に  $K_d$  値が減少して濾過実験の結果を裏付けるものと考えられるが、カラム法によった結果からは、陰イオン種の存在は明確でなく、この結果のみからの化学形態の推定は難しい。一方、溶媒抽出実験によって得られたキレート試薬濃度と分配比 ( $D$ ) との関係は、Fig. 43. に示したような勾配の直線で表わされ、海水の場合にも同一 pH の緩衝液においても、セリウムの原子価が +3 であることを示唆し

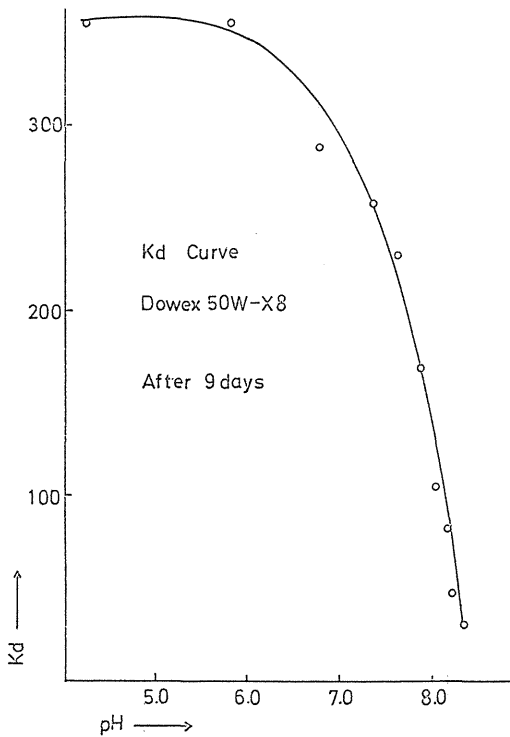


Fig. 42. The distribution coefficient between Dowex 50W-X8 and the sea water.

た。更に種々の pH の緩衝液中からのセリウムの抽出により推定される加水分解の程度は、Fig. 44 に見られるように、水相におけるセリウムの化学種の平均電価として +2 を表わす直線で示され、この pH 領域でセリウムはすでに加水分解を起し、 $Ce(OH)^{2+}$  で表わされる平均組成の化学種として存在するものと考えられる。これより高い pH では、更に加水分解が進むと考えられるところから、海水の pH では無電価の  $Ce(OH)_3$  が主な化学種と推定できる。

以上の結果から、次のように結論できる。すなわち、海水中に  $Ce^{3+}$  イオンとして導入されたセリウムは、先ず加水分解されて  $Ce(OH)^{3-n}$  ( $n \leq 3$ ) で表わされる化学種として存在すると考えられるが、その著しい吸着性のため海水中的懸濁物や海底堆積物に吸着し、見かけ上は粒子状となって存在するものと思われる。しかしながら、懸濁物の無い清澄な海水中では、かなり長時間にわたって沈澱粒子を形成せずに溶存し、3 価のまま存在することが溶媒抽出実験の結果から推定される。

なお粒子生成後の挙動、あるいは海水中の他の陰イオンとの間の相互作用などについても二、三検討したが、更に海水中的有機物の寄与をも含め、今後の究明につとめたい。

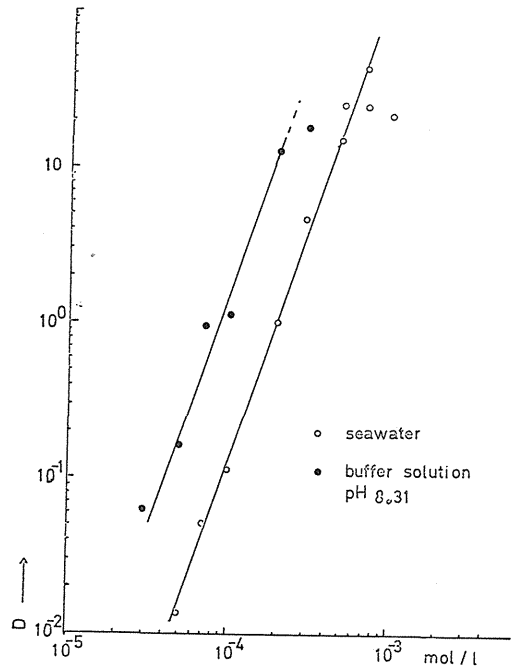


Fig. 43. Distribution ratio VS. TTA concentration.

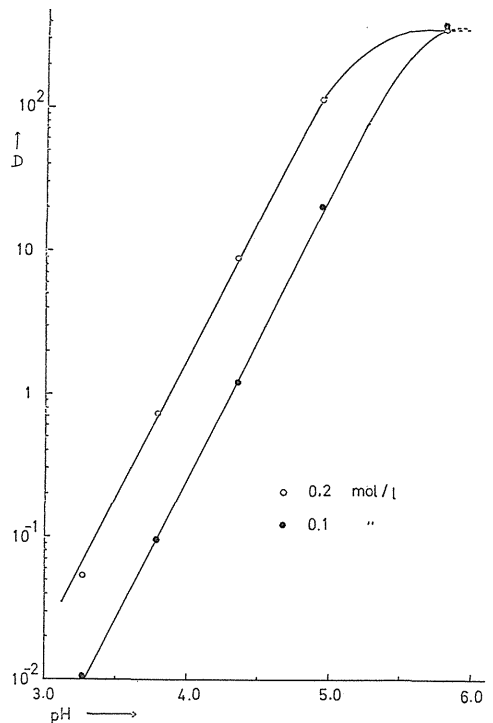


Fig. 44. Distribution ratio VS. pH of solution.

## References

- 1) Greendale, A.E. and N.E. Ballou: USNRDL436, 28 pp. (1954)
- 2) Goldberg, E.D., M. Koide, R.A. Schmitt and R.H. Smith: *J. Geophys. Res.*, **68**, (14) 4209 (1963)
- 3) Yu, A. Balashov, and L.M. Khitrov: *Geochemistry*, No. 9, 877 (1961)
- 4) Shigematsu, T. et. al.: *Japan Analyst*, **20**, 575 (1971)

- 5) Carpenter J.H. and V.E. Grant: *J. marine Res.*, **25**, (3), 228 (1967)
- 6) Rice, T.R. and V.M. Willis: *Limnol. Oceanogr.* **4**, (3), 277 (1959)
- 7) Suzuki, H.: unpublished.
- 8) Connick, R.E. and W.H. McVey: *J. Am. Chem. Soc.*, **71**, 3182 (1949)

## 3 ルテニウム-106の化学挙動と生物濃縮

海洋に放出される液体放射性廃棄物の約半分<sup>1)</sup>を占めると言われるルテニウム(-106, -103)は、白金族元素のひとつであり、物理化学性の非常に複雑な物質であると言われている。しかし、それ自身が研究対象に取り上げられるようになったのは、そう新しいことではない。1844年、K.K.Klausによって発見されて以来、その研究は主に基礎的な金属物性あるいは工業技術への応用などへ注がれて来たものであった。環境あるいは生物との関連において論ぜられるようになったのは、核実験、更には原子力発電に併立する核燃料再処理工場建設計画に伴ってのことなのである。

ルテニウム-106の生体蓄積がテーマとして取り上げられるようになったのは、1957年頃であろう<sup>2)3)4)</sup>。これらは核爆発に由来するFall-outを対象としたField Workが主であった。また、これと前後してトレーサー法によるルテニウムの生体取り込み実験が多くの研究者によって試みられた<sup>5)</sup>。そこで、問題となったのはFall-outにより算出した値とトレーサー法による結果の差であり<sup>6)</sup>、また同じトレーサー実験法により得た値の相互の矛盾である。これらはしばしばルテニウムの化学挙動故に生ずる不可解な現象として処理されることが多かった。

これら現象の一端を、具体的な要因を挙げることによって明らかにしradioecologyに携わる研究者に警鐘をいたのが、S.Kečkešである<sup>7)</sup>。彼らはルテニウム塩化物がニトロシル・ルテニウム・ニトラト化合物に較べ、10倍高い濃縮係数を示すことを報告した。それ以後の研究が、化学形の問題に注意を払うようになったのは言うまでもない。しかし、同様の実験研究は数多いが、これを裏付ける結果の少なかったのも事実であった<sup>8)</sup>。そして、そこにはルテニウムの化学形に関して我々radioecology関係者の認識に不明確な点がままあったことも指摘されなければならない。現在、当問題を扱おうに際して市販溶液をそのままの状態

に用いる事は少ない。そこで適宜調製が行なわれるのであるが、この操作方法の差が結果に現われることとなる。例えば、塩化ルテニウムの場合を考えてみよう。

イオン交換あるいは溶媒抽出法により分離精製後のルテニウムは、8-10N塩酸溶液として市販される。これを赤外線蒸発乾固による処理を行なったものが、S.Kečkešらの、いわゆるルテニウム塩化物である。一方、Fletcherら<sup>9)</sup>の方法を踏襲、蒸溜法を経て(RuO<sub>4</sub>)塩酸処理する方法も、文献上ではルテニウム塩化物として扱われる。これを海水に溶解し実験に用いる時、我々は既にagingの効果を看過しているものであり、この過程を無視しては、同じレベルでの比較自体が困難なのである<sup>10)11)</sup>。それでは、ルテニウムは溶液中で何如なる挙動を示すであろうか。残念ながら、現段階でこれらの反応を分子レベルで捉える方法は存在しない。しかし、現象として捉え、その差異を検討することは不可能ではない。この方法として有効なのが電気泳動法である<sup>12)13)14)15)</sup>。ところで、研究者相互の認識という点において、ニトロシル・ルテニウムは一層の検討が必要となろう。文献上に現われるニトロシルルテニウムは、大抵の場合ニトラト錯体であろう。しかし、しばしばagingの効果をも含めて、ニトロやクロロ錯体と混同され、ニトロシル・ルテニウムという認識の下で論議されてしまうのである。

金属元素はアルカリ・アルカリ土類の一部を除き、水溶液中で水分子以外の陰イオン錯体を形成する。この性質はルテニウムの場合に殊に顕著であり、当然化学形の差異によっても、錯体形成反応も影響をうける。そこで水溶液中で経時的に形成・消滅する錯体挙動を現象的に捉えようとするのが、我々の方法である。

Fig. 45~48は、S.Kečkešらの方法<sup>7)</sup>により得た、いわゆるルテニウム塩化物及びニトロシル・ルテニウム・ニトラト錯体の海水における錯体形成反応を電気泳動法により求めたものである(以後、本調製

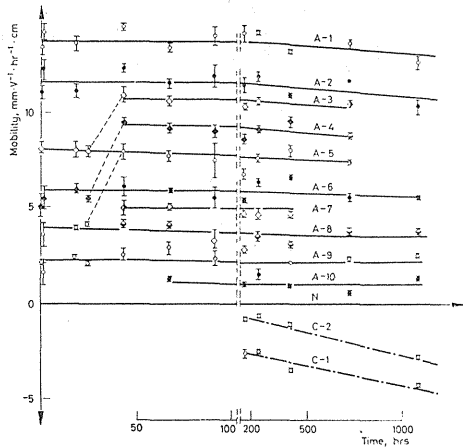


Fig. 45. Electrophoretic mobilities of the <sup>106</sup>Ru chloro complex species in sea water at pH 8, at 25°C, as a function of the aging of the system up to 1,080 hrs. The anionic species are designated as A-1 to A-10 according to their electrophoretic mobilities, whereas the cationic species are marked as C-1 and C-2. The soluble hydrolyzed polynuclear species, highly adsorbable on filter paper, are denoted as N.

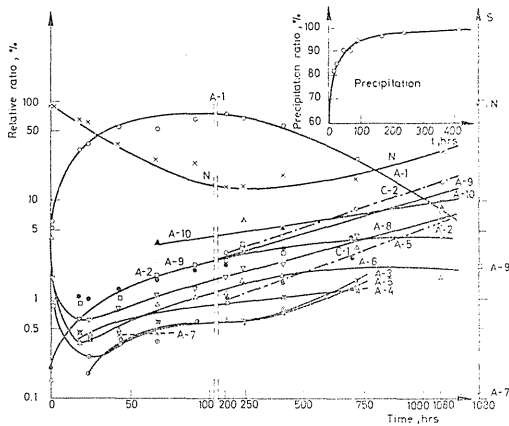


Fig. 46. Percentage radioactivity distribution among the electrophoretically separated soluble <sup>106</sup>Ru chloro complex species in sea water at pH 8 as a function of the aging of the system up to 1080 hrs. The 1080-S mark denotes the radioactivity distribution as a percentage after the 1080-hr old system has been stirred. The small diagram gives the precipitation ratio as a percentage up to 400 hrs of aging of the system.

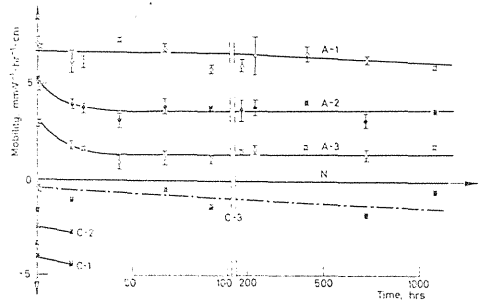


Fig. 47. Electrophoretic mobilities of the <sup>106</sup>Ru nitrosyl-nitrato complex species in sea water at pH 8 and 25°C as a function of the aging of the system up to 1080 hrs. The anionic species are designated as A-1 to A-3 according to their electrophoretic mobilities, whereas the cationic species are designated as C-1 to C-3. The soluble hydrolyzed polynuclear species highly adsorbable on filter paper are denoted as N.

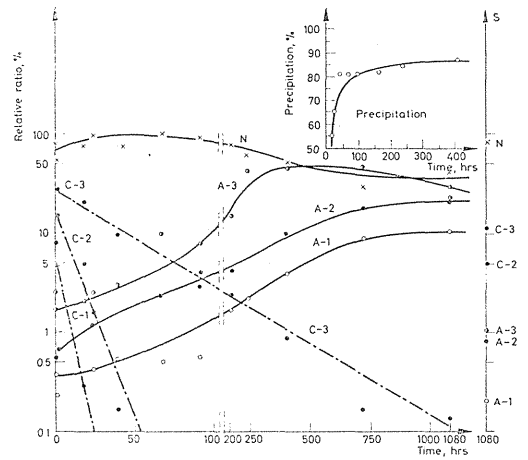


Fig. 48. Percentage radioactivity distribution among the electrophoretically separated soluble <sup>106</sup>Ru nitrosyl-nitrato complex species in sea water at pH 8 as a function of the aging of the system up to 1080 hrs. The 1080-S mark denotes the radioactivity distribution as a percentage after the 1080-hr old system has been stirred. The small diagram gives the precipitation ratio as a percentage up to 400 hrs of aging of the system.

法によるルテニウム塩化物は IR-Ru/C1 また、ニトロソル・ルテニウム・ニトрат錯体は IR-RuNO/NO<sub>3</sub> と記載する)。

ルテニウム塩化物は、海水中で 13 錯イオン種を形成



し、海水と接触してのち、48時間以内の化学挙動の最も著しいことが示されている。また、240時間後、初期に存在の認められない陽イオン種 ( $C_1$ ,  $C_2$ ) の形成が起り、40~50日後には全体の半分をこえることが本図より読み取れるであろう。これら海水中で形成される錯イオン種の泳動パターンは明瞭であり、このことは錯塩形成反応が規則正しく、また配位子の置換反応が泳動法による判定を可能とするに足るほど小さいことを示唆している<sup>12)</sup>。Fig. 46 の小図中に示される如く、海水接触10日後にその95%が複核錯イオン種を形成し、沈殿することも後述するように Radioecology 上からは無視し得ない重要なポイントであろう。

一方、 $IR-RuNO/NO_3$  の錯イオン種形成数は、8種のみであり、その分離帯も不明瞭である。そこで、これらが配位子の置換等により形成されたものではなく、 $-OH$ あるいは $H_2O$ などの結合した、分子量あるいは分子形状の異なる錯体の集合体であることが予想される。

海水との接触後、 $IR-RuNO/NO_3$  の陽イオン種は急激に減少・消滅する。また、全錯イオン種の85%が240時間までの間において複核錯イオン種を形成し沈殿することも  $IR-Ru/Cl$  との比較上記述する必要があらう。

再処理工場において貯蔵中、あるいは海水との接触により形成されることの予想されるニトロシルニトラト錯体、ニトロシル・ニトロ錯体及びニトロシル・クロロ錯体を、Fletcher等の方法により調製した場合はいかなる挙動を示すであろうか(以下、上記化学形は各々  $RuO_4-RuNO/NO_3$ ,  $RuO_4-RuNO/NO_2$  及び  $RuO_4-RuNO/Cl$  と記載する)。Fig. 49-A はそれぞれの電気泳動によるパターンを模式的に示したものである。表記方法では同じニトラト・ニトロシルルテニウムも、 $IR-$ 及び $RuO_4-$ 、即ち処理方法により明らかに異なることがわかるであろう。海水接触時の  $RuO_4-RuNO/NO_3$  は中性錯イオン種とその泳動パターンで推測される如く、分子量あるいは分子形状の異なる陽イオンで構成され、一方、 $RuO_4-RuNO/NO_2$  は強い吸着性を示す中性イオン種と、陰イオン種より構成されることがわかる。つまり  $RuO_4-RuNO/NO_3$  及び  $RuO_4-RuNO/NO_2$  の海水接触時における荷電状態は全く正反対の特性を示す。また同図は、電気的にその中間性を示すが、 $RuO_4-RuNO/Cl$  であることを示している。泳動結果から見て比較的安定した化学平衡状態を示す  $RuO_4-RuNO/Cl$  は、海水中で2陰イオン種 ( $A_1$ ,  $A_2$ )、中性イオン種 ( $N$ ) そして1陽イオン種 ( $C_1$ ) の4錯体を形成する。試みに、各錯イオン種相互の存在比率は ( $A_1:A_2:N:C_1$ ) = 11:66:21:5 で

Fig. 49-A

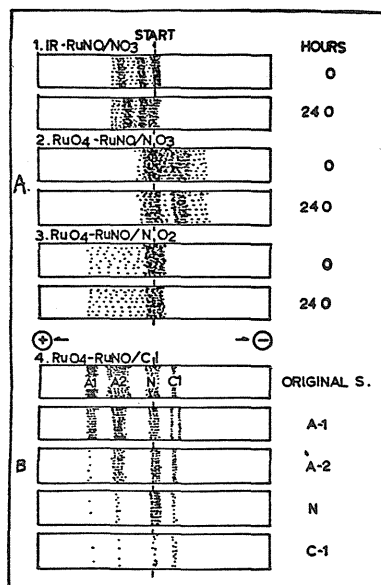


Fig. 49-B

Fig. 49. Schematic radioautograms of one-dimensional electrophoretal patterns of  $IR-$ ,  $RuO_4$ -Nitrate, Nitro and Chloro Nitrosyl Ruthenium in sea water.

あり、陰イオン種の存在がはるかに優勢である。Fig. 49-B はルテニウムの化学挙動の複雑性を端的に表す例である。

海水中で形成される錯イオン種を後述する方法で単一分離し、再び海水と接触させる時、分離分画錯イオン種よりニトロシル・クロロ錯体の化学平衡系において、欠損している錯イオン種の再形成が認められる。殊にこの傾向は、本来示すべき移動度 (Mobility:  $cm V^{-1} H^{-1}$  cm) 上の位置より、常に陽荷電測に現われることに注目しなければならない。そして、この事実は以後に述べる生物濃縮を解明するうえでより重要な factor となる。ところで、化学形により生物濃縮傾向に差異のあることは既述の通りであるが、各化学形より海水中で形成される錯イオン種はどのような濃縮傾向を示すであろうか。この結論を導くためには前述の実験と同じく各錯イオン種の単一分画分離操作が必要となる<sup>15)</sup>。我々はこれを二次元連続濾紙電気泳動に求めた<sup>16)</sup>。以下同法による単離各化学形錯イオン種と海産生物濃縮との関連について述べてみよう。Fig. 50 は同法によるニトロシル・ルテニウム・クロロ錯体の分画状況を示したものである。Fig. 50-2 に示される錯イオン種の分離パターンは Fig. 50-1 の水平濾紙電気泳動分離パターンと同一であると判定できよう。また Fig. 50-3 は、試験管に捕集された放射能濃度を溶出曲線として

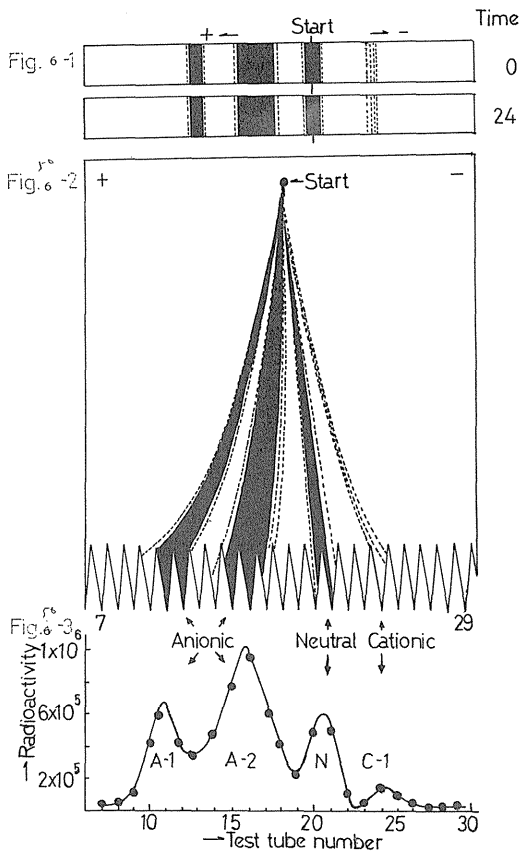


Fig. 50. -1,2,3 Radioautograms of one and two-dimensional electrochromatograms, and corresponding distribution curve of nitrosyl ruthenium chloro-complexes.

現わしたものである。以後、Fig. 50-3にも示される如く、陰・陽錯イオン種共、移動度の大→小へ順次A<sub>1</sub>, A<sub>2</sub>, A<sub>3</sub> …… C<sub>1</sub>, C<sub>2</sub>, C<sub>3</sub>, …… ,そして中性イオン種はNと定めることとする。

Fig. 51は、RuO<sub>4</sub>-RuNO/Cl, 各錯イオン種のハマグリ (*Meretrix lamarekii*) 可食部への蓄積を検討したものである。陰・中性イオン種の濃縮傾向に差はみられず、陽イオン種のみ特異的に一桁高い値をとることが示されている。この傾向は殻・エラ・中腸線等、部位・器管に分割した場合も同様である。しかし、一歩進んで各錯イオン種相互の傾向を正確に把握することは、生物蓄積そのものが、代謝機能という生物学的要素、及び生物体表面吸着という物理化学的要素の二面性を帯び、これらが相互に干渉し合う結果起る現象であるが故に困難であろう。そこで、Fig. 52は上記の内容を認識の下、表面吸着の優勢であろうと目される海藻と、

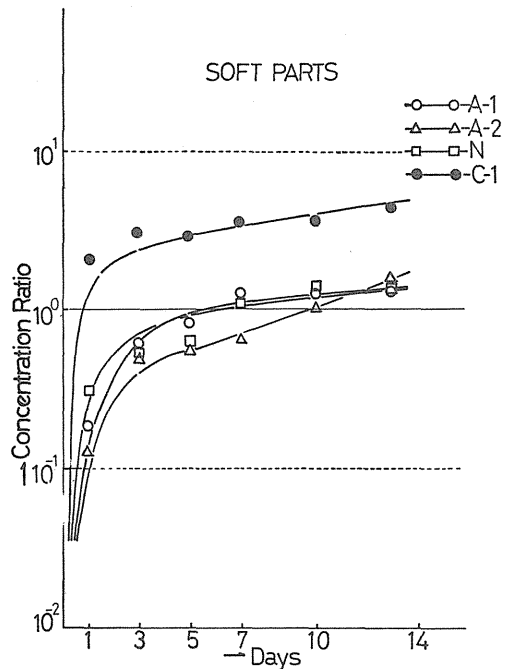


Fig. 51. Uptake of electrophoretically separated A-1, A-2, N and C-1 species of nitrosyl ruthenium chloro-complexes by soft parts of clam.

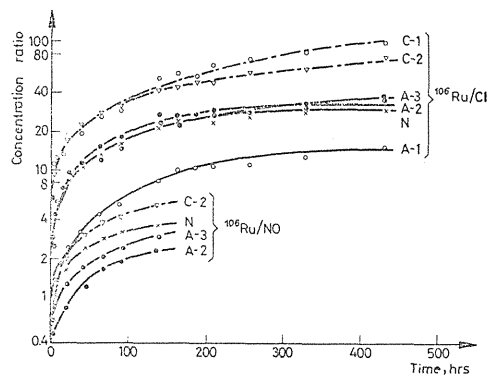


Fig. 52. Uptake of <sup>106</sup>Ru chloro complex species (IR-<sup>106</sup>Ru/Cl) and nitrosyl complex species (IR-<sup>106</sup>Ru/NO) by *Fucus virsoides*

各錯イオン種の濃縮傾向に関する検討を試み、そこにある規則性の存在することを示したものである。

市販ルテニウムを赤外線蒸気処理した場合の海藻ヒバマタ属 *Fucus virsoides* による取り込みは IR-Ru/Cl において IR-RuNO/NO<sub>3</sub> の約 10 倍高い濃縮が認められ、また、両化学形共、陽イオン種に最も高

い値が観察された。問題となる各錯イオン種相互の濃縮傾向は陰極方向へ泳動度の大きなもの、すなわち陽荷電状態の大なるものほど生物蓄積は活発であり、順次中性イオン種、陰イオン種と生物吸着も不活発となることが示され、これらは、S. Kečkeš らの化学形に関する結果を支持するものであるが、その続報である電気透析による結果とは錯イオン種の濃縮傾向という点において、必ずしも一致するものではないことを記述しておく必要がある。ところで生物濃縮を決定する要因としては、前述の如く、取り込まれる側であるルテニウムの物理化学形態のみならず、それを蓄積する生物の種類によっても特異性の観られることが考えられる。

殊に「人体被曝線量の推定」を行なう際の基礎資料を求める我々の如き調査研究グループにあって、これらを把握することは、海産食品の日常消費量を知ることと同様、重要な要素のひとつかと思われる。そこで次の代表種の濃縮傾向を検討した。なお、生物種選択の際の条件として、再処理廃液の放出口付近を想定し、海底の岩石に付着棲息する海藻—ヒジキ (*Hizikia fusiforme*)、沈澱となり海底に沈降するルテニウムを取り込むことの予想される砂泥中に棲む貝—ハマグリ (*Meretrix lamarckii*)、そして海水中に懸垂あるいは可溶性を示すルテニウムを濃縮する可能性のある中層魚—メジナ (*Girella punctata*) をその対象とした。また、食物連鎖を通じての人体被曝線量推定という観点より、放射能の濃縮の検討は各生物種、可食部について行なったものである。

我々が以前より指摘する如く、生物の、中腸線、肝臓はルテニウムの蓄積が大である<sup>17)</sup>。これはの表面積、あるいは肝臓の有する特異的代謝機能に起因するものと考えられる。

Fig. 53 に示される如く、全の生物種において  $RuO_4 - RuNO/C1$  陽イオン種の濃縮は他イオン種よりも大きく、更に、同様の条件下で飼育した場合、ヒジキはメジナ肉の約1000倍の値を与える。これらの傾向は  $RuO_4 - RuNO/NO_3$  においても観察される。

このように褐藻ヒジキのルテニウム106の濃縮が大であるのは、褐藻体表に観られる粘質物質(アルギン酸) = 多糖類の存在により生ずる物理・化学的現象によるものと思われ、又、メジナ—エラ、ハマグリ—エラ、殻等直接海水と接触する部位に於いて高い値の観察されるのは、それらの有する代謝機能のみならず、単位重量当りの表面積、そしてこれらを構成する硬蛋白質(コンキオリン等)との相互作用等むしろ吸着現象によるものと思われる。

次に同一調製レベルにおける化学形と濃縮との関連に

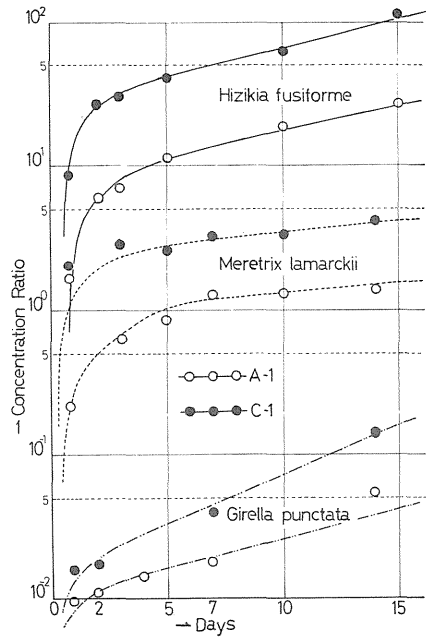


Fig. 53 Uptake of electrochemically separated physico-chemical species of nitrosyl ruthenium chloro-complexes by edible part of fish clam and seaweed.

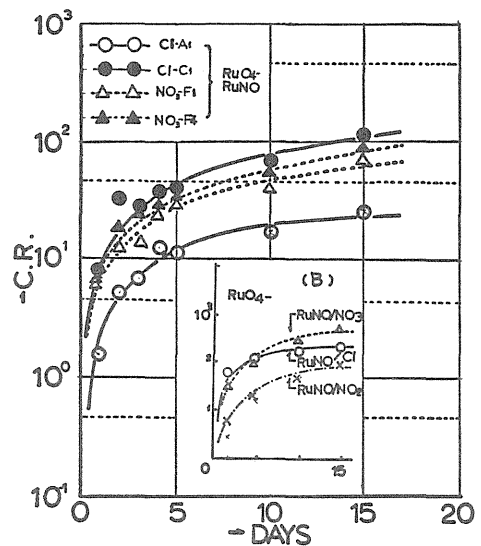


Fig. 54 Uptake of electrochemically separated species of  $^{106}RuNO$ -Chloro and Nitrate complexes by seaweed.

ついて述べてみよう。

Fig. 54 はヒジキによる  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{Cl}$  と  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{NO}_3$  分画錯体の濃縮傾向を示したものである。既述の如く  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{NO}_3$  は中・陽錯イオン種で構成される。そこで中性イオン種を F-1, 陽イオン種を F-4 とするとき, 両錯イオン種は  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{Cl}$ , 陰イオン種 (A-1) 及び陽イオン種 (C-1) の有する特異的濃縮傾向の中間の値を示す。換言すれば,  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{NO}_3$  は, その優勢な陽イオン種構成上,  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{Cl}$  に比べ, その濃縮値は大きく現われるということである。この事実を引用すれば,  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{NO}_3$  は陰イオン種が中心というその錯イオン種構成上  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{Cl}$  より更に小さな値を示すものと考えられる。要約すれば, 3 化学形の濃縮傾向は  $\text{RuO}_4 - \text{RuNO}/\text{NO}_3 > \text{RuNO}/\text{Cl} > \text{RuNO}/\text{NO}_2$  と示されるであろう。

そこで, 今まで述べて来た化学形と濃縮に関する結果を, 再処理廃液の海洋放出との関連より述べてみよう。核燃料再処理工場において1年間貯蔵された低レベル放射性廃液はニトロシル・ルテニウム・ニトロあるいはニトラ錯体となり, また放出後, 海水との接触により豊富な塩素イオンと反応しニトロシル・ルテニウム・クロロ錯体を形成する。海水と接触したルテニウムの大部分は陰イオン種であるが, 直後より複核錯イオン種を形成, 放出口付近の海底に沈降, 堆積する。その結果, 付近に棲息する底棲生物, 或は海藻等の放射能レベルは他の地域と比べ上昇することになる。ただし, この時求められる環境海水との濃縮比は, 陰イオン種の優勢であるが故に, その他の場所で得られる結果よりは低い値が得られるであろう。一方, 可溶性のルテニウムは沿岸流により, 速方へ運搬される。この間化学形によっては, 暫時, 陽イオン種存在比率の上昇を見, 洄游する魚類に取り込まれる。この値は既述の如く高いものであり, その結果, field survey に現われる濃縮値は一般に高い値を示すことが予想される。

そこで, 廃液の放出に当っては, イオン交換等により, 陽イオン種を分離し放出する等の前処理操作を取り込むことなどが考えられるが, この方法も前述の如く, 左程有効な手段とはいえない。これらに関しては, 更に物理, 或は化学的な面からの検討が必要であろう。

以上, ルテニウムの生物濃縮を化学形, 更には, より狭義の錯体との関連より, 研究結果をもとに述べて来た。しかし, ルテニウムの本分野に関する研究は, 今その途

についたばかりと見なすのが妥当であり, 文中の仮説・推定で全部が説明されるものではない。これらに関しては, 物理・化学・生物各分野の緊密な連携が更に高度の見解を与えるであろうと思われる。

## References

- 1) 再処理施設安全審査専門委員会; 原子力委員会月報 14, (4) 15-31 (1969)
- 2) Mori, T. and M. Saiki; Vol.31, A79-A (1957).
- 3) Zesenko, A. Ya. and G.G. Polikarpov; *Radio-biologiya*, 5, (1) (1965).
- 4) Iwashima, K. and N. Yamagata; *J. Radiat. Res.*, 7, (2) (1966).
- 5) Tsuruga, H.; *Japan. Soc. Sci. Fish.* 28, (12) (1962)
- 6) 佐伯, 長屋, 小柳, 上田; 原子力工業 14, (10) 10-32 (1968)
- 7) Kéckes, S. Z. Pucar, and Lj. Marazović; Prof. Intern. Symp. on Radioecol. Concent. Processes, Stockholm, pp. 993-994 (1966)
- 8) Kimura, K. and R. Ichikawa; *Japan. Soc. Sci. Fish.* 36, (7) (1970)
- 9) Fletcher, J. M. and P. G. M. Brown et al.; *J. Inorg. Nucl. Chem.s.* 1, 78-401 (1955).
- 10) Ishikawa, M. and Z. Pucar; *J. Radioanal. Chem.*, 11, 197-207 (1972).
- 11) Ishikawa, M. and M. Saiki; Symp. on the Interaction of Radioactive Contaminants with the Constituents of the Marine Environment. IAEA/SM-158/22.
- 12) 木曾義人; 化学の領域 23, (3) 283-294 (1969).
- 13) Aitzetmüller, K. Buchtela and F. Grass; *J. Chromatogr.*, 23, 431-445 (1966).
- 14) Marazović, Lj. and Z. Pucar; *J. Chromatogr.*, 23, 450-459 (1967).
- 15) Marazović, Lj. and Z. Pucar; *Croatica Chim. Acta*, 38, 183-191 (1966)
- 16) Kéckes, S. Z. Pucar and Lj. Marazović; *Intl. J. Oceanol. and Limnol.* 1, (4), 246-153.
- 17) Ishikawa, M. and Z. Pucar; *J. Radioanal. Chem.*, 14, 53-61 (1973)
- 18) Ishikawa, M. T. Koyanagi and M. Saiki; in preparation.

[ II - 3 . 石川昌史, 佐伯誠道 ]

### Ⅲ 放射性核種の濃縮におよぼす環境要因の影響に関する研究

#### 1. 研究の目的と概要

海洋における放射性核種の動向は、地理的および季節的条件を含む数多くの環境要因によって大きく左右される。それらの変化に対応して生物は放射性核種を取り込み、あるいは排出して環境との間に、ある量的関係をもった体内量を保持するものと考えられる。海産生物はその生活様式から大別すると、底生生物、游泳生物および浮游生物の3つに分けられるが、そのような分類の根拠となる生態学的条項としては、産地、生息地の性質、生息する媒質、食性、生殖の習性、同種個体間および他種との関係などが考えられる。生物の一個体にとって、それを取巻くあらゆる物質、あるいは事象がすべて環境要因と見るべきものであり、自然条件のもとではそれらが複雑に交錯して生物の生理生態に密接な関係をもっていると思われる。したがって、個々の条項を取出してその影響の程度を評価することはしばしば困難であり、またその意義にも限度があると考えられるが、モデル実験の結果を天然現象を解く鍵として有効ならしめるためには、水槽実験における限定された環境条件を正確に把握しておくと共に、種々の条件を設定して、その変化が放射性核種の生物濃縮に与える影響について解明しておくことが不可欠であると考えられる。

放射性核種自体の形態や挙動がその生物濃縮に対してもたらす効果については前述した通りであり、一方、生物自身の食性や生理代謝と放射性核種濃縮との関係は生物学的要因の影響として後記の別章にまとめたので、ここではそれ以外の要因について二三検討した実験結果をまとめた。これら外的条件の効果は、直接的には生物の代謝活動に及ぶものが多く、その結果が放射性核種濃縮に関与して来る点では生物学的要因の影響と区別し難い

面もあり、場合によっては重複するところもあらうと思われる。

沿岸海域の生物のみを考慮しても、それを取巻く環境要因としては日照時間や温度、潮の干満や波浪などの気象条件をはじめ、地形によっては陸水の流入や海底堆積物の性状、あるいは生物相などの地理的条件が考えられ、個々の海域によって特定の要因を考える必要がある場合もあると思われるが、本研究では茨城県沿岸海域を主体に考えて実験を行なった。

海洋において、無機物から有機物を作ることのできる唯一の生物は植物であるが、植物プランクトンや海藻類は一般に放射性核種に対する濃縮係数が高く、また動物の餌となることから、食物連鎖における放射性核種の動きという面からも重要視しなければならない。海藻類による放射性核種の濃縮については既述したが、本研究では、海産植物の炭酸同化作用と放射性核種濃縮との関連を、光の影響という点から観察した。

同化作用に限らず一般に生物の代謝活動に対して効果が大きいと思われる水温の影響をはじめ、塩分濃度など水質の差による影響に関しては、一応対象海域で想定される変動の範囲にもとづいて検討した。

また放射性核種の海水中における挙動についての研究結果から、吸着性の著しい核種は海水中の懸濁物や海底堆積物に吸着された形で存在する機会が多いことがわかったが、一旦そのような形態を経たものが如何に生物へ移行するかを明らかにする目的で、特に表面吸着による放射能汚染が多いとみられる海藻類や、底質との接触が多い底生生物について、放射性核種濃縮に対する外的要因としての懸濁物、底質の寄与を検討した。

#### 2. 光、温度の影響

##### (a) 緒言

放射性核種の生物濃縮に効果をおよぼす環境要因の一つとして、光の影響を特に考えなければならないのは、その物質代謝において光合成作用が重要な地位を占める

植物である。そのうち、海藻類による放射性核種の濃縮に関する研究は前章に掲げた通りであり、その生物濃縮機構の解明をこころみる面で、生理代謝活動との関連についても一部述べたが、一般に植物プランクトンや海藻

類は放射性核種の濃縮係数が大きく、また海洋における食物連鎖を考慮する場合にも重視すべき生物であるところから、その生活現象に密接な関係をもつ光が、放射性核種の濃縮係数に与える影響を明らかにすべく実験を行った。一方海水の温度は、中部太平洋沿岸地域のみを考慮しても季節によって年間10~20°Cの較差があり、変温動物である海産生物は、その温度変化に応じて種々の適応行為をとるものと思われる。生物の種類や、地域、気象などによって差はあるが、一般に高低致死温度内の範囲では、水温の上昇にともなって生物活性は増加し、代謝やその他のいろいろの生物過程の速度は、通常10°の温度上昇によって2~3倍となる。10°の温度上昇による代謝速度増加は温度係数 $Q_{10}$ と呼ばれ、温度変化の影響を知る場合の目安となるところから、放射性核種の生物濃縮に関して、取り込みの速度について $Q_{10}$ を求め、水温の影響を究明した。

(b) 実験方法

光の影響に関してはRIトレーサーとし $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ を、実験藻類としてはヒジキ (*Hijiki*) *Hijikia fusiforme* を用い、濃縮傾向を経日的に追跡した。光の影響要因としては照度(光の強さ)、照射時間および質(波長)の3つの要素が考えられるが、この実験では照度は昼光色蛍光灯(20W)の数を増減することにより変化させ、照射時間は1日24時間の範囲内で変化させた。

水温の影響に関する実験には1トンおよび50ℓの循環戸過式水槽を用い、50ℓ水槽の場合には孔径0.45μのミリポアフィルターで戸過した海水を使用した。トレーサーとして $^{60}\text{Co}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{115}\text{mCd}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ をそれぞれ添加し、海水中の放射能濃度がほぼ安定したのちに、あらかじめ種々の水温に制禦した水槽内で1週間予備飼育した生物を投入した。その後、経日的に3~5個体を取り上げ、全身および各臓器または組織の放射能濃度を測定し、海水中の放射能濃度との比を求めて濃縮係数を算出した。また、同様な方法で放射能の排出実験を行ない、比較検討をこころみた。

(c) 結果および考察

Fig. 55. は $^{137}\text{Cs}$ の濃縮に対する照度の影響を示したもので、照度が増すと濃縮も著しくなり、800ルクスでは400ルクスの場合の1.5倍の濃縮係数を示した。また、全く光の当たらない0ルクスでも $^{137}\text{Cs}$ の濃縮が起ることが示されている。Fig. 56. は照射時間の影響を示したもので、24時間照射した場合には4時間照射したものにくらべ2倍近い濃縮がみとめられてい

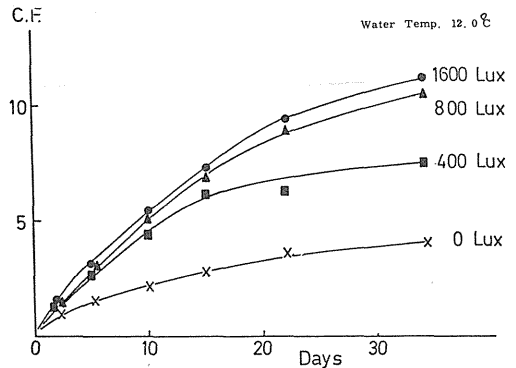


Fig. 55. Concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

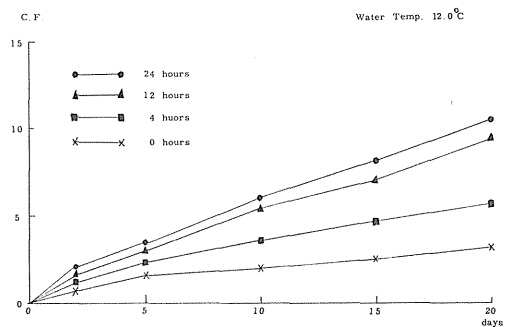


Fig. 56. Concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

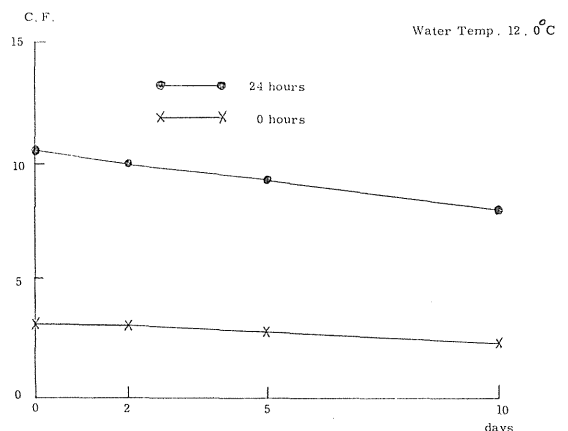


Fig. 57. Loss of  $^{137}\text{Cs}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

る。またこの実験でも無照射(0時間)の時にも $^{137}\text{Cs}$ の濃縮がみられ、光合成作用が行なわれていない時にも、 $^{137}\text{Cs}$ の吸収が進行することが示されている。24時間照射と無照射の条件のもとに、汚染海水中で20日間飼育した試料を非汚染海水中に移して、放射能の排出に対する光の影響を観察した。結果はFig. 57.の通りであり、排出についても照射時間の長い方が、より活発であるとみられる。このような傾向は $^{60}\text{Co}$ の濃縮に関しても同様に観察され、それらの核種の濃縮がヒジキの代謝活動と関係しており、光の影響を受けることを表わすものと考えられる。これに反して、 $^{85}\text{Sr}$ の濃縮と排出については、それぞれFig. 58.およびFig. 59.に示した通り、濃縮係数あるいは排出速度への照射時間の関与はみられない。光の影響がないことは $^{85}\text{Sr}$ の濃縮が代謝とは無関係であることを示しており、同様な傾向は $^{106}\text{Ru}$ の

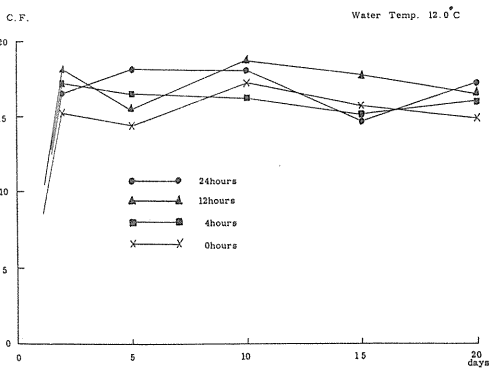


Fig. 58. Concentration of  $^{85}\text{Sr}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

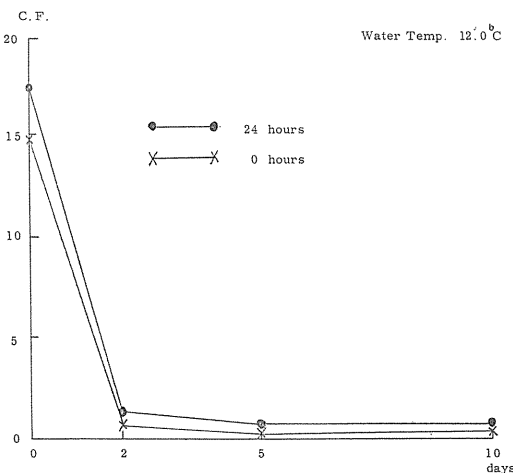


Fig. 59. Loss of  $^{85}\text{Sr}$  by Hijiki *Hijikia fusiforme*

濃縮実験においても観察されている。したがって、既に海藻類による放射性核種の濃縮について報告した1章においても述べた通り、SrやRuに関しては表面吸着などの濃縮機構がヒジキによる取り込みの主体をなすものと考えられる。

Fig. 60.およびFig. 61.は、マサバ(Mackerel) *Scomber japonicus* HOUTTUYN(15~20g)による $^{65}\text{Zn}$ の取り込みおよび排出について水温の影響

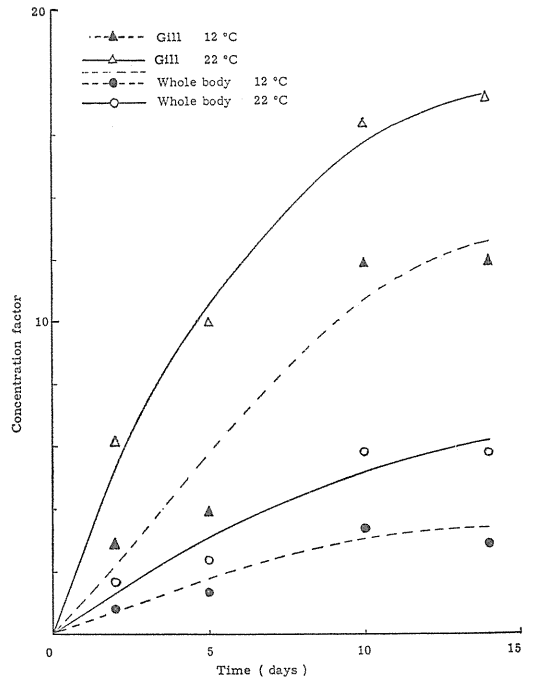


Fig. 60. Effect of temperature on concentration of  $^{65}\text{Zn}$  by Masaba (Mackerel) *Scomber japonicus*

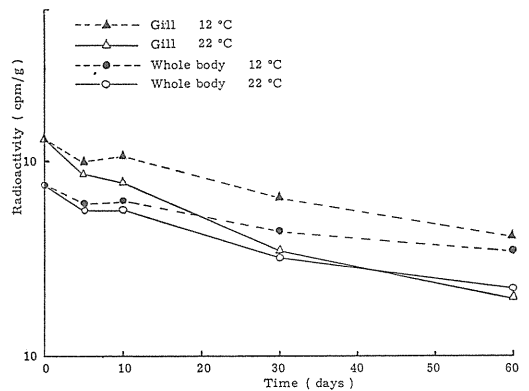


Fig. 61. Effect of temperature on loss of  $^{65}\text{Zn}$  from Masaba (Mackerel) *Scomber japonicus*

を観察した結果を示したもので、22°Cおよび12°Cで飼育した場合の違いを全魚体とエラで例示してある。取り込みおよび排出ともに22°Cで飼育した方が速やかであり、取り込み14日目の濃縮係数で比較すると、12°Cで飼育したものよりも全魚体では2倍、エラでは約1.5倍高くなっている。また他の臓器組織についても、その差は1.5~2.5倍の範囲であった。一方、排出実験における60日目までの観測値から、最少二乗法によって各部位別に計算した生物学的半減期はTable 7. に示した通りである。全魚体、ウロコ、エラでは特に差が顕著で、高温飼育の方が1.6~1.7倍速く排出されることが示された。

水温15°C~35°Cの範囲で、メジナ(Black fish) *Girella punctata* GRAY (2~5g)を72時間飼育した場合の<sup>137</sup>Csの濃縮状況はFig. 62. に示してあるが、水温が上昇するにつれて濃縮係数の値が指数函数的に増加することがわかる。この結果から、算出したQ<sub>10</sub>の値はTable 8. の通りである。すなわち、ヒレ、エラ、ウロコでは20°C~25°CのQ<sub>10</sub>値が最大で、それより更に高温になるにしたがってQ<sub>10</sub>値は減少する傾向がみられた。

チョウセンハマグリ(Clam) *Meretrix lamarchii* (DES HAYES)による<sup>60</sup>Coの濃縮についても、温度の影響が10°Cの水温の差で観察された。すなわち、最も<sup>60</sup>Coの濃縮が著しい中腸腺についてFig. 63

に例示した通り、20°Cで飼育した場合は、10°Cで飼育したものに比べて、2倍以上もの濃縮係数を示した。

以上の如く、温度の影響に関しては、<sup>137</sup>Csの取り込みについて計算した例のようにQ<sub>10</sub>として1.5~2.0程度の値が得られた。したがって一般的にみて、生物の生存に適合した温度範囲内においては、水温上昇にもなう代謝活動の増進によって、放射性核種の濃縮も著しくなると考えられるが、その程度は10°Cの温度差に対し、せいぜい2倍前後にとどまるものと思われる。

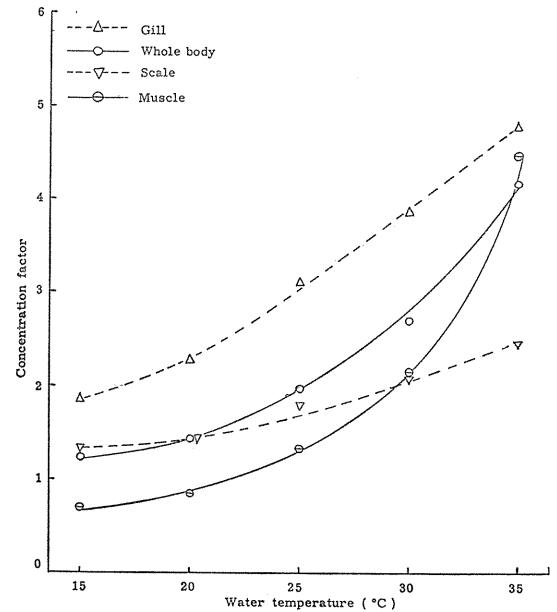


Fig. 62. Effect of temperature on concentration of <sup>137</sup>Cs by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

Table 7. Biological half-life of <sup>65</sup>Zn by "Masaba"

	22°C	12°C	12°C/22°C
Whole body	35.4 days	56.9	1.61
Scale	28.1	47.1	1.68
Gill	23.5	38.3	1.63
Muscle	42.9	56.8	1.32
Viscera	20.4	22.2	1.09
Blood	38.1	55.3	1.45

Table 8. Q<sub>10</sub> of various organs on concentration of <sup>137</sup>Cs by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

Organs	°C			
	15-20	20-25	25-30	30-35
Whole body	1.351	1.878	1.896	2.375
Fin	1.570	1.710	1.378	1.265
Gill	1.064	1.877	1.532	1.541
Scale	1.157	1.549	1.366	1.387
Muscle	1.518	2.448	2.613	4.323
Bone	1.076	1.758	1.958	1.291

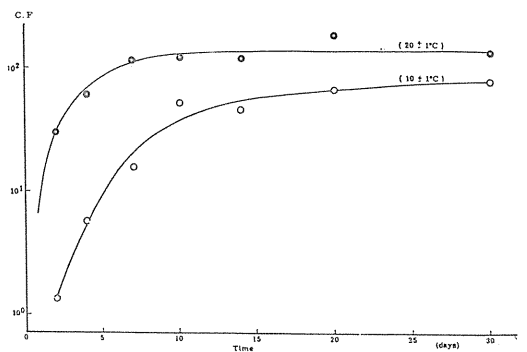


Fig. 63. Effect of temperature on concentration of <sup>60</sup>Co by mid-gut gland of clams *Meretrix lamarchii* DESHAYES



### 3. 共存安定元素・塩分濃度の影響

#### (a) 緒言

天然の海では、場所や季節によって海水中の安定元素の濃度変動する。特に沿岸部や表層部での変動は大きく、例えば Zn では 10 倍ほどの変化が見られる。この原因として、陸水の影響、海底堆積物のまきり、動植物プランクトンの季節的消長などが考えられる。

一方、茨城県東海村沖の海水の塩分濃度は、1 年を通じて 30~38‰ 程度の範囲内で変化する。これらの海水の安定元素や塩分濃度の変化によって、海産生物の放射性核種の取り込み、排出が如何に影響を受けるかを検討した。

#### (b) 実験方法

共存安定元素の影響について実験した元素は、Mn, Co, Zn で、実験生物は動物性プランクトンとして、アルテミア *Artemia salina*、軟体類のクロアワビ (Abalone) *Haliotis discus discus*、魚類のメジナ (Blackfish) *Girella punctata* である。アワビとメジナは循環ろ過式水槽に 0.45 μm ポアフィルターでろ過した海水を 15 l 入れ、そこに RI と安定同位元素を添加して、種々の安定元素濃度の水槽を準備した。アルテミアの場合は、ビーカーにろ過海水を 1 l 入れ、通気して飼育した。

Co と Zn については、実験に使用したろ過海水を放射化分析および原子吸光法で測定し、海水 1 l 当り Co 0.14 μg, Zn 14 μg の値を得た。Mn については、Goldberg の 2 μg/l の値を用い、これらの値を基準とした。実験した安定元素の濃度範囲は、Table 9 の通りで、No. 1 水槽の値は上記の値に添加 RI 中のキャリアの量を加えたものであり、No. 2 以後は、それにさらに安定元素を加えたものである。

RI および安定元素は、すべて塩化物の形で同時に実

Table 9. Concentration of stable elements in sea water

	Mn	Co	Zn
No. 1	2 μg/l	0.3	14.3 - 20.3
2	20	1.3	44.1 - 47.4
3	200	10.3	317.4 - 341.7
4	-	100.3	3318.1

験水槽に添加した。海水中の放射濃度が安定してから実験生物を投入し、経日的に取り上げ whole body および筋肉や内臓などの各部位の濃縮係数を求めた。また、最初の時点で同時に添加した RI と安定同位元素の量から、1 cpm 当りの安定同位元素の量を求め、これに基づいて生物への安定元素の蓄積量を計算した。

塩分濃度の影響については、ろ過海水を蒸発して濃縮するか、蒸留水で希釈して塩分濃度 28 から 42‰ の範囲の海水を作り実験に用いた。なお、当実験場で夏季に取水している沿岸海水の塩分濃度は、約 33‰ である。

実験は、チダイ (Sea bream) *Evynnis japonica* 5~10g で <sup>85</sup>Sr の取り込み、メジナ 2~5g で、<sup>65</sup>Zn, <sup>137</sup>Cs の取り込みと排出、クロアワビ (Abalone) *Haliotis discus discus* 3~7g で <sup>137</sup>Cs の取り込みを観察した。

#### (c) 結果および考察

##### 1) 共存安定元素の影響

海水に添加した RI の濃度変化は、Fig. 64 のようになり海水中の安定同位元素の量が多いほど水槽壁やろ過材への吸着が押さえられるのが観察された。

Fig. 65 から 67 にアルテミアによる <sup>54</sup>Mn と <sup>60</sup>Co の取り込み・排出の結果を示した。<sup>54</sup>Mn の取り込み実験では、No. 3 水槽のアルテミアは投入後すぐに平衡状態

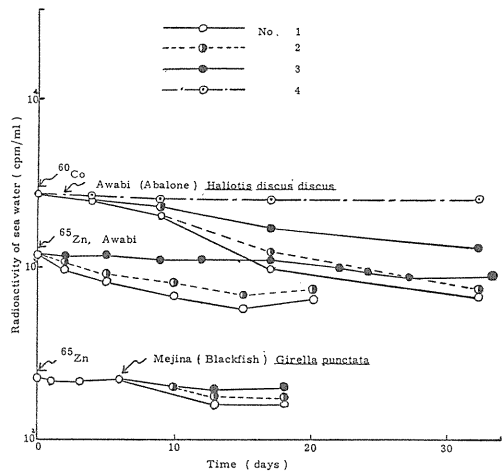


Fig. 64. Change of radioactivity in sea water

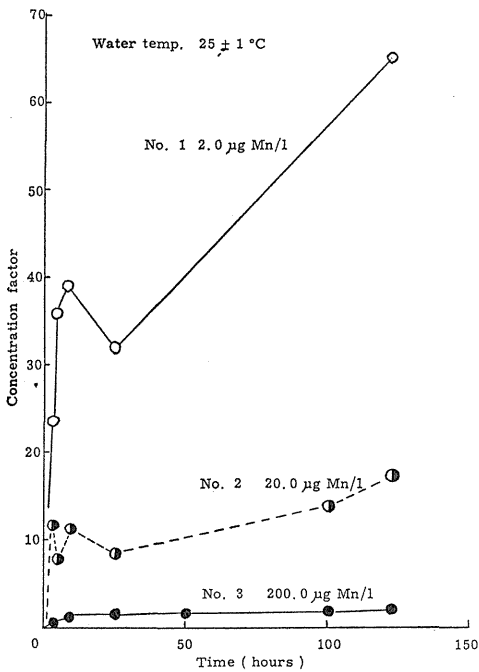


Fig. 65. Effect of stable isotope in sea water on concentration of  $^{54}\text{Mn}$  by *Artemia salina*

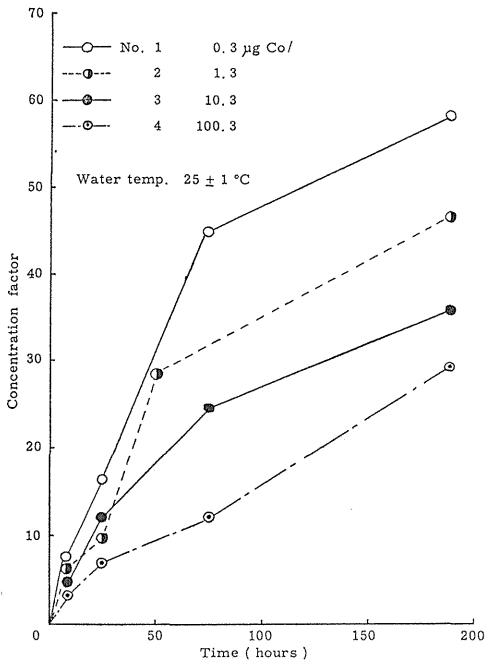


Fig. 66. Effect of stable isotope in sea water on concentration of  $^{60}\text{Co}$  by *Artemia salina*

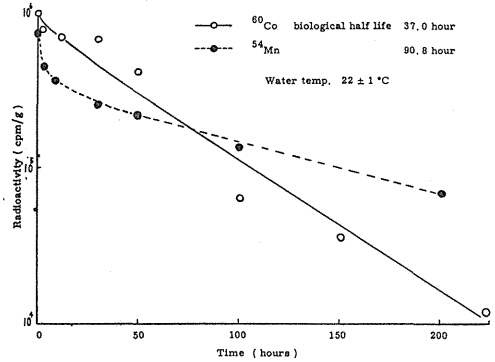


Fig. 67. Loss of  $^{54}\text{Mn}$  and  $^{60}\text{Co}$  from *Artemia salina*

になりC.F.2を示したのに対し、No.2水槽はC.F.20ではほぼ平衡になり、海水中の安定同位元素濃度と逆の関係を示した。

$^{60}\text{Co}$ でも $^{54}\text{Mn}$ の場合と同様に、海水中の安定同位元素濃度が高くなるにつれてC.F.が低くなる傾向を示したが、 $^{54}\text{Mn}$ のような大きな差は見られなかった。

$^{54}\text{Mn}$ または $^{60}\text{Co}$ を取り込ませたアルテミアを清浄海水に移し、両R.I.の排出状況を観察した結果、 $^{54}\text{Mn}$ は最初の1時間の内に約60%が失われるのに対し、

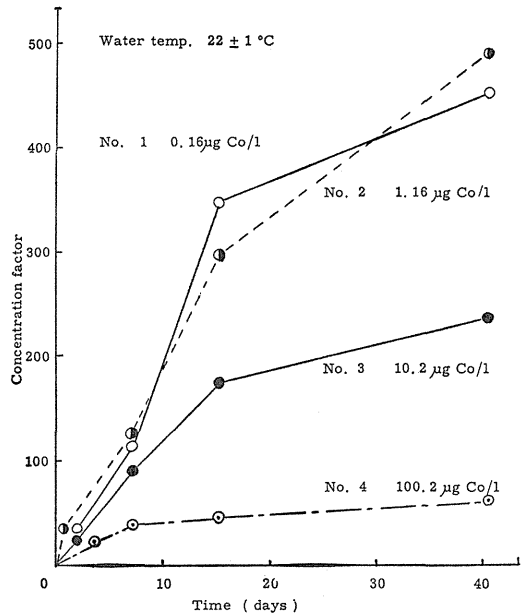


Fig. 68. Effect of stable isotope in sea water on concentration of  $^{60}\text{Co}$  by whole body of Awabi (Abalone) *Haliotis discus discus*

$^{60}\text{Co}$  では約 10%程度であった。この点からアルテミアによるMnの取り込みは、表面吸着が主であると考えるのが妥当と思われる。

アワビによる $^{60}\text{Co}$ の取り込みの経日的変化は、Fig. 68.の通りで、海水中に安定コバルトの多いNo. 3, No. 4ではC.F.が小さく、また平衡に達するのも早まる傾向が見られたが、安定コバルトの少ないNo. 1, No. 2ではC.F.に有意差が見られなかった。Table 10.は、 $^{60}\text{Co}$ 取り込み30日目のアワビを殻・筋肉・内臓の3部位に分け、それぞれの安定コバルトの蓄積量を $^{60}\text{Co}$ のカウント数から計算したものである。カッコ内にNo. 1の値との

比を示してある。海水中の安定コバルトの量が、Table 9.の値よりもすべて小さくなっているが、これは水槽壁や河過砂に吸着したり実験生物に取り込まれたために減少したものである。No. 1とNo. 2では、各部位の蓄積量が海水中の安定コバルトの増加割合と一致しているが、No. 3以上に安定コバルトの濃度が増加すると蓄積量の増加の割合は押さえられてくる。特に殻では、No. 3とNo. 4とで増加が殆んど見られず、殻表面への安定コバルトの吸着に飽和があることを示すものと思われる。

アワビおよびメジナによる $^{65}\text{Zn}$ の取り込み実験でも、アワビの $^{60}\text{Co}$ 取り込み実験と同様な傾向が見られ、海

Table 10. Accumulation of stable cobalt by Awabi (Abalone) at the thirtieth day

	No. 1	2	3	4
Sea water	0.02 $\mu\text{g Co/l}$	0.3 (13)	4.6 (200)	87.6 (3800)
Whole body	11.3 $\mu\text{g Co/Kg}$	135.9 (12)	1189.0 (105)	5274.5 (467)
Shell	24.6	260.2 (11)	3446.6 (140)	4855.6 (197)
Muscle	4.2	40.4 (10)	240.3 (57)	4279.1 (1019)
Viscera	27.6	270.0 (10)	2943.2 (107)	14137.7 (512)

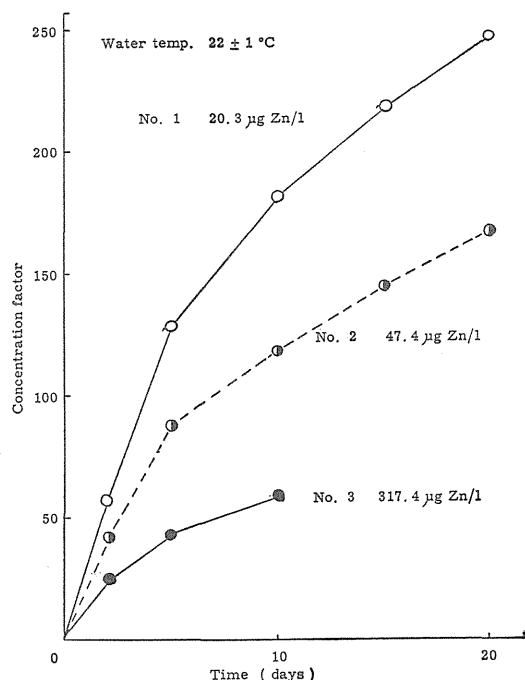


Fig. 69. Effect of stable isotope in sea water on concentration of  $^{65}\text{Zn}$  by whole body of Awabi (Abalone) *Haliotis discus discus*

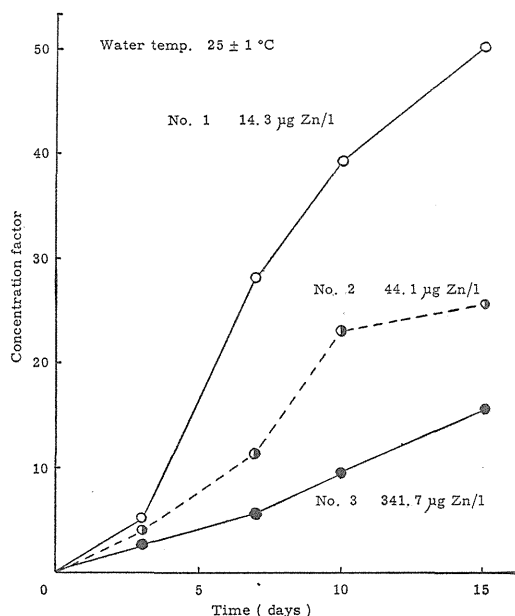


Fig. 70. Effect of stable isotope in sea water on concentration of  $^{65}\text{Zn}$  by whole body of Mejiina (Blackfish) *Girella punctata*

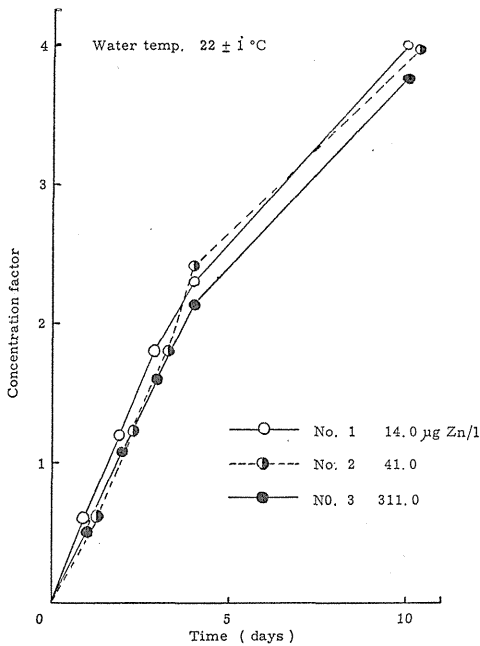


Fig. 71. Effect of stable zinc in sea water on concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by whole body of Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

水中の安定亜鉛濃度が10倍になると濃縮係数は約半分となることが観察された ( Fig. 69.70 )。しかし、亜鉛の場合は、コバルトと違って特に金属の毒性が強く、環境水中に亜鉛が高濃度に存在すると魚類のエラが障害を受けるという報告もある。このために、安定亜鉛の多い No. 2, No. 3 水槽のメジナの C.F. が低くなったとも考えられるので、次に No. 1 から No. 3 の安定亜鉛濃度の水槽で、 $^{137}\text{Cs}$  の取り込み実験を行なった。Fig. 71. がその結果で、No. 3 がやや低い C.F. を示したが、ほとんど差は見られなかった。この点からメジナの  $^{65}\text{Zn}$  の取り込み実験で差が見られたのは、海水中の安定亜鉛の金属毒によるものではないと推定できる。

一方、安定亜鉛を  $^{65}\text{Zn}$  取り込み実験の時と同じ濃度

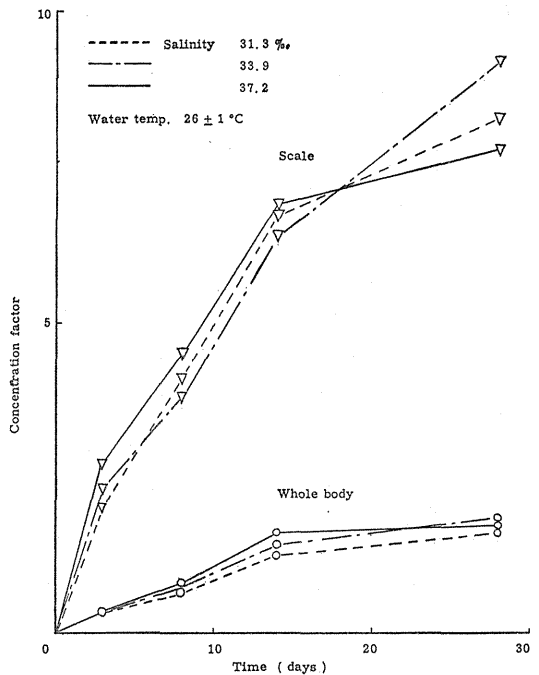


Fig. 72. Effect of salinity on concentration of  $^{85}\text{Sr}$  by Chidai (Sea bream) *Evynnis japonica*

に加えた清浄海中でのメジナによる  $^{65}\text{Zn}$  の排出実験の結果から長いコンポーネントの生物学的半減期を計算すると、No. 1, 2, 3 はそれぞれ 125.2 日, 83.6 日, 56.3 日となり、海水中の安定亜鉛濃度の増加につれて排出が速くなることが観察された。これらのメジナによる  $^{65}\text{Zn}$  の取り込みと排出の結果から、水温  $27 \pm 1^\circ\text{C}$  における Whole body の取り込み率、排出率、平衡時の濃縮係数を計算すると Table 11. のようになった。これによると、排出率は環境水中の安定亜鉛濃度が高くなるにつれて大きくなるのに対し、取り込み率は逆に押さえられてきている。この結果、濃縮係数に差が生じたものと思われる。

以上を要約すると、アルテミアの  $^{54}\text{Mn}$  の取り込みや、

Table 11. Uptake and excretion rate of  $^{65}\text{Zn}$  in Mejina (Blackfish) *Girella punctata* (Water temp.  $27 \pm 1^\circ\text{C}$ )

No.	Uptake rate ( $\text{day}^{-1}$ )	Excretion rate ( $\text{day}^{-1}$ )	Concentration factor	Biological half life (day)
1	0.9075	0.0055	165.0	125.2
2	0.7653	0.0083	92.2	83.6
3	0.5375	0.0123	43.7	56.3

$^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  のアワビの殻への濃縮のように吸着が主な濃縮の要因と思われるものでは、吸着量に限度があり、その時は isotope dilution が効いてきて環境水の安定元素量が 10 倍になると濃縮係数はほぼ  $\frac{1}{10}$  になる。一方、 $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  のアワビの筋肉、内臓への取り込みやメジナなどの  $^{65}\text{Zn}$  の取り込みのように代謝を通して取り込まれる場合は、環境水中の安定同位元素の増加によって取り込み率は減少し排出率が増加するため、やはり濃縮係数は低くなるが、環境水中の安定同位元素濃度の比よりも小さい割合で低くなるものと推定される。例えば、環境水中の安定同位元素の濃度が 10 倍になると、濃縮係数は  $\frac{1}{5}$  になるような関係である。環境水中の安定同位元素濃度の増加につれて取り込み率が減少するのは、吸着の場合と同様、生物の単位重量当りに蓄積できる量に限度があるのか、または単位時間に取り込める量に限度があるためと思われる。

ii) 塩分濃度の影響

塩分濃度の影響については、塩分濃度 28~42 ‰ の範囲の海水を用いたが、これらの海水におけるチダイの  $^{85}\text{Sr}$  の取り込み、メジナの  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  の取り込み

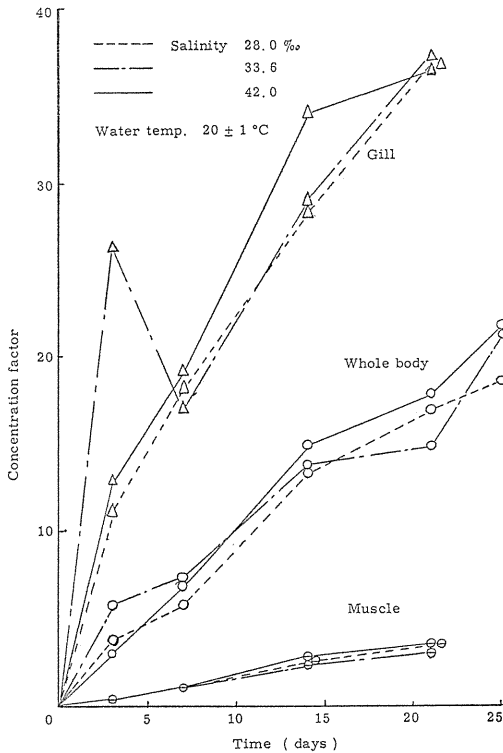


Fig. 73. Effect of salinity on concentration of  $^{65}\text{Zn}$  by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

と排出、クロアワビによる  $^{137}\text{Cs}$  の取り込みの結果を、Fig. 72~76. に示した。これらの結果によると、チダイやメジナなどの海産魚による  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  の濃縮係数は、28~42 ‰ 程度環境水の塩分濃度が変化しても、ほとんど影響を受けないことが観察された。またメジナによる  $^{137}\text{Cs}$  の排出実験も塩分濃度の違いによつての差は見られず、whole body の生物学的半減期は、水温 20°C 飼育で 25 日となった。

一方、Fig. 76. に示されたクロアワビによる  $^{137}\text{Cs}$  の取り込みでは、魚類の場合とは異なり塩分濃度の低い海水で飼育したものの濃縮係数が高く、特に内臓で顕著で

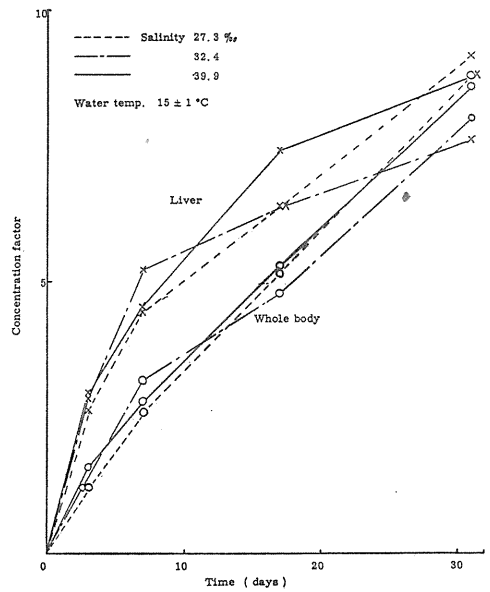


Fig. 74. Effect of salinity on concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

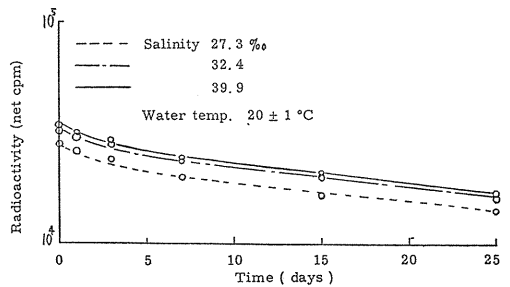


Fig. 75. Effect of salinity on loss of  $^{137}\text{Cs}$  from whole body of Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

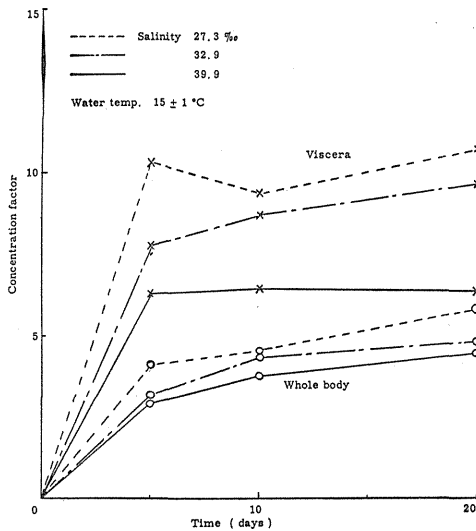


Fig. 76. Effect of salinity on concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by Awabi (Abalone) *Haliotis discus discus*

あった。すなわち、R I 海水飼育 20 日目の内臓の濃縮係数は、塩分濃度 28 ‰ で 10.7、33 ‰ で 9.6、40 ‰ で 6.3 であった。

海水の塩分濃度が異なれば、当然海水中の安定同位元素の濃度も異なってくる。例えば、33 ‰ を沿岸海水

の塩分濃度とし、この海水の安定 Sr, Zn, Cs の濃度をそれぞれ 1 とすれば、塩分濃度 28 ‰, 42 ‰ の海水中の安定 Sr, Zn, Cs の濃度は 0.85, 1.27 倍となっている。しかし、共存安定同位元素の影響の所でも述べたように、生物の代謝を通して取り込まれる核種では、海水中の安定同位元素濃度が 10 倍になっても、濃縮係数は約半分ほどにしかならなかった。したがって、上記の 0.85 から 1.27 倍程度の安定同位元素濃度の変動では、ほとんど濃縮係数は影響を受けないものと思われる。この点から、海水塩分濃度の違いによって海産硬骨魚による  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  の取り込みでは差が見られず、軟体類のアワビで差が生じたのは、共存安定同位元素の影響ではなく、むしろ海産硬骨魚と軟体類の生理機構の差によるものと考えられる。

例えば、海産硬骨魚は恒渗透圧性動物であり、環境水の塩分濃度が変化してもある範囲内では体液の渗透圧を一定に保つが、アワビなどの海産無脊椎動物の多くは変渗透圧性で、環境水の塩分濃度によって体液の渗透圧は変化し、ほぼ環境水の渗透圧と等しくなっている。また、変渗透圧動物はほとんどみな狭塩度性生物でもあるので、このような渗透圧調節機構の違いがメジナとアワビの、 $^{137}\text{Cs}$  の取り込みの差を招いたものかもしれない。これらの点については更に検討する必要があるが、塩分濃度 28 ~ 42 ‰ の範囲では海産硬骨魚による放射性核種の取り込み・排出は大きな影響を受けないことが示された。

#### 4. 懸濁物、底質の影響

##### (a) 緒言

海水中における放射性核種の物理化学的挙動に対する海水中懸濁物、あるいは海底堆積物の寄与に関しては別項において既述した通りであるが、放射性核種が海水から生物へ移行する際に、介在するそれらの物質がどの程度の役割を果たすかを明らかにする目的でいくつかの実験を行なった。懸濁物や底質と称されるものの中には無機、有機双方の成分が存在し、特に浮游生物や底質中の微小生物を主な餌料としているような生物の場合には、単に物理化学的な現象の追求のみでなく、生物学的な作用にもとづく放射性核種の移行をも考慮に入れる必要がある。そのような食物連鎖と関連の深い放射性核種濃縮についての検討とは別に、ここには吸着性が著しいために生物濃縮に際しても懸濁物や堆積物に吸着された成分の寄与を無視し得ないと考えられる放射性核種について、それ

ら成分の生物への可給性について検討した若干例を示す。

既に前章に紹介した通り、放射性ルテニウムは海水中に導入された後、その化学形態が非常に複雑な経時的変化を遂げることがわかったが、化学種によっては吸着性においてもかなり異なる挙動がみとめられた。たとえば、水槽実験においてトレーサーとして  $^{106}\text{Ru}$  を種々の錯塩の形で海水中に添加した場合、水槽壁への吸着等によるとみられる放射能濃度の減少はクロロ錯塩の時に最も早く起り、5 日前後で 60 % 以上が失われるのに対し、ニトロシル錯塩にした時には比較的減り方が遅く、特にニトロニトロシル化合物の形で添加した  $^{106}\text{Ru}$  は、10 日以後でも 80 % 前後が海水中に残存するという結果が得られている。このような吸着性の違いは懸濁物や底質に対する場合にも考えられるところから、海水をあらかじめ濾過した場合と未濾過の場合、それぞれに添加した

$^{106}\text{Ru}$ の海藻への濃縮あるいは排出の相違を観察すると共に、 $^{106}\text{Ru}$ を吸着させた砂の中で飼育したハマグリへの放射能の移行について観察した。

(b) 実験方法

茨城沿岸で採取した海水を、孔径  $0.45\mu$  のミリポアフィルターで濾過したもの及び濾過しないものそれぞれ  $10\ell$  を用い、 $^{106}\text{Ru}$  の3つの化学形態(クロロ錯塩、ニトラトニトロシル錯塩、ニトロニトロシル錯塩)に調整したトレーサーを添加して、その中にヒジキ約  $50g$  を投入した。海水中懸濁物の量は地理的、季節的条件で大きく変動するが、実験に供した海水  $10\ell$  の濾過残渣は  $8.8\text{mg}$  であった。12時間間欠の照明およびエアレーションを施して2週間飼育し、その間、放射能濃度の経時変化を海水、ヒジキについて観測した。その後、残ったヒジキを清浄海水に移して、更に2週間排出実験に供した。

一方、 $10\ell$  の海水に粒径  $0.5\sim 1.0\text{mm}$  の砂  $3\ell$  を入れた水槽および海水のみの水槽に $^{106}\text{Ru}$  をニトラトニトロシル錯塩の形で添加し、それぞれの中で1か月飼育したハマグリについて放射能濃度の経時変化を部位別に測定し、比較検討した。

(c) 結果及び考察

ヒジキ飼育実験における各水槽中の放射能濃度の経時変化はFig. 77に示した通りで、化学形態別に違った傾

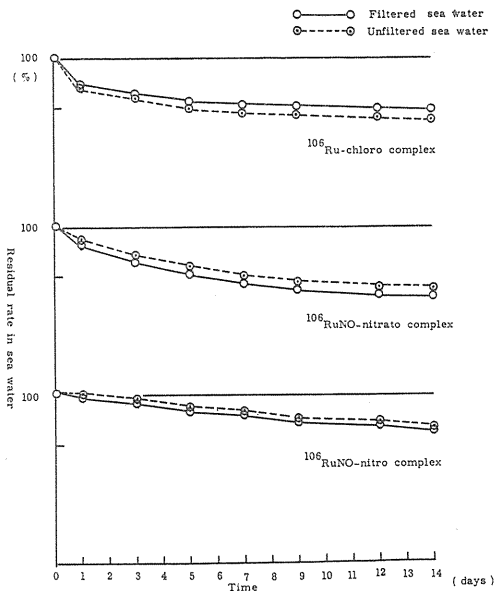


Fig. 77. Residual rate of  $^{106}\text{Ru}$  in sea water

向がみとめられた。すなわち、クロロ錯塩の場合は、初期に急激な濃度減少がみられ、吸着が迅速に起ったことを示唆しているが、その後の変化は緩慢で減少の割合は未濾過海水の方が大きい。これにくらべてニトラトニトロシル錯塩では、初期における濃度低下は顕著でないが、全期間を通じて緩慢な濃度減少がみられ、2週間後には60%前後が失なわれている。また、クロロ錯塩とは逆に濾過海水中での減少の方が著しい。更に、3者中では海水中で最も安定と考えられるニトロ錯塩は矢張り濃度減少が最も少なく、また海水の濾過、未濾過による差も極めて僅かである。

これらの結果、ヒジキによる $^{106}\text{Ru}$ の濃縮状況はFig. 78.のように示されるが、海水中的濃度変化に見られた傾向の相違にかかわらず、ヒジキの濃縮係数は濾過海水でも未濾過海水でも明確な差をみとめることができなかつた。これはヒジキの単位重量当りの放射能がクロロ錯塩では濾過海水の方が、またニトラトニトロシル錯塩では未濾過海水の方で高くなっているためと考えられる。

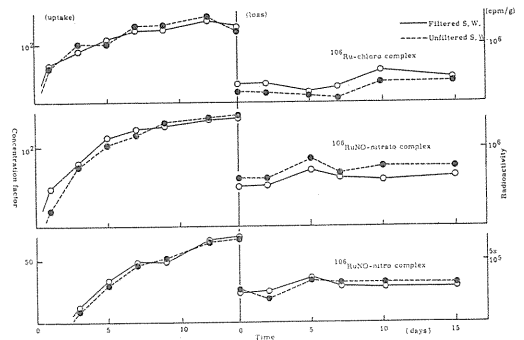


Fig. 78. Concentration and excretion of  $^{106}\text{Ru}$  by "Hijiki" (*Hijikia fusiforme*)

すなわち、クロロ錯塩では海水中的懸濁物とヒジキとが $^{106}\text{Ru}$ の吸着に関して競合する形となり、懸濁物に吸着されたものはヒジキに移行しないのに対し、ニトラト錯塩の場合には懸濁物に吸着した形でのヒジキへの移行があり、濾過海水中のヒジキよりも放射能濃度が高くなることを示すものと推定される。また排出実験の結果にみられるように、いずれの条件においても放射能の離脱は殆んどみとめられず、海水からの直接の取り込み、あるいは懸濁物を経た場合でもかなり強固に吸着されるものと思われる。しかしながら、限られた実験条件のもとの知見であり、懸濁物の量や質の相違による効果についての検討が必要であろう。一方、 $^{106}\text{Ru}$ をニトラトニトロシル錯塩の形で吸着させた砂の中で飼育したハマ

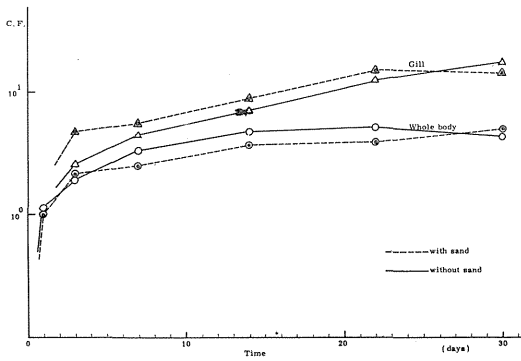


Fig. 79. Concentration of  $^{106}\text{Ru}(\text{nitrosyl-nitrato})$  by clams (*Meretrix lamarkii*)-I

グリを水中飼育のものと比較すると、Fig. 79.にみられるようにエラでは砂中飼育の方が僅かに高い濃縮係数を与えるが、全体では逆の傾向を示し、いずれにしても両者に大差はない、これに対し、内臓と殻についてみると、Fig. 80.のように明らかに差がみられ、またその相違は両部位で逆の関係を示した。つまり、内臓への濃縮には砂に吸着した $^{106}\text{Ru}$ が大きく寄与するのに対し、殻の場合には砂中に埋ることによって海水との接触が減り、

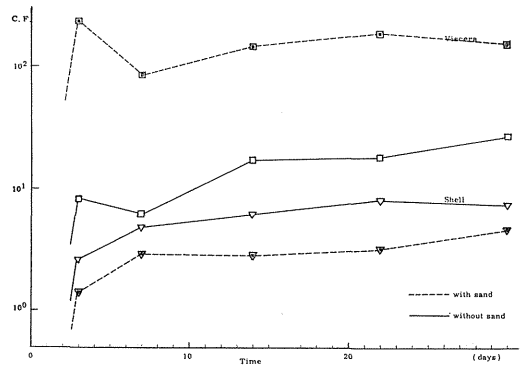


Fig. 80. Concentration of  $^{106}\text{Ru}(\text{nitrosyl-nitrato})$  by clams (*Meretrix lamarkii*)-II

表面吸着による海水からの移行がむしろい減されることを示すものと考えられる。

これらの結果は、海水中懸濁物や海底堆積物の生物濃縮に与える影響を無視できない場合のあることを示唆するものであるが、それら懸濁物や底質への放射性核種の吸着が、生物への放射能濃縮を著しく高める方のみ作用するものでは必ずしもないことを示すものと言える。



## Ⅳ 放射性核種の濃縮におよぼす生物学的要因の影響に関する研究

### 1. 研究の目的と概要

海産生物への放射性核種の濃縮には、海水からの直接の移行、海水中懸濁物や海底堆積物を通しての移行、更に食物連鎖をたどっての移行が考えられる。また、放射性核種と生物とのそれぞれの種類の違いによって、生物体の組織表面への物理化学的吸着が主体となるものや、生物自身の生理代謝活動によって積極的に吸収、蓄積されるものなどがあげられる。したがって、放射性核種の生物体内における濃度分布は、それら取り込みの機構や速さ、体内での移動度や体外への排出率などによって左右され、それらはまた生物の生育段階や生理状態によっても変化するものと考えなければならない。放射性核種の生物濃縮に影響を及ぼす外的な環境要因が、前記の通りしばしば時間と共に変化するものであると同様に、生物あるいはその臓器または組織にとって、その中の放射性核種濃度も時間的に変化する。したがって、生物と環境との間の放射性核種の量的関係を明らかにして濃縮係数を求めるためには、生物自身の各種内的条件が放射性核種濃縮に与える影響をも解明しておく必要がある。

外部条件の変化に基づく生理代謝の変動がもたらす効果などは環境要因の影響と判別し難い面もあるが、ここには主として放射性核種の消化管吸収を中心に、代謝経路、特に海洋における生物相互の補食習性、つまり食物連鎖を通しての放射性核種濃縮が放射能汚染経路として占める役割について検討した結果を収録した。

魚類によるCaやSrの取り込みがエラからの吸収を主体とすることが知られているが、エラはその構造上の理由から吸着性の著しい放射性核種に対しても高い濃縮係数を示すことが多い。またウロコやヒレ、貝類では殻などの場合にも表面吸着によると見られる濃縮が観察される。一旦吸着した放射性物質は非常に離脱し難い場合もあり、表面に吸着したのちに体内や他の臓器組織へ徐々に転移することも考えられるが、その程度については

不詳である。いずれにしても、魚や貝ではこれらの部位は通常は可食部と考えられないが、海藻類のように、たとえ単に表面だけに吸着したものであっても、そのまま、食用とされるために人体に摂取される可能性をもつ放射性核種があることは注意すべきであろう。一方、消化管吸収による放射性核種の取り込みは、魚が海水を呑むことによる直接の移行経路が考えられるが、やはり餌あるいはそれと共に摂取した有機、無機の懸濁物や底質などが取り込まれて消化吸収される過程での放射性核種の動向が最も重視されるべきものであろう。特に、多種の元素に対して著しく高い濃縮係数を示す植物プランクトンや動物プランクトン、あるいは藻類などを常食する生物に関しては、それらの食物を通して放射性核種がどの程度消化管から吸収され、体内に蓄積されつづけるかは、濃縮係数を考える上での重要点と考えられる。また、海水中に粒子状で存在したり、懸濁物や底質に吸着して存在する放射性核種を取り込むことによっても消化器管が著しく高い濃縮係数を示す場合のあることが、R I トレーサー実験においても、またフィールドサーベイにおいてもしばしば観察されているところであるが、たとえ吸収率は僅かであっても、生物体内での滞留時間が長ければ、その影響を無視し得ない場合もあろう。一方、シラス等の小魚については全魚体が食用に供されるのが通例であり、消化管内容物といえども生物と共に人体に摂取されることを考える必要がある。シラスは一般にカタクタイワシの稚魚の呼称であるが、同一魚種についても、その稚魚期と未成魚期、あるいは成魚との間では食性も異なり、まれ代謝活動も変化するものと思われる。このように考えると、放射性核種の濃縮に関与する生物学的要因は無数にあると考えなければならないが、ここではそれらの中でも最も影響の大きい要素は何であるか、を考えることに焦点を絞った。

## 2. 海産魚による放射性核種の消化管吸収

### (a) 緒言

海産魚が体内に放射性核種を取り込む主要な経路として、エラを通して直接海水から取り込む場合と、消化管を介して、餌や飲みこんだ海水から取り込む場合の2つの経路が考えられる。

CaやSrの魚体内への取り込みは、を通じてが主経路とされているが、餌となる生物が高濃度にCaやSrを濃縮しているような場合は、消化管からの取り込みも無視できないといえる。しかし、餌と一緒に消化管に入った放射性核種の全部が体内に取り込まれるわけではなく、核種、その化学形、餌の種類などによって体内に吸収される率が異なると考えられる。この実験は放射性核種で汚染した餌を海産魚に経口投与して、放射性核種の消化管からの吸収を調べたものである。

### (b) 実験方法

放射性核種を添加したり、または取り込ませた餌を、そのままの状態あるいはゼラチンカプセルに入れて、実験魚の胃の中に注入投与した。投与直後に実験魚のwhole bodyの放射能をARMACのwhole body counterで計測し、それを最初の投与量とした。投与後、実験魚を清浄海水中で飼育し、経時的に放射能計測を続けwhole bodyからの放射性核種の排出状況を追った。実験魚からの放射性核種の排出が緩慢になった時点まで消化・排泄終了とし、その時点のwhole body放射能の投与時whole body放射能に対する百分率を、消化管からの吸収率とした。すなわち、この実験では消化管内容物の排泄後に体内に残留した放射能を把握したものであるが、この際の魚体放射能には消化管壁などに吸着残存しているものも含まれるであろうし、また代謝の速い物質では吸収された後に排出された部分は見失っていることとなる。したがって、厳密な意味での吸収率とは言い難いものの、whole body計測でなく解剖して体内部位の放射能を計測した結果とほぼ一致しているので、吸収率の大約の傾向を本法で把握しうるものと思われる。

### (c) 結果および考察

汚染餌の消化管滞留時間は、餌の種類、魚種、魚の運動性、水温などによって変化すると思われるが、実験に用いたメジナ(Blackfish) *Girella punctata*

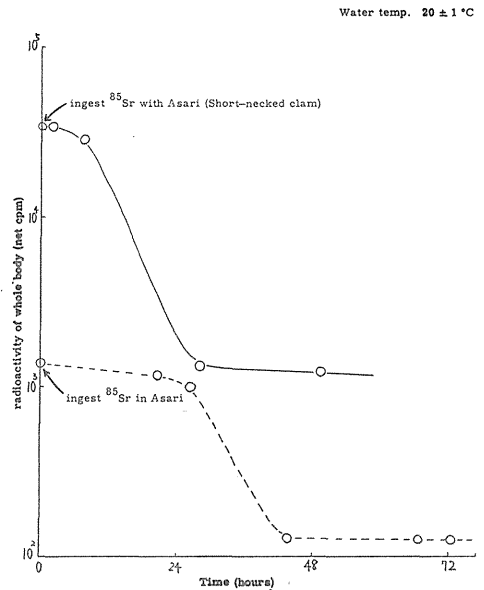


Fig. 81. Whole body retention of ingested  $^{85}\text{Sr}$  in Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

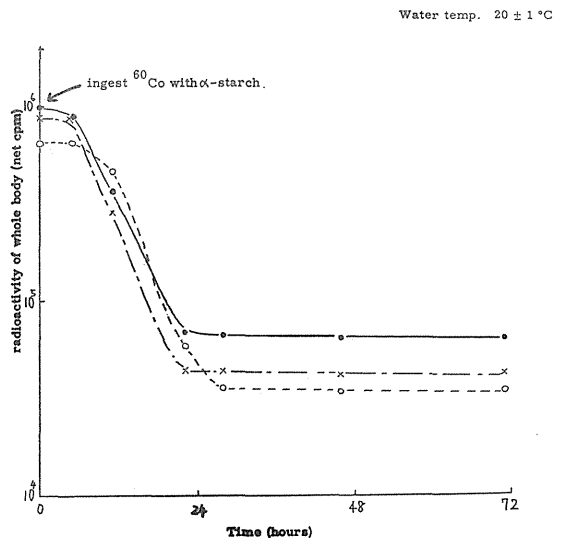


Fig. 82. Whole body retention of ingested  $^{60}\text{Co}$  in Makogarei (Flatfish) *Limanda yokohamae*

ctata 30~50g, マコガレイ (Flat fish) *Limanda yokohamae* 100~120gなどの小型魚では、餌は投与後24時間、遅くとも48時間以内で消化排泄されることが観察された (Fig.81, 82.)。

ヒラメ (Flounder) *Paralichthys olivaceus* 200~1300g, イナダ (Yellowtail) *Seriola quinqueradiata* 450~550gなどの中・大型の魚の場合でも、水温が20°C前後では48時間以内に消化排泄がなされる模様である。

7種の放射性核種の消化管投与時の体内吸収率は、Table 12. のように要約される。実験魚の種類や餌の種類の変動によって若干の変化が見られるが、この点については実験例が少ないだけに所定的に傾向を言い得ない。しかし、放射性核種別の吸収率の相違はかなり歴然としている。つまり20~80%と吸収率が高いものとして<sup>137</sup>Cs, <sup>65</sup>Zn とがあげられ、中程度のものに<sup>131</sup>I, <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mn が、そして吸収率の低いものに<sup>85</sup>Sr, <sup>144</sup>Ceがあげられる。

Table 12. Uptake of radionuclides through the digestive tract of marine fishes

Radionuclides (Chemical forms)	Fishes		Condition of ingested R.I.	Absorption rate (%)
	Species	Size		
<sup>137</sup> Cs (CsCl)	Hirame (Flounder) <i>Paralichthys olivaceus</i>	400 g	starch	58
	Majina (Blackfish) <i>Girella punctata</i>	5 - 10 g	crumble	50
<sup>65</sup> Zn (ZnCl <sub>2</sub> )	Chidai (Sea bream) <i>Eyynniss japonica</i>	70 - 100 g	starch	7 - 60
			combination feed	24 - 80
<sup>131</sup> I (NaI)	Mejina	40 g	starch	20
			Aosa (green alga)	4
<sup>54</sup> Mn (MnCl <sub>2</sub> )	Mejina	2 - 10 g	Artemia	5 - 20
<sup>60</sup> Co (CoCl <sub>2</sub> )	Makogarei (Flatfish) <i>Limanda yokohamae</i>	120 g	starch	4 - 10
	Numagarei (Flatfish) <i>Platichthys stellatus</i>	180 g	starch	9
	Ishigarei (Flatfish) <i>Kareius bicoloratus</i>	170 g	starch	16
	Mejina	2 - 10 g	Artemia	3 - 16
<sup>85</sup> Sr (SrCl <sub>2</sub> )	Hirame	320 g	starch	5
	Mejina	10 g	soft part of clam	6
	Wakana (Yellowtail) <i>Seriola quinqueradiata</i>	70 - 80 g	soft part of clam	7
<sup>144</sup> Ce (CeCl <sub>3</sub> )	Houbou (Red gurnard) <i>Chelidonichthys kumu</i>	10 g	young fish of Mejina	2

### 3. 食物連鎖を通しての放射性核種濃縮

#### (a) 緒言

海産魚による放射性核種の濃縮実験では、主にエラからの取り込みを見ているわけであるが、自然の生態系では

この他に食物連鎖を通しての取り込みが加わってくることになる。核種によっては、消化管吸収も無視しえないことが前項の実験でも認められたので、放射性核種で汚

染している餌を連続的に摂取した場合に、海産魚の濃縮係数がどのように影響を受けるかを検討した。

(b) 実験方法

核種としては、消化管吸収率の高かった $^{137}\text{Cs}$ を用いた。汚染餌は、鯉稚魚用クランブルを $^{137}\text{Cs}$ の高濃度溶液に浸し、乾燥して実験に供した。

試験区分は、Table 13. の通りである。1つの試験

区にメジナを4尾ずつ入れ、総魚体重の約1%にあたる0.25gの汚染または非汚染クランブルを2日置きに投与した。

水温 $20^{\circ}\text{C}$ で飼育を行ない、餌を投与後2日置いて消化排泄がなされてから全魚体の放射能を測定した。なお、汚染餌を与えるNo. 3, 4水槽は1週間毎に新しい海水と交換した。

Table 13. Condition of continuous feeding experiment with crumbles with and without  $^{137}\text{Cs}$  contamination

No. of expt.	Fish: Mejina (Blackfish) <i>Girella punctata</i>		Sea water		Crumble (solid feed)
	number	total weight	volume (l)	concentration of $^{137}\text{Cs}$	concentration of $^{137}\text{Cs}$
No. 1	4	24.1 g	15	2.67 $\mu\text{Ci}/\text{l}$	210 $\mu\text{Ci}/\text{Kg}$
No. 2	4	22.7	15	2.67	0
No. 3	4	25.9	15	0	210
No. 4	4	23.9	15	0	420

(c) 実験結果および考察

供試魚4尾の放射能の合計を各試験区について経日のに示すと、Fig. 83. のようになる。

汚染餌だけからRIを取り込んでいるNo. 3, No. 4試験区は、ほぼ直線的に増加し、No. 3試験区の2倍濃度RIで汚染している餌を食べているNo. 4試験区は、No. 3試験区の丁度2倍となった。海水と餌の両方からRIの寄与

を受けるNo. 1試験区の結果は、海水だけから寄与を受けるNo. 2と餌からのみ寄与を受けるNo. 3試験区の結果を加えたものと、良く一致した。

次にNo. 1とNo. 2試験区の個体の濃縮係数の増加を、Fig. 84. に示す。No. 2試験区の4尾の濃縮係数はよく一致したので、4尾の平均値として実線で示した。No. 1試験区では個体により汚染餌の摂餌量が異なるため、個々で濃

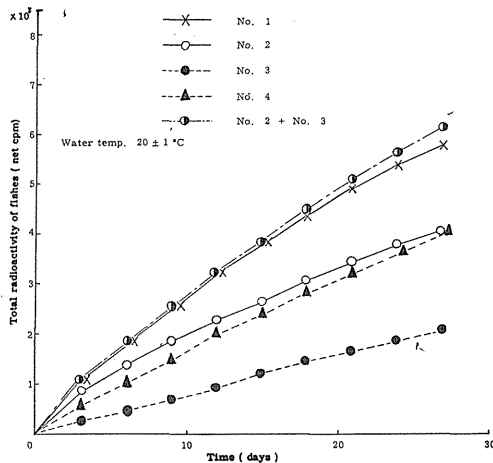


Fig. 83. Uptake of  $^{137}\text{Cs}$  by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

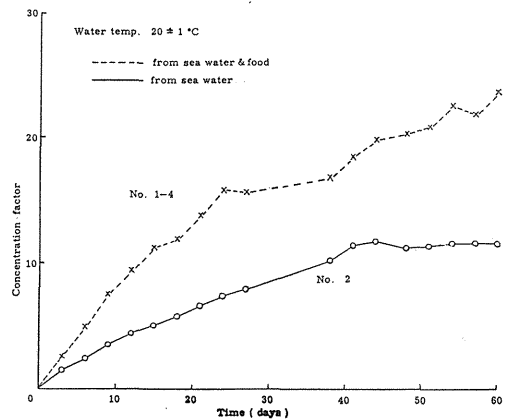


Fig. 84. Concentration of  $^{137}\text{Cs}$  by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

濃縮係数が違うが、その内で最も濃縮係数の高かった個体について破線で示した。No. 2 試験区は 40 日以後濃縮係数 1.2 程度で平衡になったが、汚染餌を投与した No. 1 試験区の個体には、No. 2 試験区の約 2 倍にあたる C.F. 2.3 を示すものも見られ、さらに増加する傾向が見られた。以上のように、汚染海水だけからの取り込みを見た場合には、エラからの R I 取り込み量と体からの R I 排出量が一致した時点で平衡時の濃縮係数が求められるが、自然の生態系では、さらに R I で汚染した餌などからの取り込みが加わるわけである。ここで 10g のメジナが<sup>137</sup>Cs で汚染した C.F. 100 の餌を、毎日体重の 5% 摂餌する場合の平衡時の濃縮係数を試算してみる。ただし、便宜上、メジナの成長による体重増加は無視するものとし、海水の<sup>137</sup>Cs 濃度を  $a \mu\text{Ci/ml}$  とする。N-2 の実験より、メジナの<sup>137</sup>Cs の消化管吸収率は約 50% であるので、この餌からの<sup>137</sup>Cs の取り込み量は、 $10 \times 0.05 \times 100 \times a \times 0.5 = 2.5 a \mu\text{Ci/day}$  となる。

この値を海水からの取り込み率に換算すると、 $2.5 a / 10 a' \text{day}^{-1} = 2.5 \text{day}^{-1}$  となる。一方 10g のメジナによる水温 20°C での<sup>137</sup>Cs 濃縮および排出実験より、Whole body の海水からの取り込み率、排出率はそれぞれ  $0.204 \text{day}^{-1}$ 、 $0.017 \text{day}^{-1}$  と求められたので、この値に上記の餌からの取り込み率  $2.5 \text{day}^{-1}$  を加えて濃縮係数を算出すると  $0.204 + 2.5 / 0.017 = 159$  となる。この値は、<sup>137</sup>Cs のエラだけからの取り込み実験から求められた濃縮係数 12 の約 10 倍以上になっている。

このように、消化管からよく吸収される核種は当然として、餌からの吸収率が低くても体内からの排出が遅い核種や、常時餌としている生物が高濃度に濃縮するような核種では、食物連鎖を通しての放射性核種の取り込みも、エラからの取り込みと同様、海産生物の濃縮係数を決定する上で重要な因子となることがわかった。

#### 4. 生物の代謝活動と放射性核種濃縮

##### (a) 結 言

生物体内に吸収された物質はその代謝経路をたどって、それぞれ特定の臓器や組織に蓄積され、生命現象に利用された余剰のものは体外排出される。海洋汚染で問題となる放射性核種の安定同位体が、すべて海産生物にとって生理代謝上必須の元素であるとは考えられない。しかしながら、現在の栄養学的知識では生物の生存のために全く関係が無いとみられる元素の放射性核種が高度に濃縮される例も見られるものの、一般的には代謝活動と密接な関係をもつ元素の生物濃縮が著しいことは、すでに環境要因の影響に関する研究においても一部触れた通りである。

海産生物には、1日に数回も分裂を繰返す植物プランクトンから、1年生の小動物、更には数年から数十年も生きる貝類や魚類もあり、その寿命はさまざまであるが、その生育段階や生理状態によって代謝活動も当然違うものと考えられる。したがって、代謝と関連の深い放射性核種濃縮について濃縮係数を決める場合、特に R I トレーサー実験によってそれを求める場合には、その生物がいかなる成長過程にあるか、実験期間中正常な代謝活動が保持されていたか等に充分配慮する必要がある。

ある生物種についてそのライフスパンを考え、各年代における物質代謝の速さと放射能汚染または除染の速さとの関係を把握することが、代謝活動と放射性核種濃縮

の関連を明確にする最も適切な方法であると考えられるが、実験上、特に実験生物の入手などの面で困難な点が多い。ここでは海産魚の 1 年魚と成魚との比較および投餌無投餌の場合の放射性核種の取り込み、あるいは排出状況の比較などによって代謝活動のもつ効果を検討した。

##### (b) 実験方法

1 年魚であるセイゴとその成魚であるスズキ (Sea bass) *Lateolabrax japonicus* (CUVIER) について、それぞれ<sup>85</sup>Sr の濃縮状況を観察し比較した。

一方、投餌無投餌の影響については、<sup>137</sup>Cs と<sup>85</sup>Sr をトレーサーとし 3~10g 程度のメジナ (Black fish) *Girella punctata* を供試魚として実験した。すなわち、あらかじめ R I を添加して、海水中の放射能濃度を安定させた循環濾過式の 50ℓ 水槽 2 基に供試魚をそれぞれ 30 尾ずつ投入し、一方の投餌群には総魚体重の 3% に相当する重量の鯉魚用クランプを 1 日数回に分けて与え、もう一方のグループは無投餌で共に 50 日から 100 日飼育した。この間、経日的に両群からそれぞれ 3 尾を取り上げて、肝臓、筋肉、エラなどの 4~7 部位に分け、各部位の放射能を測定して濃縮係数を算出した。放射性核種の排出状況についても、同様に投餌、無投餌の条件下で実験し観察を行なった。

(c) 結果および考察

スズキの1年魚と成魚による<sup>85</sup>Srの濃縮を、飼育20日目の各臓器の濃縮係数で比較した。Table 14.の通り、1年魚はいずれの部位についても、成魚にくらべ5倍ないし10倍程度大きい値を示している。これは骨形成など代謝活動の盛んな成長段階にある1年魚が、短時

Table 14. Concentration factors for <sup>85</sup>Sr by Suzuki (Sea bass) *Lateolabrax japonicus* (at 20th day after administration)

Organs	Fishes	Yearling	Adult
Liver		0.35	0.015
Digestive organ		0.75	—
Muscle		0.17	0.012
Bone		2.64	0.41
Gill		3.00	0.45
Skin & Scale		2.86	0.32

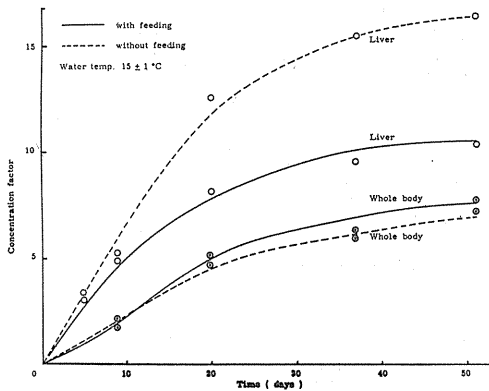


Fig. 85. Effect of feeding on concentration of <sup>137</sup>Cs by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

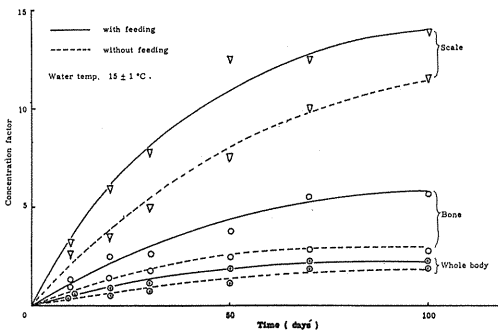


Fig. 86. Effect of feeding on concentration of <sup>85</sup>Sr by Mejina (Blackfish) *Girella punctata*

日の間に多くSrを取り込むのに対し、成魚では代謝による濃縮が極めて緩慢であることによる違いと考えられる。

また、RI取り込み実験中の投餌、無投餌の効果について観察した結果はFig. 85. 86. に示した。<sup>137</sup>Csでは、全身、筋肉、エラなどでわずかに投餌群の方が高い濃縮係数を示したが、肝臓では10日過ぎ前後から無投餌群の濃縮係数の方が高くなり、50日目には投餌群の値の1.7倍に達した。

<sup>85</sup>Srの場合は、ウロコ骨、エラ、ヒレなどの硬組織で投餌群の方が明らかに取り込みが著しく、実験開始後20日目にはこれらの部位は無投餌群のものにくらべ1.5~2倍の濃縮係数を示すのが観察された。一方、筋肉、肝臓などへはSrの取り込みが極めて僅かであり図示していないが、後者では<sup>137</sup>Csの場合と同様にむしろ無投餌群の方が2~4倍程度高い濃縮係数を示した。

<sup>137</sup>Csで汚染した魚を清浄海水(水温20°C)中に移し、最初の35日間は投餌し、以後無投餌で飼育した場合の放射能排出状況はFig. 87. に示した通りである。

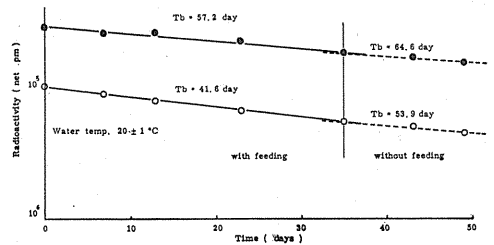


Fig. 87. Effect of feeding on loss of <sup>137</sup>Cs from whole body of Mejina (Blackfish)

whole bodyの放射能測定結果から生物学的半減期を計算すると、投餌中は57.2日のもが無投餌になると64.6日に、41.6日のもが53.9日に、2例のいずれにおいても投餌した方が若干排出が速くなることが観察された。

このように<sup>137</sup>Cs、<sup>85</sup>Srとも投餌群の方が、取り込み、排出のいずれも速やかになることは、摂餌により物質代謝が活発になるためと考えられ、スズキを用いた実験の結果と同様に、これらの核種の魚類による濃縮に代謝活動の寄与が大きいことを示している。一方、肝臓の濃縮係数が両核種とも無投餌の場合の方が高くなった原因としては、無投餌の状態では肝臓の蓄積栄養成分が消耗されていくために肝臓が極端に萎縮していき、その結果、単位重量当りの放射能が高くなって、見かけ上の大きい濃縮係数を与えるものと思われる。

## V 海水および海産生物中の安定元素の定量に関する研究

### 1. 研究の目的と概要

核燃料再処理および原子力発電施設などから、海洋環境に放出されることが予測される放射性核種の海産生物への濃縮係数を求める方法として、ラジオアイソトープを添加した海水中で生物を飼育して海水と生物との放射能の比から求める方法、核実験などに由来する放射性核種の海水と生物中の濃度の比から求める方法、および海水と生物中の安定元素の濃度を分析して求める方法の3法が従来から行なわれてきている。

特に、核爆発実験に由来する放射性 $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ の核種では、海水中の存在形態や濃度分布および種々の海産生物中の濃度について詳細な研究が数多く行なわれ、その結果、これらの核種は海水中で安定な存在形態であることがわかり、海産生物への移行についてはほぼ体系化される段階にいたっている。

一方、海水中で複雑の挙動を示すと考えられる $^{60}\text{Co}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ および $^{144}\text{Ce}$ などの核種についても、前記の3法により海産生物への濃縮係数が報告されているが、これらの報告では研究者や実験方法の相違によって、その数値にかなりの巾がみられる。このことは、海水中のこれらの放射性核種や安定元素が如何に複雑な挙動をとるかを示すものともいえよう。

そこで安定元素定量法を用いて、これらの放射性核種

の生物濃縮を推定する場合には、安定元素の存在状態や濃度変化を把握しつつ、海水中の全存在量を定量することがのぞまれる。特に、放射性廃液が放出される沿岸海域では、海水中の存在量の少ない元素は陸水の流入や海底堆積物の舞い上がり現象などの影響により、濃度や存在状態に著しい変化を受けることに留意する必要がある。ここでは、各種の原子力施設から放出されることが予測される放射性核種のうち、海水中の安定元素の存在量が至って少ないコバルト、亜鉛、セシウム、セリウムとユーロビウムの元素に着目して研究を行なった。

海水中のコバルト、亜鉛の存在状態については、 $^{60}\text{Co}$ と $^{65}\text{Zn}$ の放射性トレーサーを海水に添加して追跡した。また、セリウム、ユーロビウムの元素については、酸処理をした海水と未処理の海水とについて汚過を行ない、海水と汚過残渣中のこれらの元素の濃度から存在状態を検討した。

次に、海水、海産生物中のこれらの元素の定量法を検討し、放射化分析法によってその濃度を求め、この定量結果を用いて海産生物によるコバルト、亜鉛、セシウム、セリウムとユーロビウムの濃縮係数を算出した。また、この安定元素定量法による濃縮係数とRIトレーサー実験によって求められた濃縮係数との比較検討を行なった。

### 2. 微量安定元素の存在状態

#### (a) 緒言

各種の原子力施設から海洋環境に放射性核種が放出された場合、海産生物による放射性核種の取り込みは海水での存在状態の違いによつて取り込みの経路やその割合が異なることを前章で指摘してきた。したがって、海水と海産生物中の安定元素の濃度から濃縮係数を算出する方法においても、海水中の安定元素の存在状態を十分把握し、定量を行なう必要がある。そのため、コバルト、亜鉛の元素については海水中に $^{60}\text{Co}$ と $^{65}\text{Zn}$ のRIトレーサーを添加し、 $0.45\mu$ のフィルターで汚過した汚過海水と未汚過海水について溶存率を求めて存在状態を検

討した。

また、希土類元素であるセリウム、ユーロビウムの元素の存在状態については、 $0.22\mu$ のフィルターで汚過した海水と残渣、およびあらかじめ塩酸性にした海水を上記のフィルターで汚過した汚過海水と残渣のそれぞれについて、両元素を定量して検討を行なった。

#### (b) 実験方法

$5\ell$ の海水および $0.45\mu$ 汚過海水のそれぞれに、 $^{60}\text{Co}$ と $^{65}\text{Zn}$ のRIトレーサーを添加した後1週間 $20^\circ\text{C}$ で放置し、この海水の一部をとり $0.45\mu$ のフイ

ルターで濾過し、その濾過海水の放射能と未濾過海水の放射能を測定し溶存率を算出した。

また希土類元素のセリウム、ユーロビウム元素については、茨城県那珂湊市沿岸で20ℓの海水を採水後、直ちに0.22μmのフィルターで濾過し、海水と残渣とに分別した。同様に採水直後にHClガスを再蒸溜水に飽和させて調製した塩酸でpHを0.5以下にした海水を0.22μmのフィルターで濾過し、海水と残渣とを得た。このように調製した海水と残渣の各試料の放射化分析を行なった。

### (c) 結果および考察

海水中に添加した<sup>60</sup>Coと<sup>65</sup>Znのトレーサーは<sup>60</sup>Coでは未濾過海水で93%、0.45μm濾過海水では98%が溶存し、<sup>65</sup>Znでは未濾過海水、濾過海水とも97%の溶存することが認められた。したがって、CoとZnの両元素ともに0.45μm以下の粒子状かイオン状か、または化合物として海水中に溶存しているものと考えられる。

これに反して、希土類元素のCe, Euでは、両元ともに約80%が残渣部分に存在し、塩酸で処理した海水では逆に80~90%が海水部分に溶存することが放射化分析定量値によって示された(Table 15)。このことから、自然の海水中では0.22μm以下の粒子状かイオン状などの状態で溶存するものは、せいぜい10~20%に過ぎないと考えられる。しかも、その一部分は酸処理

Table 15. Concentration of Ce and Eu in sea water

Sample	Ce μg/l	Eu μg/l
0.22 μ filtration		
Sea water	0.007	0.0003
Residue	0.051	0.0013
Total	0.058	0.0016
HCl - 0.22 μ filtration		
Sea water	0.060	0.0021
Residue	0.016	0.0003
Total	0.076	0.0024

しても不溶性の存在状態をつづけるものである。

コバルト、亜鉛については、新たに加えられたRIを1週間程度の短期間のみ実験環境条件下の海水中で放置したのであるから、自然に存在するセリウム、ユーロビウムの定量によって求めた結果とは傾向が異なることが考えられる。しかもRIトレーサー実験は、海水中の懸濁物の性質と組成、さらに濃度によって、核種の海水中の溶存と不溶との比率に変化が生ずることは当然であろう。しかし、これらの実験結果の示すところによると、CoやZnは可溶性の状態では海水中に存在し易いが、セリウム、ユーロビウムは不溶性としての存在が多い傾向があると推定される。

## 3. 微量安定元素の定量法

### (a) 緒言

海水と海産生物中の微量元素の定量は分析機器の発達に伴い、著しくその精度をあげつつある。

しかし、海水試料ではその存在量が極く微量のため未だに多くの困難があり、一般には機器分析に先立って微量元素を溶媒抽出法、共沈法、イオン交換法などの前処理法によって濃縮補集する方法が採られている。

機器分析法としては、原子吸光分光分析法、光電光度法、放射化分析法などが主なものとしてあげられるが、本実験では原子炉を用いた放射化分析法を採用した。

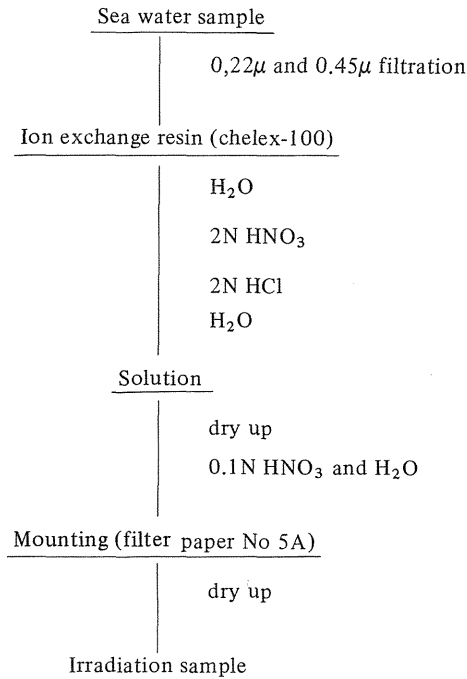
すなわち、海水中のコバルト、亜鉛についてはイオン交換法による前処理濃縮と放射化分析法を組合せ、海産生物中のコバルト、亜鉛およびセシウムについては生体試料を灰化し、その灰化試料について放射化分析法を用い、海水、海産生物中のこれらの元素の定量法を検討し、定量を進めた。

また海水、海産生物中のセリウム、ユーロビウムの元素については海水中のコバルト、亜鉛の場合と同様に、鉄共沈法-イオン交換法の前処理濃縮法と放射化分析法を組合せて定量法の検討と定量を進めた。

### (b) 実験方法

海水中のコバルト、亜鉛の前処理濃縮法をFig. 88に示した。この前処理濃縮法によるコバルト、亜鉛の補集率を検討するため、0.45μmのミリポア・フィルターで濾過した海水に放射性トレーサーとして<sup>60</sup>Coと<sup>65</sup>Znを別々に添加し、その海水の各1ℓをイオン交換樹脂Chelex-100を充填したカラム(充填径1cm、高さ15cm)中を流速300ml/時で通過させ、海水中に添加したトレーサーを樹脂に捕集した。次に再蒸溜水300mlでカラムを洗滌し、樹脂中に捕集された<sup>60</sup>Coと<sup>65</sup>Znは2Nの硝酸と2Nの塩酸の各20mlで溶離し、再蒸溜





Chemical recovery of <sup>60</sup>Co and <sup>65</sup>Zn > 95%

Fig. 88. Scheme for pre concentration procedure

水 5 0 ml でカラムを洗滌し、これらの溶液を合せて一定容量に濃縮し、海水と溶離液の放射能を測定して海水からのコバルト、亜鉛の捕集率を求めた。実際の分析試料では、さらにこの溶離液と洗滌液を蒸発濃縮し、その蒸発残渣を 0.1 N の硝酸数滴と少量の再蒸溜水で No. 5 A の濾紙上に完全に移し、捕集した。

この濾紙を赤外線ランプで乾燥し、硝酸とアルコールで洗滌したアルミ箔に包んで照射試料とした。

この照射試料を Fig. 89. に示した処理操作法 ( Post-irradiation procedure ) で処理し、海水中のコバルト、亜鉛を定量した。照射試料は原研の J R R - 3 を用い、熱中性子束  $2 \times 10^{12} \text{ n. cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ 、で 290 時間の照射を行なって放射化した。放射化した試料にコバルト、亜鉛の担体各々 10 mg を添加し、塩酸と硝酸で試料を熱分解し、蒸発濃縮し、次にポリエチレン試験管に移して蒸溜水で一定容量にして放射能測定試料とした。試料中の <sup>60</sup>Co と <sup>65</sup>Zn の放射能を Ge ( Li ) 半導体検出器を用いて  $\gamma$ -線スペクトロメトリーで測定し、海水中のコバルト、亜鉛を定量した。

一方、海産生物中のコバルト、亜鉛およびセシウムの定量に当っては、生体試料を洗滌して体表面の附着物を

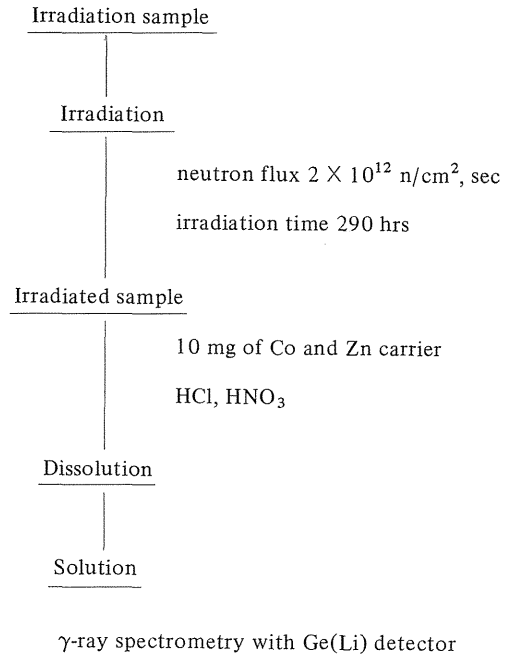


Fig. 89. Scheme for post-irradiation procedure

除去し、乾燥、灰化 ( 450 °C ) を常法に従って行ない、この灰分試料を Fig. 90. に示した分析法で定量した。

同図に示したように、灰分の 100 ~ 200  $\mu$  を海水試料の場合と同様の洗滌を行なったアルミ箔に包んで照射試料とした。試料の放射化は原研の J R R - 3 を用い、熱中性子束  $2 \times 10^{12} \text{ n. cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ 、で 75 時間と 290 時間の照射を行なって放射化した。放射化した試料は 1 ~ 3 カ月冷却後、塩酸と硝酸で酸処理溶解し、各元素の担体 10 mg を添加してこの溶液を濃縮し、蒸溜水で一定容量にし、この溶液を Ge ( Li ) 半導体検出器を用いて  $\gamma$ -線スペクトロメトリーを行ない、これらの元素を定量した。しかし、一部の試料では <sup>32</sup>P、<sup>46</sup>Sc などの妨害核種のため化学分離が必要となり、陰イオン交換樹脂 Dowex 1  $\times$  8 でコバルト、亜鉛、セシウムの簡単な化学分離を行ない、各フラクションの放射能を、Ge ( Li ) 半導体検出器を用いて  $\gamma$ -線スペクトロメトリーで各元素を定量した。なお、この操作の化学収率については測定試料の一部を採り、原子吸光度法を用いて担体量を定量し、収率補正を行なった。

海水、海産生物中のセリウム、ユーロビウム、の定量法の検討は Fig. 91. に示したように高純度鉄と希土類元素と同一挙動を示す <sup>88</sup>Y の R I トレーサーを用いて、鉄共沈による前処理濃縮法の捕集率を求めた。

分析試料として海水 10  $\ell$  と海水を濾過した残渣の灰

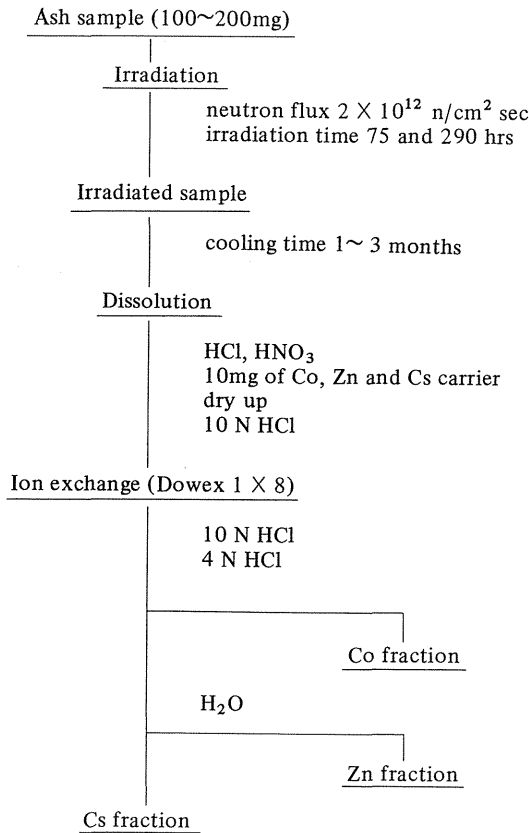


Fig. 90. Scheme for chemical procedure of marine organisms sample

分, 生体灰分の 0.5 g を試料とし, 両灰分試料はあらかじめ脱イオン水を再蒸留した蒸溜水に塩化水素ガスを飽和した塩化水素と硫酸数滴で熱溶解した。これらの溶液試料に捕集剤として鉄 (Johnson-Matthey 製・99.999 % 純度) を, 海水試料については 40 mg, 灰分試料については 2 mg を添加した。また, これに前処理濃縮操作における捕集率と放射化後の分離操作 (Post irradiation procedure) の全操作の化学収率を求めめるため, 無担体<sup>88</sup>Y を添加して, 塩化水素とどうようにして調製したアンモニア水で水酸化鉄共沈を 2 回くり返して試料中の両元素を捕集した。この水酸化鉄沈殿中には海水, 海産生物中のウランが共沈し, ウランを含む試料を原子炉で放射化した場合, ウランの核分裂生成核種として<sup>141</sup>Ce が生成し, <sup>140</sup>Ce (n, γ)<sup>141</sup>Ce の反応を利用したセリウムの定量結果に変動を与える。したがって, ウランの核分裂生成による<sup>141</sup>Ce の寄与を除くため, この水酸化鉄を前述の塩化水素水で溶解し, Dowex 1 × 8 の陰イオン交換樹脂を用いて試料中の

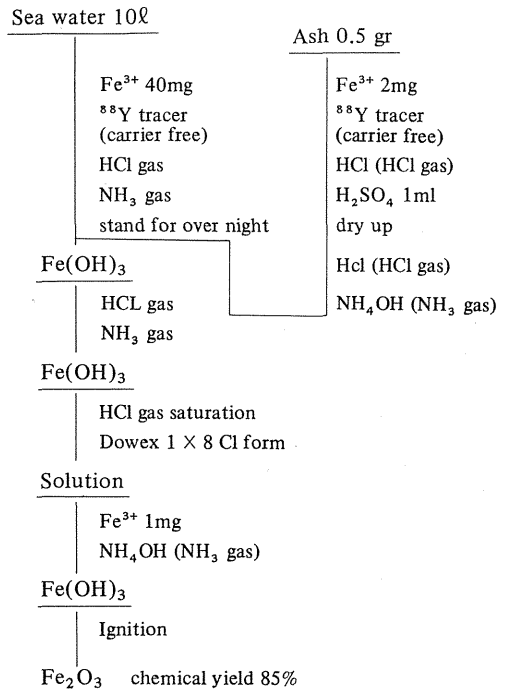


Fig. 91. Scheme for pre-irradiation procedure

ウランを除去した。この通過液に再び鉄 2 mg を添加して, アンモニア水を用いてセリウム, ユーロピウムを水酸化鉄で捕集し, その水酸化物中の<sup>88</sup>Y の放射能と添加した放射能を比較して捕集率を求めた。次に, この水酸化物を濾過し, 乾燥して, 洗滌したアルミ箔に包み, 濾紙を炭化して照射試料とした。この照射試料は原研の J R R - 2 を用いて, 熱中性束  $2 \times 10^{13}$  n · cm<sup>-2</sup> · sec<sup>-1</sup> で 290 時間の照射を行なった。放射化した試料は Fig. 92 に示すように, 担体としてランタン 10 mg と溶液保持担体としてナトリウム, バリウム, コバルトと亜鉛を添加し, 塩酸, 硝酸で加熱溶解した。この溶液にアンモニア水を加え, 水酸化物一弗化物の生成を行ない, 次に水酸化物一蔞酸塩の生成をくり返して精製し, この蔞酸塩の沈殿を塩酸で溶し, 一定容量にして放射能測定試料とした。この試料中の<sup>141</sup>Ce, <sup>152</sup>Eu を Ge (Li) 半導体検出器を用いて γ 線スペクトロメトリーで測定し, 両元素を定量した。

(c) 結果および考察

海水中的コバルト, 亜鉛の両元素の前処理濃縮法における捕集率は 95 % 以上を示し, 定量的に捕集されることが確かめられた。また海水中的コバルト, 亜鉛は, V-2 で述べたように, 両元素とも 93 % 以上 0.45 μ 以下の

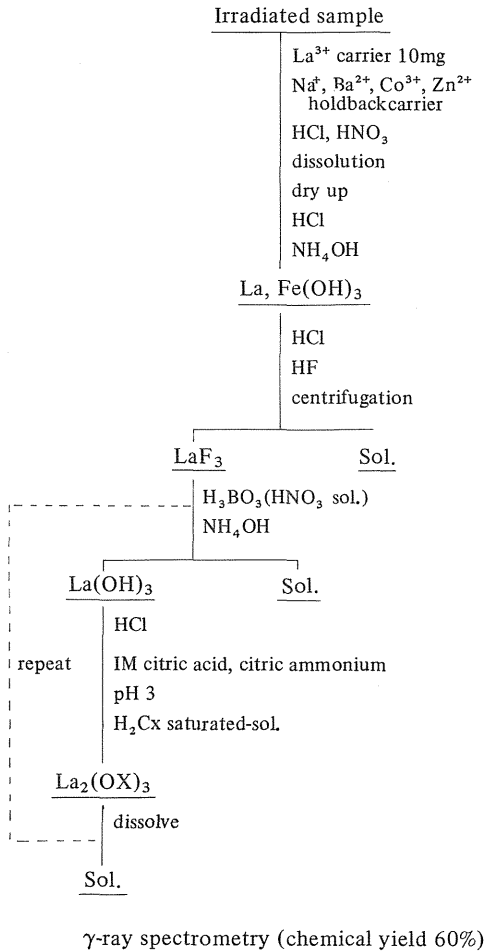


Fig. 92. Scheme for post-irradiation procedure

溶存状態で存在することが確められている。したがって、採取した海水を  $0.22 \mu$  と  $0.45 \mu$  のフィルターを用いて濾過し、その濾過海水の  $1 \ell$  を用いて、前述の前処理濃縮と放射化分析法で両元素を定量した結果、試水  $1 \ell$  を用いて定量できることが確められた。

海産生物については、その灰分  $100 \sim 200 \text{mg}$  程度の試料でコバルト、亜鉛、セシウムが充分定量できることがわかった。この全分析操作の担体の化学収率は大部分の試料で  $80\%$  を示した。海水と海産生物中のこれらの元素の分析結果を Table 16. に示した。

海水、海産生物中のセリウム、ユーロビウムの前処理濃縮法における捕集率は約  $85\%$  を示し、またこの前処理濃縮法と放射化後の分離精製操作との全操作の化学収率は  $60\%$  以上であった。海水中のセリウム、ユーロビウムの分析結果を Table 15. に、海産生物中の両元素の分析結果を Table 17. にそれぞれ示した。

Table 16. Concentration and Concentration factor of Co, Zn and Cs in marine organisms

Sample	Organ	Concentration (g/l, g/kg fresh)			Concentration factor		
		Co	Zn	Cs	Co	Zn	Cs
Sea water	0.22 $\mu$ filtration	0.14	13.8				
	0.45 $\mu$ filtration	0.14	14.3	0.3*			
Hirame (Flounder) <i>Paralichthys olivaceus</i>	Muscle	11	620		80	40	
	Liver	118	15900		120	1110	
	Blood	30	810		210	60	
Inada (Yellowtail) <i>Seriola quinqueradiata</i>	Blood	30	5150		210	370	
Chidai (Crimson sea bream) <i>Euynnis japonica</i>	Whole body	5.5	6590	16	40	460	50
Bora (Gray mullet) <i>Mugil cephalus</i>	Whole body	98	10400		700	730	
Hamaguri (Clam) <i>Meretrix lusoria</i>	Soft part	86	3010		610	210	
Awabi (Ear shell) <i>Haliotis discus</i>	Muscle	86	5650	6.3	280	400	20
	Viscera	780	32400	4.2	5570	2270	10
Hijiki <i>Hijikia fusiforme</i>	Whole body	15	1000	3.5	110	70	10
Hondawara (Sargassum) <i>Sargassum fulvellum</i>	Whole body	90	3940	6.0	640	280	20
Iwanori (Asakusa laver) <i>Porphyra sp.</i>	Whole body	20	4030		140	280	
Wakame (Wakame seaweed) <i>Undaria pinnatifida</i>	Whole body	12	7380	2.9	90	520	10
Aosa (Sea lettuce) <i>Ulva pertusa</i>	Whole body	105	4010	2.8	750	280	9

\* Value derived from "Handbook of Geochemistry, p. 309 (1969) by Turekian, K.K."

Table 17. Concentration and Concentration factor of Ce and Eu in marine organisms

Sample	Organ	Concentration ( $\mu\text{g}/\text{l}$ , $\mu\text{g}/\text{kg}$ fresh)		Concentration factor	
		Ce	Eu	Ce	Eu
Sea water	Total	0.076	0.0024		
Hirame (Flounder) <i>Paralichthys olivaceus</i>	Muscle	1.38	0.04	17	17
Inada (Yellowtail) <i>Seiola quinquerediata</i>	Muscle	2.38	0.14	31	58
Sirasu (Young anchovy) <i>Engraulis japonica</i>	Whole body	7.34	0.22	97	92
Hamaguri (Clam) <i>Meretrix lusoria</i>	Soft part	39.3	2.06	520	860
Aosa (Sea lettuce) <i>Ulva pertusa</i>	Whole body	39.1	0.77	510	320
Hijiki <i>Hijikia fusiforme</i>	Whole body	19.2	0.24	250	100
Hondawara (Sargassum) <i>Sargassum fulvellum</i>	Whole body	22.3	0.54	290	230
Wakame (Wakame seaweed) <i>Undaria pinnatifida</i>	Whole body	3.7	0.09	48	38

#### 4. 安定元素定量法による濃縮係数の算出とその評価

##### (a) 緒言

放射性物質の海産生物による濃縮係数を安定元素定量法を用いて算出するにあたり、海水中の安定元素の存在状態および定量法についてV-2, V-3で検討した。その結果、海水中で存在量が少なく、かつその挙動が複雑であるコバルト、亜鉛、セシウム、セリウムとユーロピウムの元素について定量的な結果が得られた。

そこで再処理施設、大型発電炉の建設が進められている茨城県東海村に隣接する那珂湊市の海岸で採集した海水、海産生物について、これらの元素を定量し、濃縮係数を算出して、RITレーサー法によって得られた結果と比較検討を行なった。

##### (b) 算出方法

海産生物によるコバルト、亜鉛の濃縮係数の算出に当っては、 $0.45\mu$ のフィルターでろ過した海水中の濃度を用いて濃縮係数を算出し、セシウムについてはTurekian, K.K. によって報告された Handbook of Geochemistry の濃度を用いて行なった。

セリウム、ユーロピウムの濃縮係数では、Table 15 に示した海水中の全量の値を用いて算出した。得られた

濃縮係数はコバルト、亜鉛、セシウムについてはTable 16. に、セリウム、ユーロピウムの元素については Table 17. にそれぞれ示した。

##### (c) 結果および考察

コバルト、亜鉛の両元素は魚では肝臓、貝類でも肝臓を含む内臓に高い濃縮がみられ、生物体内によく取り込まれる。ヒラメの筋肉では両元素とも低い濃縮係数を示し、亜鉛については、筋肉と肝臓では前者は後者より2桁低く、また、貝類においても同様な傾向がみられ、このように臓器において濃縮、蓄積が著しいことが示された。

また、海藻ではこれらの元素を100倍から700倍程度濃縮することが示された。これに反してセシウムでは一般的に濃縮は小さく、魚のボラ、海藻のアオサを除くとその濃縮係数は10~40となり、生物間の違いによる取り込みの差が少ないことを示している。このことはセシウムが海水中でイオンとして安定な存在状態を示し、また生理代謝が速く、生物間の濃縮レベルが比較的一定しているため食物による寄与の少ない元素と推定される。

海水、海産生物中のセリウム、ユーロピウムの濃度と濃縮係数はTable 15 に示したように、沿岸海水では両

元素とも大部分が粒子状で存在するため、濃縮係数の算出にあたって海水中の溶存量のみを用いるか、全存在量を探るかによって濃縮係数の値は約10倍の開きが生ずる。

海産生物によるセリウム、ユーロビウムの濃縮係数は魚では両元素ともコバルト、亜鉛の場合と同様に筋肉で濃縮は小さい。

セリウムについて、シラスでは溶存状態で存在するもののみが取り込みに関与すると考えると、濃縮係数は1,000となり、大きな係数が与えられるが、海水中の安定セリウムの全量を考えたときには、その濃縮係数は100となる。また、ハマグリ濃縮係数はセリウムが、520の大きい値を示した。

藻類では、ワカメの40~50を除き、100~500の濃縮係数を示し、同一地点で採集したものでも種類による相違が認められる。このことは藻類の葉面積、生理代謝、成長段階や元素の存在状態に依存していると考えられる。

安定元素定量法によって得られた濃縮係数とR I トレーサー法による結果と比較すると、コバルト、亜鉛については、魚貝類で前者はほぼ1桁大きい。特に筋肉ではその差が大きい。それは代謝の遅い部位では、トレーサー実験が平衡状態まで見きわめていないことが大きく影響したと考えられる。また、R I トレーサーと安定同位体の化学形態の相違は生理代謝上の差をもたらすだけでなく、食物連鎖の寄与にも影響をおよぼすものと考えられる。

一方、藻類のヒジキについてコバルトの濃縮係数を比較すると、魚貝とは逆にR I トレーサー法の結果が大きい。

このことは、R I トレーサー法で用いたコバルトの化学形態が海水中の安定コバルトの存在状態よりも藻類への親和性が大きいためと考えられる。

また、シラスにおけるセリウムの濃縮係数はR I トレーサー法で10~1,000の値を示し、安定元素安定量法では先に述べたように100および1,000の値を示し、安定元素安定量法による濃縮係数が大きくなる傾向を示している。

#### (付記)

安定元素定量法で放射性核種の海産生物への濃縮係数を求める場合、海水中に存在する安定元素がいかなる存在状態を示しているか、また、海水中の微量安定元素の

存在量は季節変動や陸水の流入によって変化することが報告されているので、これらのことについても、さらに詳細に調査する必要があると考えられる。

また、安定元素定量法による濃縮係数がR I トレーサー法による結果により大きくなる傾向については、生物の成長段階による違いや、食物連鎖の影響が考えられるのでさらにこの点について、詳細の検討を行なう予定である。

#### References

- 1) Schutz D.F. and Turekian K.K.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **29**, 259 (1965)
- 2) Schutz D.F. and Turekian K.K.: *J. Geophys. Res.*, **70**, 5119 (1965)
- 3) Robertson D.E. et al: BNWL-SA 1776 Res. Battelle Memorial Inst. Pacific Northwest Lab. Richland Washington (1968)
- 4) Robertson D.E.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **34**, 553 (1970)
- 5) Fukai R. et al: *J. Oceanog. Soc. Japan*, **29**, 44 (1973)
- 6) Goldberg D.E. et al: *J. Geophys. Res.*, **68**, 4209 (1968)
- 7) HOGdahl O.T. et al: *Adv. Chem. Ser.*, **73**, 308 (1963)
- 8) Shigematsu T. et al: *Bull. Inst. Chem. Res., Kyoto Univ.*; 45 (1967)
- 9) Nagatsuka S. et al: *Radioisotope*, **20**, 17 (1971)
- 10) Rice T.R. and Willis V.M.: *Limnol. and Oceanogr.*, **4**, 277 (1959)
- 11) Chapman W.H. et al' UCRL-50564 (Univ. of California) (1968)
- 12) Nelson J.L. et al: IAEA 139 (1966)
- 13) Lowman F.G. et al: *Radioactivity in The Marine Environment* 161 N.A.S., (1971)
- 14) Nagaya Y. and Saiki M.: *J. Radiat. Res.*, **8** 37 (1967)
- 15) Nagaya Y. and Nakamura K.: *J. Radiat. Res.*, **11**, 32 (1970)
- 16) , 234, (1973)
- 17) Riley J.P. and Taylor D.: *Anal. Chem. Acta*, **40**, 479 (1968)
- 18)

## VI 水産食品の消費実態調査

### (1) 実態調査の目的

低レベル放射性廃液の海洋放出は、それに伴う地域住民の放射線被曝量が、将来にわたって十分に安全であろうという見通しの上で実施されるべきものである。被曝線量の評価法には、maximum individual dose, (多くの場合個人のMaximum Doseをつかむことが困難なので、Critical groupの線量をもってMaximum individual doseとすることが多い)、Population dose, Dose commitmentの3つがあるが、いずれの場合も、Critical food 取量の調査が、線量計算の基礎になっている。critical group およびcritical foodの抽出は、生物による放射性核種の濃縮度と、その消費量に関する知見を得て、はじめて可能になる。この実態調査は、核燃料再処理施設からの低レベル放射性廃液の海洋放出を予想し、critical food とcritical groupの抽出と、被曝線量の計算に必要な情報を得ることを目的とし、茨城県沿岸住民を対象として実施されたものである。

### (2) 実態調査実施の経緯

本実態調査は、海放特委生物分科会の活動の一環として、生物分科会委員の審議を経て、放医研が担当したものである。実態調査は、昭和44年度に開始され、昭和46年度に、海放特委生物分科会の活動としての一応の終了をみた。その後、原子力安全研究協会、障害防止研究部会の「放射能クリティカル経路調査グループ」の活動として、現在も引き続き放医研の研究者によって調査を実施中である。昭和44年度においては、調査用紙の作製と調査方法の検討、並びに調査結果の解析法に関する研究を目的とし、千葉県和田町、茨城県那珂湊の2地区についてモデル調査を実施した。当初調査用紙の作成に関しては、農林省茨城統計調査事務所の岡田源氏、国立栄養研究所の佐々木理喜子氏の協力を得、また東海区水産研究所の谷井、坪井両氏の調査資料を参考にした。昭和45、46年度においては、調査用紙の内容の改訂を行なうと共に、那珂湊市、東海村および日立市久慈町において実態調査を実施した。昭和47年度は、大洗地区を

中心にした調査を実施し、現在も同地区において調査を継続中である。

### (3) 調査内容、方法および対象

本調査内容は、①飲料水の調査 ②献立調査 ③水産物の消費状況に関する調査より成り立つ。献立調査は、調査対象地区における食品消費の実態を総合的に把握し、特に全食品中に占める水産食品の位置を知る目的をもって設けられたものである。

低レベル放射性廃液の放出に際しては、海産物が問題となる食品となることが予想されたので、海産物の消費に関する調査が大部分を占めている。海産物の消費に関する調査に関しては、消費された海産物の種類と量の調査のみならず、その産地、入手法、採取時期、料理法などについても調査を行なった。また、丸ごと食べる海産物については、別項をもうけて特に詳細な調査を行なった。調査方法としては、戸別訪問と日誌方式の両者を併用した。即ち栄養士、調理士などを中心とする1~2名のグループが、調査対象家庭を訪問し、調査員が解答者と対話しながら調査員自身が記入する方式と解答者に一週間分の水産食品の消費状況について日誌をつけてもらう方式の両者を併用した。

現在までの調査対象地区と対象家庭は、次の通りである。

千葉県和田町	：漁業家庭
日立市久慈町	：漁業家庭
東海村	：非漁業家庭（原研など原子力施設従業員家庭と地元住民家庭—兼業農家）
那珂湊	：漁業家庭および非漁業家庭
大洗	：漁業家庭および非漁業家庭

調査は春、夏、秋、冬の四季にわたり年4回実施された。対象家庭は、各グループについて一季20世帯を目途とした。

### (4) 調査結果の概要

調査開始時期の関係から、大洗の調査は、一部48年にもち越された。そこで本報告では、47年度までに調査が完了した、久慈、東海および那珂湊地区における成

果を中心にその概略を述べる。

① 水産食品由来の蛋白摂取量について：

昭和42年度厚生省国民栄養調査結果によれば、総蛋白摂取量の国民平均は76.6gであった。本調査結果によれば、昭和46年冬久慈浜の漁業世帯の調査で得られた95gを除いては、62~78gであって、全国平均値と同程度かやや低い傾向が認められた。しかし、水産食品に由来する動物性蛋白摂取量の総蛋白摂取量に対する割合は、全国平均値23.8%より一般に高く、久慈浜漁業世帯では49%を示した。この事実は、沿岸地域住民の水産食品への依存度が高いことを示している。但し、沿岸地域住民でも、都会から転居して来た世帯が多く含まれていると見られる日本原子力研究所職員世帯の場合は、水産食品への依存度が低く、従って問題となる集団(critical group)は、地元の漁業専従者であることが明らかにされた。また、久慈町の漁業世帯の平均水産物消費量が、那珂湊のそれより高いことから、この調査の範囲内では、久慈町の漁業世帯が問題となる集団(critical group)になりうるということが明らかにされた。

② 丸ごと食べられる海産物の消費について：

丸ごと食べられる海産物としては、シラス、イワシ、小エビなどがあり、個人の年間最高消費量は、それぞれ5kg、10kgおよび5.6kgであった。問題となる器官(critical organ)が骨であるような核種からの内部被曝に関しては、従来critical foodと考えられてきたシラス以外に、イワシ、小エビなどについても考慮する必要があるのではないかと考えられる。

③ 海産物の1人1日当りの摂取量について：

Table 18. およびTable 19. に、問題となる集団、即ち、critical groupと目される、日立市久慈浜および那珂湊漁業世帯の1人1日当り海産物摂取量を示した。

Table 18. およびTable 19. に示した摂取量は、四季毎の1週間分の海産物摂取量から算出したものであって、いわばある1年間について、1人1日当り平均海産物摂取量を、その個人の28日間の海産物摂取状況調査から推測したものである。久慈浜漁業世帯では、四季を通じ、大体平均した摂取状況を示し、消費量に季節的変動は認められない。久慈町および那珂湊漁業世帯の1

Table 18. Seasonal Variation of Marine Food Consumption by Fisherman's Families in Kuji (g/d/p)

No. of Families	Spring			Summer			Autumn			Winter		
	Fish*	Shell Fish*	Algae**	Fish*	Shell Fish*	Algae**	Fish*	Shell Fish*	Algae**	Fish*	Shell Fish*	Algae**
1	116	0	0	200	24	3	664	88	1	148	4	4
2	128	0	5	204	48	6	156	5	0	107	0	4
3	165	24	3	37	2	1	295	0	1	502	0	2
4	183	13	8	219	0	2	120	0	1	21	0	0
5	251	13	2	170	7	4	167	22	17	234	0	6
6	53	11	6	239	0	3	163	0	2	112	0	1
7	242	0	3	61	0	2	150	5	0	88	5	3
8	218	0	8	144	0	0	165	5	1	181	0	2
9	166	0	3	343	1	0	85	4	6	189	0	8
10	359	0	5	230	0	5	135	0	1	109	0	0
11				91	26	5				159	16	0
12				404	0	4				132	0	0
13				55	2	3				331	0	0
14				206	0	0				116	5	7
15										227	57	15
16												
Average	188	6	5	186	8	3	210	13	3	177	6	4

\* Fresh weight of edible part

\*\* Dry weight



Table 19. Seasonal Variation of Marine Food Consumption by Fisherman's Families in Nakaminato (g/d/p)

No. of Families	Spring			Summer			Autumn			Winter		
	Fish*	Shell Fish*	Algae**	Fish*	Shell Fish*	Algae**	Fish*	Shell Fish*	Algae**	Fish*	Shell Fish*	Algae**
1	102	1	5	124	0	2	175	24	3	141	5	4
2	131	4	1	212	31	16	156	2	21	167	0	3
3	57	0	1	156	6	1	96	0	7	68	0	1
4	97	3	2	143	44	7	195	0	7	139	0	3
5	49	1	5	108	17	2	189	10	3	517	3	11
6	58	18	1	175	14	2	245	0	4	124	12	2
7	52	5	3	115	0	4	186	11	14	198	0	2
8	84	3	3	72	1	4	140	0	1	69	4	2
9	137	0	6	57	13	5	127	0	7	40	0	0
10	59	0	3	148	3	1				164	0	2
11	126	7	5	189	38	2				59	4	8
12				212	13	14				143	0	0
13				157	61	0				58	0	4
14				229	10	6				153	4	3
15				87	5	5				93	0	6
16				109	4	2				48	2	3
17				19	0	1				91	0	0
18				34	6	4				228	0	5
19				263	4	14				124	9	7
20				55	2	3				185	3	7
Average	87	4	3	133	14	5	168	5	7	140	2	4

\* Fresh weight of edible part.

\*\* Dry weight.

人1日当りの平均海産物摂取量を、1日分の献立調査の結果から計算してみると、それぞれ次のようになる。

魚類について：190gおよび132g生

貝類について：8gおよび6g生

海藻について：4g乾物および5g乾物

この結果は、消費日誌から計算した値と比較して、大きな相違がなく、従って本調査の範囲内では比較的精度の高い値であるといえる。

Table 20からTable 23にかけて、またTable 24からTable 27にかけて久慈町漁業世帯および那珂湊漁業世帯の海産物種別・季節別消費頻度と摂取率を示した。

表から明らかであるように、消費頻度が高い海産物には季節的な特徴が認められ、たとえばサンマは秋に、ア

シロウは冬に、シラス、シラウオのたぐいは漁期外の夏から秋にかけて比較的高い消費が観察されている。注目すべきことは、底棲のカレイ類やワカメの消費頻度、消費率が、年間を通じて比較的高いことである。また、本報告の範囲には含めなかったけれども、大洗の漁業専従世帯のシラスの消費頻度、消費率がきわめて高かった（平均30g — 調査対象となった全漁業専従者の平均値、平均50g — シラスを好んで摂取する漁業専従者の平均値）ことを付記しておきたい。

#### ④ 特殊海産物の消費について

那珂湊漁業専従世帯において、フクロフノリ（那珂湊ではヒノリと呼んでいる）の消費が認められた。しかし、年間を通じての消費量は少なかった。

Table 20. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods by Fisherman's Families in Kuji in Spring of 1972

Japanese name	Name of marine of organisms		Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
	English name	Scientific name		
Katsuo	Skipjack	<i>Katsuwonus pelamys</i> (LINNÉ)	13	145
Maguro	Tuna	<i>Thunnus thynnus</i> (LINNÉ)	9	79
Aji	Jack mackerel	<i>Carangidae</i>	9	79
Kichiji	Rockfish	<i>Sebastes macrochir</i> (GÜNTHER)	9	114
Shirasu	Anchovy	<i>Engraulis japonica</i>	3	38
Hirame	Flounder	<i>Paralichthys olivaceus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	1	138
Yanagimushigarei	Flatfish	<i>Tanakius kitaharai</i> (JORDAN & STARKS)	17	131
Karei	Flatfishes	<i>Pleuronectidae</i>	11	56
Kisu	Sand borer	<i>Sillago sihama</i> (FORSKAL)	11	78
Shirauo	Whitebait	<i>Salanx microdon</i> BLEEKER	3	79
Tako	Octopus	<i>Octopus vulgaris</i> (LAMARCK)	14	152
Ika	Squid	<i>Sepiidae</i>	13	101
Kani	Crab	<i>Brachyura</i>	3	139
Ebi	Prawn	<i>Macrura</i>	3	22
Bai	Welk	<i>Babylonia japonica</i>	3	123
Shijimi	Corb shell	<i>Corbicula japonica</i> (PRIME)	3	35
Hamaguri	Clam	<i>Meretrix meretrix lusoria</i> (GMELIN)	1	64
Asari	Short-neck clam	<i>Tapes (Amygdala) semidecussata</i> (REEVE)	1	50
Nori	Purple laver	<i>Porphyra tenera</i> KJELIM.	34	2
Wakame	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	33	8
Hijiki	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM.	9	15
Konbu	Tangle	<i>Laminariaceae</i>	3	5
Kamaboko	Boiled fish-paste		9	78
Satsuma-age	Fried fish balls		9	68
Chikuwa	A kind of fish paste		7	38
Gyoniku soseiji	Fish sausage		7	40

Table 21. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods by Fisherman's Families in Kuji in Summer of 1971

Japanese name	Name of marine organisms		Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
	English name	Scientific name		
Katsuo	Skipjack	<i>Katsuwonus pelamis</i> (LINNÉ)	39	157
Shirasu	Anchovy	<i>Engraulis japonica</i>	12	30
Kichiji	Rockfish	<i>Sebastes macrochir</i> (GÜNTHER)	11	156
Iwashi	Sardine	<i>Sardinops melanosticta</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	8	24
Aji	Jack mackerel	<i>Carangidae</i>	8	106
Hirame	Flounder	<i>Paralichthys olivaceus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	5	119
Shirauo	Whitebait	<i>Salanx microdon</i> BLEEKER	7	56
Fugu	Puffer	<i>Sphaeroides rubripes</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	5	81
Ishimochi	Croaker	<i>Argyrosomus argentatus</i> (HOULTUYN)	3	58
Karei	Flatfishes	<i>Pleuronectidae</i>	2	90
Ika	Squid	<i>Sepiidae</i>	7	131
Tako	Octopus	<i>Octopus vulgaris</i> (LAMARCK)	3	156
Ebi	Prawn	<i>Macrura</i>	10	53
Kani	Crab	<i>Brachyura</i>	3	133
Tarako	Pollack roe		2	90
Hamaguri	Clam	<i>Meretrix meretrix lusoria</i> (GMELIN)	6	30
Shijimi	Crob shell	<i>Corbicula japonica</i> (PRIME)	3	15
Asari	Short-neck clam	<i>Tapes (Amygdala) semidecussata</i> (REEVE)	1	50
Wakame	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	27	6
Nori	Purple laver	<i>Porphyra tenera</i> KJELIM	22	2
Konbu	Tangle	<i>Laminariaceae</i>	4	8
Hijiki	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM.	2	10
Kamaboko	Boiled fish-paste		8	83
Naruto	Mealstrom		2	37
Shiokara	Salted fish guts		2	10
Chikuwa	A kind of fish paste		1	30

Table 22. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods in Fisherman's Families in Kuji in Autumn of 1971

Name of marine organisms			Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
Japanese name	English name	Scientific name		
Ezoisoainame		<i>Lotella maximowicze</i> HERZENSTEIN	20	150
Iwashi	Sardine	<i>Sardinops melanosticta</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	20	89
Aomeeso		<i>Chlorophthalmus albatrossis</i> (JORDAN and SNYDER)	14	63
Sanma	Pacific saury	<i>Cololabis saira</i> (BREVOORT)	11	72
Shirasu	Anchovy	<i>Engraulis japonica</i>	7	32
Yanagimushigarei	Flatfish	<i>Tanakius kitaharai</i> JORDAN & STARKS	20	38
Tai	Sea-bream	<i>Sparidae</i>	9	101
Shirauo	Whitebait	<i>Salanx microdon</i> (BLEEKER)	7	57
Fugu	Puffer	<i>Sphaeroides rubripes</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	6	109
Karei	Flatfishes	<i>Pleuronectidae</i>	4	83
Tako	Octopus	<i>Octopus vulgaris</i> (LAMARCK)	19	93
Ika	Squid	<i>Sepiidae</i>	14	83
Ebi	Prawn	<i>Macrura</i>	7	56
Kani	Crab	<i>Brachyura</i>	3	74
Sujiko	Salmon roe		1	50
Shijimi	Corb shell	<i>Corbicula japnica</i> (PRIME)	6	23
Asari	Short-neck clam	<i>Tapes (Amygdala) semidecussata</i> (REEVE)	4	46
Hamaguri	Clam	<i>Meretrix meretrix lusoria</i> (GMELIN)	3	139
Awabi	Abalone	<i>Haliotis gigantea</i>	1	38
Nori	Purple laver	<i>Poephyra tenera</i> KJELIM	21	3
Wakame	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	14	8
Konbu	Tangle	<i>Laminariaceae</i>	3	13
Hijiki	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM	3	19
Chikuwa	A kind of fish paste		7	110
Kamaboko	Boiled fish-paste		6	80
Satsuma-age	Fried fish balls		4	1
Gyoniku soseiji	Fish sausage		1	43

Table 23. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods by Fisherman's Families in Kuji in Winter of 1971

Name of marine organisms			Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
Japanese name	English name	Scientific name		
Saba	Mackerel	<i>Scombridae</i>	17	77
Iwashi	Sardine	<i>Sardinops melanosticta</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	8	69
Maguro	Tuna	<i>Thunnus thynnus</i> (LINNÉ)	6	61
Sake	Salmon	<i>Oncorhynchus nerka</i> (WALBAUM)	5	108
Shirasu	Anchovy	<i>Engraulis japonica</i>	3	23
Hirame	Flounder	<i>Paralichthys olivaceus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	2	66
Karei	Flatfishes	<i>Pleuronectidae</i>	24	77
Kisu	Sand borer	<i>Sillago sihama</i> (FORSKAL)	6	68
Ankō	Goose fish	<i>Laphiomus setigerus</i> (VAHL)	6	341
Fugu	Puffer	<i>Sphaeroides rubripes</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	5	213
Ika	Squid	<i>Sepiidae</i>	18	128
Tako	Octopus	<i>Octopus vulgaris</i> (LAMARCK)	13	118
Ebi	Prawn	<i>Macrura</i>	8	56
Kani	Crab	<i>Brachyura</i>	1	32
Shijimi	Corb-shell	<i>Corbicula japonica</i> (PRIME)	9	36
Bai	Welk	<i>Babylonia japonica</i>	4	204
Hamaguri	Clam	<i>Meretrix meretrix lusoria</i> (GMELIN)	1	43
Kaki	Oyster	<i>Ostrea gigas</i> (THUNBERG)	1	20
Nori	Purple laver	<i>Porphyra tenera</i> KJELIM	33	2
Wakame	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	12	4
Hijiki	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM.	8	5
Aonori	Green laver	<i>Enteromorpha compressa</i> GREV.	6	4
Konbu	Tangle	<i>Laminariaceae</i>	4	13
Tengusa	Agar-agar	<i>Gelidiaceae</i>	1	19
Hanpen	A cake of pounded fish		4	47
Satsuma-age	Fried fish balls		4	106
Chikuwa	A kind of fish paste		3	97
Kamaboko	Boiled fish-paste		3	48

Table 24. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods by Fisherman's Families in Nakaminato in Spring of 1970

Name of marine organisms		Scientific name	Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
Japanese name	English name			
Katsuo	Skipjack	<i>Katsuwonus pelamis</i> (LINNE)	39	143
Shirasu	Anchovy	<i>Engraulis japonica</i>	12	30
Aji	Jack mackerel	<i>Carangidae</i>	9	57
Sake	Salmon	<i>Oncorhynchus nerka</i> (WALBAUM)	8	44
Kujime		<i>Agrammus agrammus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	4	37
Hirame	Flounder	<i>Paralichthys olivaceus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	9	109
Karei	Flatfishes	<i>Pleuronectidae</i>	6	72
Ishimochi	Croaker	<i>Argyrosomus argentatus</i> (HOULTUYN)	3	79
Kuroushinoshita	Tonguefish	<i>Rhinoplagusia japonica</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	3	44
Mebaru	Redfish	<i>Sebastes inermis</i> CUVIER	1	90
Ika	Squid	<i>Sepiidae</i>	1	80
Ebi	Prawn	<i>Macrura</i>	4	75
Shijimi	Corb shell	<i>Corbicula japonica</i> (PRIME)	8	20
Asari	Short-neck clam	<i>Tapes (Amygdala) semidecussata</i> (REEVE)	5	22
Kaki	Oyster	<i>Ostrea gigas</i> (THUNBERG)	1	100
Awabi	Abalone	<i>Haliotis gigantea</i> (GMELIN)	1	33
Nori	Purple laver	<i>Porphyra tenera</i> (KJELIM)	29	2
Wakame	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	35	11
Hijiki	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM.	4	15
Konbu	Tangle	<i>Laminariaceae</i>	4	13
Kamaboko	Boiled fish-paste		6	85
Chikuwa	A kind of fish paste		3	90
Gyoniku soseiji	Fish sausage		3	49
Satsuma-age	Fried fish balls		2	54

Table 25. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods by Fisherman's Families in Nakaminato in Summer of 1971

Name of marine organisms		Scientific name	Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
Japanese name	English name			
♂	Katsuo	<i>Katsuwonus pelamis</i> (LINNÉ)	21	130
♀	Shirasu	<i>Engraulis japonica</i>	16	14
	Sake	<i>Oncorhynchus nerka</i> (WALBAUM)	11	58
	Buri	<i>Seriola quinqueradiata</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	9	62
♀	Maguro	<i>Thunnus thynnus</i> (LINNÉ)	7	91
	Hirame	<i>Paralichthys olivaceus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	2	73
	Ishimochi	<i>Argyrosomus argentatus</i> (HOULTUYN)	12	47
	Kuroushinoshita	<i>Rhinoplagusia japonica</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	7	83
	Mebaru	<i>Sebastes inermis</i> CUVIER	6	98
	Karei	<i>Pleuronectidae</i>	3	49
	Ika	<i>Sepiidae</i>	8	153
	Tako	<i>Octopus vulgaris</i> (LAMARCK)	4	73
	Ebi	<i>Macrura</i>	11	48
	Kani	<i>Brachyura</i>	1	104
	Sujiko	Salmon roe	7	68
	Tarako	Pollack roe	3	16
	Shijimi	<i>Corbicula japonica</i> (PRIME)	12	17
	Awabi	<i>Haliotis gigantea</i> (GMELIN)	4	107
	Kaki	<i>Ostrea gigas</i> (THUNBERG)	4	65
	Asari	<i>Tapes (Amygdala) semidecussata</i> (REEVE)	2	23
	Hamaguri	<i>Meretrix meretrix lusoria</i> (GMELIN)	1	39
	Boushubora	<i>Charonia sauliae</i>	1	240
	Shiofuki	<i>Macra veneriformis</i>	1	36
	Nori	<i>Porphyra tenera</i> (KJELLM)	49	2
	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	34	10
	Konbu	<i>Laminariaceae</i>	1	2
	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM.	1	13
	Gyoniku soseiji	Fish sausage	8	49
	Kamaboko	Boiled fish-paste	5	52
	Katsuobushi	Dried bonito	3	9
	Tororo konbu	Scraped tangle	1	2

Table 26. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods by Fisherman's Families in Nakaminato in Autumn of 1970

Name of marine organisms		Scientific name	Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
Japanese name	English name			
Maguro	Tuna	<i>Thunnus thynnus</i> (LINNÉ)	22	82
Buri	Yellow tail	<i>Seriola quinqueradiata</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	21	77
Shiira	Dolphin	<i>Coryphaena hippura</i> (LINNAEUS)	13	96
Katsuo	Skipjack	<i>Katsuwonus pelamis</i> (LINNÉ)	13	77
Shirasu	Anchovy	<i>Engraulis japonica</i>	11	33
Ishimochi	Croaker	<i>Argyrosomus argentatus</i> (HOULTUYN)	19	73
Kuroushinoshita	Tonguefish	<i>Rhinoplagusia japonica</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	13	40
Kochi	Flathead	<i>Platycephalus indicus</i> (LINNÉ)	3	71
Hōbō	Curnart	<i>Chelidonichthys kumu</i> (LESSON & GARNOT)	2	55
Kawahagi	File fish	<i>Stephanolepis cirrhifer</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	2	60
Ika	Squid	<i>Sepiidae</i>	19	156
Tako	Octopus	<i>Octopus vulgaris</i> (LAMARK)	10	69
Ebi	Prawn	<i>Macrura</i>	3	60
Shijimi	Corb shell	<i>Corbicula japonica</i> (PRIME)	10	24
Kaki	Oyster	<i>Ostrea gigas</i> (THUNBERG)	3	54
Igai	Sea mussel	<i>Mytilus crassitesta</i> (LISCHKE)	3	25
Asari	Short-neck clam	<i>Tapes (Amygdala) semidecussata</i> (REEVE)	2	30
Nori	Purple laver	<i>Porphyra tenera</i> (KJELIM)	27	2
Ugo	Faloe ceylon moss	<i>Gracilaria verrucosa</i> (HUDSON) PAPENFUSS	2	15
Tengusa	Agar-agar	<i>Gelidiaceae</i>	2	7
Wakame	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	35	27
Hijiki	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM.	6	61
Konbu	Tangle	<i>Laminariaceae</i>	3	33
Gyoniku soseiji	Fish sausage		4	77
Chikuwa	A kind of fish paste		4	143
Satsuma-age	Fried fish balls		3	38
Kani kan	Tinned crab		1	73



Table 27. Consumption Frequency and Average Consumption Rate of Marine Foods by Fisherman's Families in Nakaminato in Winter of 1972

Name of marine organisms		Scientific name	Consumption frequency (%)	Average consumption rate (g/d/p)
Japanese name	English name			
Saba	Mackerel	<i>Scombridae</i>	9	207
Maguro	Tuna	<i>Thunnus thynnus</i> (LINNÉ)	9	93
Sake	Salmon	<i>Oncorhynchus nerka</i> (WALBAUM)	9	91
Iwashi	Sardine	<i>Sardinops melanosticta</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	6	57
Shirasu	Anchovy	<i>Engraulis japonica</i>	4	9
Hirame	Flounder	<i>Paralichthys olivaceus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	4	92
Karei	Flatfishes	<i>Pleuronectidae</i>	8	121
Ankō	Goosefish	<i>Laphiomus setigerus</i> (VAHL)	5	83
Yanagimushigarei	Flatfish	<i>Tanakius kitaharai</i> JORDAN & STARKS	4	113
Konoshiro	Gizzard shad	<i>Konosirus punctatus</i> (TEMMINCK & SCHLEGEL)	3	38
Ika	Squid	<i>Sepiidae</i>	19	86
Tako	Octopus	<i>Octopus vulgaris</i>	13	170
Ebi	Prawn	<i>Macrura</i>	5	33
Sujiko	Salmon roe		7	23
Shijimi	Corb shell	<i>Corbicula japonica</i> (PRIME)	6	15
Kaki	Oyster	<i>Ostrea gigas</i> (THUNBERG)	1	31
Asari	Short-neck clam	<i>Tapes (Amygdala) semidecussata</i> (REEVE)	1	20
Nori	Purple laver	<i>Porphyra tenera</i> (KJELLM)	34	3
Ugo	Faloe ceylon moss	<i>Gracilaria verrucosa</i> (HUDSON) PAPENFUSS	3	50
Wakame	Wakame	<i>Undaria pinnatifida</i> SURINGAR	18	7
Hijiki	Hijiki	<i>Hijikia fusiformis</i> OKAM.	8	9
Konbu	Tangle	<i>Laminariaceae</i>	6	6
Kamaboko			11	44
Gyoniku soseiji	Fish sausage		11	54
Chikuwa	A kind of fish paste		9	65
Satsuma-age	Fried fish balls		7	156

以上、久慈町、那珂湊両地区における漁業世帯を中心に、海産物の消費実態について、その概略を述べた。核燃料再処理施設から海洋に放出される放射性核種の中では、放射性ルテニウムの放出率が、全体の6割を占めるといわれている。褐藻におけるルテニウム濃縮率(C.F.)が高いことを考えると、その採藻場が放出口からはなれていても、ワカメを通じての内部被曝は無視できない。しかしその消費量については、今後の調査に待たねばならない、一般に調査対象世帯数が少ないと、特殊な世帯を消費が、その世帯が属する集団の平均値に大きく影響する。これまでに行なわれた調査は、対象世帯数も少なく、また調査対象が海産物全般にわたる巾広い調査であったため、主婦に対して長期間の調査協力を求めることが難しく、従って短期間の調査で満足せざるを得なかった。そのため、得られた成果から、定性的な推測を行なうことはできても、定量的な推論を行なうには、まだデータが不十分であるといわざるを得ない。今後、これまでの調査から得られた知見を参考とし、critical foodになりうるかもしれない、ワカメ、ヒラメ、カレイ、小エビ、シラスなど、少数の海産物について、広くかつ詳細な調査を、長期にわたって実施し、critical groupの抽出とcritical groupのcritical food摂取量を明らかにしてゆく必要がある。

既報報告一覧(1974年6月現在)

1) 食品の消費に関する実態調査：海放特委生物分科会、昭和44年度成果報告書(1970年) 原安協

- 2) 中部太平洋沿岸における住民食品消費の実態調査 低レベル廃液の海洋放出処分に関する研究 昭和45年度成果報告書(昭和46年6月) 原安協
- 3) 海洋調査における成果の総合評価(その2) 海産食品の消費流通実態調査：海放特委生物分科会 昭和46年度成果報告書(1972年6月) 原安協
- 4) 放射能クリティカル径路の調査：放射能クリティカル径路調査グループ(1973年7月) 原安協
- 5) Y. Ohmomo: Survey on Food Consumption for Inhabitants around Nuclear Sites in Coastal Area of Ibaraki Prefecture March 1974 NIRS-C-1
- 6) Y. Ohmomo et. al.: Factors Used for the Estimation of Radioactive Nuclide Intake through Foodstuffs by Inhabitants in Coastal Area of Ibaraki Prefecture (I) J. of Health physics Society 9 (2) 1974
- 7) Y. Ohmomo et. al.: Factors used for the Estimation of Radioactive Nuclide Intake through Foodstuffs by Inhabitants in Coastal Area of Ibaraki Prefecture (II) J. of Health physics Society 9 (2) 1974

## VII 総 括

放射性核種の海産生物への濃縮係数は、魚貝藻類の摂取による人の放射線体内被曝線量を算定する重要な環境パラメータの一つであるにもかかわらず、既存のデータでは同一核種、同一生物種についても数倍から数百倍もの相違があり、その原因が明確につかめないために数値自身の信頼性が不十分であったといえよう。今回の研究においては、実際に日本人が常食としている海産生物については、放射性核種のとり込みを実験的に観察してデータを取得することができた。個々の結果については本文中に記載したので、ここでは実験成果を全般的にみての知見を記したい。

### 1 濃縮係数のバラツキと、濃縮係数を求める実験法との関連

既発表の文献記載の濃縮係数を収集整理してみると、濃縮係数に大きなバラツキを生じている一因として、それを求めた方法 すなわちR I添加海水での生物飼育による法、天然試料の生物・海水の安定元素濃度比より求める法、放射能フィールド・サーベイによる生物・海水の放射能比より求める法の3法 の相違があげられる。

例えばストロンチウムの魚骨への濃縮は「魚骨と海水の安定元素の濃度比」から算出した濃縮係数が、「活魚のR I添加海水飼育による魚骨と海水の放射能比」より求めた濃縮係数より十倍以上も大きい傾向が認められていた。臨海実験場の海産生物飼育用50トン水槽にR Iを添加してのヒラメ等の魚類飼育実験によると、肝臓や胆ノウ等の軟組織へのストロンチウムの蓄積は少なく、骨やウロコ等の硬組織には若干高い蓄積が認められたことは従来の知識のとおりであった。しかし従来は実施し難かった長期の飼育観察をつづけたところ、軟組織では150日程度で海水と生体組織のストロンチウム濃度が平衡に達するのに対し、硬組織では150日飼育後もストロンチウムの蓄積は増加しつづけることがわかった。一方、排出速度は、軟組織が速く肝臓では数日中に90%が排出されるが、硬組織では遅く骨のストロンチウムの生物学的半減期は約230日であった。すなわち、このようにターンオーバーが非常におそい部位については、R I濃度が海水との間で平衡に達していないため、濃縮係数を過少評価してしまう可能性がある。そのような場合には、飼育期間をさらに延長するか、あるいはR Iの

とり込み率と排出率とから平衡状態下の濃縮係数を推定する必要がある。このような推定法によって求めた値は安定元素定量値から算出した濃縮係数10-40によく一致することが示された。したがって、過去の研究の多くは短期間の活魚飼育R I実験値をそのまま濃縮係数としたことに問題があり、これが両方法のデータに相違を招いた主原因の一つと考えられる。

一方、セリウムについて検討した結果によると、この核種ではストロンチウムと違って、安定元素濃度比による方がR I飼育魚の放射能比によるよりも低い値が得られる場合がある。R I飼育実験は海水中で可溶性のセリウムのみを対象として行われたが、海水の安定セリウム濃度は可溶性と不溶性を合わせた全セリウム濃度を常法にしたがって用いたので、それが両法の値に差が生じた原因と考えられた。そこで、海水中に新たに投入されたセリウムの物理化学的挙動を調べると、日時経過とともに次第に不溶化されることがわかった。 $Ce^{3+}$ イオン状のセリウムは海水中で加水分解されて主として $Ce(OH)_3$ と推定される化学種として存在するにいたるが、清澄な海水に添加20日後で30%が粒子状形態として存在することが実験的に示されたのに対して、他方、海水中懸濁物量が多い沿岸海水に現存するセリウムは80%以上が粒子状または粒子に収着した状態で存在することが示された。したがって、海水中で可溶性の安定セリウム濃度の定量値を用いて濃縮係数を求めると、R I飼育実験で得た値より幾分高めてはあがるがほぼ一致することがわかった。

このようにして、ストロンチウムのようにエラからの直接吸収が著しいものと、セリウムのように体表への収直sorptionが著しいものについては、R I飼育による放射能比法と天然試料の安定元素濃度比法とで生じた濃縮係数の相違について解明することができた。さらに、海水と海産生物の安定元素濃度を定量しての濃縮係数の検討が、海水中での存在量が少なく、かつその挙動が複雑なコバルト、亜鉛、セシウム、セリウム、ユーロビウムについて、原子炉を用いての放射化分析により進められた。前記のように、シラスのセリウムの濃縮係数は、それを求めるにあたって海水中の安定セリウムの全量を探ると約100であるが、溶存状態のセリウムのみを採れば約1,000となり、R I飼育で得た最高値800とほぼ一致した。その他の核種についても、海水中の可

溶性安定元素濃度を用いて算出した限りにおいては、濃縮係数はR I 添加海水飼育実験で得た値よりも若干高い値が得られた。安定微量元素濃度比から濃縮係数を算出するにあたっては、安定微量元素の海水中における存在状態を、水域による差や季節変化をも検討しつつ把握することが必要と考える。

さて海産魚が体内に放射性核種を取り込む経路として、エラを通じての直接吸収と、餌などを通じての消化管吸収とがあげられる。ストロンチウムの主な吸収経路はエラ吸収であるため、ストロンチウムの濃縮係数については「活魚のR I 添加海水中での飼育実験データを外挿して得た値」と「生物・海水の安定元素濃度比から得た値」とは近似するにいたったが、当然のことながら核種によっては消化管吸収をも重視する必要がある。主要な放射性核種の魚類消化管からの吸収をメジナ、カレイ、ヒラメ、ホウボウ等の飼育R I 実験により求めた結果によると、消化管吸収が20-80%と良いものにセシウム-137、亜鉛-65があげられ、中程度のものにヨウ素-131、コバルト-60、マンガン-54が、そして2-7%と吸収の悪いものにストロンチウム-85、セリウム-144とがあげられる。消化管吸収の良好なセシウム-137のメジナについての実験例が示すように、海水と餌の両方からセシウム-137をとり込む試験区の値は、海水だけからのとり込み試験区と餌だけからのとり込み試験区との両者の値を相加した値に一致している。したがって、魚の餌による放射性核種の濃縮係数と、核種の消化管吸収率と排出率などを求めることにより、魚類の海水より直接のとり込みだけでなくフードチェーンをも加味した濃縮係数を推定し得ると考える。

海水からの直接吸収については今回の実験でかなり有用なデータを得たものの、プランクトンの濃縮係数や魚の消化管吸収率などに関してのデータが未だ不十分である。したがって、上記の目的達成に必要な生物濃縮機構解明に関する水産生物実験をさらに充実して実施して行きたい。

## 2 環境要因と濃縮係数

生物はそれを取りまく環境要因の変化によって、その生態学的習性、生理、生化学的活性を変えることが多い。したがって、環境要因の変動が水産生物への放射性核種の濃縮に与える影響の検討を行った。

魚類は生棲適温の範囲内では、水温の上昇とともに放射性核種のとり込みが大きくなる傾向を示した。原子炉冷却水の排水は取水より水温が約7 高いので、温度差が濃縮係数におよぼす変化の程度を知ることは大切と考えるが、温度上昇とともに濃縮係数が高くなる程度

は10 の上昇に対してせいぜい2倍程度であった。

このようにして温度上昇により魚の生物活性が増したときに放射性核種の濃縮も盛んになる傾向が多少は認められたので、次いで魚の新陳代謝活性の影響をストロンチウムについて別の角度から観察してみた。スズキの硬組織についてみると、生長の盛んな1年魚(セイゴ)は成魚にくらべて5~10倍程度にストロンチウムの濃縮が著しく、また無投餌魚より投餌魚の方が1.5~2倍高い濃縮を示した。この試験魚については経口の摂取は無視し得る。これらの結果も、やはり生物活性の違いで説明づけられる。

## 3 海水中での放射性核種の物理化学的挙動

先に記したセリウムの例にみられるように、放射性核種の種類だけでなく、同一種でもその海水中での物理化学的存在状態が生物濃縮に影響をおよぼす。海水中に天然に存在する核種と、新たに海水中に加えられた核種とでは、物理化学的性状が異なることが予想される。しかし、海水中に流入した核種の化学形変化などによる挙動のみでなく、天然の核種についても物理化学的存在状態が不詳のものが多い。次に記すルテニウムによって代表されるように、海水と接触したことによって物理化学形が変化してゆく無機物もあり、その変化の複雑な様相は生化学的形態変化の著しい有機物に匹敵することを知った。

ルテニウムは核燃料再処理工場廃液中で主としてニトロシル・ルテニウムのニトラトおよびニトロ錯塩の形で存在し、また海水中ではニトロシル・ルテニウムのクロロ錯塩が重要な存在形態として考えられている。ニトロシル・ルテニウム・クロロ錯塩を濾紙電気泳動で分離して、各分画錯イオン種のヒジキ、ハマグリ、メジナの各可食部への蓄積をみると、陽イオン分画は陰・中性分画より一桁高い濃縮が認められ、生物種別にはヒジキ(褐藻)>ハマグリ(軟体動物)>メジナ(魚)の順に蓄積は減少する傾向を示した。ヒジキのルテニウムの蓄積は、「ニトロシル・ニトロ錯塩<クロロ錯塩<ニトロシル・ニトラト錯塩」の順に増大の傾向があった。濾紙電気泳動により分離した各分画の性状からみると、ニトロシル・ニトラト錯塩は優勢な陽イオン種で構成され、ニトロシル・ニトロ錯塩は陰イオン種が中心であったので、陽イオンの挙動ルテニウムの生物濃縮におよぼす寄与が注目される。

ハマグリをニトロシル・ニトラト錯塩を添加した海水と砂中とに飼育して底質の影響をみたが、エラや全個体としては砂の有無による有意差は認められなかった。しかし貝殻では砂中に棲息していたものの方がルテニウ

ム蓄積が少なく、逆に内臓だけについてみると砂中飼育の方が約10倍多い蓄積が観察された。したがって底質の砂に収着したルテニウムによって、軟組織全体のルテニウム蓄積量は多少は多くなるものと考えられ、ハマグリは軟組織の全部を食用とするだけに留意に価する傾向であった。

水中懸濁物や底質の影響については、一般に砂泥は放射性核種を高濃度に収着し易いだけに、累積による将来の影響を予測するためにも重視されよう。ルテニウムの例に加えて、コバルト-60を用いたの現在進行中の実験からも示されているように、砂中に棲む底棲魚が砂に収着されたルテニウムやコバルトをエラや体表から直接吸収する傾向は殆んど認められない。しかし消化管内に供試の砂を人為的に注入すると、これらの核種は多少は吸収される。供試のヒラメでは消化管内への砂のとり込みは殆んど認められなかったが、ハマグリ等の貝類では若干のとり込みがあるかと思われる。したがって、底生生物の放射性核種のとり込みに与える海底堆積物の影響について、引きついで精査してゆきたい。

#### 4 仮りの決定食品の濃縮係数

ストロンチウム-90、セリウム-144は核燃再処理施設から放出を予想される核種であるが、これらは海産動物の硬組織に濃縮され易い。シラスは遊泳力に乏しいため汚染水塊と共に移動する可能性があり、かつ硬組織を含む全身が食用に供される。これらの事実に立脚して、原子力施設の環境モニタリング・プログラムとしてのストロンチウム-90やセリウム-144などの事前評価に際して、仮りの決定(critical)食品として、シラスがしばしば用いられている。ところが、シラスは飼育が困難なこともあって、放射性核種のとり込みと排出に関する実験例は皆無に等しい。したがって、前記の推算には成魚への放射性核種の濃縮係数や生物学的半減期が用いられるのが常であっただけに、シラスについての実証の実験が必要であった。シラスに関する実験促進につとめたが、飼育期間が比較的短かく、またジルコニウム-95(ニオブ-95)、ルテニウム-106については個体差にもとづくデータのフレが大きく、このために十分な成果を得たとは云えない。しかし、問題となるストロンチウムとセリウムの両核種およびセシウムについては、新たに実証された知見を得ることができた。

ストロンチウムの濃縮は、シラスがRI海水に入ってから24時間までは急激に進むが、それ以降は海水と生物体のRI濃度はほぼ平衡状態に達し、18日目の濃縮係数は1.0であった。ストロンチウムの排出は、シラス

が清浄海水に戻ってから1日目までが著しく、1日間の生物学的半減期 $T_1=1.9$  daysであるが、排出速度のおそくなった3日以降では $T_2=83.2$  daysであった。

セリウム-144の濃縮は表面吸着が主体と考えられ、濃縮は短時日で進み3日飼育で濃縮係数800が観察されたが、濃縮の程度には著しい個体差が認められた。表面吸着が主体であるだけに、セリウムの体表よりの離脱も速い傾向であったが、この速度はセリウムの物理化学形によっても左右されるだけに、なお今後の検討が必要である。

なおセシウムは、海水と生物体とが平衡に達する期間はストロンチウムより短かく、13日目の濃縮係数は約10であり、また生物学的半減期は、 $T_1=4.2$  days、 $T_2=25.2$  daysであった。

#### 5 沿岸住民の水産食品消費の実態

上記の諸研究によって、沿岸水域に放出される放射性核種が海洋でどのような挙動をとりながら、どの種類の海産生物へ移行し、どの程度に蓄積されるにいたるかについて知見を得た。国民への放射線影響を評価するにあたっては、国民の平均的な放射線被曝線量だけでなく、最も被曝が大きくなると予想される集団の線量推定を行うことが必要と考える。原子力平和利用施設から環境へ処分される放射性廃棄物が国民平均被曝線量におよぼす寄与は、自然放射線は勿論のこととして核爆発実験の放射性降下物に比べても極めて微小である。したがって、平和利用施設に関する環境安全管理のためには、クリティカル・パスウェイ・アプローチ(決定経路法)が特に重視される。すなわち、環境に導入された放射性核種の各々が最終的に人の放射線被曝をひきおこすにいたる経路を検討して、人の現実的被曝あるいは潜在的被曝の算定、またはこのような被曝として考えられる上限値の推定が必要となる。

この達成に必要な情報を得るため、海産食品の摂取が大きいと予想される沿岸住民に着目しての実態調査を実施した。茨城県沿岸一帯(日立市久慈町、東海村、那珂湊市)においての戸別聞き込み調査の成果によると、総蛋白質摂取量は漁業世帯においては一般に可成り高く、非漁業世帯では国民平均にほぼ近い値を示した。特に漁業世帯では、水産食品による動物性蛋白質摂取量の全蛋白質摂取量に対する割合は、全国平均23.8%より高く、久慈浜世帯では49%に達し、海産生物の1人1日当り摂取量は、魚190g(生)、貝8g(生)、海藻4g(乾物)であった。ストロンチウム-90、セリウム-144などを濃縮した硬組織と共に丸ごと食用にされる魚介類の個人年間最高消費量は、シラス5kg、イワシ10

Kg, 小エビ5.6Kgであった。また底生のカレイ類とワカメの消費が、年間を通じて比較的に多いことがわかった。

特殊な食生活の有無についても着目して調査した。一例としてフクロヒノリ(注・那珂湊ではヒノリと呼んでいる)の消費は、この地方に特殊なものとして数えられるが、年間消費量は少なく、ウインズケール再処理工場廃液の影響をうける海藻を主食とするウエールズ地方の3万人の住民に示されたような特殊な生活様式は認められなかった。

このように茨城県沿岸住民の食生活実態の概要を把握し得たが、まだ調査の行なわれていない地区について調査を進めると共に、更に今後の調査は現在までの調査で浮んできた問題点に重点をおき、より精度の高い調査結果が得られるようにつとめたい。すなわち、ストロンチウム-90, セリウム-144摂取時の決定食品になると予想されるシラス, シラウオ, 小エビ等やルテニウム-106, コバルト-60等について問題になると思われるワカメや底生魚に着目し、調査戸数を増してゆく。一方、液体放射性廃棄物放出の影響範囲内での漁獲水産物の流通機構に関し、一層実質的な情報の収集をはかり、その整理を行いたい。

## 6 放射能調査の指標生物

放射線モニタリングの一環としての放射能調査にあたって、人の被曝に直接関係のないもののうち、決定径路中であって重要な位置にあるものや、全体の傾向の把握に役立つもの、たとえば海底堆積物などの放射能測定をしたり、あるいは食用にされないものでも放射性核種の濃縮が著しい生物またはその特定器官、組織の放射能測定をすることによって、効率よく目的を達し得る場合がある。このような、いわゆる指標(indicator)生物の選定にあたっては、この報告のデータが活用されるものと考えられる。

## あ と が き

この報告は5カ年間に実施された研究の概要であるが、

本文の随所に記載したように今後の研究に残された問題が多々あると思う。現在、放医研では「環境放射線による被曝線量の推定」に関する特別研究の一環として、引きついで本研究を実施しつつある。しかし放医研の研究は水産生物と関連した面に重点をおいており、海洋での廃液の拡散などを含む海洋放射能問題の広範な研究をもとより放医研だけで達成し得る由もない。今後も国内外の各研究機関や大学関係の科学者の御指導を仰ぎ、あるいは御協力を得たいと念願するものである。

## 謝 辞

この研究は新しい構想の実験施設で実施することができたが、これは臨海実験場設立に御尽力になった故塚本憲甫前所長、御園生圭輔所長、科学技術庁原子力局ならびに放医研の関係者の多くの方々の御尽力に負うものであるだけに、研究者一同の御礼を申し上げたい。なお、この施設の設計当初から御指導をいただいた東京大学水産学科、東京水産大学の各位、放医研・環境汚染第3研究室の各位の御協力に併せて謝意を表したい。

また研究計画の立案と実施にあたっては、(財)原子力安全研究協会の放射線障害防止研究計画部会・田島英三部会長、放射性廃液の海洋放出調査特別委員会・故福田節雄委員長・同総合部会・三宅泰雄部会長、同専門部会・故坂岸昇吉部会長、同生物分科会の檜山義夫顧問等の多くの科学者の熱意に満ちた御指導を仰ぐことができ、さらに日本原子力産業会機、原子力安全研究協会、日本アイソトープ協会の各関係の方々による暖かい御支援が得られた。ここに心よりの感謝を申し上げる次第である。

なお試料入手などに関して、恵まれた条件で実験と調査を進めることができたのは、茨城県および那珂湊市の当臨海実験場誘致を含む暖かい御支援、ならびに近隣市町村の当局と漁業組合関係の後協力とに負うものであり、多くの方々の御好意に厚く御礼を申し上げる。