

特別研究「環境放射線による被曝
線量の推定に関する調査研究」

放射線医学総合研究所



890000099

最終報告書

December 1978

Final Report on the Estimation of Doses from Exposure
to Natural and Man-made Radiation in the Environment



放射線医学総合研究所

National Institute of Radiological Sciences
Anagawa, Chiba, Japan

特別研究「環境放射線による被曝
線量の推定に関する調査研究」

最 終 報 告 書

December 1978

Final Report on the Estimation of Doses from Exposure
to Natural and Man-made Radiation in the Environment

放射線医学総合研究所

National Institute of Radiological Sciences
Anagawa, Chiba, Japan

目 次

最終報告書について（渡辺博信）	1
I 低レベル放射性廃液の沿岸放出による人体被曝の予測に関する調査研究	4
1. 海産生物による放射性核種の濃縮及び排出の機構に関する調査研究	6
2. 海水・堆積物、生物間の元素の分配機構に関する研究	12
3. 海洋環境試料中の微量安定元素濃度に関する調査研究	17
4. 放射性核種の微量分析による海洋の放射生態学的調査研究	22
5. 海産生物の放射能モニタリング方法の開発に関する調査研究	26
II 大気・土壌・水圏における放射性物質の移動に関する調査研究	28
1. ガス状放射性ヨウ素による人体被曝推定に関する調査研究	29
2. 淡水中における放射性物質の化学挙動と生物濃縮に関する調査研究	36
3. セミフィールド的ライシメータのモデル実験系の開発	42
III 標準日本人の各元素摂取量と体組織濃度の決定に関する調査研究	51
1. 標準日本人の化学組織の決定	54
2. 各元素摂取量と体組織元素代謝に関する調査研究	60
IV 体外被曝線量の推定および放射性気体のモニタリング法の開発に関する調査研究	65
1. 体外被曝線量推定に関する調査研究	67
2. 放射性気体（ ⁸⁵ Kr）のモニタリング方法に関する調査研究	74
V トリチウムの食物連鎖における動向と生物への影響に関する調査研究	79
1. トリチウムの植物・動物系における動向	81
2-A トリチウム水のメダカ卵核酸、アミノ酸および脂質へのとりこみ	92
2-B トリチウム水のラット脂質へのとりこみ	97
3. トリチウム水の魚卵発生に及ぼす影響	102

Table of Contents

Preface (Hironobu Watanabe)	1
I. Transfer of low level radioactivity released into coastal waters to human being	1
1. Studies on uptake and loss of radionuclides by marine organisms	1
2. Partition and accumulation of artificial radionuclides among sea water, marine sediment and marine boita ...	2
3. Studies on concentration of minor stable elements in marine environmental samples	2
4. Marine radioecological field study around nuclear facilities	2
5. Studies on radioactivity monitoring procedure for marine organisms	2
II. Transport of radionuclides in terrestrial environment	2
1. Studies on the estimation of radiation dose to thyroid gland by the ingestion of foods contaminated by gaseous radioactive iodine	2
2. Studies on the chemical behaviour of radioactive nuclides in fresh water and their accumulation by fresh water organisms	3
3. Studies on Development of Experimental System for Trial Manufacture of Semi-Field Scale Lysimeter	4
III. The study on the intake and distribution of elements in "Standard (or Reference) Japanese"	5
1. Distribution of stable elements in human body of the Japanese	5
2. A study on the daily intake of some elements by the Japanese and their concentrations in the various organs	6
IV. Study on the Estimation of External Exposure due to Ionizing Radiations in the Environment and Development of the Monitoring Techniques of Radioactive Gases in the Atmosphere	6
1. Estimation of Dose from Exposure to External Radiation in the Environment	6
2. Development of the technique for monitoring ^{85}Kr in environmental air	7
V. Behaviour of tritium in the food chain and its biological effects	7
1. Tritium Behavior in Radio ecological Food Chain	8
2-A. Incorporation of tritium from tritiated water into nucleic acids, amino acids and lipids of <i>Oryzias latipes</i> eggs	9
2-B. Incorporation of tritium from tritiated water into tissue lipids of rats	9
3. Effects of tritiated water on the embryonic development of fish	10

最終報告書について

Preface

班長 渡辺博信

「環境放射線による被曝線量の推定に関する調査研究」は、“原子力発電を中心とするわが国原子力開発利用の急速な進展に対処し、原子力施設から環境に排出される放射性物質等に関し、その人体に到るまでの環境中における一連の挙動を総合的に把握し、個人および集団の被曝線量を的確に推定し、一般公衆に対する放射線の防護と被曝の軽減に資すること”を目的として（昭和48年度業務計画）、昭和48年度を初年度とする5ヶ年計画を以て発足した。後述するように、諸般の事情から所期通りの進捗をみなかったものもあるが、特別研究実施の重要な一環として計画された那珂湊実験研究棟は、昭和51年度より使用を開始するに致り、また昭和51年5月10日には、関係者による研究経過の中間報告会が開催され、成果の検討と以後の方針の討議とが行われた。本特別研究は昭和52年度を以て一応終了し本報告書を作成した。

研究内容については個々の課題毎に詳述しているので、ここでは本特別研究体制がとられるにいたった経緯と基本的研究方針、発足後の経緯につき述べることにする。

特別研究発足までの経緯

低レベル放射線の生物影響問題を含めたいわゆる環境問題の研究体制に関して、研究所においてあらためて検討が開始されたのは、昭和49年度を開始年度とする「研究5ヶ年計画」の策定に関する研究総合会議の討議開始の時期、昭和45年であった。環境放射線、放射能の人体に対する影響とその評価の問題は、原子力発電の規模の増大や再処理施設建設計画の具体化など原子力開発の急速な進展が予想されたことと、放射線以外の化学物質等による環境汚染や騒音などの公害問題がクローズ・アップされたこととがからみあって、国の内外で社会問題となって来た時期であり、環境問題に関する放医研の責任についての論議が行われた。

被曝推定の諸問題に関して、研究総合会議では放射線の源から環境に放出される放射線、放射能の実態の把握にはじまり、放射生態学的なプロセスを経て人体の被曝にいたる経路、測定されるデータの意味づけ、等一連の諸問題を系統だてて考え、当時すでに各研究部において行われつつあった課題との対応を検討し、これらをふまえて、今後拡大強化すべき課題、新たにとりあげるべき課題が指摘された。なお臨海実験場を含めた東海支所の将来構想もあわせて考慮することとされた。さらにモニタリングの問題については、わが国におけるモニタリングの実施状況、研究の現状、問題点および解決の方策などが討議された。

これらの検討の結果、昭和48年度を期して低線量被曝による危険度推定研究と線量推定に関する研究とをそれぞれ特別研究としてとり上げることとなり、昭和46年中頃より研究総合会議に環境問題専門委員会が設けられて計画の具体化の作業に入った。線量推定の研究計画の立案は、環境関係研究部（環境衛生研究部、環境汚染研究部、東海支所）の主な研究者によって行われた。昭和47年3月には、研究実施の方針、国としてとり上げるべき課題、重点課題、およびそのうち放医研で行い得る分担課題についての大綱がかたまった（「原子力平和利用にともなう環境放射線および放射能の人体に及ぼす影響に関する調査研究（仮題）」研究計画案大綱）。

これに記された基本的な研究方針は次のようなものであった。すなわち放医研において従来行われて来た調査研究は、放射線発生源から被曝線量推定にいたる多岐にわたる問題の全般が、精粗の差はあれ一応網羅されるように課題が選定されているとの理解のもとに、次の5項目を方針とするとした。

1. 汚染源から発し人に被曝を与えるまでの、放射性物質の環境中における挙動を、総合的、具体的に把握するよ

うに努める。

2. 実験室レベルでの基礎的な研究を進めるとともに、既存の発電所や近く操業を開始する再処理工場、あるいは放射性廃棄物処分場などの周辺を試験区域（フィールド）として有効に利用し、実験室で得られた知見を実地に適用するさい生ずる問題点の解明に役立てる。このようなフィールドを使用出来ない場合には、モデル実験、野外実験によって実験室データの有効性をチェックする。
 3. 人体に関するデータ（器官等の大きさ、形、元素組成、放射性物質の摂取率、代謝速度など）は、ある期間内（たとえば3年）に基本的な値が得られるよう集中的に調査研究を行う。
 4. 測定データの斉一をはかり、低レベル放射線の測定法を確立するため、測定機器、測定法（分析法）などの標準化に資する研究を進める。
 5. コンピュータ技術を積極的に導入し、データ処理、解析、および環境のシステム・アナリシス技法を開発する。
- 以上の方針をふまえ、現有の研究者の能力を基盤として5ケ年のうちにまとめ得ることを条件に課題を選定し、昭和48年度より特別研究として発足するに到った。

特別研究発足後の経過

全体の研究を次の5グループの課題に分け、それぞれのグループリーダーのもとで研究を実施して来た。

- (1) 低レベル放射性廃液の沿岸放出による人体被曝の予測に関する調査研究（小課題5題）
- (2) 大気、土壌、水圏における放射性物質の移動に関する調査研究（小課題3題）
- (3) 標準日本人の各元素摂取量と体組織濃度の決定に関する調査研究（小課題4題）
- (4) 体外被曝線量の推定および放射性気体のモニタリング法の開発に関する調査研究（小課題2題）
- (5) トリチウムの食物連鎖における動向と生物への影響に関する調査研究（小課題3題）

なお課題(5)については、危険度推定の特別研究との関連から、当初2ケ年の予備的研究を経て、別途本格的実施をはかるとされたが、その後の状況の変化により規模を縮小して本特別研究で継続実施した。

特別研究の一部を実施する場所として、昭和48年度予算で旧東海支所臨海実験場に隣接して那珂湊実験研究棟を建設することとなり、建設準備委員会により計画が練られたが、折からの石油価格の高騰に伴う不況、物価高のあおりを受けて予算不足となり、完成は約2年遅延し、当初予定されていた第2次増設分については、当分実現の見込みはたないという状況にたちいたった。さらに、計画されていた低バックグラウンド実験室、バイオトロン施設、R I 特殊実験棟（ライシメーター、浄水場および河川モデル実験施設、無塵実験施設を含む）等の建設およびコンピュータの導入等は何れも実現しなかった。このうち無塵実験施設のみは、研究をすすめるのに不可欠であったので、想を改め仕様を変更して暫定的に新設研究棟内に組み込むことに変更された。人員の増強も殆んど行われなかったため、当初計画の変更ないし縮小が避けられなかったことは遺憾である。

このような状況であったにもかかわらず実施の運びとなった研究課題については、後に小課題別に詳述するような成果を挙げた。

個々の研究成果は口頭あるいは論文として学会、学会誌等に発表された。またそれ等の一部は放医研主催の第1回環境セミナー「環境放射線測定の現状と将来」（昭和49年2月15日～16日）、第2回環境セミナー「海のエコロジー」（昭和50年2月28日～3月1日）、第3回環境セミナー「環境の人工放射性物質による体内被曝の諸問題」（昭和51年1月22日～23日）、第4回環境セミナー「軽水発電炉による環境被曝線量評価の問題」（昭和51年11月18日～19日）、および第5回環境セミナー「人間環境と自然放射線」（昭和53年2月2日～3日）

の機会に発表し討論が行われた。

なお昭和50年8月5日付で那珂湊支所新設に伴う組織変更があったが、本特別研究の体制には変更はなかった。本特別研究を構成している研究グループは次のとおりである。

特別研究班の構成

班長 渡辺博信

副班長 伊沢正実、佐伯誠道、(50年11月まで)、市川竜資(51年度より)

1. “海”グループ リーダー 上田泰司

石井紀明、石川昌史、小柳卓、鈴木浜治、鈴木謙、
中原元和、中村清、中村良一、長屋裕、平野茂樹、
飯村満枝(昭和50年度より)、池田保(48年度)

2. “陸”グループ リーダー 大桃洋一郎

鎌田博、住谷みさ子、湯川雅枝、渡部輝久、中村裕二、
(51年度より)、本間美文(51年度より)

3. “人”グループ リーダー 田中義一郎

内山正史、河村日佐男、野村悦子(49年度より)、菅野美江、
(48年度)

4. “体外被曝”グループ リーダー 阿部史朗

井上義和、岩倉哲男、樫田義彦、藤高和信(49年度より)、
井戸達雄(48年度)、藤元憲三(48・49・50年度)

5. “トリチウム”グループ リーダー 樫田義彦

新井清彦、市川竜資、須山一兵、武田洋(49年度より)
松岡理(48年度)、上野昭子(48・49年度)、堀雅明(49年度)、
中井斌(48・49年度)、前林愛子(48・49年度)、稲葉次郎(50年度)

追記 特別研究班渡辺班長は研究終了の後昭和53年5月に退職された。そのためこの最終報告書は伊沢副班長がとりまとめたことを付記する。

I 低レベル放射性廃液の沿岸放出による人体被曝の予測に関する調査研究

Transfer of low level radioactive substances released into coastal water to human being

【概 況】

海産食品を多く摂取する日本人にとって、海洋の放射性汚染は特に重大な関心事である。したがってこの問題に関して当海洋放射生態学研究部は全研究員がその専門分野に応じて実行の便宜上分けた次の5つのサブグループ、すなわち (1) 海産生物による放射性核種の濃縮および排出の機構に関する研究、(2) 海水・堆積物・生物間の元素の分配機構に関する研究、(3) 海洋環境試料中の微量安定元素濃度に関する調査研究、(4) 放射性核種の微量分析による海洋の放射生態学的研究、および (5) 海産生物の放射能モニタリング方法の開発に関する研究のいずれかに参加して緊密な連携を保ちつつ、沿岸海洋の放射性汚染について総合的に研究を行ない、沿岸海洋における放射性核種の移行についていわば骨組みにあたるものを作ったが、その結果各サブグループの位置づけと関連も明らかになった。各サブグループの成果はそれぞれ後述するが、ここでは得られた骨組みについて述べる。

沿岸に放出された放射性核種の運命を示すと Fig.1 の様になる。放射性核種の或る部分①は潮流等によりその海域から拡散し、また或る量②は堆積物と接触して吸着され、その残り③が海域にとどまって濃縮係数に応じて生物を汚染させる。①の潮流等によってその海域から拡散される量は、沿岸の地形・潮流の状況によって左右されるので一定の値ではない。例えば外洋に直面して潮流の早い場所では①の量は多いであろうし、陸に入りこんで潮流の遅い湾では少ないであろう。前者の様な地形の場合を開放型、後者の場合を閉鎖型としてサブグループ (4) の所で詳述してある。

上記の潮流により拡散されず沿岸海域にとどまっている放射性核種は堆積物と接触することにより大部分が堆積物に移行する。或る実験条件下で ^{95}Zr - ^{95}Nb は海水に添加した量の 5.4%、 ^{106}Ru - ^{106}Rh は 6.3%、 ^{60}Co に至っては 8.7% 程度が堆積物に移行する。ただ ^{137}Cs だけは 1.7% 程度が堆積物に移行して大部分は海水中に残存する (サブグループ(2))。この様に、沿岸にとどまった放射性核種の大部分は Fig.1 の②の方向に移動し、海水中の量は ^{137}Cs を除いては少なくなる。この様に多くの放射性核種を吸着した堆積物が、生物の汚染、ひいては人体の内部被曝に対しどれ程の影響をもつかが問題であるが、底性動物 (ゴカイ)、及び海藻 (アオサ) を用いた実験から ^{95}Zr - ^{95}Nb と ^{106}Ru - ^{106}Rh は堆積物から単位重量当り 1% 程度、 ^{60}Co はややこれより多いが、 ^{137}Cs は 20% 程度が移行する。これを海水から直接ゴカイへ移行する濃縮係数と比較すると $10^2 \sim 10^3$ 倍程度海水から直接の移行の方が、堆積物からの移行よりも多い事が分った。(サブグループ(1))。この事から一般には Fig.1 で②の方向への放射性核種の移

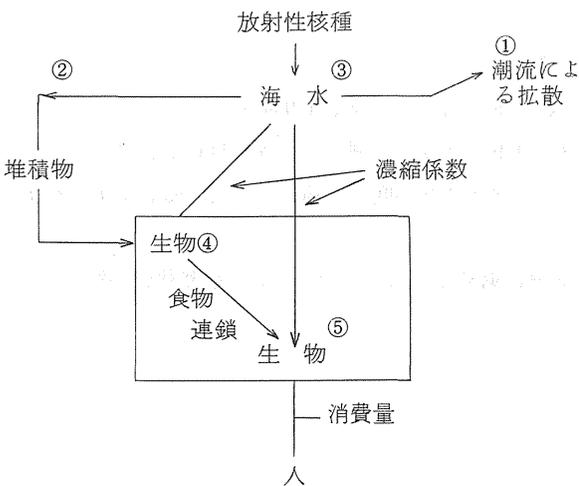


Fig.1

行は大きい②から④、⑤への移行は小さく、海水中に残存する放射性核種量が、④、⑤の生物の汚染に対しては最も影響を持つと考えるべきである。しかし海水中の放射能濃度が低くなった場合は、堆積物からの放射性核種による生物の汚染も問題になる実例としてはサブグループ(4)に記述してある。

以上述べた骨組みから沿岸における放射性核種の放出量(Q)と、その海域の生物を摂取する人への移行量(A)との関係は次の式で表わす事が出来よう。

$$A = \frac{(Q - D - S)}{V} \times CF \times R$$

ここでDは潮流によりその海域から拡散される量

Sは海水から堆積物へ収着される量

Vはその海域の海水の量

CFは海産食品の濃縮係数

Rは海産食品の摂取量である。

以上“低レベル放射性廃液の沿岸放出による人体被曝の予測に関する調査研究”の概況を述べた。詳細については各サブグループの成果を、さらに詳細には各サブグループの項の終りに記入してある研究発表の論文を参照されたい。

概況の終りに今後の研究への基本的態度を述べる。

1. 静から動へ(あるいは空間から時間へ)。生物汚染のパラメータである濃縮係数は、一定の海水中放射性核種濃度と生物中のそれとが平衡になった時点の両者の比であり、いわば静的状況下での生物の汚染である。現実では沿岸放出は間接的であり海水中放射性核種濃度は時間とともに増減する(動的状況)であろう。その際例えば⁹⁰Srと生物の骨の関係の様に、或る核種の生物における代謝回転(turn over)が遅いものでは第1回目の放出で蓄積した⁹⁰Srの排泄は遅くそのまま保持していて、第2回目の放出の影響が上積みされる一方、turn overの早い¹³⁷Csと筋肉では第1回の放出による汚染は環境水中の¹³⁷Csの減少とともに減少し、第2回の放出により新しく汚染されるであろう。従来の濃縮係数を求める実験に対しこの様な動的状況下での生

物汚染の研究は静から動へ、または空間から時間への展開とも言えるが、ラジオアイソトープトレーサー法から求められる生物のturn over rateを用いて数式化する事が出来るので、現実の海洋への放出状況を考慮しつつ検討を行なう必要がある。

2. 現象から内部構造へ、特に生物の汚染について見ると、生物の汚染(現象)についてはその原因を外的要因と内的要因とに分けて考える事ができる。外的要因は海水中の放射性核種の濃度、その物理化学形等であり、内的要因とは生物にとってのその核種の必要性又は体構成成分との結合状況、換言すれば生物の汚染の内部構造であり、従来は外的要因と生物の汚染との関係を濃縮係数として求めさせた。今後は外的要因に加えて内的要因をも明らかにする事によって、汚染の現象のより深い理解を得ることが出来よう。この点に関してはすでに予備的に検討を開始していて、例えば⁶⁵Znは海水からエラ吸収でとりこまれた場合、魚の肝臓中では2つの夫々分子量の異なる蛋白質と結合していると考えられる結果を得たが、食物連鎖により腸管から吸収されたものは3つの分子量の異なる蛋白質と結合している可能性がある。現象として魚の肝臓の放射能濃度は同じでも、摂取の経路によりこの様な差がある事が分ってきたが、これは生物の放射性核種の排泄パターンに関係があるであろう。この様に汚染を現象として捕える事からさらに内部構造に立ち入り一般化する事により、汚染現象の理解とさらには推定をも可能なものにする事が出来よう。

さらに今後各海洋試料(海水、海底堆積物と懸濁物、生物)の検討すべき主な点を下に列挙しておく。

海水：海水中の放射性核種の物理化学形とその安定元素との関係等

海底堆積物と懸濁物：汚染の程度と機構の追求等

生物：汚染の内部要因、食物連鎖、時間的汚染の変動の把握等。

I - 1 海産生物による放射性核種の濃縮 及び排出の機構に関する調査研究

小柳 卓、鈴木浜治、平野茂樹、中原元和、石井紀明
飯村満江、上田泰司、鈴木 謙、中村良一

Studies on uptake and loss of radionuclides by marine organisms.

Taku KOYANAGI,
Hamaji SUZUKI,
Shigeki HIRANO,
Motokazu NAKAHARA,
Toshiaki ISHII,
Mitsue IIMURA,
Taishi UEDA,
Yuzuru SUZUKI,
Ryoichi NAKAMURA

Abstract

Uptake and loss of ^{137}Cs , ^{95}Zr - ^{95}Nb and ^{59}Fe by marine fishes were observed by the radio-isotope tracer experiments under laboratory conditions and concentration factors and biological half-lives for these radionuclides by the fishes were estimated. Concentration factors of ^{137}Cs by fish muscles calculated at 200th day as 17.5 - 27.5 were lower than the values obtained by the field survey on stable or radioactive cesium suggesting slow turnover in fish muscles and contribution of food to the accumulation of the nuclide.

Transfer of radionuclides associated with sediment to marine benthic organisms was examined by rearing the organisms in contaminated sediment or administering the sediment orally to the organisms. The transfer ratios of the nuclides from sediment to organisms were less than the concentration factors based on seawater by the factors ranging from around 100 to about 5,000 depending on the species of organisms or radionuclides and it was suggested that water pathway may be predominant for the accumulation of radionuclides. Relatively high absorption efficiency through digestive tract of the fishes for the sediment-bound radionuclides was supposed in the case of marine demersal fishes.

Accumulation of radionuclides through food chain in marine ecosystem was studied by feeding shellfishes with labelled phytoplankton and seaweeds or by feeding fishes with assorted feeds labelled by radioisotopes. Absorption of ^{60}Co by abalones was affected by the species of the seaweeds as food and 47% of the administered dose was retained through *Laminaria japonica*, whereas 31% through *Undaria* and 26% through *Eisenia*. Absorption of the radionuclides by the fishes fed with labelled feeds was most significant in the case of ^{137}Cs and ^{65}Zn and transfer rate showed the maximum values at 48 hours after feeding as 100 and 24%, respectively. About 45% of the former distributed in muscle and 52% of the latter in digestive tract and blood of the fishes.

Key words

radionuclide: marine organisms: concentration factor:
sediment-bound radionuclides: water pathway:
contribution of food: foodchain: transfer ratio:
biological half-life: accumulation: absorption:
fishes: shellfishes: seaweeds

緒言

低レベル放射性廃液の沿岸放出に起因する人体の放射

線被曝線量を推定するに当って、海産生物による放射性核種の濃縮係数は、それら生物を水産食品として摂取することにより人体内に取り込まれる放射能の量を明らかにするための重要なパラメーターの一つである。本調査研究は、ラジオアイソトープをトレーサーとする水槽飼育実験を中心とし、各種海産生物について濃縮係数を算定すると共に、放射性核種の生物濃縮に対して環境要因（海水、海底堆積物中での放射性核種の存在形態など）、ならびに生物学的要因（食物連鎖、生物の生理代謝、生態など）が及ぼす影響の程度を明らかにすることを目的としている。

実験は比較的大型海産生物の長期飼育観察を主目的とした大型水槽実験と、内外各種要因の影響解明を目的として飼育条件を制限した中型、小型水槽での実験に大別される。先ず前者に関しては、 ^{137}Cs 、 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ および ^{59}Fe をトレーサーとした飼育実験によって、魚類ならびに軟体類による R I の海水からの直接の取り込みおよび清浄海水中に戻した場合の排出の状況の観察をおこない、濃縮係数ならびに生物学的半減期の算定を試みた。

一方、海水以外の経路を経ての放射性核種の生物濃縮を検討する研究の一環として、海底堆積物に吸着された R I の生物への移行を底生の魚類、貝類、甲殻類、多毛類、海藻などについて観察し海水からの移行蓄積と比較検討した。もう一つの汚染経路として重視しなければならない食物連鎖を経ての放射性核種の濃縮については、海藻-軟体類および植物プランクトン-軟体類の間で ^{60}Co の移行状況を観察し、餌料生物の種類、量などの差による移行率の変化を調べた。

実験の方法及び経過

^{137}Cs の海水からの移行および排出は大型水槽実験を中心に海産魚としてイシガレイ *Kareius bicoloratus*、スズキ *Lateolabrax japonicus*、インダイ *Oplegnathus fasciatus*、ウマヅラハギ *Novodon modestus* およびブリ *Seriola quinqueradiata* を用い、又、有用海産軟体類としてマダコ *Octopus vulgaris*、ヤリイカ *Doryteuthis*

bleekeri について観察した。魚では1ヶ月乃至7ヶ月の飼育期間中、魚体中の放射能濃度の増加を肝臓、胃、腸などの13部位について経時的に観測し、飼育海水中の放射能濃度との比を求めると共に、100日飼育後に清浄海水に移した魚体からの放射能の排出状況を観察した。一方、軟体類の場合は14日の取り込み実験および75日間の排出実験によって各臓器組織別に濃縮係数ならびに生物学的半減期を求めた。

$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ をトレーサーとした大型水槽実験ではヒラメ *Paralichthys olivaceus* およびカンパチ *Seriola Purpurascens* の飼育によって188日および70日間飼育時の放射能の体内分布を観察した。大型水槽実験では更に ^{59}Fe をトレーサーとしてアイナメ *Hexagrammos otahii*、セイゴ(スズキ)、ヒラメ、ソイ *Sebastes vinosus* およびカサゴ *Sebastes marmoratus* による取り込みならびに排出について観察した。

海底堆積物の影響に関しては、 ^{60}Co 、 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ 、 $^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{15m}Cd などをトレーサーとして予め汚染させた海底土を用い、クロウシノシタ *Rhinoplagusia japonica* などの底生魚やサルエビ *Trachypenaes curvirostris* コタマガイ *Gomphina melanaegis* ゴカイ *Nereis japonica* および海藻類を海底土中あるいは海底土と共存下で飼育し、放射能の生物への移行率を求めて海水からの取り込みによる濃縮係数と比較する事によって海水と海底土の寄与の割合を調べた。又、汚染底質の経口投与実験によって底生魚の消化管からの放射能の吸収ならびに体内分布を観察した。

^{60}Co の生物濃縮に関して海藻による取り込み、排出を海藻の種類、部位別に観察すると共に汚染海藻をクロアワビ *Haliotis discus* に投与して ^{60}Co の吸収率を求めた。又同じく ^{60}Co で標識した植物プランクトン3種を2枚貝 *Mercenaria mercenaria* に投与して移行率に及ぼす各種要因を調べた。魚類への放射性核種の移行に対する餌の影響について、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{85}Sr 、 $^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$ 、 ^{137}Cs および $^{144}\text{Ce}-^{144}\text{Pr}$ をトレーサーとして添加した海水中で飼育した場合、ウナギ成魚用餌料に添加して投与した場合および両者の組合せによって、

餌と水中濃度の変化による影響、餌からの移行率と体内分布などをハマチ *Seriola quinqueradiata* を用いて観察した。又、生体構成物質と放射性核種との関係については海藻について ^{137}Cs 、 ^{106}Ru の取り込み、排出時における R I の結合状態をエタノール抽出、ゲルクロマトグラフィなどの手段で追求した。ゲルクロマトグラフィにはセフアデックスカラムを用い生物の臓器別に R I の取り込み、排出の各段階における体内での存在形態の変化を魚類、軟体類などについても観察した。

結果及び考察

(1) 海産魚による ^{137}Cs 、 ^{95}Zr — ^{95}Nb 、 ^{59}Fe の濃縮と排出

5 種類の海産魚について 30 日乃至 200 日間飼育し

た時点で算出した ^{137}Cs に対する濃縮係数を部位別に Table 1. に示した。Cs の海産魚肉への濃縮係数は、フォールアウト由来の ^{137}Cs のフィールドサーベイでも、安定 Cs の定量結果でも、42~43 と云うよく一致した結果が得られている¹⁾。トレーサー実験での海水からの取り込みでは僅かに低い値を示し、排出実験によって求めた生物学的半減期も、エラや肝臓では 30 日乃至 90 日と比較的短かいのにくらべ、筋肉では 100~260 日程度の値が観測されて、完全な平衡状態を見極めるには飼育期間の不足が考えられる。又、水温の効果²⁾や、餌を通しての取り込みの影響^{3,4)}も考慮する必要があり、それら環境要因あるいは生物学的要因によってフィールド及び実験室での観測値の間の差は充分説明できると思われる。

fishes	ISHIGAREI (flounder)	SUZUKI (sea bass)	ISHIDAI (parrot fish)	UMAZURAHAGI (file fish)	INADA (yellowtail)
organs or tissues	<u>Kareius</u> <u>bicoloratus</u>	<u>Lateolabrax</u> <u>japonicus</u>	<u>Oplegnathus</u> <u>fasciatus</u>	<u>Navodon</u> <u>modestus</u>	<u>Seriola</u> <u>quinqueradiata</u>
Liver	10.8	6.1	11.6	8.7	12.0
Stomach	7.9	18.9	19.5	10.3	7.7
Intestine	8.2	21.7	16.3	24.0	17.7
Gall bladder	2.6	5.3	3.4	2.0	2.1
Spleen	10.7	15.4	13.0	13.6	13.5
Kidney	8.2	13.3	12.4	15.3	11.6
Muscle	8.1	17.5	22.4	27.5	14.5
Scale	---	3.4	5.1	---	4.2
Skin	4.2	4.0	4.7	7.5	3.6
Gill	4.4	5.4	6.5	7.3	4.4
Bone	2.4	4.2	7.4	4.5	2.7
Blood	1.5	1.6	1.6	2.0	2.5
Gonad	10.7	15.0	---	10.8	14.2
rearing period (days)	110	200	200	200	30

Table 1. Concentration factors of ^{137}Cs by tissues or organs of marine fishes.

^{95}Zr - ^{95}Nb は海藻やプランクトン類に濃縮が著しく、それは海水から直接か、あるいは懸濁粒子をへての表面吸着に負う所が大きいとされているが、魚の場合もエラやウロコ、腸管などで高い濃縮がみられ、吸着や懸濁粒子と共に取り込まれるものと思われるが、そのほかにも肝臓や腎臓、骨などへの蓄積がみとめられ、代謝経路を経ての取り込みも考慮する必要がある。

^{59}Fe の取り込みにおいてもエラ、ウロコ、ヒレなどへの高い濃縮は表面への吸着によるものと考えられるが、肝臓や腎臓へも濃縮が著しく、又それら内臓に分布した ^{59}Fe の排出は非常に遅い事がわかった。

(2) 海産軟体類による ^{137}Cs の濃縮と排出

マダコの14日飼育時の海水中 ^{137}Cs に対する濃度比は可食部で5~7、内臓では8~12程度で中でも肝臓への取り込みが最も著しいが、重量比で優位を占める外套膜、足などの可食部に大部分の ^{137}Cs が蓄積する。

75日間の排出実験で観測した生物学的半減期は約90日で魚類のそれと略々等しいが、貝類のコタマ貝では31日と約1/3の短かい半減期を示した。一般に軟体類の ^{137}Cs に対する濃縮係数は3~30程度で甲殻類の値と略々等しいが海産魚類にくらべ僅かに低い結果を示した⁵⁾。

(3) 海産生物による放射性核種の底質からの濃縮

^{60}Co を吸着させた砂中で飼育したサルエビによる ^{60}Co の濃縮は海水中で飼育したものにくらべ、筋肉や中腸線で4倍乃至10倍高い結果を示したが、ウシノシタでは両者間に明確な差異がみとめられない。然し、汚染砂を経口投与したイシガレイでは ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn に対し10~20%前後の吸収率を示した⁶⁾。

海藻5種、貝類および多毛類のゴカイについて観測した砂から生物への放射能の移行率は核種により数%から数十%の差がみられるが、それを海水中濃度を基盤とした濃縮係数の値と比較すると、 ^{54}Mn 、 ^{59}Fe 、 ^{95}Zr - ^{95}Nb などの様に $10^3 \sim 10^4$ 程度のオーダーで海水からの取り込みが圧倒的に優位を占める場合と、 ^{65}Zn 、 ^{115m}Cd 、 ^{137}Cs の様に 10^2 あるいはそれ以下のオーダーで底質からの離脱による生物移行も無視し得ない核種

がある事がわかった^{7)~10)}

(4) 海藻、植物プランクトンによる ^{60}Co の濃縮と食物連鎖

トレーサー実験の結果、緑藻1種、褐藻6種、紅藻2種のいずれも ^{60}Co の取り込みは約10日間でほぼ平衡に達した。濃縮係数はトレーサー実験でも、安定 Co を定量して求めた場合でもほぼ等しい結果を示したが、海藻の種の間では2桁の差異がみとめられ、種特異性が明らかにみられた。又、海藻の部位別に比較すると、成長の盛んな新しい組織よりも、古い部位への濃縮が著しい傾向がみられ、海藻表面の構造や、海藻体を構成する成分との関係など海藻体内での放射性あるいは安定元素の不均一分布をもたらす原因がいくつか考えられるところから、更に実験的検討を続けている。一方、オートラジオグラフィによる観察で、 ^{60}Co が海藻体の内部へも吸収されている事がみとめられたが、コンブ、アラメについて皮層部と内層部の放射能濃度を比較した結果、 ^{60}Co は主として皮層部に蓄積している事がわかった。

seaweeds	number of exp.	total weight of three abalones (g)	quantity of food (g)	absorption rate (%)
Brown algae <u>Laminaria</u>	1	72.7	1.9	49.5
	2	71.3	1.5	49.3
	3	71.2	1.7	44.8
	4	73.1	1.5	43.9
	5	70.0	2.0	52.0
	6	68.7	1.9	48.9
		average ± standard deviation		47.1 ± 3.3
<u>Undaria</u>	1	90.6	2.1	34.1
	2	89.2	2.8	35.6
	3	71.7	2.2	15.5
	4	71.3	2.6	30.1
	5	73.4	2.9	32.9
	6	72.6	3.6	34.9
		average ± standard deviation		30.5 ± 7.6
<u>Eisenia</u>	1	88.9	2.2	19.8
	2	90.4	1.6	25.7
	3	90.2	2.0	34.1
	4	89.3	2.5	22.2
		average ± standard deviation		25.5 ± 6.3
Green algae <u>Ulva</u>	1	76.7	1.1	51.3
	2	74.4	1.4	41.6
	3	87.2	1.1	52.4
	4	81.8	1.3	41.5
		average ± standard deviation		46.7 ± 6.0

Table 2. Absorption rate of ^{60}Co in abalones (*Haliotis discus*) two days after ingestion of labelled seaweeds.

褐藻3種、緑藻1種をあらかじめ⁶⁰Coで汚染させ、アワビに投与した場合の吸収率をTable 2. に示した。コンブ及びアオサからは4.7%、ワカメからは3.1%、アラメからは2.6%の⁶⁰Coがアワビに吸収され、汚染海藻を通しての草食性軟体動物への放射性核種の移行が、餌となる海藻の種類によって影響される事がわかった。¹¹⁾

⁶⁰Coで標識した植物プランクトン*Nitzschia closterium*、*Platymonas sp.*及び*Dunnaliella sp.*の3種を2枚貝*Mercenaria mercenaria*に投与した場合の⁶⁰Coの移行率は、投与時のプランクトンの濃度や種類、貝の大小などにより変動するが、*Nitzschia closterium*の場合、天然のプランクトン濃度以下での移行率はほぼ4.5~5.5%と推定された。¹²⁾

引用文献

- 1) Y. Suzuki, R. Nakamura and T. Ueda (1973) Cesium-137 contamination of marine fishes from the coast of Japan. J. Radiat. Res., 14:4, 382-391.
- 2) M. Nakahara, T. Koyanagi and M. Saiki (1977) Temperature effect on the concentration of radionuclides by marine organisms. *ibid.*, 18:2, 122-131.
- 3) I. Aoyama and Y. Inoue(1973) Estimation and evaluation of radioactive contamination through a food web in an aquatic ecosystem(1) - An application of the compartment model to transfer of radioactive substances through a food chain. *ibid.*, 14:4, 375-381.
- 4) I. Aoyama and Y. Inoue(1975) Estimation and evaluation of radioactive contamination through a food web in an aquatic ecosystem(2) - Systems analysis of the transfer of radionuclides through a food web. *ibid.*, 15:2, 132-141.
- 5) Y. Suzuki, M. Nakahara and R. Nakamura(1978) Accumulation of cesium-137 by useful mollusca. Bull. Japan. Soc. Sci. Fish., 44:4, 325-329.
- 6) T. Koyanagi, M. Nakahara and M. Imura(1978) Absorption of sediment-bound radionuclides through the digestive tract of marine demersal fishes. J. Radiat. Res. (19, 295-305.)
- 7) R. Nakamura, Y. Suzuki and T. Ueda(1975) Influences of marine sediment on the accumulation of radionuclides by green alga (*Ulva pertusa*). *ibid.*, 16, 224-236.

- 8) T. Ueda, R. Nakamura and Y. Suzuki(1976) Comparison of ^{115m}Cd accumulation from sediments and sea water by polychaete worms. Bull. Japan. Soc. Sci. Fish. 42:3, 299-306.
- 9) T. Ueda, R. Nakamura and Y. Suzuki(1977) Comparison of influence of sediments and sea-water on accumulation of radionuclides by worms. J. Radiat. Res. 18: 84-92.
- 10) T. Ueda, R. Nakamura and Y. Suzuki(1978) Comparison of influences of sediments and sea water on accumulation of radionuclides by marine organisms. *ibid.*, 19, : 93-99.
- 11) M. Nakahara, T. Koyanagi and M. Saiki(1975) Concentration of radioactive cobalt by seaweeds in the food chain. Impacts of nuclear releases into the aquatic environment. IAEA-SM-198/20, 301-312.
- 12) M. Nakahara and F.A. Cross(1978) Transfer of cobalt-60 from phytoplankton to the clam (*Mercenaria mercenaria*). Bull. Japan. Soc. Sci. Fish. 44:5, 419-425.
- 13) Y. Suzuki, M. Nakahara, R. Nakamura and T. Ueda (1978) Accumulation of radionuclides by marine fish - Retention and distribution of radionuclides from food. *ibid.*, (in press).

研究発表

- 1) R. Nakamura, Y. Suzuki and T. Ueda (1975) Influences of marine sediment on the accumulation of radionuclides by green alga (*Ulva pertusa*). J. Radiat. Res., 16, 224-236.
- 2) M. Nakahara, T. Koyanagi and M. Saiki(1975) Concentration of radioactive cobalt by seaweeds in the food chain. Impacts of nuclear releases into the aquatic environment. IAEA-SM-198/20, 301-312.
- 3) T. Ueda, R. Nakamura and Y. Suzuki(1976) Comparison of ^{115m}Cd accumulation from sediments and sea water by polychaete worms. Bull. Japan. Soc. Sci. Fish. 42:3, 299-306.
- 4) T. Ueda, R. Nakamura and Y. Suzuki(1977) Comparison of influence of sediments and sea water on accumulation of radionuclides by worms. J. Radiat. Res., 18, 84-92.
- 5) M. Nakahara, T. Koyanagi and M. Saiki(1977) Temperature effect on the concentration of radionuclides by marine organisms. *ibid.*, 18:2, 122-131.

- 6) Y.Suzuki, M. Nakahara and R.Nakamura(1978) Accumulation of cesium-137 by useful mollusca. Bull. Japan.Soc.Sci.Fish., 44:4, 325-329.
- 7) M.Nakahara and F.A.Cross(1978) Transfer of cobalt-60 from phytoplankton to the clam (*Mercenaria mercenaria*). *ibid.*, 44:5, 419-425.
- 8) T. Ueda, R. Nakamura and Y.Suzuki(1978) Comparison of influences of sediments and seawater on accumulation of radionuclides by marine organisms. J. Radiat.Res. 19:1, 93-99.
- 9) T.Koyanagi, M.Nakahara and M.Iimura(1978) Absorption of sediment-bound radionuclides through the digestive tract of marine demersal fishes. *ibid.*, 19:4, 295-305.
- 10) Y.Suzuki, M.Nakahara, R.Nakamura and T.Ueda (1978) Accumulation of radionuclides by marine fish - Retention and distribution of radionuclides from food.Bull.Japan.Soc.Sci.Fish. (in press).

I-2 海水、堆積物、生物間の元素の分配機構に関する研究

長屋 裕、中村 清、石川昌史、中村良一

Partition and accumulation of artificial radionuclides among sea water, sediment and biota

Yutaka NAGAYA,
Kiyoshi NAKAMURA,
Masafumi ISHIKAWA and
Ryoichi NAKAMURA

Abstract

Concerning the uptake of radionuclides by the useful marine algae, some investigations on the effects of physico-chemical forms of radioruthenium and of the coexistence of sediment were carried out using the radioisotope tracer technique.

Four ionic species separated from the nitrosylruthenium chlorocomplexes showed the different affinities for the algae. *Hizikia fusiforme* and *Ulva pertusa* tend to concentrate the cationic species, but *Porphyra tenera* rather prefers the anionic one.

Partition of radionuclides, ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{95}Zr - ^{95}Nb and ^{106}Ru - ^{106}Rh , among alga, sea water and sediment was examined by application of a three compartment model to the experimental results. The exponential formulas of distributions were obtained, and by comparisons of calculated transfer coefficients and their ratios, the effects of sediment competition against the alga in radionuclide uptake were examined quantitatively. Theoretical activity ratios of radionuclides in alga and sediment, in a equilibrium condition, were calculated, and the biological half lives of radionuclides in the alga were also shown.

Some radionuclides contained in the marine sediment samples, collected from the coastal area around a nuclear power station, were examined to know the patterns of sorption on and desorption from the sediment. ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{54}Mn contents in particle size fractions of the sediment were proportional directly to particle surface area of the fractions, suggesting the radionuclide sorption onto the particle surface. It was also suggested that a considerable part of ^{60}Co and ^{137}Cs were accumulated irreversibly in

the sediments.

Key words

radionuclide partition : competitive uptake :
physico-chemical behaviour : marine algae :
marine sediment : sea water

緒 言

放射性物質による海洋汚染に関し、室内実験の結果から予測された汚染の様相と野外において観察されたそれとは非常に異なる場合が多い。例えば海産生物のいわゆる“濃縮係数”は、室内でのR Iトレーサー実験、野外での放射性降下物等の分析又は安定同位元素分析のいずれの場合にもそれぞれかなり異なった値を示すことが多いとされている。このような差異の原因としては、海水中における放射性核種の物理化学的形態の変化、共存物質の影響、生物の代謝などが考えられている。しかしこのような海洋中での生物学的、化学的ならびに物理学的要因が放射性物質の挙動におよぼす効果についての系統的、総括的な研究はほとんどなされていないと言っても過言ではない。本研究グループはこれらの要因の影響について—その全容の解明は不可能であるが—少なくとも原子力発電所又は核燃料再処理工場などから沿岸海域に放出されるいくつかの核種について検討し、若干の知見を得た。

各 論

(1) ^{106}Ru の海水中における物理化学的形態と海藻による濃縮。¹⁾²⁾

核燃料再処理工場から放出される低レベル放射性廃液中に含まれる放射性核種の中で ^{106}Ru は海水中での挙動が複雑な点で注目されている。RI トレーサー実験により検討した結果、再処理工場廃液中の ^{106}Ru の中でかなり多く含まれると考えられるニトロシルルテニウム・クロロ錯体と単なるルテニウム・クロロ錯体とでは海産生物による濃縮の程度に差があることが判明した。またニトロシルルテニウム・クロロ錯体は海水中に添加すると2種の陰錯イオン、中性錯イオンおよび陽錯イオンを形成するが、二次元連続濾紙電気泳動法で分画して得たこれら4種の錯イオンを添加した海水中に海藻を投入し、 ^{106}Ru の濃縮を検討した。結果をTable 3に示す。

Table 3 Activity ratio of nitrosyl - ruthenium chloro-complexes in marine algae

Algae	Complexes			
	A ₁	A ₂	N	C ₁
<i>Hizikia fusiforme</i>	45	55	60	250
<i>Ulva Pertusa</i>	126	163	166	176
<i>Porphyra tennera</i>	25	63	40	30

褐藻ヒジキ (*Hizikia fusiforme*) と緑藻アナアオサ (*Ulva pertusa*) では錯イオン種の濃縮され易さは、陽錯イオン種 (C₁) > 中性錯イオン種 (N) > 陰性錯イオン種 (A₁, A₂) の順であり、特にヒジキにおける陽錯イオン種の濃縮が著るしい。これに反し紅藻アサクサノリ (*Porphyra tenera*) では、陰錯イオン種の1つで高い濃縮を示す。また同一の錯イオン種に対しても海藻の種類によって濃縮の程度が異なっている。これらの変動は、海藻の形態の差 — 比表面積 (単位重量当りの表面積) の差 — と、海藻の体表面構成々分の差異等によるものと考えられる。

(2) 海藻・海水・海底堆積物間の放射性核種の分配 ³⁾⁴⁾
海藻による放射性核種の海水中からの蓄積を検討する

際に、放射性核種の物理化学的形態の効果以上に考慮すべき問題の一つに海底堆積物の共存がある。沿岸海域の海藻の多くは定着性で、したがってその生息環境には海底堆積物が大量に存在する。また海底堆積物は放射性核種の収着能力が極めて大きく、ある時は海水中からの放射性核種の除去者 (EXTRACTOR) として、また他の場合には海水中への供給源 (SOURCE) として重要な役割を果たすとされている。この点を説明する為に RI トレーサー実験により、日本沿岸各地で普通に見られるアナアオサ (*Ulva pertusa*) の海底堆積物共存下での放射性核種 (^{60}Co , ^{137}Cs , ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{106}Ru - ^{106}Rh) の蓄積の様相を検討した。実験結果の解析にはコンパートメント・モデルによる放射性核種の分配の数学的解析法を適用した。すなわち、海藻、海水および海底堆積物をそれぞれコンパートメント 1, 2 および 3 とし、時間 t における各コンパートメントへの RI の分配率を A_t, W_t および S_t , コンパートメント i から j への移行係数を K_{ij} とすると分配率は

$$\left. \begin{aligned} dA_t/dt &= -K_{12} A_t + K_{21} W_t \\ dW_t/dt &= K_{12} A_t - (K_{21} + K_{23}) W_t + K_{32} S_t \\ dS_t/dt &= K_{23} W_t - K_{32} S_t \end{aligned} \right\} (1)$$

のように表わされる。但し、コンパートメント 1 と 3 となわち、海底堆積物と海藻間の直接の RI の授受はないものと考えている。この(1)式の解は、

$$\left. \begin{aligned} A_t &= C_{A1} \cdot e^{-\lambda_1 t} + C_{A2} \cdot e^{-\lambda_2 t} + C_{A3} \\ W_t &= C_{W1} \cdot e^{-\lambda_1 t} + C_{W2} \cdot e^{-\lambda_2 t} + C_{W3} \\ S_t &= C_{S1} \cdot e^{-\lambda_1 t} + C_{S2} \cdot e^{-\lambda_2 t} + C_{S3} \end{aligned} \right\} (2)$$

で与えられる。C および λ は常数である。実験で得た分配率の経時変化のあてはめにより(2)式を求め、これから(1)式の K_{ij} を計算した。比較の都合上、海藻と海底堆積物が同量存在する場合に換算した海藻・海水間および海水・堆積物間の移行係数の比を計算すると、Table 4 に示すようになる。

Table 4 The ratios of average transfer coefficients

	K_{21}/K_{12}	K_{23}^1/K_{32}
^{60}Co	0.21 ± 0.05	4.00 ± 0.50
^{137}Cs	0.03 ± 0.01	0.07 ± 0.01
$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$	2.33 ± 0.87	1.50 ± 0.23
$^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$	0.90 ± 0.51	0.32 ± 0.13

移行係数比 K_{21}/K_{12} は海水から海藻への、また K_{23}^1/K_{32} は海水から堆積物への分配され易さの尺度とみなし得るので、これを“分配効率”と仮に定義すると、 ^{60}Co の場合は海藻よりも堆積物への分配効率が20倍も高く、

共存堆積物の影響の高いことを示している。 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ も堆積物に蓄積され易いが、この場合は海藻への分配効率が堆積物へのそれを上まわっているため共存堆積物の効果は ^{60}Co の場合ほど大きくない。 ^{137}Cs は海藻・堆積物のどちらへも分配され難いが、堆積物への分配効率がややまざっている。 $^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$ (ニトロシルルテニウム・ニトラト錯体) は ^{137}Cs よりも海藻および堆積物へ分配され易いが、この場合は海藻への分配効率の方が高い値を示す。得られた移行係数を用いて、分配が平衡状態に達した時の海水・海藻間および海水・堆積物間の Activity Ratio と海藻中での RI の生物学的半減期を計算すると、Table 5 に示す値が得られる。

Table 5 The activity ratios for green alga (*Ulva pertusa*) and marine sediment, and biological half lives for green alga

	Activity ratio		Biological half life (days) for <i>Ulva pertusa</i>
	<i>Ulva pertusa</i>	marine sediment	
^{60}Co	210	4000	10
^{137}Cs	30	70	7
$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$	2330	1500	26
$^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$	900	320	24

これらの値を現在までに報告されている数値と比較すると、海底堆積物の Activity Ratio の一部を除き、ほぼ一致している。

次に、海水と堆積物の存在量比が天然に近い状態での分配を検討した。実験に際しては平均水深4mの閉鎖型内湾を想定して、海水・堆積物の重量比を100:1とし、また堆積物の組成・成分などの差を考慮して、千葉福井、茨城の3県でアナアオサ生棲地域5点から採取した堆積物を用いた。Table 6 に結果を示す。

Table 6 Average distributions(%) in 14 days after initial abbtion

	green alga	sea water	sediment
^{80}Co	4 ± 3	9 ± 5	87 ± 8
^{137}Cs	0.8 ± 0.2	82 ± 13	17 ± 13
$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$	41 ± 4	5 ± 1	54 ± 3
$^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$	26 ± 10	11 ± 3	63 ± 12

^{60}Co はほとんどが海底堆積物中に移行するが、 ^{137}Cs はほとんどが海水中に残留する。 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ は海藻と堆積物にほぼ同程度分配される。 $^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$ の場合は海藻への分配は堆積物のその約1/2であり、海水中には約10%が残る。また移行係数から算出した海水・堆積物間の Activity Ratio 値を Table 7 に示す。

Table 7 Average activity ratios in marine sediments

^{60}Co	4000 ± 1300
^{137}Cs	30 ± 20
$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$	1800 ± 300
$^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$	900 ± 400

(3) 海底堆積物への放射性核種の収着⁴⁾⁵⁾

海底堆積物によるRI蓄積の様相をRIトレーサー実験以外に、現実の野外試料について検討するため、福井県敦賀市の原子力発電所周辺の海底堆積物を試料として実験した。海底堆積物を篩別して粒度別の分画とし、それぞれについて人工および天然放射性核種含有量を測定

Table 8 The radionuclide distributions in the different particlesize fractions of the sediment collected from area C in June, 1974

Diameter(mm)		Weight	Surface area*	^{137}Cs	^{60}Co	$^{54}\text{Mn}^{**}$	$^{40}\text{K}^{**}$	$^{238}\text{U}^{**}$
range	mean	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)
2.000-0.500	1.250	3.2	0.2	0.3	1.6	2.2	2.0	5.1
0.500-0.250	0.375	8.5	1.4	3.9	3.2	3.2	8.5	10.6
0.250-0.125	0.188	23.0	10.1	16.2	10.8	19.6	23.1	19.4
0.125-0.075	0.100	16.9	10.4	15.5	10.5	12.5	20.1	17.5
Below 0.075	0.038	48.4	77.9	64.1	73.9	62.5	46.3	47.4
Total		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

* Calculated using the mean diameter and the weight of the fraction.

** Determined by gamma-ray spectrometry.

して、その分画の重量および平均粒径から算出した全粒子表面積との相関々係を吟味した。結果はTable 8に示してある。人工放射性核種 ^{60}Co 、 ^{137}Cs および ^{54}Mn 量(%)は粒子表面積(%)と正比例の関係にあり、一方天然放射性核種 ^{40}K と ^{238}U 量(%)は粒子重量(%)と正比例の関係にあって、人工放射性核種は粒子表面へ収着されており、また天然放射性核種は堆積物粒子全体に含まれていることを示唆している。

また浦底湾および周辺の海底堆積物を8規定塩酸で抽出し、放射化学分析した結果と、未処理堆積物をγ線スペクトル分析し、得た結果を比較するとFig.2に示すように ^{60}Co および ^{137}Cs の酸可溶部分は全体量の約80%である。8規定塩酸ですら抽出不可能な部分が存在することは、海底堆積物への放射性核種の収着過程は不可逆的な場合が少なくなく、通常観察される海底堆積物中の放射性核種濃度の経時的低下は、Decay Outによる場合を除けば、堆積物粒子の流亡又は非汚染粒子

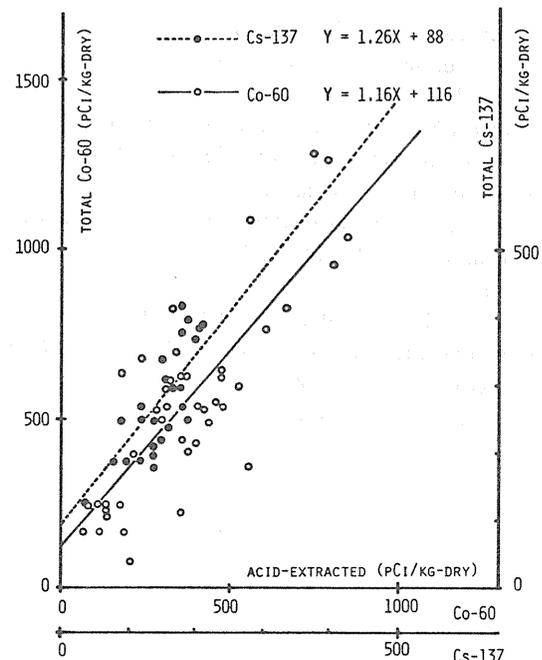


Fig.2 Correlations of the amounts of total and acid-extracted radionuclides in the sediments.

による稀釈効果によるものが多く、海水中への溶出によるものはむしろ少ないのではないかと考えられる。

研究発表

- 1) ISHIKAWA,M., KOYANAGI,T., and M.SAIKI (1976)
Studies on the Chemical Behaviour of ^{106}Ru in Sea Water and its uptake by Marine Organisms – I. Accumulation and Excretion of ^{106}Ru by Clam
Bull.Jap.Soc.Sci.Fish., 42, 287–297
- 2) ISHIKAWA,M.(1976)
Studies on the Chemical Behaviour of ^{106}Ru in Sea Water and its uptake by Marine Organisms. – Uptake of Ionic Species by Marine Algae –
In First Report on Estimation of Dose from Exposure to Natural and Manmade Radiation in the Environment. NIRS-R-5, NIRS, Chiba, 17–19
- 3) NAKAMURA,R., SUZUKI,Y., and T.UEDA (1975)
Influences of Marine Sediment on the Accumulation of Radionuclides by Green Alga (*Ulva pertusa*)
J.Radiat.Res., 16, 224–236
- 4) NAKAMURA,R., SUZUKI,Y., and T.UEDA (1977)
Distribution of Radionuclides among green Alga, Marine Sediments and Sea Water
J.Radiat.Res., 18, 322–330
- 5) NAGAYA,Y., and K.NAKAMURA(1975)
Transport and Accumulation of Radiocobalt in the Marine Sediment of Urazoko Bay
In Impacts of Nuclear Releases into the Aquatic Environment, IAEA-SM-198, IAEA, Vienna, 313–329
- 6) NAKAMURA,K., and Y.NAGAYA(1977)
Dispersion and Accumulation of Radionuclide in Sediment of Urazoko Bay–II
J.Oceanogr.Soc.Japan, 33, 1–5

I - 3 海洋環境試料中の微量安定元素濃度に関する調査研究

鈴木浜治、石井紀明、飯村満江、小柳卓

Studies on concentration of minor stable elements in marine environmental samples

Hamaji SUZUKI,
Toshiaki ISHII,
Mitsue IIMURA and
Taku KOYANAGI

Abstract

Information on the physico-chemical state and quantity of stable elements in marine environment is frequently required to analyze the radioecological behavior of radionuclides released from nuclear facilities into the sea. In this work, determination of stable Mn, Fe, Co, Zn, Zr, Rb, Cs and some rare earth elements (Ce, Eu, Tb, Yb and Lu) in seawater and marine organisms was carried out and the concentration factors were estimated.

Seawater and marine organisms were collected on the seashore of Ibaraki Prefecture and analysed by means of neutron activation analysis or atomic absorption spectrometry depending on the elements or samples.

Average concentration factors of the rare earth elements by marine organisms are estimated as 3×10^1 : muscle of fish, 5×10^2 : soft part of clams, and 2×10^2 : algae, respectively. Concentration factors by muscle of fishes were 10^3 : Fe, 2×10^2 : Co, 5×10^2 : Zn, and 5×10^1 : Cs, and those by soft part of shellfishes were 10^4 : Fe, 10^3 : Co, 2×10^3 : Zn, and 10^1 : Cs, whereas those by algae were 2×10^4 : Fe, 5×10^2 : Co, 10^3 : Zn, and 3×10^1 : Cs, respectively.

The high concentration factors for numerous stable elements by shellfishes and algae suggested their suitabilities to the indicator organisms for monitoring of marine pollution by these heavy metals and corresponding radioisotopes and also their significant contribution to the internal radiation exposure of man as radioactive seafoods.

Key words

stable element : physico-chemical state :
marine organism : sea water : concentration factor :
neutron activation analysis : atomic absorption spectro-
metry

緒言

原子力発電所および核燃料再処理施設から海洋環境に放出される放射性核種の環境中での挙動および生物への移行は海水中に存在するその核種の安定同位元素の存在形態や濃度に大きく左右される。したがって、放射性核種の海洋環境中での挙動を解明するにあたっては、R I トレーサー実験や環境試料中の放射性核種の濃度の実測と共に、常に安定元素の濃度や挙動を把握しておく必要がある。また、生物と海水中の安定元素から濃縮係数を求める事が出来るので、濃縮係数を求める他の2つの方法(ラジオアイソトープトレーサー実験と放射性降下物分析)の結果と照合して、海産生物の放射能汚染を推定する事が可能である。

そこで、本研究では茨城県那珂湊市の沿岸の表面海水中のMn、Co、Zn、ZrおよびCe、Euを含む5希土類元素の濃度を放射化分析法を用いて求め、Mnと希土類元素については海水中の存在形態をもあわせて考察した。

一方、海産生物中の安定元素の濃度については、茨城県沿岸に生息する海産魚、無脊椎動物および海藻試料中

の Rb、Cs、Fe、Co、Zn、Zr および希土類元素を放射化分析法と原子吸光分析法とを用いて定量し、重要視される放射性核種の魚貝藻類への濃縮とそのレベルをこれらの安定元素の定量結果から推定した。

(1) 海水および海産生物中の希土類元素濃度¹⁾

核燃料再処理施設から放出される低レベル放射性廃液中には ¹⁴⁴Ce 及び同族の放射性希土類元素が多く含まれることが予測されている。このため、海水中の希土類元素の濃度とその存在状態および海産生物中の含量を放射化分析法で求め、海産生物による濃縮レベルを推定した。

海水試料はその存在状態を確かめるため、あらかじめ塩酸で pH 1 にし、孔径 0.22 μm のフィルターで濾過した濾過海水とその残渣、及び濾過後酸性にした濾過海水と残渣の試料について分析した。その結果を Table 9 に示す。Ce、Eu、Tb の各元素は 80 ~ 90 %、残りの Yb、Lu の二元素も 50 % 以上が粒径 0.22 μm 以上の粒子状の存在形態を示した。

Table 9 Concentration of rare earth elements (Ce, Eu, Tb, Yb and Lu) in seawater (C₀ : 18.73%)

Sample	Concentration of rare earth elements (μg/L)					
	Ce	Eu	Tb	Yb	Lu	
Acidified with HCl, after filtration	Filtrate (F _a)	0.007	0.0003	0.0008	0.0021	0.0003
	Residue	0.051	0.0013	0.0034	0.0035	0.0004
	Total (T _a)	0.058	0.0016	0.0042	0.0056	0.0007
	[Ratio (F _a /T _a × 100)]	12	18	19	37	42]
Acidified with HCl, before filtration	Filtrate (F _b)	0.060	0.0021	0.0036	0.0062	0.0007
	Residue	0.016	0.0003	0.0019	0.0010	0.0001
	Total (T _b)	0.076	0.0024	0.0055	0.0072	0.0008
	[Ratio (F _b /T _b × 100)]	78	87	65	86	87]
Ratio (F _a /T _b × 100)						
9 12 14 29 37						

Ratio : percent of solute in total concentration

しかし、これらの粒子状の形態も酸処理によって 65 ~ 90 % が海水中に溶存する。したがって、これらの希土類元素は大部分が懸濁物などに吸着した粒子状の形態で存在する。

海産生物中のこれらの元素の含量と海水中の全濃度

および 0.22 μm 以下の存在形態を示す溶存濃度から求めた各元素の濃縮係数を Table 10 と Table 11 に示

Table 10 Concentration factor calculated from total amount of rare earth elements in seawater.

Sample	Concentration factor					
		Organ	Ce	Eu	Tb	Yb
Kind of marine organisms						
Flounder (<i>Paralichthys olivaceus</i>)	Muscle	18	17	5	39	13
Yellowtail (<i>Seriola quinqueradiata</i>)	Muscle	31	58	13	54	13
Immature anchovy (<i>Engraulis japonica</i>)	Whole body	97	92	150	210	75
Clam (<i>Meretrix lusoria</i>)	Soft part	520	860	460	750	300
Green alga (<i>Ulva pertusa</i>)	Whole body	520	320	180	230	300
Brown alga (<i>Sargassum fulvellum</i>)	Whole body	290	230	320	140	350
Brown alga (<i>Undaria pinnatifida</i>)	Whole body	49	38	54	85	110
Brown alga (<i>Hizikia fusiforme</i>)	Whole body	250	100	110	94	280

Table 11 Concentration factor calculated from soluble forms of rare earth elements in seawater.

Sample	Concentration factor					
		Organ	Ce	Eu	Tb	Yb
Kind of marine organisms						
Flounder (<i>Paralichthys olivaceus</i>)	Muscle	200	130	38	130	33
Yellowtail (<i>Seriola quinqueradiata</i>)	Muscle	340	470	88	190	33
Immature anchovy (<i>Engraulis japonica</i>)	Whole body	1050	730	1040	710	200
Clam (<i>Meretrix lusoria</i>)	Soft part	5610	6870	3180	2590	770
Green alga (<i>Ulva pertusa</i>)	Whole body	5590	2570	1210	800	800
Brown alga (<i>Sargassum fulvellum</i>)	Whole body	3190	1800	2230	460	930
Brown alga (<i>Undaria pinnatifida</i>)	Whole body	530	300	380	290	300
Brown alga (<i>Hizikia fusiforme</i>)	Whole body	2740	800	780	320	730

した。海産生物による希土類元素の取り込みにおいて、粒径 0.22 μm 以下の溶存状態のもののみが利用されるとするならば、その濃縮係数は全量で計算した場合より約一桁大きくなる。もし、廃液中の放射性 Ce が放出口付近で、かなりの間、可溶性の状態を保つならば、その周辺に生息する海産生物は Table 11 に示したレベルまで汚染すると推定される。

(2) 海水および海産生物中のMnの定量

海産生物中の放射性Mnの蓄積は貝や海藻で見い出され、特にホタテ貝の腎臓で顕著な濃縮が示されている。そこで、海産生物による放射性Mnの濃縮レベルを推定するため、海水、貝類と海藻中のMnの定量を行った。

海水中のMnの分析結果をTable 12に示した。海

Table 12 Concentration of manganese in seawater

sample	treatment	concentration
seawater 1	0.45 μm filt.	1.15±0.01 μg/l
seawater 1	HCl-0.45 μm filt.	1.30±0.01
seawater 2	0.45 μm filt.	2.39±0.03
residue		0.34±0.01
total		2.73±0.03
seawater 3	0.45 μm filt.	3.14±0.05
residue		0.85±0.01
total		3.99±0.05
seawater 3	HCl-0.45 μm filt.	4.46±0.08
residue		0.31±0.04
total		4.77±0.09
		AV. 2.93 μg/l

水中のMnは80%以上が粒径0.45 μm以下の溶存状態を示し、またキレート樹脂(Chelex-100)により捕集された。このことはMnが海水中でMn⁺⁺の化学形で存在するものと推定される。しかし、沿岸海水ではその濃度はかなり変動することが認められた。

海産生物中の濃度と濃縮係数をTable 13に示す。貝類の軟体部の濃縮係数は500程度の値を示している。またハマグリ軟体部の部位別の濃縮を求めると消化管が最も高く、その値は530であり、次で中腸腺(肝臓)、腎臓の順であり、ホタテ貝で見られている腎臓での顕著な濃縮はハマグリでは認められなかった。一方、海藻類での濃縮は170から1600倍のレベルを示し、種によって、かなり異なることが認められた。これらのうち、ウミトラノオは著しく高い濃縮を示し、放射性Mnによる海洋汚染の指標生物として利用できることがわかった。

Table 13 Content and concentration factor of manganese in soft part of shellfishes and seaweeds

Sample name	Content mg/kg wet	Concentration factor
Igai <u>Mytilus coruscus</u>	1.63	560
Hamaguri <u>Meretrix lamarckii</u>	1.22	420
Aosa <u>Ulva pertusa</u>	1.30	440
Wakame <u>Undaria pinnatifida</u>	0.50	170
Hijiki <u>Hizikia fusiforme</u>	0.71	240
Umitoranoo <u>Sargassum thunbergii</u>	4.75	1620
Nejimoku <u>S. sargassum</u>	1.69	580
Obamoku <u>S. ringgoldianum</u>	0.95	320
Hondawara <u>S. fulvellum</u>	1.87	640

(3) 海水および海産生物中のZrの定量

核分裂生成物の1つである⁹⁵Zrの同位体のZrは人体組織中の微量元素のうち、Fe、Zn、Si、Rbに次いで多い元素であり、成人の体内量はおおよそ250 mgと推定され、組織中によく取り込まれる元素である。一般に、海洋環境物質中のZrの濃度は陸上のそれより少く、人体への寄与は海産食品より農、畜産物によるとされている。しかしながら、日本人は海産食品をかなり摂取する。したがって、海洋経由の⁹⁵Zrによる体内被曝も無視出来ないと考えられる。そこで、海産生物がどの程度Zrを蓄積するかを推定するため、海水、海産生物試料について分析を試みた。

東海村沖合2 kmから6 kmの海水中のZrの分析結果をTable 14に示した。その濃度は0.08 μg/lから0.19 μg/lを示し、沖合に行くに従って減少する傾

Table 14 Concentration of zirconium in seawater at Tokai coast.

Sea water	Sampling point	Sampling date	Zr concentration μg/l
1	2 km	Sep. 19, '75	0.19±0.02
2	5	"	0.11±0.02
3	5	Nov. 18, '75	0.08±0.02
4	2	Jul. 22, '76	0.17±0.02
"	"	"	0.18±0.03
5	6	Jul. 22, '76	0.15±0.02
"	"	"	0.15±0.02
			AV. 0.14 μg/l

向がみられ、平均濃度は0.14 μg/lであった。この平均濃度を用いて、Table 15 に示した海産生物中の

濃度から濃縮係数を求めると、貝類では1,100から1,800の値を示し、藻類では2,600から3,700

Table 15 Content and Concentration factor of zirconium in soft part of shellfishes and seaweeds

			Sampling site	Sampling date	Content	Concentration factor
					μg/kg wet	
Hamaguri	<u>Meretrix lamarekii</u>	soft part	Oarai	Jul. 15, '75	214±24	1.5×10 ³
Kotamagai	<u>Gomphina melanaegis</u>	soft part		Dec. 1, '75	160±33	1.1
Igai	<u>Mytilus coruscus</u>	soft part	Tokai	Oct. 26, '72	257±19	1.8
Hijiki	<u>Hizikia fusiforme</u>	stipe and lamina	Isozaki	Feb. 19, '75	528±98	3.7
"	"	"		Mar. 17, '75	520±120	3.7
Umitoranoo	<u>Sargassum thunbergii</u>	stipe and lamina	Isozaki	Feb. 18, '75	373±65	2.6
"	"	"		Mar. 17, '75	337±88	2.4
"	"	"		Apr. 17, '75	417±52	2.9
"	"	"		Jan. 23, '76	527±125	3.7
Arame	<u>Eisenia bicyclis</u>	stipe and lamina	Izura	Apr. 16, '76	466±113	3.3

の高い値を示した。

海水中のZrは沈降、吸着されやすく、海底土やプランクトンなどに蓄積される。したがって、貝類の高い蓄積は海水からの寄与のみではなく、プランクトンやデトリタス(腐泥)の摂取による寄与も大きいものと考えられる。また、藻類への蓄積は生体表面への物理的吸着および懸濁物を通しての吸着が考えられる。いずれにしてもこれらの高い濃縮係数は⁹⁵Zrの海洋汚染に対して指標生物として使用出来る可能性を示唆するとともに海産食品としての摂取による人体への線量寄与も無視出来ないものと考えられる。

(4) 海産物中の微量元素の定量²⁾

放射性廃液中にはこれまで述べた⁵⁴Mn、⁹⁵Zr、¹⁴⁴Ceなどの核種とともに、重要視される核種として⁵⁹Fe、⁶⁰Co、⁶⁵Zn、⁹⁰Sr、¹⁰⁶Ruおよび¹³⁷Csがある。これらの核種も海洋放射生態系中での挙動について解明する場合、それぞれに対応する安定元素との相関を明らかにすることが必要となる。

このため、海水中のCo、Znおよび海産生物中のFe、Co、Zn、RbおよびCsについて原子吸光分析法と放

射化分析法を用いて定量を行った。

魚肉と海産無脊椎動物の可食部中のFe、Co、Zn、RbとCsの濃度をTable 16と17に示した。無脊椎動物のCo濃度は魚肉のそれと比べて1桁以上高く、特に貝類にその傾向が著しい。これに対して、Csの濃度は魚肉で高く、Coとは異なった傾向を示している。

Table 18に海藻中のこれらの元素の濃度を示した。アルカリ元素であるRbとCsでは、種間の濃度差は小

Table 16 Concentration of Fe, Co, Zn, Rb and Cs in muscle of marine fishes

Sample name	Fe mg/kg wet	Co μg/kg wet	Zn mg/kg wet	Rb mg/kg wet	Cs μg/kg wet
Hirame <u>Paralichthys olivaceus</u>	2.5	2.6	3.5	0.76	24
Ishimochi <u>Argyrosomus argentatus</u>	4.5	3.8	8.2	0.51	14
Ainame <u>Hexagrammos otakii</u>	2.3	2.3	4.6	0.66	16
Usumebaru <u>Sebastes thompsoni</u>	2.4	1.6	3.8	0.87	35
Gomasoi <u>Sebastes nivosus</u>	1.0	1.6	3.7	0.56	22
Suzuki <u>Lateolabrax japonicus</u>	2.2	1.5	4.0	0.61	28
Buri(Inada) <u>Seriola quinqueradiata</u>	5.1	5.0	6.2	-	14
Chidai <u>Eyinnis japonica</u> Muscle	1.8	2.2	4.0	0.66	18
Eyinnis <u>Eyinnis japonica</u> Whole body	9.9	6.3	8.4	-	13
Shirasu(Whole body) <u>Engraulis japonica</u>	3.2	4.2	9.9	0.57	9

Table 17 Concentration of Fe, Co, Zn, Rb and Cs in marine invertebrate

Sample name		Fe mg/kg wet	Co μg/kg wet	Zn mg/kg wet	Rb mg/kg wet	Cs μg/kg wet
Kurumabii <i>Penaeus japonicus</i>	Muscle (abdomen)	17	12	15	0.96	12
Shako <i>Squilla oratoria</i>	Muscle	6.8	38	28	0.75	6.7
Kouika <i>Sepia esculenta</i>	Muscle (trunk)	3.3	13	15	0.75	3.4
Hamaguri <i>Meretrix lamarekii</i>	Soft part	25	140	14	0.89	4.6
Kotamagai <i>Gomphina melanaegis</i>	Soft part	19	150	14	1.1	6.1
Igai <i>Mytilus coruscus</i>	Soft part	36	140	38	-	5.0
Awabi <i>Haliotis</i> sp.	Muscle (Viscera)	30 520	63 430	9.5 41	-	7.0 4.7

Table 18 Concentration of Fe, Co, Zn, Rb and Cs in marine alga

Sample name		Fe mg/kg wet	Co μg/kg wet	Zn mg/kg wet	Rb mg/kg wet	Cs μg/kg wet
Anaosa <i>Ulva pertusa</i>		110	31	3.4	2.4	14
Aonori <i>Enteromorpha</i> sp.		65	29	3.3	2.6	6.0
Tsunomata <i>Chondrus ocellatus</i>		11	48	30	2.5	6.5
Harigane <i>Ahnfeltia paradoxa</i>		65	220	11	3.9	15
Wakame <i>Undaria pinnatifida</i>		5.5	18	3.4	3.2	5.8
Arame <i>Eisenia bicyclis</i>		5.1	19	6.5	4.2	11
Hijiki <i>Hizikia fusiforme</i>		8.2	17	2.1	5.5	7.3
Umitoranoo <i>Sargassum thunbergii</i>		73	64	7.6	4.5	12
Nejimoku <i>S. sagamianum</i>		18	46	3.6	-	9.6
Obamoku <i>S. ringgoldianum</i>		7.7	40	6.5	4.4	6.7
Sargassum <i>S. sp.</i>		46	89	6.2	4.2	8.0
Sargassum <i>S. sp.</i>		15	27	3.9	4.6	8.5

さいが、Fe、Co、およびZnでは大きな濃度差が認められる。また、同じホンダワラ属の5種（ウミトラノオ、ネジモク、オオバモク、未同定2種）についてFeの濃度を比較すると、ウミトラノオとオオバモクとでは10倍近い濃度差を示し、同属内で種特異性が認められた。

海産生物の可食部における各元素の濃縮係数をTable 19に示した。これまでに分析した元素のうち、海藻によるFeの濃縮係数が最も大きく、 10^4 のレベルを示した。また、藻類の濃縮係数はFe以外の元素でも大きく、それらの値が放射性元素に対しても適用できるとすれば、それ自身の放射能汚染だけでなく海洋での食物連鎖における放射性核種の移行に関しても重

要性をもつ事が考えられる。

Table 19 Concentration factors for trace elements of various marine organisms

Marine organisms	Part	Fe	Co	Zn	Rb	Cs
Fish	Muscle	10^3	2×10	5×10^2	6	5×10
Crustacean	Muscle	6×10^3	2×10^2	2×10^3	7	2×10
	Soft part	10^4	10^3	2×10^3	8	10
Shellfish						
Green alga	Whole body	4×10^4	3×10^2	3×10^2	2×10	3×10
Red alga	Whole body	2×10^4	10^3	2×10^3	3×10	3×10
Brown alga	Whole body	10^4	3×10^2	5×10^2	4×10	2×10
Sea water μg/l		2*	0.12	10	120*	0.4*

* cited from "Chemical oceanography"

研究発表

1) Suzuki, H., T.Koyanagi, M.Saiki
International Symposium on Radiological Impacts of Release from Nuclear Facilities into Aquatic Environments (IAEA-SM-198/19) PP-89 1975

2) 石井紀明・鈴木浜治・小柳卓

日本水産学会誌 44巻 2号 pp.155~162
(1978)

I - 4 放射性核種の微量分析による海洋の放射生態学的調査研究

上田泰司、長屋 裕、鈴木 謙、中村 清
中村良一

Marine radioecological field study around nuclear facility

Taishi UEDA,
Yutaka NAGAYA,
Yuzuru SUZUKI,
Kiyoshi NAKAMURA and
Ryoichi NAKAMURA

Abstract

In order to know factors which influence ^{60}Co contamination of sargassoes in Urazoko Bay, where a nuclear power plant is located, correlations between the contaminations of the algae and of the marine environment were examined, based on field data observed since January 1971.

It was found that ; [1] correlation between the ^{60}Co concentration in sargassoes (Y_{algae} pCi/kg raw weight) and distance from discharge outlet of the nuclear power plant to the sampling points (d km) was expressed by a function, ($Y_{\text{algae}} = C \cdot \exp(-kd)$), where C and k are constants, and k increased successively from 0.388 in Nov. 1971 to 1.200 in Nov. 1974, whereas C decreased from 120 to 27 during the same period. [2] ^{60}Co content in the sargassoes seemed to be contributed dominantly by the dislodged ^{60}Co from heavily contaminated sediment rather than freshly discharged ^{60}Co from the power plant. The amount of dislodged ^{60}Co was estimated from both the ^{60}Co distribution in marine sediment in Urazoko Bay and results of a tracer experiment concerning the dislodgement of ^{60}Co from marine sediment.

On the other hand, contents of ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{60}Co in surface sediments were investigated. The main source of ^{90}Sr and ^{137}Cs was recognized to be radioactive fallout, whereas ^{60}Co was considered to originate from the nuclear power plant.

Using the ^{137}Cs concentration as an indicator of sorption capacity of the sediment, the behaviour of ^{60}Co was investigated. No seasonal variation was observed in the distribution pattern of $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ ratio and the retention of the heavy initial discharge in 1969 was considered to dominate the radionuclide

level in the sediment.

Correlation of $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ ratio in the sediment and the distance from the discharge outlet was expressed by a simple exponential function of the distance. It was suggested that the contamination is spreading out gradually to the outer region of Urazoko Bay.

Key words

^{60}Co ; ^{137}Cs ; marine sediment; marine algae; sargassoes; dislodgement; semi-closed bay; exponential function

緒言

海洋の放射能汚染は、核実験に起因する放射性降下物による全地球的な広域汚染と、原子力施設からの沿岸放出による局地的汚染に大別される。局地的汚染はさらに地形・海流によって外海に面した開放型(open)の場合と陸地に入りこんだ閉鎖型(closed)の場合とに大別できる。開放型の場合は放出された放射性核種は潮流により混合・稀釈されまた拡散されて、その海域海水中の放射性核種濃度は小さくなり、したがって生物の汚染も小さくなる。これに反して閉鎖型地形の場合は放射性核種が永くその海域にとどまり、生物の汚染も大きくなる。この地形・海流と生物の汚染との関係を図に示すと次の様になる(Fig 3)。すなわち閉鎖型の極端な場合として池の様に出口のない海域を考えると、その核種の物理的減衰を無視すれば、放出された放射性核種量は時間

が経過してもその海域から失なわれずX軸と平行である。一方開放型の極端な場合として放出された放射性核種が直ちに拡散されてしまう場合を想定すれば、その海域の放射性核種量はY軸上で100から0になる。現実にはこの様に極端な閉鎖型や開放型は存在しないが、例えば

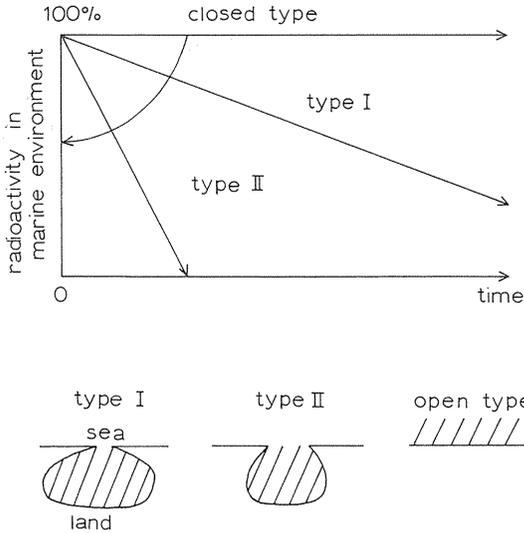


Fig. 3 The classification of contamination in coastal sea

或る海況の場合を図中の type I とすればそれよりさらに開放的な場合は type II となる様に、開放的な程度が大きくなればなる程傾斜が急になって矢印の方向の様相を示し、次第にY軸に接近する。この様に局地的汚染は closed type から open type までの 90° の角度の中のいずれかの値をとると考え得る。

本調査研究では閉鎖型の1つとして福井県浦底湾を対象として放出された ^{60}Co の放射生態学的検討を行なった。

方法

1966年以降、浦底湾およびその附近海域から海底堆積物、海藻試料を採取して分析した。試料採集は原子力発電所放水口からの距離によった。海底堆積物はカナ

型採泥器により表面 2 cm 深以内から採取し、2 mm 以上のものを篩別して除き、赤外灯で乾燥し分析に供した。乾燥堆積物 250 ~ 500 g を塩酸で抽出し、 ^{60}Co についてはイオン交換法、 ^{137}Cs についてはイオン交換法とリンモリブデン酸アンモン共沈法で分離し、最終的にはそれぞれアントラニル酸コバルトおよび塩化白金酸セレウムとして秤量し、 β 線を計測した。生物試料として(定着生物の)ホンダワラ (*Sargassum thunbergii*) を 2 ~ 3 kg 集め、乾燥後 450°C で 48 時間灰化して ^{60}Co の放射化学分析を行なった。分析方法は堆積物試料の場合と同様である。

結果

放水口附近の海底堆積物中の ^{60}Co および ^{137}Cs 濃度 (pCi/kg-dry) と放出された放射性物質 (^3H を除く total gamma activity, mCi/3ヶ月) の経年変化を Fig. 4 に示す。原子力発電所稼働開始直後

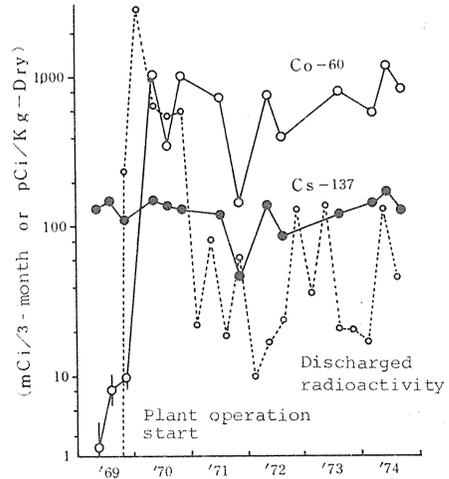


Fig. 4 Variations of the discharged radioactivity and the concentrations of ^{137}Cs and ^{60}Co in the sediments of area A, during 1969-1974.

に放出量がピークに達し、その後急激に低下しているのに対し、 ^{60}Co 濃度は稼働開始直後の急激な増加によって到達したレベルを維持し、海底堆積物による蓄積が大であることを示している。 ^{137}Cs は、稼働前後でのレベ

ルの変動は観察されず、そのほとんどは放射性降下物起源のものであると考えられる。また湾内各地点の堆積物への ^{60}Co 分布の様相をFig. 5に示した。X軸は放出口からの距離であり、Y軸は ^{60}Co と ^{137}Cs の比である。 ^{60}Co と ^{137}Cs の比を用いるのは次の理由からである。すなわち前の(2)に述べた様に ^{60}Co や ^{137}Cs 等の人工放射性核種の多くは粒子表面に吸着されて没降するので、粒径の小さい(fine)堆積物の汚染はより粒径の大きい(coarse)堆積物のそれよりも高くなる。したがって粒子粒

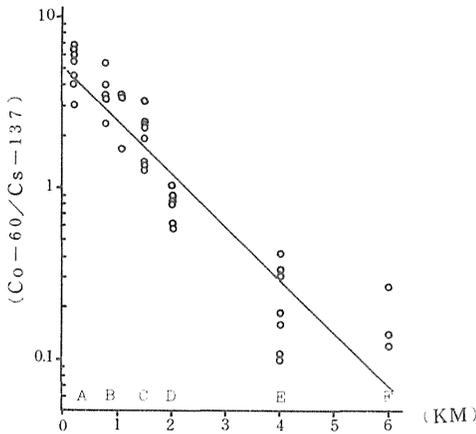


Fig. 5 The $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ ratios in the sediments versus the distance from the plant.

経組成の異なる地点から採取した堆積物の汚染程度を比較する場合には、直接分析値を比較するよりも、放射性降下物として一様に海洋に存在し、堆積物にその粒径に応じたレベルまで吸着されている ^{137}Cs を堆積物の人工放射性核種蓄積能力のindicatorとして、 ^{60}Co の ^{137}Cs に対する比で考える方が妥当であるためである。Fig. 5から海底堆積物の汚染の程度と放出口からの距離の相関関係は $y = C \cdot e^{-d \cdot x}$ で表わされる。ここで y は $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ 比、 X は放出口からの距離 (km)、 C および d は常数であり、その値は経時的変動が殆んどなく平均してそれぞれ 5.2 および 0.71 の値を示す。 C は主として発電所からの放出量により、 d は主としてこの半閉鎖的海域での海水の移動率により規定されると考えられることから見て、浦底湾周辺海底堆積物の ^{60}Co の濃

度は、稼動開始直後の比較的多い放出量によって決定され、ほぼ一定のレベルを維持していると推定される。また浦底湾は地形的により大きい敦賀湾にその開口部をもっているが、その敦賀湾の日本海へ接する地点(立石)の堆積物の $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ を見ると、1973年に突然高い値が出現する。これは1970年の多い放出量によるものと考えられる。すなわち浦底湾から立石まで、堆積物中の極めて微細な粒子が移動するのに2.5~3年要すると言える。また浦底湾を含めて13 km²の水域を想定すると浦底湾は面積において約7%を占めるに過ぎないが、汚染の60%を保持していると考えられる。尚、浦底湾の外に設けた測定点における $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ 比の増加傾向からみて、湾内の ^{60}Co 汚染は除々にその外側に拡大していることがわかった。

生物については、浦底湾内のヒドデ、タコ、アジ等からは ^{60}Co は殆んどの場合検出出来なかつたのでホンダワラについて述べる。1971年11月から1974年11月迄の5回の各サンプリング時毎のホンダワラの ^{60}Co 汚染と放出口からの距離の関係をFig. 4に示した。堆

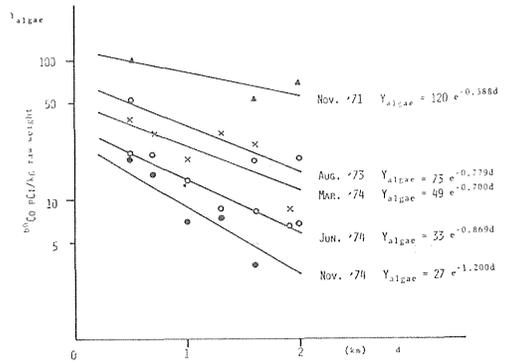


Fig. 6 Correlation between concentration of ^{60}Co in sargassoes and distance from the discharge outlet of the plant to sampling points.

積物の場合と同様、距離 (X) が増加するにつれて、ホンダワラ中の ^{60}Co は或る傾斜をもって減少している。

これを式で表わせば $Q = C \cdot e^{-kx}$ で示される
但し X は放出口からの距離 (km)、 C と K は定数であり
0.388 から 1200 の範囲であり 5 回の平均として 0.79
が得られる。これは堆積物の 0.71 と似た値であり、ホ
ンダワラも堆積物も放出口からの距離約 1 km で、放射能
汚染は半減すると見る事が出来る。浦底湾の地形が Fig
1 の閉鎖型に当たるとすれば、一般に閉鎖型湾では放出口
から 1 km 離れば、海洋試料中の放射能濃度は半減する
と考える事が出来よう。(ただし、サブグループ 2 の研
究から堆積物の放射性核種の蓄積能力は、堆積物の粒径
によって異なるので、浦底湾の結果を他の閉鎖型湾に適
用するためには堆積物の粒径が同程度と言う条件つきで
あるが) またホンダワラ中 ^{60}Co の濃度が放出量の増減
と必ずしも相関しない点につき、ラジオアイソトープ
トレーサー法により、浦底湾各地点の堆積物からの ^{60}Co
の溶出を検討した結果、海底堆積物に蓄積された放射性
核種の量が水中に放出される放射性核種の量に比べて非
常に多い場合、海産生物の汚染は海底堆積物から脱離し
た放射性物質によって汚染される可能性も考慮しなけれ
ばならない事を指摘した。

- 1) Nakamura, K. and Y. Nagaya (1975)
Dispersion and Accumulation of Radionuclides in
Sediment of Urazoko Bay (I). J. Oceanogr. Soc.
Japan, 31(4), 145-153.
- 2) Nagaya, Y. and K. Nakamura (1975)
Transport and Accumulation of Radiocobalt in the
Marine Sediment of Urazoko Bay. In "Impacts of
Nuclear Release into the Aquatic Environment",
IAEA, 313-329.
- 3) Suzuki, Y., R. Nakamura and T. Ueda (1976)
Radioecology of ^{60}Co in Urazoko Bay: Correla-
tion between Levels of ^{60}Co in Sargassae and
Marine Sediments
J. Radiat. Res., 17, 115-126.

I - 5 海産生物の放射能モニタリング方法の開発 に関する調査研究

小柳 卓、平野茂樹

Studies on radioactivity monitoring procedure for marine organisms

Taku KOYANAGI and
Shigeki HIRANO

Abstract

Suitability of several species of mollusca and seaweeds as indicator organisms for radioactivity monitoring of marine environment was examined by radioisotope tracer experiments or stable elements analyses from the standpoints of the affinities for radionuclides, the sampling procedures, and the distribution of radioactive and stable elements in the body of these organisms.

Extremely high concentration factor of ^{54}Mn was shown by kidney of scallop suggesting the suitability for the efficient monitoring of the nuclide though the contribution of kidney to the weight of scallop was very small. Higher concentration of ^{54}Mn in midgut gland rather than kidney was observed in the case of other species of shellfishes but distribution of the nuclide among organs or tissues of the organisms varied during the period of intake and excretion.

Ununiform distribution of radioactive and stable elements among the species of seaweeds and in the body of seaweeds observed by the tracer experiments and stable element analyses suggested the necessity of careful selection of the samples for monitoring of these nuclides.

From the results of tracer experiments carried out in order to elucidate the relation between existing state of radionuclides in seawater and uptake by marine organisms, it was supposed that the complexed forms with inorganic or organic ligands in seawater were predominant species of radioactive cerium in seawater.

Key words

radioactivity monitoring ; marine organisms ; mollusca ; seaweeds ; concentration factor : scallop : ^{54}Mn ; stable elements ; distribution ; existing state ; complexed form ; ligands :

緒言

本調査研究は、人体の放射線被曝線量を推定するために沿岸海洋環境の放射能汚染レベルを迅速に把握できる様な指標試料としての海産生物の適否を、放射性核種に対する親和性、生息条件、生態に関連しての採取法、放射性核種の定量法などの観点から検討することを主たる目的としている。一方、海水中の放射性核種の存在状態を追求し、その形態別濃度分布と、それぞれの形態の生物体への可給性を検討することによって、環境の汚染レベルと指標生物体の放射性汚染との相関々係を求める事を目的としたトレーサー実験をおこなった。

実験の方法及び経過

^{54}Mn に対し特異的に高い親和性を示すとされているホタテ貝を用いてトレーサー実験をおこないその指標性を検討すると共に、ハマグリ、アメフラシ、ヒジキなどの生物についても ^{54}Mn の取り込み状況を観察、比較検討した。一方、放射化分析法によってハマグリ、ヒジキ等の安定 Mn 濃度を定量して濃縮係数を求め、トレーサー実験の結果と比較した。

海水中における放射性核種の存在形態と生物への移行の関連について、トレーサーとして添加した ^{144}Ce の海水中における存在形態、ならびにそれに及ぼす海水中の有機、無機化合物の影響を主としてイオン交換樹脂を用いたバッチテストによって追求した。

結果及び考察

トレーサー実験においても ^{54}Mn のホタテ貝への濃縮は腎臓で最も著しいが、その重量比は軟体部全体の1%程度であり、軟体部全体の濃縮係数は貝殻のそれよりむしろ低い値を示した。同じ貝類でもハマグリやコタマ貝などでは中腸線が最も大きい濃縮係数を示し、他の臓器器官にくらべると2~3倍の値を与えるが、表面への吸着による取り込みと見られるエラや貝殻への濃縮も大きく、それら器官別の体内分布は汚染あるいは排出時の各段階により可成り変動することがわかった。海藻のヒジキの場合も体内分布は ^{54}Mn でも安定Mnでも成長点付近よりも根幹部に多く不均一であるところから、モニタリングに際しても試料の採取に留意する必要があると思われる。一方、海水中に添加した ^{144}Ce と溶存有機物および無機陰イオンとの化学平衡をトレーサー実験により観察した結果、海水中に存在が確認されている12種類のアミノ酸との間での錯体の形成は明確でなく、アルギニンについては弱い錯形成の証拠がみとめられたが、その量は ^{144}Ce の存在形態中では極く僅かにすぎないものと推定された。又、海水中に多量に存在する硫酸イオン塩素イオンとの錯体生成、あるいはヒドロキソ錯体としての存在を考え、それぞれの錯体の安定度定数を陽イオン交換樹脂を用いて測定した結果、硫酸錯体について $\beta_1 = 4.0$ 、 $\beta_2 = 4.53$ 、塩素錯体については $\beta_1 = 1.28$ 、 $\beta_2 = 0.56$ 、そしてヒドロキソ錯体については $\beta_1 = 4.5 \times 10^7$ 、 $\beta_2 = 3.3 \times 10^{14}$ 、 $\beta_3 = 1.8 \times 10^{23}$ と云う値が得られた。これらの数値を用いて海水中での ^{144}Ce のそれぞれの錯体としての存在割合を計算すると、pH7付近までは遊離の Ce^{3+} イオンや硫酸錯体および塩素錯体が主な化学種と考えられるが、pH7以上になると $\text{Ce}(\text{OH})_3^0$ が約95%以上を占めるとみられ、海水のpH

つまり8.3付近ではこの化学種が99.9%を占める様になると推定される。この電荷の中和された化学種 $\text{Ce}(\text{OH})_3^0$ は、それ自身凝集し易く、又、安定もその大部分が海水中では粒子状であり、底質に沈殿している安定 Ce の化学形が CeO_2 の形である事、つまり $\text{Ce}(\text{OH})_3 \rightarrow \text{Ce}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{CeO}_2$ と云う変化を経るものと推定される。すなわち、この様な海水中あるいは底質中での放射性核種の存在形態ならびにそれらの生物への可給性を考慮する事によって海産生物の放射能水準およびその推定についての解析をおこなう必要があると考えられる。

Ⅱ 大気・土壌・水圏における放射性物質の移動に関する調査研究

Transport of radionuclides in terrestrial environment

〔概況〕

本調査研究は、原子力平和利用の発展に伴う公衆の放射線被曝のうち、特に陸圏に放出もしくは漏出した放射性核種に由来する内部被曝に着目し、公衆の内部被曝線量の事前評価に役立つ環境パラメータを得ることを目的として計画されたものである。昭和48年度発足時に、次の3課題を設定し、5ヶ年計画で調査研究を進めてきた。

- 1) ガス状放射性ヨウ素による人体被曝線量推定に関する調査研究。
- 2) 淡水中における放射性核種の化学挙動と生物濃縮に関する調査研究
- 3) セミフィールド的ライシメータのモデル実験系の開発。

1) の分担課題については、ガス状ヨウ素の植物葉面への移行率測定に用いる「曝射装置」の試作を行ない、当初計画より1年遅れたが、昭和51年3月、同装置の完成をみた。そして、同装置を用い、 CH_3I および I_2 のハウレン草葉面への移行率測定を行なった。また甲状腺被曝線量推定に必要な critical food (成人においては主として葉菜、乳児では母乳、また幼児では葉菜と牛乳)の消費量を、東海村原子力施設周辺住民を対象として調査した。体内にとり込まれた放射性ヨウ素の甲状腺への移行率 (f_w) に影響を与えると予想される安定ヨウ素摂取量の推定も行なった。

2) の分担課題については、これまでに、 ^{131}I 、 ^{85}Sr 、 ^{203}Hg 、 ^{140}Ba 、 ^{115m}Cd 、 ^{22}Na および ^{58}Co などの、淡水系生物によるとり込み、排泄ならびに体内分布などについて研究してきた。特に $^{131}\text{I}^-$ のとり込みに及ぼす共存安定ヨウ素の化学形態の影響について興味ある成果が得られている。

3) の分担課題は、放射性廃棄物の地上保管および今後の重要な課題として、放射性廃棄物の地中処分を想定し、土壌中に漏出した放射性廃棄物の土壌中における物理化学的挙動を、地下水や河川水への流立との関連で研究することを目的とし、本目的遂行のために必要な施設としてセミフィールド的ライシメータ、人工河川モデル、浄水場モデルなどの大型施設の建設を予定していたが、実現しなかった。そこで、フォールアウト由来の ^{90}Sr をトレーサーとして、フォールアウトレベルが特に高い山形県羽黒町をモデル地区としてボーリングを行ない、層別に土壌学的検索を行なうと同時に、 ^{90}Sr の鉛直方向への分布について研究した。一方、日本の代表的土壌である洪積ならびに沖積土壌を用い、土壌水の移動に伴う諸元素 (Zn 、 Ni 、および Co) の行動を、植生との関連により、ポット規模で研究した。これらの成果をもとに、実験室規模のライシメータを試作した。

上述したように、放射性廃棄物の地中処分は、わが国の今後の重要課題でありながら、立地選定の事前評価に必要な環境パラメータには未知な部分が残されている。そのパラメータを求めるためには、フォールアウト由来の放射性核種をトレーサーとするフィールドでの調査研究を一層強化してゆくと同時に、セミフィールド的大型実験施設の充実が必須の要件である。5ヶ年でそれなりの成果をまとめることはできたが、まだ残されている問題がかなりあるので、それらについては、今後も經常研究、特別研究などの形で研究を継続させてゆきたいと考えている。

Ⅱ—1 ガス状放射性ヨウ素による人体被曝線量推定に関する調査研究

大桃洋一郎、中村裕二、本間美文、住谷みさ子

Studies on the estimation of radiation dose to thyroid gland through foods contaminated by gaseous radioactive iodine

Yoichiro OHMOMO,
Yuji NAKAMURA,
Yoshifumi HONMA and
Misako SUMIYA

Abstract

It is well-known that iodine-131 released in the air is taken in the body through skin, inhalation and foods. Among them it is supposed that the path through foods such as milk and leaf vegetables must be critical. Because of the comparatively less consumption of milk in Japan, however, the leaf vegetables may be the most suspicious food followed by milk. This paper concerns the parameters used for the estimation of the oral intake of the nuclide discharged into the air. A specially designed exposure chamber was developed for the measurement of so-called velocity of deposition. The experiment was done by use of two chemical forms of stable iodine. The velocity of deposition obtained was 2.6×10^{-3} cm/sec for methyl iodine and 1.8×10^{-1} cm/sec for elemental iodine, respectively. The elemental iodine deposited easily onto inner wall of the chamber. And therefore space was allowed for the discussion how to identify the concentration of the elemental iodine circulating in the chamber. The yield of commercially available leaves of spinach was 1.7 to 2.0 kg/m² of the field. Consumption of milk and leaf vegetables was surveyed in Tokai-mura. Infants of 6 months after birth ingested about 1000 ml of mother milk or powdered milk. Children upto 2 years old took about 500 ml of market milk and 15 g of leaf vegetables. Those of 2 to 5 years old had about 300 ml of market milk and 50 to 80 g of leaf vegetables. Estimation was done on the stable iodine intake which was one of the factors relating to the transfer rate of radioactive iodine to thyroid gland. It was

conjectured that at least more than 800 μ g of stable iodine could be ingested everyday by an adult inhabited there. As to infants, the work is now in progress.

Key words

deposition, velocity of deposition, plant leaves, methyl iodine, elemental iodine, planting density, consumption of milk, consumption of leaf vegetables, stable iodine intake, apparatus, exposure chamber, gaseous iodine

緒言

原子力施設から大気中に漏出もしくは放出される恐れのある放射性核種の中で、内部被曝の観点から最も注目すべき核種は、放射性ヨウ素である。この核種は、経口的には葉菜葉面に付着したものを直接に、あるいは牧草を通じて牛乳に分泌されたものを人間が摂取するという2経路をへて人体に移行する。つまり、大気中に放出された放射性ヨウ素による内部被曝に関しては、葉菜と牛乳が、クリティカル経路であり、いずれの場合も、放出されたヨウ素が、植物葉面に付着する（又は吸収される）ことが、汚染の出発点になっている。

本研究は、事前評価の立場から、放射性ヨウ素の大気中への放出レベルがわかれば、人体の甲状腺被曝線量が計算できるよう、計算に必要なパラメータを求めること

を目的として実施されたものである。特にヨウ素の葉面付着率（または吸収率）測定に主眼を置き、さらに東海村原子力施設周辺をモデル地区として、地域住民によるクリティカル食品摂取量ならびに安定ヨウ素摂取量など、被曝線量の推定に必要なパラメータについて検討したものである。

実験方法

2-1 ヨウ素の葉面付着率の測定

2-1-1 装置：ヨウ素の葉面付着率の測定は、この目的のために特に設計試作されたヨウ素ガス曝射実験装置を用いて行なった。その概要を第1図に示す。

同装置は、曝露チェンバー、人工環境装置、サンプリング

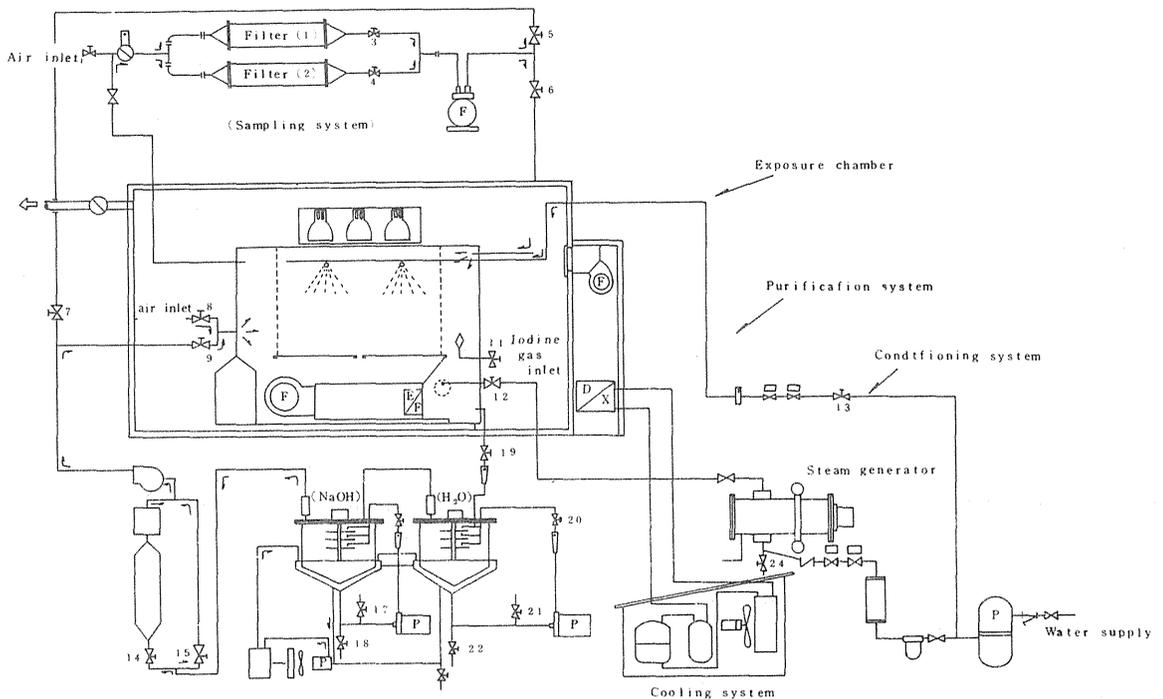


Fig.1 Outline of gaseous radioactive iodine exposure chamber

装置および浄化装置から構成される完全密閉式のシステムである。曝露チェンバーは、上下2室に分かれており、上部は植物栽培用の空室、下部はファンルームである。内容積は、上下それぞれ1.5 m^3 、合計3 m^3 である。チェンバーの天井部の一部は厚板ガラスになっており、その上部に陽光ランプ3基が装置されている。室内に補助ランプとして蛍光灯6本をとりつけることにより、最高18,000ルクスの照度をうる事ができる。チェンバー内に導入またはチェンバー内で発生させた気体状の

ヨウ素は、チェンバー下部の送風ファンにより、チェンバー内を循環する。人工環境装置は、上述の照明装置のほか、気温、湿度、風量調節機構および人工降雨装置などを含み、気温は15 $^{\circ}C$ ~35 $^{\circ}C$ 、湿度は50~90%、風量は4.5 m^3 /分~45 m^3 /分の範囲で可変である。人工降雨装置は、タイムスイッチにより、降雨時間を1~30分の範囲内で、任意に設定することができる。サンプリング装置は、メイパックを原型とする多段式フィルターである。1サイクルの実験終了後、ヨウ素ガスを消

化装置を通して除染したあとで、回路をサンプリング系に切り替えることにより、チェンバー内の残留ガスの放射能のモニターもできる仕組みになっている。浄化装置は、ガス吸収ドラムと活性炭充填カラムとから構成されている。このように本装置は、放射性ヨウ素ガスを使用することを前提に設計されているが、これまで実験は、すべて安定ヨウ素を用いて行なった。

2-1-2 供試植物：露地栽培の東洋種冬まきホウレン草を用いた。1/5000 aワグネルポットに移植したホウレン草を、実験室内で数日間予備栽培したのち、実験に供した。1ポット当りの全ホウレン草重量は、新鮮重として、50~100gであり、葉1枚当りの重量は、平均およそ1g、みかけ上の表面積は、平均およそ60±5cm²/g葉程度であった。

2-1-3 ヨウ素ガスの発生：実験は、I₂ガスとCHIガスについて行なった。I₂ガスは、チェンバー内に放置した単体ヨウ素結晶から自然昇華により発生させ、CH₃Iは、市販のヨウ化メチルを精製後、自然蒸発により発生させた。単体ヨウ素結晶の昇華量は、温度、採取量、表面積および放置時間などにより変化する。本実験では、曝露時間が短い場合は10~15g、長い場合は5~10gを秤量し、内径85mmのガラス製シャーレにひろげ、チェンバー内の風下に当る位置においた。従って、昇華したガスは、一たん送風ファンに吸収されたのち、吹出し口から吐出され、ホウレン草に接触することになる。曝露後シャーレに残った結晶の重量を秤量し、前後の重量差から、曝露時間中に昇華したヨウ素量を求めた。また、ヨウ素の単位時間当りの昇華率を求めるため、一定量の単体ヨウ素結晶について、昇華量の経時的変化を計測した。一方ヨウ化メチルの場合は、室温での蒸気圧が高く、極めて短時間のうちに蒸発する。この実験では、精製後のCH₃I 0.6mlをシャーレにとり、I₂の場合と同様、風下に当る位置に置いた。

2-1-4 実験条件：チェンバー内中央部にホウレン草2~4ポットを並べ、一定量の単体ヨウ素結晶またはヨウ化メチルをシャーレに分取し、完全密閉とした。実験中は送風ファンにより、0.2m/秒の風速(循環風量

1.8m³/分)で、内部の空気を循環させた。曝露は、光による分解をさけるため、暗条件で行ない、曝露時間は0.5(但しCH₃Iの場合のみ)、1, 2, 3および6時間とした。曝露チェンバー内の気温、湿度および気圧は、それぞれ自記温湿度計および自記気圧計で記録したが、気温は26±1℃、湿度は50±20%、気圧は外気圧に対し-30±20m/mA_g.であった。

2-1-5 ヨウ素の定量：ヨウ素の定量は中性子放射化法によった。即ち曝露後100~300mg相当の葉を秤量採取し、ポリエチレン袋に封入したものを照射試料とした。照射には、原研の2号炉または3号炉を用い、気送管照射により、3~6×10¹⁴m/cm²の中性子束で照射した。計測は非破壊でGe(Li)半導体検出器によった。本法におけるヨウ素の検出限度は、照射後測定開始までの時間によって変化するが、1試料当たり、~0.1μg程度であった。

2-2 葉菜およびミルクの消費量調査

東海村原子力施設周辺の成人及び乳幼児を対象とし、成人については葉菜、乳幼児については葉菜とミルクの消費調査を実施した。調査は年4回季節ごとに実施し、連続する1~2週間にわたり、消費日誌をつけてもらう方法をとった。乳幼児の場合は、直接個人消費量を記入してもらい、成人の場合の個人消費量は、家族全体の消費量を、学令以上の構成員数で割ることにより求めた。

2-3 栽培密度の測定

那珂湊市磯崎の露地栽培のホウレン草につき、畝の単位面積当たり、消費可能な葉の収量を実測した。

2-4 地域住民の安定ヨウ素摂取量の推定

食品消費実態調査の結果¹⁾²⁾³⁾⁴⁾と、桂らの「日本食品中のヨード量⁵⁾」から、安定ヨウ素摂取量の推定を行なった。

結果および考察

3-1 ヨウ素の葉面付着

3-1-1 ヨウ化メチル(CH₃I)の葉面付着：

CH₃Iは、極めて短時間のうちに自然蒸発し、しかもチェンバー内壁への付着が、無視できる程少ないので、チェ

ンバーの有効内容積 $3 m^3$ の雰囲気の中で、ほぼ均一に CH_3I が拡散している条件の中で、ホウレン草葉面への移行を観察することができた。曝露時間と、 CH_3I の葉面付着量との関係を、第2図に示した。

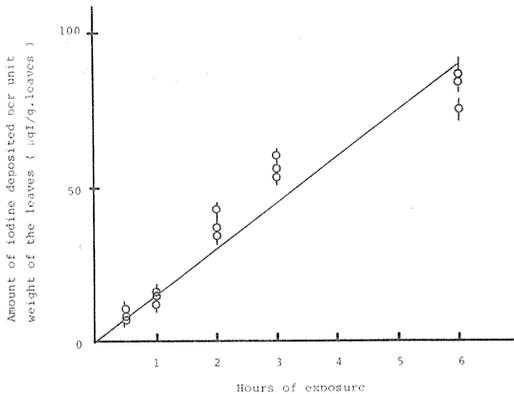


Fig.2 Deposition of methyl-iodine onto spin ach leaves

第2図から明らかであるように、葉面付着量は、曝露時間が長くなるにつれて、ほぼ直線的に増加する。チェンバー内のヨウ素濃度を $0.41 \mu g/cm^3$ (CH_3I $0.6 ml$ が $3 m^3$ の中に均一に分布した時の濃度)、葉のみかけ上の表面積を平均 $60 cm^2/g$ (実測値)、2時間曝露した時の付着量を $38.0 \mu g/g$ (実測値) とし、葉面への移行率 (T.R.) を、大気中のヨウ素濃度 ($I \mu g/cm^3$) に対する移行量 ($I \mu g/cm^2 \cdot sec$) の比で表わせば、

$$T.R. = \frac{38.0 \mu g / 60 cm^2 \times 2 \times 60 \times 60 sec}{0.41 \mu g / cm^3} = 2 \times 10^{-4} cm/sec \quad \dots\dots (1)$$

となる。通常フィールドでは、ヨウ素が完全なガス体として存在する場合はむしろ少なく、空気中に浮遊する「ちり」などの表面に付着し、葉面に沈着すると考えられている。ガス状で存在するものと、粒子状で存在するものとの割合は、放出源からの距離によって変化し、放出源からはなれる程、粒子状のヨウ素の占める割合が

多くなるという報告⁶⁾もある。従って、葉面沈着率は通常次式で与えられている。即ち

$$\text{沈着率} = \frac{\text{土壤の単位面積当りに生育している植物全体に単位時間に沈着したヨウ素量}}{\text{大気の単位体積当りのヨウ素濃度}} \quad \dots\dots (2)$$

この式のディメンジョンは、(1)式の場合と同様速度 (cm/sec) のディメンジョンに相当するので、沈着速度 (Velocity of deposition, V_g) と呼ばれる。粒子状のヨウ素が大部分を占めている場合は、事実上この V_g は、大気の単位体積当りのヨウ素濃度と、土壤の単位面積当り、単位時間に落下したヨウ素量との比を表わすと考えてもよいが、ガス状の場合は、ヨウ素のとり込みで、生理機構や葉の表面積が関与していると推測され、単なる沈着とは異なると考えられる。後述するように、実例したホウレン草の栽培密度 (ここでは単位面積当りの、商品価値のある葉の収量) として $2 kg/m^2$ を用い、(1)式の条件を用いて V_g を計算すると、

$$V_g = \frac{2 \times 10^3 g \times 38 \mu g/g / (2 \times 60 \times 60) sec. \times 10^4 cm^2}{0.41 \mu g/cm^3} = 2.6 \times 10^{-3} cm/sec \quad \dots\dots (3)$$

となる。この値は従来有機ヨウ素の V_g として与えられている値⁷⁾⁸⁾ $10^{-2} \sim 10^{-3}$ と比較して、かなり良い一致を示している。

3-1-2 ヨウ素 (I_2) の葉面付着：一方 I_2 の発生は、自然昇華法によったため、一定量の I_2 が、短時間のうちにチェンバー内に均一分布する条件を設定することができず、しかも CH_3I の場合とは異なり、装置内壁面への付着が大きく、チェンバー内を循環する I_2 の濃度を実験的に求めることが極めて困難であった。そこで壁面、ホウレン草表面への付着を1次反応として扱い、大気中ヨウ素濃度、 V_g などを計算により求めた。即ち、昇華した I_2 ガスは送風ファンにより短時間に均一になるものとし、壁面に付着したヨウ素の再離脱量は、付着量に比して無視できるものとした。チェンバー内空気中のヨウ素濃度を C_a 、チェンバー内壁面上の平均ヨウ素濃度を M_w 、葉菜単位重量当りのヨウ素付着量を μ_s とすると、それぞれの時間変化は、次式のように表わされ

る。

$$\frac{dCa(t)}{dt} = -\frac{1}{V}(v_w \cdot S_w + \rho_s \cdot W_s)Ca(t) + \frac{\epsilon(t)}{V} \dots (1)$$

$$\frac{dM_w(t)}{dt} = v_w \cdot Ca(t) \dots (2)$$

$$\frac{d\mu_s(t)}{dt} = \rho_s \cdot Ca(t) \dots (3)$$

ここで

V : チェンバー室内の有効体積 $\dots (3.0 \pm 0.1) \times 10^6 \text{ cm}^3$

S_w : " " 有効表面積 $\dots (2.5 \pm 0.3) \times 10^5 \text{ cm}^2$

v_w : 壁面への移行係数 (L/T)

ρ_s : 単位重量の葉菜への移行係数 ($\text{L}^3/\text{g} \cdot \text{T}$)

W_s : 葉菜の全重量 (g)

$\epsilon(t)$: ヨウ素ガス発生量 (g/T)

$\epsilon(t)$ は、単体ヨウ素結晶の採取量、シャーレ内でのひろがり (表面積)、温度などによって変動するが、各1回の曝露時間中には、その時の各パラメータによって定まるある一定の値をとることが実験的に確かめられており、1回目の曝露実験に関して、 $\epsilon(t) = \epsilon_i (\text{const.}) \cong \Delta Mi / T$ とみなすことができる。Tは曝露時間、 ΔMi は昇華したヨウ素ガスの全重量である。さらに葉菜重量 W_s は、本実験においては50~100gであり、葉菜表面への総付着量は、壁面への付着量に比して小さいので ($v_w \cdot S_w \gg \delta_s \cdot W_s$)、(1)式は次のように簡略化できる。即ち、

$$\begin{aligned} dCa(t)/dt &= -\frac{v_w \cdot S_w}{V} Ca(t) + \frac{\epsilon_i}{V} = -\alpha Ca(t) \\ &+ \frac{\epsilon_i}{V} \left(\alpha = \frac{v_w \cdot S_w}{V} \right) \dots (1') \end{aligned}$$

$$(1)' \text{の解は、} Ca(t) = \frac{\epsilon_i}{\alpha V} (1 - e^{-\alpha t}) \dots (4)$$

壁面への付着量 (M_w)、葉面への付着量 (μ_s) も、それぞれ、

$$M_w(t) = \frac{\epsilon_i}{S_w} \left(t - \frac{1 - e^{-\alpha t}}{\alpha} \right) \dots (2')$$

$$\mu_s(t) = \frac{\delta_s \cdot \epsilon_i}{\alpha V} \left(t - \frac{1 - e^{-\alpha t}}{\alpha} \right) \dots (3')$$

となる。

従って曝露時間 (t) に対する $\frac{\mu_s}{\epsilon_i}$ をプロットすることに

より、 I_2 ガスの発生率に関係なく、葉面への移行率 (δ_s) を求めることができる。即ち(3)'式は、 αt が大きい場合、

$$\frac{\mu_s(t)}{\epsilon_i} \cong \frac{\delta_s}{\alpha V} \left(t - \frac{1}{\alpha} \right) \dots (5)$$

となる。この一次直線のt切片は、 $1/\alpha$ を与える。第3図に曝露時間 (t) と μ_s/ϵ_i の関係を図示した。第3図のt切片および直線の勾配から、葉面への移行率 (δ_s) を求めることができる。また(4)式より、各実験時の大気中 I_2 濃度も、

$$Ca(t) \cong \frac{\epsilon_i}{\alpha V} \dots (6)$$

により求められる。得られた α の値は、 $5.0_8 \times 10^{-5} / \text{sec.} \cong 5.4_7 \pm 0.7_2 \text{ hr}^{-1}$ であり、ほぼ30分以内に、チェンバー内大気中の I_2 濃度が飽和に達することを示している。この α の値から、葉面への移行率 δ_s は、 $0.93 \pm 0.15 \text{ cm}^3 / \text{g} \cdot \text{sec.}$ と計算された。

一方、チェンバー内壁はステンレス製であり、その壁面へのヨウ素移行率 v_w は、当然のことながら葉菜葉面への移行率 δ_s とは異なる。実際にチェンバー内壁にステンレス片を張りつけ、ヨウ素移行量を求めた実験結果

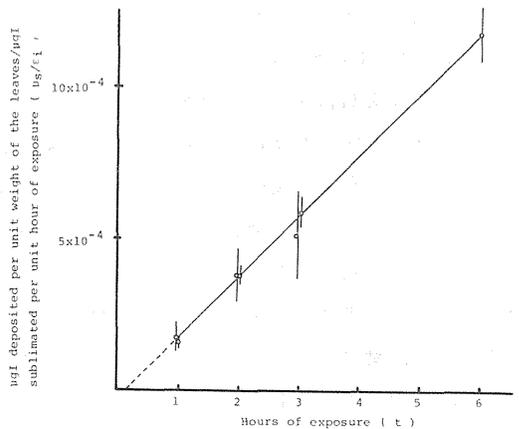


Fig.3 Deposition of iodine (I_2) onto spinach leaves

は、(2)式から予想される移行量に合致しており、 v_w が、一定実験条件下では、ほぼ一定であることを示した。この事実は、上にのべた取扱いが妥当であることを示している。

そこで、得られた δ_s の値から、 CH_3I の場合と同様に、ホウレン草の単位重量当りみかけ上の表面積実測値 $60\text{ cm}^2/g$ を用いて、単位葉面積当り葉面への移行率(T.R.)を計算すると、 $1.6 \times 10^{-3}\text{ cm/sec.}$ が得られる。更にホウレン草の栽培密度を入れて V_g を計算すると、およそ $1.8 \times 10^{-1}\text{ cm/sec.}$ となる。この値は、 CH_3I のそれと比較して2桁高い値を示している。前述した通り、本実験は、安定ヨウ素をトレーサーとしており、従ってかなりヨウ素濃度が高い雰囲気の中における栽培実験であったにもかかわらず、得られた値は、文献値⁸⁾⁹⁾と非常に良い一致を示した。

3-2 葉菜およびミルクの消費調査

大気中に放出される放射性ヨウ素による甲状腺に関して、問題となる食品は、葉菜とミルクである。日本人の場合、乳幼児をのぞき、一般にミルクの消費量が少ないので、成人については葉菜が、乳幼児については、葉菜とミルクが問題となる食品である。しかし、放射性ヨウ素の甲状腺被曝に関して最も問題になるのは、乳幼児であろうと考えられる。その理由は、乳幼児の場合は甲状腺の重量が成人の1/10程度で小さいこと、成長期にあるため、ヨウ素要求量が高いと考えられるからである。第1表に東海村原研職員世帯の乳幼児を対象として行なった、葉菜とミルクの消費実態調査の結果を示した。第1表から明らかであるように、葉菜の摂取は生後6ヶ月頃からはじまり、年令と共にその消費量がふえる。即ち6ヶ月から2才までは1人1日15g程度、2才以上では成人のほぼ1/2倍に相当する50~80gの消費を示した。ミルク消費量は葉菜とは反対に、年令と共に減少する傾向にあり、6ヶ月までは1人1日およそ1ℓ、2才までは500ml程度になる。なお成人の葉菜摂取量については著者らの報告¹⁾を参照されたい。

1表 Consumption of milk and vegetables by inhabitants in Tokal village

Age (Month)	sex	Vegetables (g/d/p)				Milk (ml/d/p)			Total
		Chinese cabbage	Spinach	cabbage	others	Mother's milk	Powdered milk	market milk	
2	M	0	0	0	0	840	180		1020
8	F	6	6	5	0		900	70	970
9	M	3	3	0	6			660	660
10	M	5	4	1	0		630		630
11	M	3	6	0	2		90	330	420
12	F	1	0	0	5			910	910
15	F	12	0	14	7			230	230
16	F	5	6	6	11			580	580
19	F	0	19	2	3			180	180
20	F	5	3	2	0			620	620
23	F	0	0	0	19			50	50
26	M	13	5	11	21			150	150
27	F	55	7	7	7			360	360
28	M	8	9	0	0			190	190
30	M	0	3	15	0			290	290
36	F	5	1	1	1			440	440
39	M	19	9	0	24			160	160
44	F	7	12	11	10			200	200
47	F	0	8	21	0			260	260
48	M	23	5	0	20			300	300
50	M	36	12	9	65			190	190
51	F	70	4	6	16			240	240
51	F	10	3	9	4			260	260
53	F	17	10	11	6			260	260
59	F	4	2	2	3			400	400
60	M	6	2	3	1			370	370
60	M	12	8	33	25			280	280
66	F	7	19	0	38			200	200
67	F	14	5	7	19			250	250
67	F	4	9	37	7			210	210
69	M	0	1	1	27			320	320

3-3 栽培密度の測定

前にも述べたように、放射性ヨウ素の葉面付着率は、実験的には、大気の単位体積当りのヨウ素濃度に対する単位時間、葉の単位面積あるいは単位重量当りの付着量の比として求められるが、フィールドで広く用いられている沈着速度(V_g)に換算する場合には、栽培密度を知る必要がある。消費実態調査の結果から、数ある葉菜の中でも、ホウレン草がその形状及び消費量の観点から、注目すべき葉菜になることが明らかにされたので、特にホウレン草についてその栽培密度の調査を行なった。ホウレン草の投影畝面積を測定し、その一定面積中のホウレン草の収量を秤り、枯れるなどして食用に適さない部分を除き、特にガス状ヨウ素の付着に關与すると思われる葉の部分についてその収量を求めたところ、 $1.7\sim 2.0\text{ kg/m}^2$ であった。

3-4 安定ヨウ素摂取量の推定

人体にとり込まれた放射性ヨウ素の甲状腺移行率(fw)は、安定ヨウ素摂取量が多い場合には、相対的に小さい値をとるといわれている。ICRPは、 fw の値として、0.3をとっているが、この値は、欧米人の平均的な安定ヨウ素摂取量 $160\text{ }\mu\text{g/日/人}$ をもとにして得られた値

であるといわれ、日本人の場合は、その5~10倍多く安定ヨウ素を摂取しているから、fwの値として0.15~0.2をとるのが妥当であるとする意見もある。第2表に野菜と海産物に関する消費実態調査から推定した茨城県沿岸成人の安定ヨウ素摂取量の一例を示した。

表2 Average daily intake of stable iodine from marine foods and vegetables by inhabitants in coastal area of Ibaraki Prefecture

Kind of foods	Average daily intake($\mu\text{g}/\text{d}/\text{p}$)		
	Non-fisheries Tokai	Fisheries Oarai	Fisheries Oarai
Vegetables	13	8	7
Leaf vegetable	4	2	2
Fruit vegetable	3	3	2
Starchy roots	3	1	2
Non-starchy roots	3	2	1
Marine food	579	1303	864
Fish	61	122	218
Crustacea	3	4	5
Cephalopod	9	29	34
Shell fish	-	-	-
Algae	506	1148	607
Total	592	1312	871

第2表から明らかであるように、安定ヨウ素摂取量は海藻摂取量に大きく依存している。また本表に示した食品以外にも、米、調味料(食塩、みそ、しょう油など)、食用油、肉、卵などからの寄与も考えなければならない。たとえば米(精白米)は、100g当りおよそ40 μg の安定ヨウ素を含んでいる。成人は1人1日当りおよそ400~450gの米を摂取しているから、米からだけでも毎日160~180 μg のヨウ素を摂取することになる。第2表から明らかであるかうに、大洗地区の成人は、1日1人当り少くとも800 μg 以上のヨウ素を摂取していることになる。ただし、食品中のヨウ素含量は、調理加工の過程で変化する。たとえばホウレン草にとり込まれたヨウ素は、お浸しにすることにより2/3~1/2に減少する。より正確な安定ヨウ素摂取量を推定するためには、このような点も考慮してゆく必要がある。なお、乳幼児の安定ヨウ素摂取量を推定するため、ミルク中の

安定ヨウ素含量の分析と、乳幼児の海産物消費調査を目下実施中である。

引用文献

- 1) Y. Ohmomo et.al.: 保健物理 9, 99 (1974)
- 2) Y. Ohmomo et.al.: 保健物理 9, 109 (1974)
- 3) M. Sumiya et.al.: 保健物理 10, 215 (1975)
- 4) M. Sumiya et.al.: 保健物理 11, 57 (1976)
- 5) 桂英輔、中道律子: 栄養と食糧 12(5), 34 (1960)
- 6) R.W.Perkins: Health Physics 9(12), 1113 (1963)
- 7) I. Miyanaga et.al.: Behav. Radionuclides Released Nucl. Ind., Proc. Symp. IAEA, Vienna, 157 (1973)
- 8) K.Heinemann et.al.: Ber. Kernforschungsanlage Juelich, Jul-1287, 66 (1976)
- 9) P.J.Barry et.al.: Health Physics 9(12), 1149 (1963)
- 10) F.O.Hoffman: Health Physics 32(5), 437 (1977)

研究発表

- 1) Y.Ohmomo et.al.:保健物理 9, 99 (1974)
- 2) Y. Ohmomo et.al.:保健物理 9, 109 (1974)
- 3) Y. Ohmomo 編: NIRS-C-1 1974年3日
- 4) M.Sumiya et.al.:保健物理10, 215 (1975)
- 5) 大桃洋一郎: 文部省科研費総合研究(A 038008 報告書 24(1975)
- 6) M.Sumiya et.al.:保健物理 11, 57 (1976)
- 7) M.Sumiya et.al.:保健物理 11, 115 (1976)
- 8) M.Sumiya et.al.:保健物理 12, 265 (1977)

Ⅱ—2 淡水中における放射性物質の化学挙動と生物濃縮に関する調査研究

大桃洋一郎、渡部輝久、住谷みさ子

Studies on the chemical behaviour of radioactive nuclides in fresh water and their accumulation by fresh water organisms

Yoichiro OHMOMO,
Teruhisa WATABE and
Misako SUMIYA

Abstract

It is of importance to do the basic investigation on the cycling of radioactive nuclides in terrestrial environments. Up to this time, accumulation, excretion and distribution of radioactive nuclides such as ^{131}I , $^{115\text{m}}\text{Cd}$, ^{85}Sr , ^{203}Hg , ^{131}Ba , ^{22}Na and ^{58}Co in fresh water fish have been investigated. This paper concentrates in accumulation and excretion of ^{131}I , and distribution and excretion of ^{203}Hg -labelled methyl mercury chloride in fresh water fish. It was observed that, under the co-existence of IO_3^- , the concentration factor of ^{131}I concerning fresh water fish came near to that of marine fish as if the accumulation of ^{131}I were stimulated by IO_3^- ions. Clear difference was recognized on the excretion patterns of ^{131}I between fresh water fish and marine fish. In case of fresh water fish, ^{131}I was excreted much more through kidney than through gills. Biological half-life of ^{131}I from whole body of fresh water fish was about 15 days.

Transfer of ^{203}Hg labelled methyl mercury chloride to the brain of carp was investigated by means of abdominal administration of the nuclide. Not so much accumulation was obtained in the brain. Biological half-life of the nuclide from the brain was calculated as 198 days.

Key words

accumulation, radioactive nuclides, by fresh water

fish, iodine-131, excretion, ^{203}Hg -labelled methyl mercury chloride, biological half-life

緒言

わが国における淡水系生物への依存度は、特定の小集団を除き一般に低いと考えられる。さらに、原子力施設のひとつほとんどすべてが、海岸地帯に建設されているので、広域汚染をひき起す核実験の場合をのぞき、淡水系生物が、人工放射性物質によって汚染される機会は、かなり少ないと考えられる。しかし、茨城県の潤沼のように、潮の干満に伴ない、沿岸海水が出入りする沼もあり、小集団であるとはいえ、淡水産生物に依存している人々が存在している。放射性核種によっては、淡水系生物への蓄積が、海産生物のそれにくらべて、著しく高い場合もある。¹⁾ また、最近では、内水面漁業も含めた栽培漁業が盛んになる機運にあり、淡水産生物への依存度も、徐々に高まることが予想されるので、淡水系における放射性核種の挙動や淡水系生物による放射生物質の濃縮、排泄などについて、基礎的な研究をつみ積ねて行くことは必要であると考えられる。本課題は、中課題「大気、土壌、水圏における放射性物質の移動に関する調査研究」に含まれる3分担課題のひとつであった。しかし、この分担課題に直接関連する研究が、本特別研究が発足した昭和48年以前から実施されていたこと、また、新たに設定

された他の2分担課題について集中的に研究を進める必要が生じたため、5ヶ年の特別研究期間中、3ヶ年で一応の成果をとりまとめることになった。

これまでに、 ^{131}I 、 $^{115\text{m}}\text{Cd}$ 、 ^{85}Sr 、 ^{203}Hg 、 ^{131}Ba 、 ^{22}Na および ^{58}Co など、7核種について、淡水産生物によるとり込み、体内分布、排泄速度等について、基礎的な研究を行なった。 ^{131}I と $^{115\text{m}}\text{Cd}$ については、海産魚との比較実験も行なった。本報告では、興味ある2、3の知見を中心に述べる。

実験方法並びに経過

2-1 水槽：50ℓまたは200ℓ容の底面汙過式循環水槽を用いた。その概要をFig 1に示した。

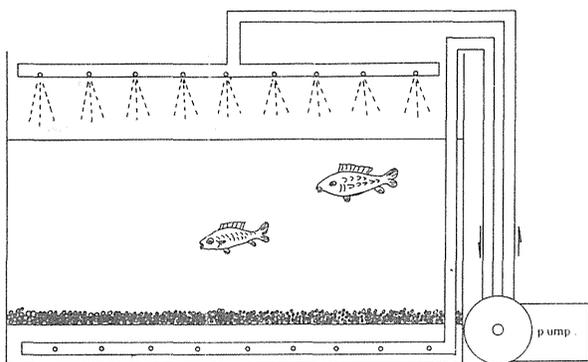


Fig.1 Outline of an aquarium used for the experiment

2-2 供試生物：フナおよびチゴイを用いた。海水魚としては、メジナおよびチダイを用いた。実験に用いる魚は、出来るかぎり体長、体重をそろえることが望ましい。すべての実験を通して同一条件の魚をそろえることは困難であったが、個々の実験に供する魚については体長、体重をそろえ、実験室内で予備飼育後供試した。

2-3 実験並びに計測方法：whole body activity の測定は、定期的に魚をとり上げ、MS-222 麻酔し、計測後、3尾を残し、実験水槽に返す方法をと

った。魚体内分布の経日変化は、whole body activity 計測の都度3尾をとり上げ、解剖により10~13部位にわけ、それぞれの activity を測定し、3尾の平均値をもって表示した。排泄速度に関する実験は、汚染させた魚を、非汚染水槽に順次移しかえることにより行ない、とり込み実験の場合と同様の方法により計測した。

結果並びに考察

3-1 ^{131}I のとり込みについて

見かけ上透明な清浄沿岸海水に ^{131}I をNaIの形で添加し、そこにメジナを飼育した。一方活性炭カラムを通して明らかな濁りを除いた清浄沼水に、メジナの場合と同様に ^{131}I をNaIの形で添加し、そこにフナを飼育した。環境水単位重量当りの ^{131}I 濃度と、メジナまたはフナの単位重量当りの ^{131}I 濃度との比をとり、その経時変化を観察すると、100時間経過後に、ほぼ平衡状態になった。その時のActivity Ratio(A.R.)は、メジナでおよそ10、フナでおよそ1であった。 ^{131}I のとり込みに関して、海水魚が、淡水魚よりも高い濃縮を示すことは、Fromm²⁾もすでに報告しているが、その理由については、明確な説明はない。海水中には、通常安定ヨウ素が $50\mu\text{g}/\ell$ の割合で含まれている³⁾。角皆⁴⁾によれば、海水中のヨウ素は、 I^- と IO_3^- の両形で存在し、その割合は深度によって変動するが、海水全体としては、 IO_3^- が I^- の20倍になるという。本実験で用いた淡水には、事実上安定ヨウ素が含まれていないから、海水魚のメジナが、淡水魚のフナより高いA.R.値を与えたということは、同位体交換反応が起ったと仮定すれば、 IO_3^- の方が I^- よりとり込まれ易いという推論を導くことになる。この推論は、 I^- の方が IO_3^- より極めて高い濃縮を示すというFrommの報告²⁾と相反する。池田ら⁵⁾は、 I^- と IO_3^- の間では、同位体交換反応が起りにくいことを報告しており、上記の仮定は破棄されなければならない。とすれば、両者間にみとめられたA.R.のちがいは、海水魚と淡水魚の本来もっている生理機構のちがいはおよび I^- のとり込みに及ぼす環境水の塩組成や塩濃度のちがいにその原因があるものと推

測される。

そこで、まず共存する安定ヨウ素の化学形及び濃度のちがいに着目し、実験考察を行なうことにした。

はじめにKIをIとして $50\mu\text{g}/\text{l}$ 含むよう調整した淡水に $^{131}\text{I}^-$ を添加し、水槽中のヨウ素濃度が平衡状態になったのち、フナを飼育し、フナへの移行を観察した。

isotopic dilutionが起ることが期待されたが、 $50\mu\text{g}/\text{l}$ 程度の濃度では、無担体の場合に比較して、それ程大きな稀釈効果は認められなかった。Hiyamaら⁶⁾は通常の1000倍のヨウ素濃度を含むよう調製した海水中で、けん著なisotopic dilutionを認めているが、比較的低濃度では、isotopic dilutionは、それほど明らかには検出できないものと推測される。

$50\mu\text{g}/\text{l}$ の濃度では、それ程顕著な稀釈効果が起らないことを確認した上で、次の実験を行なった。即ち、KIをIとして $50\mu\text{g}/\text{l}$ 含むよう調製した淡水、 KIO_3 をIとして $50\mu\text{g}/\text{l}$ 含むよう調製した淡水および通常の沿岸海水の3種の水槽を用意し、 ^{131}I をNaIの形で同量ずつ添加した。淡水にはフナを、海水にはメジナを飼育した。3者間の $^{131}\text{I}^-$ の経日的とり込みを全身および胆のうについて観察した結果を、Fig.2およびFig.3に示した。胆のうは、甲状腺細胞(下顎部分に存在する)に次いで高い濃縮を示す部位である。全身についても、 KIO_3 を含む淡水で飼育した場合のA.R.値が、KIを含む淡水で飼育した場合のそれよりも高く、海水魚に近い値を示したが(Fig.2参照)、胆のうについては、その傾向がよりけん著に認められた(Fig.3参照)。この事実は、 $^{131}\text{I}^-$ のとり込みに、 KIO_3 の存在が関与していることを示唆するが、その理由については現在のところ不明である。今後の検討課題のひとつである。

3-2 ^{131}I の排泄について

汚染させた魚を清浄水に移し、排泄の経時変化を、部位別に観察した。メジナの結果をFig.4に、フナの結果をFig.5に示した。フナの腎ぞうを除き、各部位の ^{131}I 濃度は、経過日数とともに減少してゆく。その排泄曲線は、fast componentとslow componentのほゞ2成分に分けることができる。フナの腎ぞうの ^{131}I

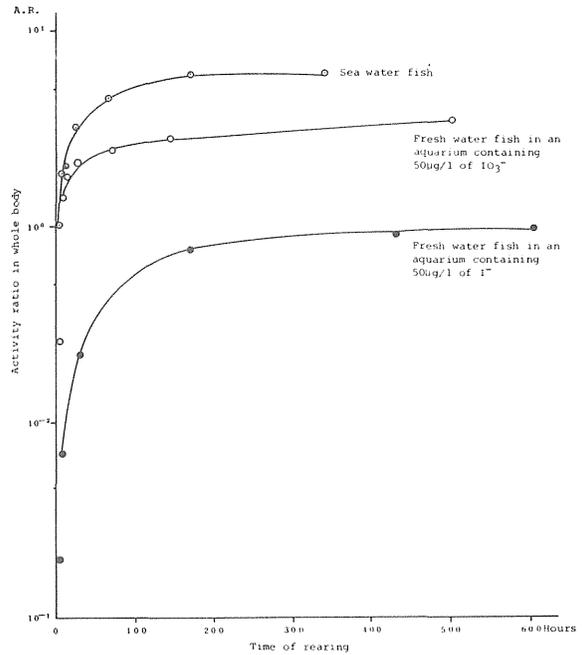


Fig.2 variation of activity ratio in whole body as a function of time

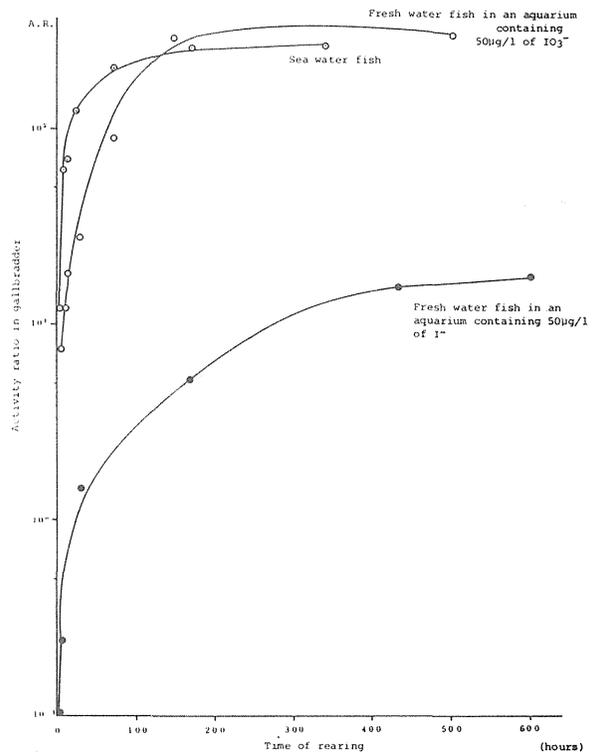


Fig.3 Variation of activity ratio in gallbladder as a function of time

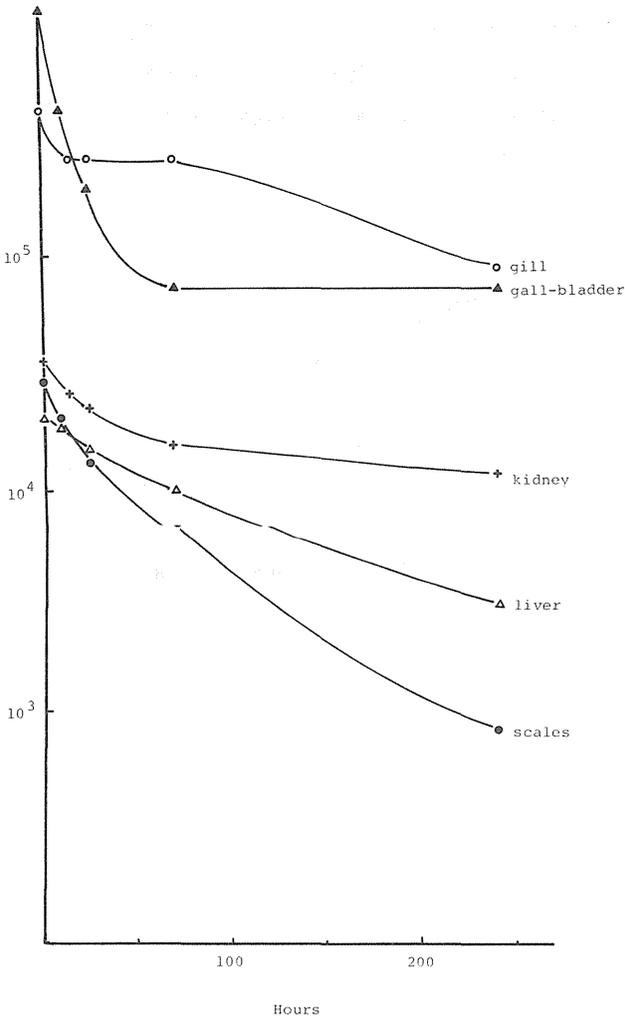


Fig. 4 Excretion of iodine-131 from marine fish (Mejina)

濃度だけでは、増加の傾向を示す。この事実は、フナでは、体内に蓄積された ^{131}I が、主として腎ぞうを経て尿排泄されることを示唆している。これに反し、海水魚のメジナの場合は、腎排泄とエラ排泄が、ほぼ同じ割合で行なわれることを示している。Hunnら⁷⁾は、淡水魚では、 ^{131}I の尿排泄量がエラ排泄量のおよそ4倍に達することを認め、尿排泄が ^{131}I の主要な排泄経路であることを報告している。一方Formmは、海水魚について

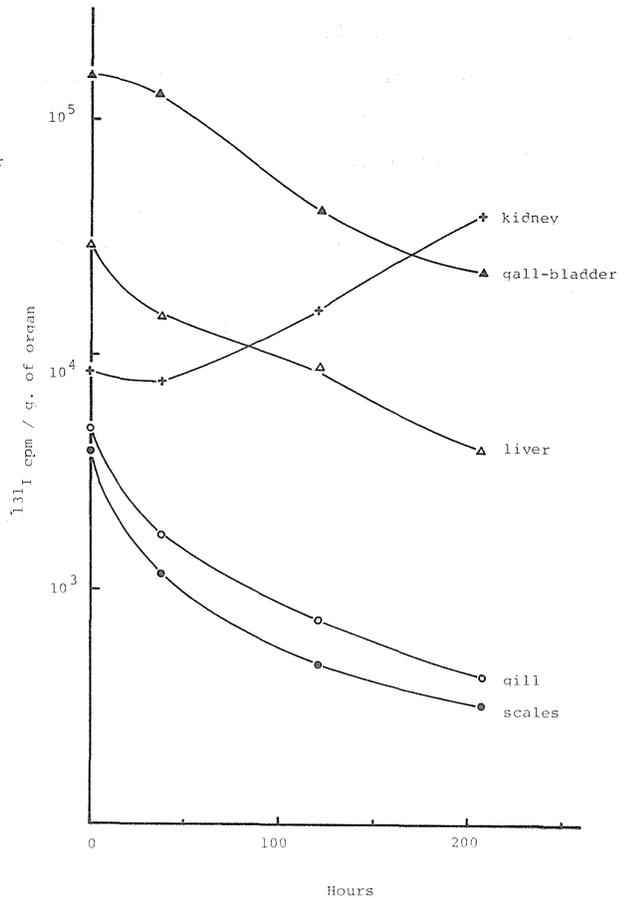


Fig. 5 Excretion of iodine-131 from fresh water fish (Crucian carp)

エラ排泄が70%、尿排泄が30%であることを報告している。著者らの実験結果も、これらを支持している。なお、図示しなかったが、フナの全身からの ^{131}I の生物学的減期は、slow componentについて、およそ15日と計算された。

3-3 ^{203}Hg メチル化合物のコイの脳からの排泄速度について

各種 ^{203}Hg 化合物の魚体内分布、排泄速度等については、これまでも報告例は多い。⁸⁾⁹⁾ 一般に水銀化合物は脳神経部位への蓄積が高いといわれながら、脳に

おける蓄積について定量的な実験を行なった例、及び脳からの排泄について定量的な実験を行なった例は極めて少ないのが現状である。この実験は ^{203}Hg 標識メチル水銀をチゴイに腹腔投与し、体内各部位への移行と、脳における生物学的半減期の測定を行なったものである。whole body activityに対する各組しきの activity との比 (activity ratio, A.R. と略す) をとり、また whole body weight に対する各組しきの比 (weight ratio, W.R. と略す) をとり、更に両者の比 (A.R. / W.R.) を求めることにより、各部位における水銀の蓄積の仕方と差があるかどうかをみた。脳における A.R. / W.R. 比の経日変化を Fig. 6 に示した。

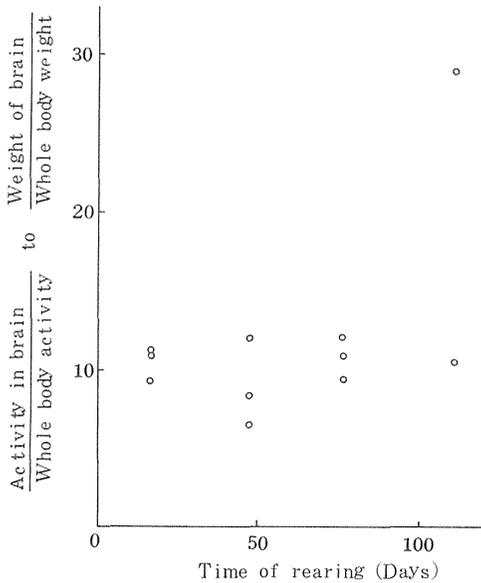


Fig. 6 Distribution of ^{203}Hg labelled methyl mercury chloride to brain function of time

同図から明らかであるように、1日目の1尾の場合をのぞき、この比の値は、ほぼ1であった。A.R./W.R.比を他の臓器についてみると、腎ぞうでほぼ2、胆のうではほぼ0.6であった。脳におけるA.R./W.R.比がほぼ1であり、しかも経日的に変化がほとんど認められな

かったということは、メチル水銀が、必ずしも特異的に脳に蓄積されるとはいえないことを示唆している。Fig. 7に脳からの排泄状況を示した。回帰直線の傾きから、脳におけるメチル水銀の生物学的半減期は、198日と計算された。

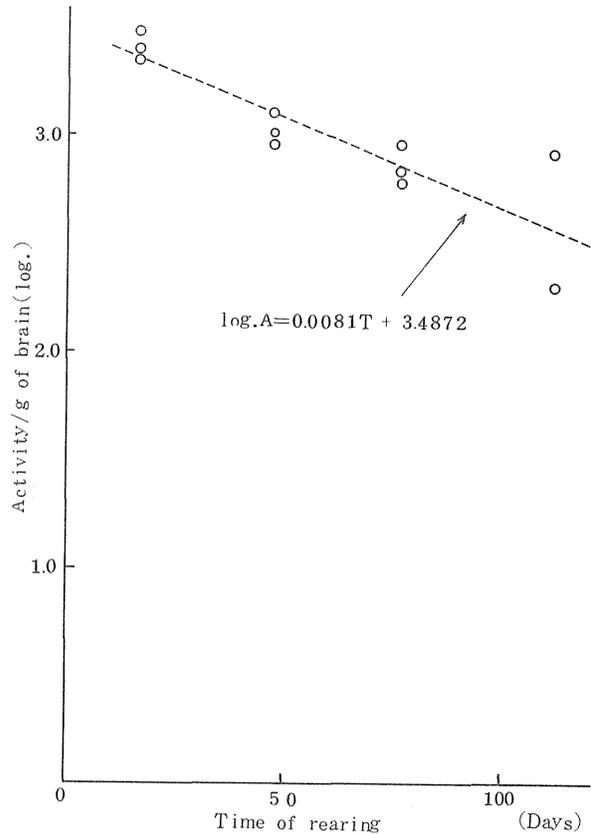


Fig. 7 Excretion of ^{203}Hg labelled methyl mercury chloride from brain

おわりに

この報告をまとめるに際し、江上信雄編「放射能と魚類」(恒星社厚生閣発行)の第7章放射性核種の魚類への蓄積(執筆者 市川竜資氏)を参考にしたことを付記する。

- 1) Y.Suzuki et.al.: J. of Radiation Res., **13**, 199 (1972)
- 2) P.O.Formm: Bull. Inst. Oceanogr. Monaco **64**(1329), 1(1965)
- 3) G.G.Polikarpv: Radioecology of Aquatic Organisms, 268 (1966)
- 4) S.Tsunogai: Deep-Sea Research, **18**, 913 (1971)
- 5) 池田長生: Personal information
- 6) Hiyama et.al.: Res.Oceanogr.Works in Japan, **7**, 79(1964)
- 7) J.B.Hunn et.al.: Biol. Bull., **126**, 286 (1964)
- 8) J.K.Miettinen et.al.: Proceedings of 9th Japan Conf. on Radioisotopes, B/(11)-17 (1969)
- 9) Y.Ohmomo et.al.: Proceedings of 5th Radioactivity in Scandinavia Symposium in Helsinki (1969)

Ⅱ - 3 セミフィールド的ライシメータ のモデル実験系の開発

鎌田 博、湯川雅枝、渡部輝久
* 田中啓文、** 大和久敬一

* 外来研究員(名古屋大学農学部)

** 外来研究員(東京農業大学農学部)

Studies on Development of Experimental System for Trial Manufacture of Semi-Field Scale Lysimeter.

Hiroshi KAMADA,
Masae YUKAWA,
Teruhisa WATABE,
Hirobumi TANAKA,
Keiichi OHWAKU.

Abstract

The radioactive contamination of soil may cause radiation burden to the population due to intake of radionuclides, transported into ground water. In order to assess future contamination of water arising from surface ground contamination, information on the behaviour of radionuclides in soil is required.

Because of difficulties in conduct of *in situ* experiments using the radiotracer method for this purpose, it is necessary to develop the technique on utilization of the results obtained by the laboratory works to resolve phenomenon in the actual environment. For this kind of extrapolation, optimum size of experimental model, designed as large as reasonable in scale to simulate the actual environment (defined as the term, 'semi-field scale experimental model' for convenience) was investigated. For this kind of extrapolation, optimum size of experimental model, designed as large as reasonable in scale to simulate the actual environment (defined as the term, 'semi-field scale experimental model' for convenience) was investigated. For this object, following experiments are especially conducted.

(1) The effects of vegetation to the mobility of transition elements in the surface layer of soil was studied by Wagner pot experiment.

(2) The vertical movement pattern of radionuclides in the deeper layer in the ground, especially transfer

of long-lived-nuclides from soil into water, was investigated using radioactivity survey data of fallout.

These results indicated the importance of information on the behaviour of contaminants in 'surface soil', 'intermediate zone', 'capillary zone' and 'aquifer'. Therefore, an experimental model, consisted of above four parts, was designed. The apparatus would include several substructures; an artificial rainfall apparatus, the Lysimeter, a receptive basin and so on. A regulation system for the fluctuation of hydraulic gradient in the aquifer would be also required. In order to get information on the above four parts of ground constitutions altogether, approximately 4 - 12 m depth was recommended for the model.

Key words:

drinking water, radionuclides contaminated soil, internal radiation dose estimation, indispensable experimental system, elements, wagner pot experiment, plants, up-take, soil layer, retention, movement, run-off water, radionuclides tracer experiment, field, soil, boring,

緒言

植物 — 土壌 — 流出水系における放射性物質の挙動を把握するための手がかりとして、次の三局面について外来

研究員の協力を得て実験を重ね、得られたデータの総合的解析を試み、セミフィールド的ライシメータのモデル実験系の開発につとめた。

- A 日本の代表的土壌である洪積土壌ならびに沖積土壌につき、土壌中の移動に伴う元素の行動および植物による吸収（ポット実験：1/5000アール規模）。
- B 植物の根圏域外に流出した放射性核種の土壌における深度分布状態の把握と飲料水としての地下水への影響（フィールド実験）。
- C フィールドでの実験で求めにくいパラメータを把握するために必要なパラメータモデルの開発。

実験の方法および経過

- A 土壌中に添加した放射性物質の育生植物による吸収の様相に関する研究は、I A E A 刊行物等多くの報告や著書の中^{1)~4)}にまとめて記述されている。しかし、これらの研究は植物栄養学や土壌肥科学の分野のものが非常に多く、Radioecology の分野からみると Path way の一端を担っているものであるが、植物—土壌—流出水系の一連した実験例は少ない。土壌中の元素は、土壌の組成、pH、水分、肥沃度、土性、イオン交換容量等に影響されつつ、作物に吸収され、一部は、降水やかんがい水等により溶脱されて土壌系外に出る。その分配は上述の諸条件や土壌中元素量により決定され、微量元素は多量元素に比べて若干異なった行動をすると考えられている⁵⁾⁶⁾。

以上のような諸条件を考慮し、元素の土壌から植物への吸収、土壌中における残留と根圏域あるいは土壌系外への流出に関するモデル実験を行うべく、次のような条件を選定した。

試供土壌は、洪積層土壌（愛知県安城市）および沖積層土壌（同県師勝町）であり、供試植物は手軽に栽培でき、しかも食物連鎖を考慮に入れ、アルファルファ（マメ科牧草）ならびにイタリアンライグラス（イネ科牧草）をもちい、添加元素は放射性廃棄物の中に含まれている放射性核種を想定し、Zn、Ni Coに着目し、実験上ZnSo₄、NiCl₂、CoSO₄をもちい

た。

供試土壌を1/5000アールワグネルポットにつめ、（N、P₂O₅、K₂O 各1、1、1、3g施肥）、元素無添加実験〔天然供給（実験A-I）〕と施肥層に元素添加実験〔天然供給+添加供給（実験A-II）〕を並列に行うと同時に供試植物を播種育生した場合の実験を対比させて行ったので各実験とも6区で無植生区を除いてすべて四連である。各ポット下部排水口には流出水採取部を設けた。

圃場容水量相当の水を注ぎ、植生区には種子を1.5g播種し、25日目に第1回採水および刈取を行い、続いて流出水の採取は3日毎に10回、植物地上部の刈取は9日目毎に4回（4番刈）まで、採水はポット中水分を圃場容水量に達せしめてから50ml（約30mm降雨相当）を注いでから行った。

刈取植物体は新鮮重量秤量、乾燥秤量、灰化後6N塩酸で抽出し、原子吸光分析法で元素を定量した。流出水中の元素の定量は液量測定後ろ過し、原子吸光分析法により行い、土壌については1%EDTA-Naで抽出し、遠沈上澄を原子吸光分析法で元素を定量した。

- B 植物の根圏域外に流動した放射性核種が土壌深部でどのような分布をしているのか、また、これが飲料水にして利用されている地下水への影響を知るためにフィールドにおいてトレーサー実験を行った。

一般環境にR Iを散布して、これをトレーサーとして実験を行うことは日本の国情からして極めて困難な現状なので、放射性降下物の中でも比較的土壌に吸着されにくく、流出され易く、しかも長寿命であり、また、放射性廃棄物の中の重要核種として着目されている既存の⁹⁰Srをトレーサーとして活用した。この場合、その降下量が把握されており、トレーサーとしてのレベルが充分高く、その周辺に豊富な地下水層が存在する地域がこの実験地の選定の条件として考えられる。

日本でも放射性降下物が多いのは裏日本側であり、その中でも秋田地方は三宅らにより、新潟地方は小山

らにより ^{90}Sr 降下量は古くから把握されている。これらのことを考慮に入れ、地下水層が豊富で人工的造成による諸影響が少なく、しかも生活用水の殆んどを地下水に頼っている山形県西北部の赤川扇状地の中の羽黒町周辺に選定した。

この地域の地下水源の主なものは貴船水源であり、 $6\sim 7\text{ m}$ ($3.5\text{ m}\phi$ 、 500 ton/day)、 $30\sim 46\text{ m}$ ($300\text{ mm}\phi$ 、 $1,370\text{ ton/day}$) の取水能力のある揚水井戸を有している。

この地下水の涵養域は、森田ら⁷⁾によれば、浅層地下水の涵養は、月山山麓の上大滝山、宝谷等の沢水の浸透によるものが主であるとされており、このことから推して、深層地下水の涵養は、同山麓の火山砕屑物地帯の降水が主なるものであることが土地分類図等⁸⁾から予想される。

以上のような諸状況を考慮に入れ、放射性物質の土壌中の移動と地下水への流出に関する調査研究を進めるために、想定涵養域の未耕地においてボーリングを行って ^{90}Sr の土壌中深度分布を分析測定し、併せて周辺部の地下水(楠引町梳代水源：深 4 m 、 $2\text{ m}\phi$ 井戸、 $0.2\sim 0.4\text{ ton/min}$ 取水)を 100ℓ 採取し、 ^{90}Sr の分析測定を行った。また、羽黒町松尾の貴船水源地内において ^{90}Sr の土壌中浸透の様相を調査研究するためにボーリングを行い、地下水への流出パターンを調査研究するために各既存の三層の地下水を 100ℓ ずつ採取し、対象試料としての表流水は同地近傍の赤川河川水を 100ℓ 採取し、 ^{90}Sr の分析測定を行った。

C 放射性物質の土壌中における移動と地下水層への流出に関する調査研究を進めるに当り、フィールド実験では、多くのパラメータが複雑に組み入っており、ポット実験規模のものでは余りにも仮定が多くなり、個々のパラメータを精度よく求めることは困難な場合がある。この点についての解決策として、土性・土質・土層を単純化した土壌モデルを使用して、必要なパラメータを求めるためのセミフィールド的ライシメータのモデル実験系を開発し、これを利用して、土壌—

水系における放射性物質の移動に関する調査研究を推進し、このメカニズムの解明に資することは重要な課題である。

土壌中における放射性物質の移動は、降水による深部への浸透移動と帯水層での地下水の流れに沿った横方向の移動に大別されるが、この様相を定量的に把握するためには、放射性物質の種類と土性土質および降水量等の組合せについて通気層と帯水層の三群に分けて先ず実験を進める必要がある。次いで両層を連結したモデルについて実験し、総合的に解析するのが有効であると考えられる。実験規模については、CEC や k_d 等パラメータの測定はカラムやフラスコ規模で可能であるが、土壌の密度、粒度、土質等に関連する実験はポット規模、表土—中間帯—毛管帯—帯水層の実験はセミフィールドのモデル実験を必要とされ、前述のポット実験(A)やフィールド実験(B)における実験結果を基礎資料として、これらの実験系のモデルの開発を行った。

結果および考察

A 実験A-Iと実験A-IIは別々に行ったが、実験期間がきわめて接近または重複しているため、日照、気温等における大きな相違は無く、もちいた元素濃度は供試土壌のイオン交換容量を超えないようにまた植物の過剰症が起らないよう充分留意してあり、このような低濃度では元素濃度と植物による吸収量との間には正の相関関係があるものとしてデータの解析を行った。

1-1) 植物地上部への元素吸収率は、天然供給の場合には、元素が土壌中にほぼ均一に分布していると考えられるのでデータの変動が少なく、これを平均値としてTable 1の中に示した。イタリアンライグラスは草丈が大きいため、吸収総量はアルファルファよりも大きくなっている。

1-2) 施肥層に元素を添加した場合には、天然供給の場合と元素の土壌中分布能が異なるためか植物の生育期間が長くなるに従って元素の吸収率が上昇する傾向が認められたが、天然供給の吸収率よりも高くな

らないようである。これは元素の可給態としての化学形にも関係しているものと思われる。

1-3) 元素別に植物への吸収率をみると生育条件のよい洪積土壌内では、Ni>Zn>Coの傾向がある。

2-1) 植物—土壌—流出水の元素配分率(%)を経日的に測定した結果、土壌+根部が最も多きく、陽イオン交換容量の大きい洪積土壌(CEC: 11.2 me/100g)の方が沖積土壌(CEC: 8.2 me/100g)よりも高率を示している。

2-2) 流出水への分配は、植生実験群では、植物への元素の吸収があるので、無植生実験群の方が流出率が高く、52日間に約300mmの降水を想定した場合には、添加した元素の約1~6%が流出するが、植生のある土壌では約0.1~3%にすぎない。

2-3) 植物地上部においては、1-1に述べた如

Table 1. Relative Up-take Rate* of Element to Plant.

Soil	Element	Plant	Material Added on the surface soil	
			(mean)	
Alluvial	Zn	Alfalfa	1.67	0.23~0.62
		Italian ryegrass	1.56	0.18~0.57
	Ni	Alfalfa	1.57	0.24~0.67
		Italian ryegrass	0.93	0.35~0.71
	Co	Alfalfa	1.32	0.35~0.66
		Italian ryegrass	0.62	0.29~0.54
Diluvial	Zn	Alfalfa	1.61	0.11~0.31
		Italian ryegrass	1.90	0.62~1.42
	Ni	Alfalfa	3.51	0.44~0.74
		Italian ryegrass	3.50	0.74~1.36
	Co	Alfalfa	0.92	0.28~0.48
		Italian ryegrass	0.51	0.42~0.62

* $\frac{\mu\text{g of element in 1 g of fresh plant}}{\mu\text{g of element in 1 g of fresh soil}}$

Table 2. Distribution(%)of Elements in the Plants(grown after the Elements has been applied in water soluble form and added on the Surfate Soil)in the Surface Soil Layer and Run-off water from the Soil Layer.

Soil	Plant	Added Elements								
		Zn		Ni		Co				
		Plant. Layer.	Soil Run-off water.	Plant. layer.	Soil Run-off water.	Plant. Layer.	Soil Run-off water.			
	Alfalfa	0.83	97.80	> 0.66	97.90	1.56	95.80	1.37	1.44	2.64
	Italian ryegrass	2.59	97.10	2.90	97.03	1.74	97.80	0.31	0.07	0.46
	Non vegetation	-	97.54	-	97.35	-	95.59	2.46	2.65	4.41
Diluvial	Alfalfa	0.53	99.00	1.08	97.10	0.89	98.20	0.47	1.82	0.91
	Italian ryegrass	3.88	95.90	3.71	95.47	1.70	98.03	0.22	0.82	0.27
	Non vegetation	-	94.20	-	98.03	-	98.81	5.80	1.97	1.19

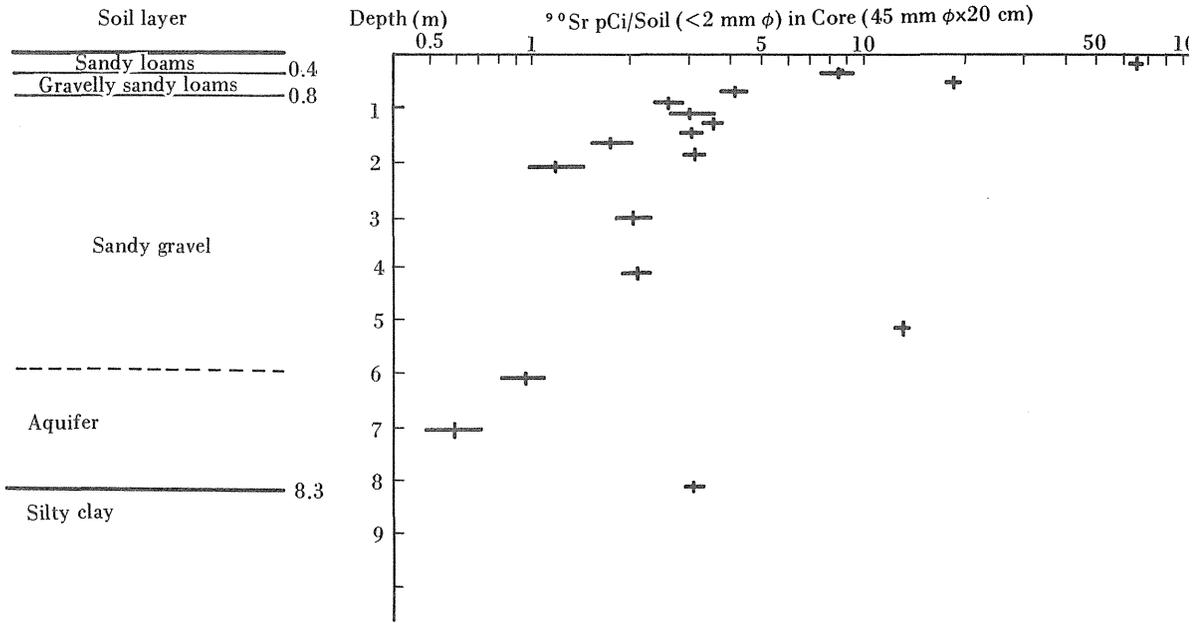


Fig 1 Vertical Distribution of ^{90}Sr in Soil. (Nov. 1974, Kibune, Hagury, YAMAGATA.)

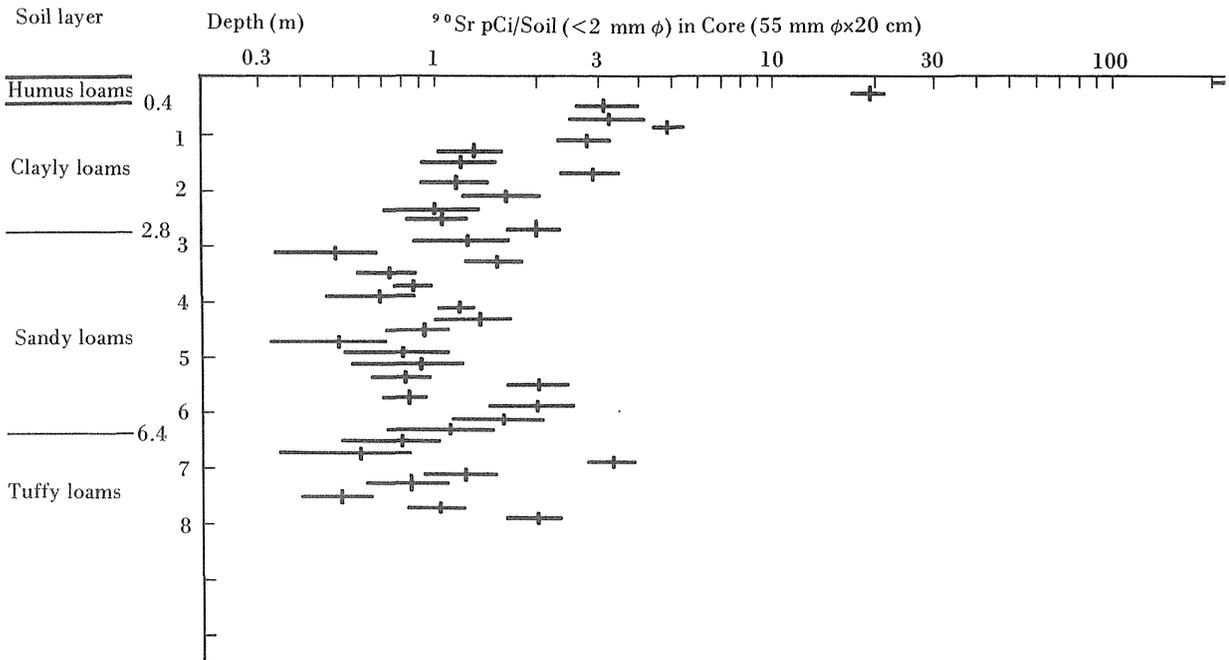


Fig 2 Vertical Distribution of ^{90}Sr in Soil. (Nov. 1976, Uenoshinden, Haguro, YAMAGATA.)

く、草丈の大きいイタリアンライグラスがアルファルファよりも元素配分率が高くなっている。したがって、元素配分率は、アルファルファでは、植物地上部<流出水、イタリアンライグラスでは、植物地上部>流出水の逆の傾向がみられた。

2-4) 播種後52日目(この間の註水は、換算降水量約300mm)の元素配分率(%)をTable 2に示した。

B) ボーリング調査により得られた土壌柱状図とこれに対応した各土層における⁹⁰Srの深度分布状態をFig 1.およびFig 2.に図示した。

Fig 1. は羽黒町松尾貴船水源区内における調査結果であり、砂礫層が厚く、表土から、砂質ローム—含礫砂質ローム—砂礫—シルト質粘土の各層で構成されており、通気層における透水性は良く、シルト質粘土層上部に位置している深さ6~7m付近には地下水層が存在している。⁹⁰Srの深度分布状態は表土への収着とこれの深部への移動に際する各層の境界面における吸着、溶出流下、毛管の諸現象⁹⁾によると思われる鋸歯状分布が認められ、地下水層にある土層の⁹⁰Sr量が少なくなっているのは、⁹⁰Srの流出パターンの頂上部を過ぎて、退水部における土壌中⁹⁰Srの吸着平衡が保たれているものと思われ、分配係数(kd)として約3の観測値を得た。これらのことから⁹⁰Srの土壌深部への移動速度を、水の深部への移動速度、有効間隙率、水の飽和度、土層の密度、⁹⁰Srの水と土層の分配係数等をパラメータ¹⁰⁾として、各土層毎に井上ら¹¹⁾の式をもちいて求め⁹⁰Srの通気層における浸透移動速度を推定した。この結果、6~7m地下水層には約7年で到達していることが推測されたが、各土層の境界面における停留現象を加味すれば、7年以上を要しているものと考えられる。

この地域の深層地下水の主たる涵養域と思われる火山碎屑物地帯の一隅についてボーリング調査を行った結果をFig 2. に図示した。表土—粘質ローム—砂質ローム—凝灰質ロームから構成されており、表土は腐植物を含むローム質土壌であるので陽イオン交

換容量も高く、したがって⁹⁰Srの収着能も高く、土壌中⁹⁰Sr含量は多くなっている。表土以深の土層は礫や砂礫が点在し帯水性に乏しく、透水性があり、表層土が流出剝離された地域では地くずれを発生しているところもある。この火山碎屑物地帯におけるボーリング調査は今後2~3点の選定を行い、涵養システムの解明に資するための基礎資料とするために次期特別研究「原子力施設等に起因する環境放射線被曝に関する調査研究—放射性物質による土壌汚染から飲料水を通じての内部被曝線量の推定に関する調査研究—」として実施することになっている。この火山碎屑物地帯の中央部より貴船水源の深層地下水までの⁹⁰Sr移動速度を飽和層における井上らの式¹²⁾により推定す

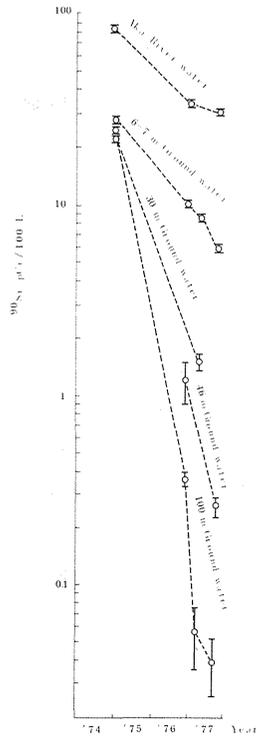


Fig.3. Leaching Pattern into Ground Water and River Water through Soil of ⁹⁰Sr.

ると8~10年を要することが推測されたが、この火山砕屑物地帯における深部にある帯水層までの浸透および停留の様相が把握されていないので実際には、8~10年以上を要するものと思われる。

土壌中 ^{90}Sr の降水の土壌浸透および移動に伴って地下水層に流出する様相を把握するための一助として貴船水源池において地下水およびその付近を流れている赤川河川水を経年的に採取して ^{90}Sr の分析測定を行った結果を Fig 3 に図示した。表流水の放射能レ

ベルが最も高く、地下水は深部にある程、放射能レベルは低くなっている。このことは、 ^{90}Sr の土壌への収着があるためであり、また、土壌に収着された ^{90}Sr の Agin 効果によい溶出の低下等の諸現象をも加味して ^{90}Sr の地下水層への流出パターンを解析しなければならないが、トレーサーとしての ^{90}Sr の降水量の最も多かった1963年を涵養時期とすると調査研究期間中における流出パターンは退水部に位置していると思われる。

Table 3. Concentration of ^3H in water Sample collected in Haguro Region, YAMAGATA.

Sample Sampling date	Konno Spring	Konno River	Aka River	6-7m Ground water	30-46 m Ground water	100 m Ground water
1976. 11. 26		147 ± 4				0.8 ± 1.2
1977. 3. 30						6.5 ± 1.2
1977. 7. 9	126 ± 4		81 ± 2	55 ± 1.5	92 ± 1.5	0 ± 1.5

(Sample preparation and counting by KASHIDA laboratory, Div. of Environmental Hygien, NIRS.)

^{90}Sr 分析測定用の水試料の一部について ^3H の濃度測定を環境衛生研究部の榎田研究室に依頼し、得られたデータを Table 3 に示した。

C セミフィールド的モデル実験系の開発に際し、先ず土性土質と降水量との関連における実験を行わなければならないが、この実験系はポット規模で充分であるとして、外来研究員の協力を得て調査研究した結果は既に「中間報告書」¹³⁾で報告した通りである。

今までのポット実験やフィールド実験等における諸データと水文、農業、土木、衛生工学、原子力等の関連学会や専門委員会や関連研究者等からの諸情報と放医研研究会¹⁴⁾等では討論された諸事項を基にして、考案し、描き上げたセミフィールド的ライシメータのモデル実験系を Fig 4 に図示した。

降水シャワー発生部は、降水量、有効降水量、土壌への浸透能等に応じて、有孔板、ノズル群、多数の注金筒は、RI汚染源の約20倍の直径を要し、モデル

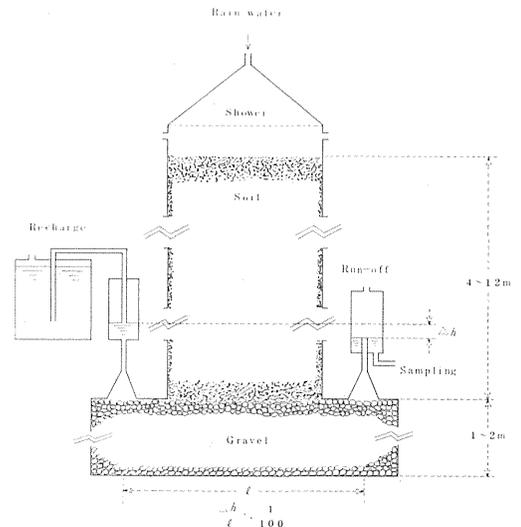


Fig.4. Model Experimental System of Semi-Field Scale Lysimeter.

表土からモデル地下水層上部までは4～12mの層を必要とし、上層数cmは表土、中間帯は砂層あるいは砂礫層とし、上層の約1mは毛管帯を模し、器壁には粘土等を塗り付けて通過水の乱流を防止し、毛管帯下部の礫層は地下水層を模しており、地下水層の動水勾配は実情に合うよう1/100前後に調節し得るよう給水部と溢流部を上下可変とした。

このモデル実験系は、放射性物質による土壤汚染や放射性廃棄物の地上保管や通気層処分等による土壤汚染を想定した場合の飲料水の汚染予測の解析手法の開発に有効であり、汚染想定地あるいは処分場が決定されれば事前評価法や予測法の解析手法の確立に多に役立つであろうと考えている。

結 語

ポット規模による植物への元素の吸収と土壤中での元素の停留と流出およびフィールドにおける土壤中放射性物質の移動と地下水への流出等の調査研究結果を集積して土壤—水系における放射性物質の移動の諸機構を解明するために必要なセミフィールド的モデル実験の開発を行ってきたが、この中で、ポット規模のモデル実験装置は完成しており、モデル土壤の精製過程まで行った後に定員の削減と那珂湊支所への移転等があり、実験は中途であるので農業工学あるいは土木工学等の出身者で数理解析の専攻者を採用の上、この調査研究をセミフィールド的モデル実験系により調査研究を進め、土壤—水系における放射性物質の移動に関する適確な移動と流出の諸機構の解析手法の確立にまで進展せしめたい。

植物における放射性核の吸収と土壤と放射性核種の収差にかかわるaging効果による可給性と溶出性の変化、フィールドにおける放射性物質の土壤中深度分状態の変動と地下水への流出パターンの解析等は、昭和53年から実施される特別研究で実行されることとなっている。

参考文献

1) 三井進午編：アイソトープ農業応用技術：地人書館（1957）

- 2) 葛西善三郎：農業生産ラジオアイソトープ：朝倉書店（1959）
- 3) 農業省農林水産技術会議編：原子力と農業：丸善書店（1968）
- 4) 天正 清：R Iの植物栄養への応用：日本原子力研究所（1974）
- 5) A.L.Brown et al：Soil, Sci, Amer, Proc. 26, 167-170, 1962
- 6) J.F.Hodgson：Advance in Agronomy. 15, 119~159, 1963
- 7) 森田 浩：水温の研究、17、2、3（3019）～13（3029）、（1973）
- 8) 経済企画庁総合開発局編：土地分類図06（山形県）（1973）
- 9) Poae, A. A. [山崎不二夫監訳] 土壤と水、東大出版会（1963）
- 10) 鎌田 博：日本原子力学会誌、19、5、275～283（1977）
- 11) 井上頼輝他：日本原子力学会誌、17、7、376～384（1975）
- 12) 井上頼輝：「放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究」（1970）
- 13) 鎌田 博、湯川雅枝、渡部輝久、田中啓文、大和久敬一：特別研究「環境放射線による被曝線量の推定に関する調査研究」中間報告、52~57（1976）（放医研）
- 14) 木村重彦：放医研究会講演資料（1977年12月1日）

研究発表

- 1) 田中、犬飼、鎌田：日本土壤肥料学会中部支部第31回例会、福井（1974.10）
- 2) 鎌田、田中、佐伯：文部省科学研究費総合研究A 生物圏における低レベル環境放射性物質の挙動とその影響（1974.3）
- 3) 同（1975.3）
- 4) 同（1975.10）
- 5) 鎌田、湧川、渡部：日本放射線影響学会第18回大

会、東京(1975.10)

6) 鎌田：日本原子力学会51年秋の分科会、東海村
(1971.10)

7) 鎌田：日本原子力学会誌、19、5、275~283、
(1977)

Ⅲ 標準日本人の各元素摂取量と体組織濃度の決定に関する調査研究

The study on the intake and distribution of elements for "Reference Japanese"

Abstract

From the standpoint of radiological protection, the quantitative description of the physical characteristics and customs of man is the basis for calculating annual limit of intake, estimating dose equivalents and MIRD phantom for radioactive substances (ICRP 77).

Committee 2 of ICRP has published compilation of data on the anatomical, chemical and physiological characteristics of man, as Standard Man and Reference Man. The models are, however, mostly based on the data published for Europeans and Americans. Reference Man, as characterized by the Task Group itself, is defined as a Caucasian and is a Western European or North American in habitat and custom. Reference Man, so far, is not directly applicable to other populations, for instance, the Japanese. Because it is known that differences exist between Asians, and Europeans and Americans with respect to race, customs and the pattern of food consumption.

In view of this problem, it has become of necessity to seek standard or reference values for Japanese, i.e., mass and dimension of body and organs, and the daily intake, distribution, and metabolism of elements in Japanese, especially on the basis of more recently obtained data.

Average mass of organs of the normal Japanese was studied and the results were presented for Reference Japanese Man. Development of chemical methods for determining stable elements in autopsy tissues was carried out to establish a highly reliable analytical system. Thyroidal uptake and biological half-life of ingested ^{131}I in relation to the dietary stable element intake was determined for two normal Japanese adult male subjects.

Key words

ALI, dose equivalent, anatomical, chemical, physiological characteristics, asian race, standard value, mass, dimension, organ.

〔概説〕

緒言

環境中に放出された人工放射性核種は、吸入または食物連鎖を経て食品よりヒトに摂取される。ある環境または生態系においては、一定条件下での一定量の放射性核種の放出に対応する人体の内部被曝線量の推定を行うためには、その核種の環境中での拡散、沈着、生物への移行・濃縮を経て、人体への取り込み・代謝の各過程の定量的把握が必要である。

わが国における被曝線量評価のための人体パラメータ決定の必要性は、このためにも不可欠のものといえる。

欧米においては、ICRPよりStandard Man¹⁾あるいは、Reference Man²⁾として、解剖学的、化学的および生理学的数値が、標準値、参照値として定められ、既に刊行されている。

しかし、このモデルは欧米人を主体としたもので、日本人のデータは極めてわずかに利用されているに過ぎず、日本人の線量評価の基準値として直接適用することはできない。

この理由としては、地域性および生物地球化学的見地からもいえるが、このほか、食生活の相違、食餌からの各元素摂取量、元素の体内量および代謝に伴う残留傾向の差異のほか、体重・体格、器官の重量と大きさなどにおいて、欧米人と日本人とでは明らかに人種的な差があるからである。³⁾

以上の観点から、日本人の正確な被曝線量推定のためには、日本人についての各器官質量、大きさ、元素代謝、各器官中の元素濃度の研究調査を行い、諸特性を考慮したモデル、すなわち標準日本人(Reference Japanese Man)の設定が必要である。⁴⁾

1) 日本人と欧米人との相違

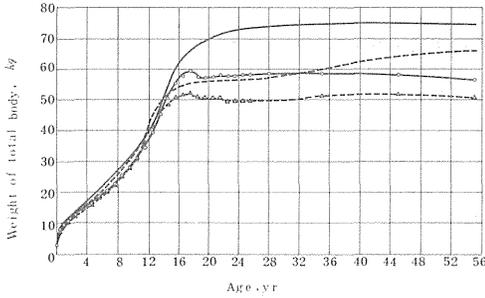


Fig 1. Weight of the total body of Japanese as compared with that of Europeans and Americans.

Japanese⁵⁾ Male —○— Female -△-
 Caucasian²⁾ Male ——— Female - - - -

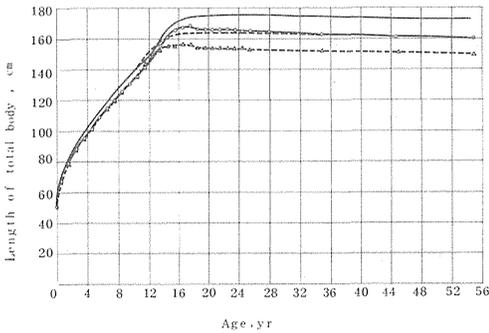


Fig 2. Length of the total body of Japanese as compared with that of Europeans and Americans.

Japanese⁵⁾ Male —○— Female -△-
 Caucasian²⁾ Male ——— Female - - - -

Standard Man (以下 S.Man) を含め、Reference Man (以下 R.Man) は Fig. 2 のように、体重 70 kg (成人男子平均体重) である。日本人は成人男子 59 kg、女子 51 kg (厚生省)⁶⁾ であって、欧

米人の 1.5 才前後に相当する。“R.Man はコーカシヤ人種で、西ヨーロッパおよび北アメリカの生活習慣を持つ平均気温 10~20℃の地域に居住する身長 170 cm の人間 (モデル) である” からである。⁽²⁾

Table 1. Per caput daily consumption of principal nutrients and food stuffs.

Nutrient and foodstuffs	Consumption per caput (g/d)			
	Japan ^{a)} (1974)	U.S.A. ^{b)} (1955)	U.K. ^{b)} (1964)	C.E.E. ^{b)} (1963-5)
Protein	78.7	99	68	79
(animal-origin)	(37.9)			
Fat	51.6	130	104	99
(animal-origin)	(26.9)			
Carbohydrate	339	302	300	320
Calcium	0.54	Male		1.1 ^{c)}
		Female		0.90
Iron	13.3(mg)	Male		16(mg) ^{d)}
		Female		12(mg)
Milk	91.2	508	382	287
Cheese (including milk products)	5.3	19	12	21
Meat + products	62.8	206	137	118
Eggs	41.1	47	34	21
Fish + sea-food	91.0	22	21	22
sea weed	4.7			
Fat	16.2	49	44	63
Sugar + preserves	43.1	69	77	57
Potatoes	61.7	103	202	196
Other vegetables	321.4	202	118	180
Fruit	183.6	184	108	114
Cereals	343.7	207	246	346
Total	1267.8	1611	1381	1425

a) MHW 77.⁶⁾ b) ICRP 75, table 123.
 c) *ibid.*, p.374. d) *ibid.*, p.387.

また、食習慣および栄養摂取の質および量についても、Table 1 のように、肉、牛乳・乳製品、魚介類、脂肪類の 1 日摂取量もかなり異なっている。⁴⁾

2) 正常日本人の器官重量

日本人の臓器質量に関しては、東京都監察医務院・中原義行監察医長との協同研究により、同院プロトコール 1971-1976 年までの 6 年間の資料、

Table 2. Weight of organs of the normal Japanese adult (20-50 y) as compared with literature.

Organ	Male				Female							
	Present work ^{a)}		Japan (1952) ^{c)}		Present work ^{a)}		Japan (1952) ^{c)}		U.S. and Europe ^{d)}			
	n	Mean±S.d. (g)	n	Mean (g)	n	Mean (g)	n	Mean (g)	n	Mean (g)		
Adrenal glands		14.7		11.1	328	13.8 ^{e)}		13.2		10.5	277	12.7 ^{e)}
left	1127	7.65±2.30	474	5.58			247	6.85±2.08	138	5.52		
right	1189	7.03±2.40	473	5.56			248	6.35±1.89	138	5.00		
Brain	918	1440±118	437	1424	2107	1335 ^{f)}	179	1308±103	134	1256	1330	1220 ^{f)}
Heart	596	352±77	441	309		330 ^{g)}	181	284±62	133	249		240 ^{g)}
Kidneys		327		269	2414	310 ^{h)}		280		235	1014	275 ^{h)}
left	868	168±41	442	138			183	145±42	135	121		
right	876	159±38	442	139			184	135±34	135	114		
Liver	856	1600±366	443	1431	150	1831 ⁱ⁾	174	1363±354	128	1269	44	1477 ⁱ⁾
Lungs		1162			259	1169 ^{j)}		893			150	886 ^{j)}
left	715	539±179					152	415±115				
right	722	623±189					155	478±141				
Pancreas	1017	135±38			131	96.1 ^{k)}	218	111±29			79	84.8 ^{k)}
Pituitary gland (Hypophysis)	1186	0.56±0.12	426	0.66	64	0.55 ^{l)}	247	0.63±0.15	128	0.75	60	0.62 ^{g)}
Spleen	867	127±56	368	109	1022	192 ^{m)}	195	122±53	113	106	720	153 ^{m)}
Testes		35.3 ^{b)}			528	34.7 ⁿ⁾						
left	1135	17.7±5.1										
right	1134	18.6±5.3										
Thymus	304	31.7±17.9	380	24.9	142	19.7 ^{o)}	65	25.6±11.4	114	21.7	142	19.7 ^{o)}
Thyroid gland	1185	19.1±6.4	435	18.8	278	17.6 ^{p)}	241	16.8±5.9	126	17.2	144	14.5 ^{p)}

a) Age, 20-50y. b) Including the weight of epididymis. c) Ref. Ai 52. Age, 21-50y. d) Taken from Tables of Ref. ICRP 75. Averaged for ages where necessary. e) 21-50y. (ibid., table 88). f) 20-60y. (ibid., table 93). g) Reference adult male and female (ibid., p. 115). h) 20-40y (ibid., table 74). i) 20-49y (ibid., table 60). j) 20-40y (ibid., Table.65). k) 20-49y (ibid., table 62). l) 20-50y. (ibid., table 91). m) 20-40y. (ibid., table 41). n) 20-30y. (ibid., table 77). o) 20-59.9y. (ibid., table 44). No description of sex. p) 20-49y. (ibid., table 83) q) 16-49y. (ibid., table 91).

10,598 件より事故死などを選び病理学的に異常のない2,880 件を抽出し、統計処理を行ったものである。さらに剖見所見より出血、炎症、脂肪化、萎縮、腫瘍など正常組織と異なる器官については、集計より除外した。結果をTable 2 に示す。ここで、相見ら(1952年)⁷⁾の同データおよび、R. Man に記載されている数値も併せて記載した。本データは病理解剖例に比し、急死例の特徴を有するが、ほぼ健康人に相当するものである。既に相見の指摘したごとく岡(1941年)⁸⁾の報告と比較して何れも大きい数値

を示し、脳、腎で4%、心、肝、脳下垂体で13~22%、胸腺で2.5倍と高い値を示している。

Ⅲ—1 標準日本人の化学組成の決定

田中義一郎、河村日佐男、野村悦子

Distribution of stable elements in human body in Japan

Giichiro TANAKA,
Hisao KAWAMURA and
Etsuko NOMURA

Abstract

The distribution of stable elements in human body in Japan is being investigated in the light of importance and scarcity of data, as a main part of the research program on the intake and distribution of elements in "Standard or Reference Japanese" with respect to the estimation of internal radiation due to artificial radionuclides released to the environment. The collection of autopsy samples and the development of methods for pre-treatment and chemical analysis were carried out with an emphasis on establishing a highly reliable trace analysis system. A method for the disinfection of tissues by a vacuum heating drier, a new isotope dilution-atomic absorption technique and a preliminary application of a contamination-free clean bench was established. Secondary biological standard materials of Bovine liver, kidney and muscle were prepared and partly characterized which are to be used or inter-laboratory comparison of analytical results of trace elements. An introduction of the energy dispersion X-ray fluorescence analysis was proved to be useful as a method of simultaneous multi-element analysis of tissues and diet. Analytical work is planned to be done under the chemically clean environment which was partly installed in 1977.

Key words:

stable element, chemical analysis, autopsy samples, trace analysis, atomic absorption, clean environment, multi-element analysis

緒言

人体における安定体の分布の研究は、放射性核種の長期連続摂取における代謝パラメータの推定、摂取核種の体内残留に及ぼす同位体希釈効果、線量の空間分布の推定などに対して不可欠で、Standard Man¹⁾ および Reference Man²⁾ はその体系の根底を為すものである。

Tipton, Schroeder⁹⁾らの研究のほか、日本人についての研究に関しては見るべきものが少なく、とくに国内における研究は僅少である¹⁰⁾。本小課題においては、日本人における元素の体内分布につき、分析化学的方法に立脚して統計的方法および保健物理的概念を導入して明らかにすることをその目的とする。

人体器官、組織に関する実験上に、次のような問題点がある¹¹⁾。(1) データの信頼性の観点から分析方法の標準化および試料の汚染防止が必須であること。(2) 貴重な試料の有効利用をはかるため試料の“量の低減化”をはかる必要性、(3) 人体器官中の病原体からの感染の危険性防止の処置、などである。

研究の前提となる無塵実験室(群)の計画が現特研期間中に実現する見込みが薄れたため、最小限の予算要求を行なった結果、51年度に部分的に実験室環境の清浄化整備が行われることになった。この結果信頼性の高い人体器官、組織中の安定体分析データは第2次環境特研に移行することになった。

実験方法および経過

人体器官、組織試料の収集および分析方法は、トレース・アナリシスの原則に従った。内容は多岐にわたるので、次節で触れることにする。研究経過は概略次のようである。

- (i) 文献調査 (昭和48年)
- (ii) 人体試料の清浄環境下での分析法の予備的研究 (昭和49年～50年)
- (iii) 人体器官・組織試料の収集 (昭和48年～51年)
- (iv) 人体器官・組織試料の前処理法の開発 (昭和48年～50年)
- (v) 器官・組織標準試料の作成と検討 (昭和48年～50年)
- (vi) 高精度および高感度原子吸光分析法の研究 (昭和48年～51年)
- (vii) 人体器官・組織の多元素同時分析法の開発

Table 3 生物体の重量パーセントで表わした元素の分布

不変成分			変動成分		
主成分 60~1	副成分 1~0.05	微量成分 <0.05	副成分	微量成分	混入成分
H	Na	B	Ti	Li	He
C	Mg	Fe	V	Be	Ar
N	S	Si	Br	Al	Se
O	Cl	Mn		Cr	Au
P	K	Cu		F	Hg
	Ca	I		Ni	Bi
		Co		Ge	Tl
		Mo		As	
		Zn		Rb	
				Sr	
				Ag	
				Cd	
				Sn	
				Cs	
				Ba	
				Pb	
				Ra	

元素の代謝および体内量

生物体を構成する元素の存在度は元素の種類により大きく異なるが、地球上に存在するあらゆる元素が生物体に存在するといわれている。生物地球化学的にはその存在度の大きさによって不変成分、変動成分に分類し、

(Table 3) 微量成分には生物化学でいう必須微量元素に対応するものも含まれる。

必須元素¹²⁾は、生物体内濃度はホメオスタシスなどにより正規または対称分布を示すとされており、必須でない元素は、副成分として有意の制御を受けないため組織中の濃度が外部からの影響を受け、その結果として環境中のレベルに似た分布パターンを示すと考えられている。

上述のように、ヒトにおいては放射性核種を含む元素は生体制御機構により代謝過程を経て沈着および排泄が行なわれる。

- (i) 人体試料の清浄環境下における分析条件の検討

人体器官、組織試料の前処理、化学操作および定量時における外部汚染の原因は、実験器材、試薬中の不純物および目的元素以外の試薬、実験者(汗・唾液など)と実験環境の塵埃である。実験器具の材質に留意

し、高純度の試薬を用い、キャリア汚染歴のない実験室でR I作業に準ずる操作法を採用することにより、前三者の起源の汚染は防止することができた。実験環境の塵埃は、室内で発生するものに加えて外気中に浮遊する微細な土、産業排煙、風送塩が空調設備の粗フィルターを通過して実験室に送り込まれるため、室内の汚染状況は天候・季節により変動し、これが精密分析に不測の誤差を与える要因となっている。このため空気汚染を一定のレベル以内に管理することが、トレースアナリシスの主要課題である。当実験にあたっては、非金属製高性能フィルター(粒径0.3 μmにて除塵効率99.97%)を備えた非金属製化学用排気型クリーンベンチ(約0.5 m²)を製作することにより目的を達することができた。その他の大部分の作業は、この作業スペースでは行なうことができないので、設備完成(1977年)までは分析システム全体の確立は清浄空間の整備に待たねばならなかった。

- (ii) 人体器官・組織試料の収集と保存

剖検試料は清浄なポリエチレン袋に密封して凍結させたのち、ドライアイスで冷却しつつ運搬レディーブ

フリーザに収めて保存した。

(iii) 人体器官、組織の前処理法の開発

乾燥：試料は解凍後切片として、石英またはバイレックスガラス製シャーレに展開し、真空凍結乾燥機または真空加熱乾燥機により乾燥した。所要時間および病原菌対策の面から加熱型の真空乾燥がより適当であった。(Fig 3)。加熱温度は60~70℃前後を選び、6~12時間を乾燥し、試料を清浄なアクリル容器中に保存した。

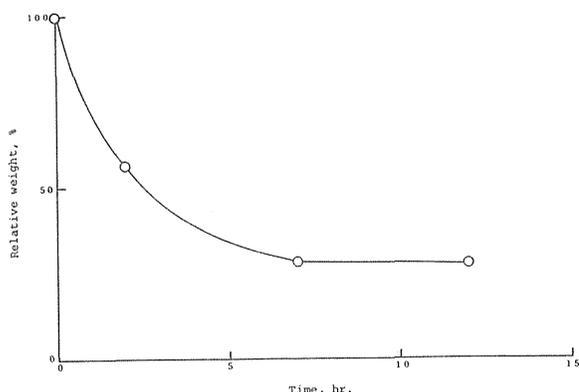


Fig.3 A typical time-weight curve for a tissue (animal liver) dried by a vacuum heating drier. Original weight: 252g

有機物の分解：乾式灰化法として a) マッフル炉内での大気中酸素による酸化、b) プラズマ状励起酸素による酸化、c) 還流冷却を併用する混酸などによる湿式灰化法、d) 圧力下での硝酸による酸化分解などにつき検討した。マッフル炉灰化におけるブタ肝臓マトリクス中のZnおよびCdの損失を⁶⁵Znおよび¹¹⁵mCdを用いて測定した結果、Cdは550℃以上で明らかに揮散損失を受けた。炉材料による汚染防止のため熔融石英板による内張りを検討中である。酸素プラズマ灰化は外部汚染が殆んど存在しない点が大

きな利点であった。

湿式分解は揮散損失が少ないとされており、加圧分解容器を用いる方法が所要時間および試薬ブランクの点からすぐれていた。以上の結果から、多量の試料を扱い揮散損失の少ない元素群を分析対象とする場合にはマッフル炉灰化法を、乾燥重量数g以下の試料に対しては酸素プラズマ灰化法および加圧酸化分解法を用いることとした。

(iv) 器官・組織標準試料の作成とその特性

生体試料中の元素の分析値の正確さは、生物標準試料によって確認される。本課題の目的に合致する標準試料が殆んど存在しない現状を考慮して、a) 分析方法の検討、b) analytical quality control, c) 研究所間の共同分析に供用するため、代表的な器官・組織を選んで標準試料を調製した。ウシの肝臓、腎臓および筋肉を70℃で真空乾燥したのち、陶器性ボールミルで粉細混合して乾燥粉末標品として5kgを調製し、それぞれNIRS Bovine liver, NIRS Bovine kidney および NIRS Bovine muscle と名づけた。NIRS Bovine liver の定性分析は波長分散ケイ光X線分析によって行い、Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Mn, Fe, Cu, Zn, Br, Rbなどの存在を認めた。定量分析はエネルギー分散型ケイ光X線分析装置を用い、多元素同時分析を行い、P, S, Cl, K, Fe, Cu, Znなどにつき濃度を求めた。これらの結果を米国産のウシNBS Bovine liverのそれと比較すると、P, S, Cl, Kは含有量がよく一致しており、Fe, Znでは値が似かよっており、Cu, Pb, Brなどにおいては日本産ウシ肝臓の濃度が数倍高いことが認められた。この解析については検討中であるが、人体についても類似の現象が予測される。本標品は現在研究室内標準試料の段階であり、特性づけを進めつつ利用を開始している。

(v) 高精度原子吸光分析法の研究

同位体希釈-原子吸光分析法：微量元素の分析で分離濃縮操作を行う場合、一般的に原子吸光分析の特長である高精度と迅速性が損われる。この点をRIトレ

ーサーを用いた同位体希釈—原子吸光分析法によって根本的に解釈することができた。目的元素の比放射能のわかった一定量の放射性同位体で試料をスパイクし均一かつ平衡に達したのち、必要な分離濃縮操作を行って得られた測定試料につき、放射能および原子吸光の測定を行えば、原試料中の元素の量が回収率に無関係に求められることになる。本法を人骨中微量バリウム分離定量に応用し、迅速かつ正確な分析値が得られた。(Table 4)。

Table 4 Accuracy and reproducibility with the determination of barium in human bone by isotope dilution atomic absorption spectroscopy using strontium nitrate co-precipitation and Ba-133 tracer

wt. of ash (g)	No. of anal.	Ba added (μg)	Ba found (μg)	Ba recovered (μg)	Error (%)	Rel. std. dev. (t)
3.00	5	—	40.3 \pm 1.7	20.7	+0.5	4.5
3.00	5	20.6	61.0 \pm 1.9			3.1

sample	Barium content ($\mu\text{g Ba/g}$ of ash)
Cow	166.7 \pm 3.4 *
Human, fetus	4.7
child	10.2
adult	13.4

* standard deviation of mean for triplicate analysis

この方法を人体器官中のZnおよびCdの定量にもすでに利用しており、Co、Cs その他の微量元素の高感度・高精度分析への適用を現在検討中である。

分離炎の使用による共存元素の干渉の除去：共存元素がフレーム中で安定な酸化ないし水酸化物を生成するとき、もし目的原子の共鳴線にこれら分子のバンドスペクトルが重なれば、バックグラウンド吸収およびS/N比の悪化が起る。カルシウム共存下の微量バリウムの原子吸光分析においては、Ba 553.6 nmの共鳴線に555 nmのバンドヘッドを持つCaOHが分光干渉を及

ぼす。亜酸化窒素—アセチレンフレームを窒素ガス気流で外気からシールドして分離炎をつくると、フレームの還元性が著しく強化され、共存カルシウムの分光干渉を軽減することができた。本法によってカルシウムの除去法が簡略化された。

(V) 高感度原子吸光分析法の開発

少量の人体器官試料の有効利用および超微量元素の分析を行うには、従来のフレーム原子化法では感度が不足である。グラファイト炉を持つ超高感度原子化装置による原子吸光分析の実用化を検討中である。グラファイト炉作動時に電磁誘導および黒体放射によるものと考えられるノイズが発生したので、ホトマルチプライヤに電磁シールドをまた光学系にバッフル装置を設けるなどの対策を行うことにより良好な測定が可能となった。バックグラウンド吸収に対しては、重水素放電管を用い、自動補正を行っている。本法により器官中のコバルトの定量を行った。

高感度であるため実験室の塵埃が分析誤差を与えることがあるので、本法を本格的に駆使するためには、清浄な実験室環境の整備を急ぐ必要がある。

現在までに得られたデータの一部をまとめて、Table 5に示す。

Table 5 Tentative data on concentration of metals in organs tissues of Japanese

Element	Concentration of metal ($\mu\text{g/g}$ dry or wet tissue)					
	Liver	Kidney	Spleen	Lung	Muscle	Bone Small intestine
Rubidium	1960 (K)*	1720 ~ 1870 (K)	1600 ~ 1900 (K)	5.1	1790	1940 (K)
Cesium	0.030			0.035		0.0073
Magnesium						3900 ~ 5200(A)†
Strontium						234 ~ 585(A)**
Barium						4.7 ~ 13.4(A)**
Manganese	1.18 ~ 1.95	Cor: 0.66 ~ 0.71 Med: 0.46				
Iron	160 ~ 232	Cor: 75.7 ~ 88.4 Med: 65.9				
Cobalt	0.046 ~ 0.087					
Copper	2.46 ~ 14.8	Cor: 2.45 ~ 2.91 Med: 1.92				
Zinc	144 ~ 7.28	125 ~ 67.8	23.5 ~ 1.02	25.5 ~ 0.754	27.5 ~ 0.536	

*) K indicates concentration based on Potassium weight ($\mu\text{g/g}$ K)
+) A indicates concentration based on ash weight ($\mu\text{g/g}$ ash)
**) Age-dependent

(vi) 人体器官・組織および食餌の多元素同時分析法の開発

分析能率の観点から多元素の同時分析法の検討を行い、ケイ光X線分析が有用であることは、(iv)節のBovine liverの分析で示された。迅速な多元素同時定量の目的にエネルギー分散方式のケイ光X線分析装置が適しているとの結論を得た。希土類元素については、中性子放射化分析を計画中である。セシウムおよびルビジウムの同時定量をフレイムスペクトロメトリを用いて検討した。

引用文献

- 1) ICRP, Publication 2 (1958);
- 2) ICRP, Publication 23 (1975)
- 3) 田中義一郎：放射線科学、14,239 (1971)、15,15 (1972)。
同上：第3回放医研環境セミナー報文集、NIRS-M-14, P. 38 (1976)。
- 4) 田中義一郎、河村日佐男、中原義行：規格日本人 (Reference Japanese) の設定 原子力学会誌、19, 674 (1977)。
- 5) TANAKA, G., KAWAMURA, H., NAKAHARA, Y.: Reference Japanese man I, Health Physics (1979)
- 6) 厚生省公衆衛生局：国民栄養の現状(昭和52年)第一出版
- 7) AIMI, S., YOSOSHIMA, S., SUGAI, M., SATO, B., SAKAI, T. and NAKAJIMA Y.: Studies on the Weight and Size of Internal Organs of Normal Japanese, Acta Path. Jap. 2, 173 (1952)
- 8) 岡暁：京都医学誌 38, 732 (1941)
- 9) I.H.Tipton and M.J.Cook, Health Physics 9, 103(1963); I.H.Tipton, H.A.Schroeder, H.M.Perry, Jr. and M.J.Cook, ibid 11, 403(1965)
- 10) YAMAGATA, N.: J. Radiat. Res., 3, 9 (1962); YAMAGATA, N., et al.: ibid., 3, 4 (1962).
- 11) 河村日佐男、放射線科学 18 (8)、141 (1975)
- 12) UNDERWOOD, E.J.: "Trace Elements in Human and Animal Nutrition," (3rd Ed.), (1971), Academic Press.

研究発表

- 1) 田中義一郎：第3回放医研環境セミナー報文集 NIRS-M-14, 38 (1976)。
- 2) 田中義一郎・河村日佐男・中原義行：規格日本人 (Reference Japanese) の設定, 原子力学会誌 19, 674 (1977)。
- 3) G. Tanaka, H. Kawamura and Y. Nakahara: Reference Japanese Man I., Health Physics (in print).
- 4) H.Kawamura, G.Tanaka and Y.Ohyagi: The rapid determination of barium in bone by atomic absorption spectrophotometry, Spectrochim.Acta 28B, 309 (1973)
- 5) H.Kawamura, G.Tanaka and Y. Matsumoto: Reduction of the CaOH interferences on barium in atomic absorption spectroscopy using the nitrogen-shielded nitrous oxide-acetylene flame, Bull. Chem. Soc. Japan (51, 2873 (1978).
- 6) G. Tanaka, A. Tomikawa and H. Kawamura: Determination of rubidium in biological materials using atomic absorption spectroscopy, Bull. Chem. Soc. Japan 50, 2310 (1977).
- (7) 田中義一郎・富川昭男・河村日佐男：原子吸光分析による生体中セシウムの定量、日化誌 (投稿中)
- (8) 河村日佐男：「分光分析における公害分析試料の処理」(日本分光学会第10回夏期セミナー・テキスト) p.12 原子吸光分析-C. 生体 (1974)
- (9) 田中義一郎・河村日佐男・菅野美江：放射性同位体を利用した生体内安定元素の原子吸光分析、第10回理工学における同位元素利用研究発表会 (1973)
- (10) 田中義一郎・河村日佐男：ラジオアイソトープトレーサー利用による人体内微量元素の原子吸光分析、日本薬学会「生体成分の分析化学」シンポジウム (1973)
- (11) 河村日佐男・田中義一郎・菅野美江：人体における安定体の分析(I)、日本放射線影響学会第16回大会 (1973)
- (12) 田中義一郎・河村日佐男：人体における安定体の分布(II)、人骨中のストロンチウム、同17回大会 (1974)
- (13) 田中義一郎・河村日佐男：人体における安定体の分

布(Ⅲ)、同第18回大会(1975)

- 14) 田中義一郎・河村日佐男・野村悦子：Bovine二次標準試料の調製とその応用、第37回分析化学討論会(1976)
- 15) 河村日佐男・田中義一郎：窒素によりしゃへいした亜酸化窒素アセチレンフレイムにおけるバリウムの原子吸光、日本分析化学会第22年会(1973)
- 16) 河村日佐男・田中義一郎：原子吸光および炎光分析における分離炎を利用した干渉の除去法について(I)バリウム(1974)
- 17) 河村日佐男・田中義一郎：生体中ルビジウムおよびセシウムの方レイムスペクトロメトリーによる逐次および同時定量、第9回応用スペクトロメトリー東京討論会(1975)

Ⅲ - 2 各元素摂取量と体組織元素代謝に関する調査研究

田中義一郎、内山正史

A study of the daily intake of some elements by the Japanese and their concentrations in the various organs.

Giichiro TANAKA and
Masafumi UCHIYAMA

Abstract

Considering the important contribution to population dose in Japan by radioactive iodine from the atomic energy establishments, the biological half-life and the thyroid uptake in man were experimentally determined.

Two male adult volunteers ingested a single dose of ^{131}I (74 nCi each) in NaI solution with no carrier of iodine. The radioactivities in their thyroid gland and excreta were measured by a NaI type whole-body counter at the NIRS.

For subject A, the maximum uptake by the gland of 33% was attained between 24 and 48 hours after ingestion. For subject B, it was 11% and attained around 24 hours after ingestion. The nuclide was eliminated with the biological half-lives of 40 days for A and 30 days for B afterwards.

A predominant dose of the ingested nuclide was rapidly excreted into the urine, that is, 70.8% for A and 88.6% for B in the first 24 hours after ingestion. In 2 weeks after ingestion, about 90% of ^{131}I as much as the total excreted amount was evacuated. The fecal excretion was negligibly small.

The sum of urinary excretion and thyroid uptake in the first 24 hours after ingestion was about same as the ingested dose.

These findings suggest that urinalysis of iodine will give a good estimate of daily iodine intake.

An analytical method for stable iodine in bulk of urine was studied. Following the procedure, amount of stable iodine is being measured for the sample obtained from subjects A and B.

Key words:

population dose, Japan, radioactive iodine, biological half life, thyroid, uptake, excretion, urine, estimate,

iodine, analytical method, stable iodine.

緒言

環境に放出された放射性核種による内部被曝の経路として経口摂取がある。

放射性ヨウ素は動力炉等における生成率が大きく、その化学的性質から施設外の環境へ少量が逸失することは避けられない。

ヨウ素は比較的軽量の臓器である甲状腺に親和性をもつので、一般環境に存在する放射性ヨウ素によって甲状腺が受ける内部被曝線量の国民線量に対する寄与は考慮すべきである。

放射性ヨウ素による甲状腺内部被曝線量は主として次の要素に支配される。

- (1) 甲状腺重量
- (2) 安定ヨウ素および放射性ヨウ素の摂取量
- (3) ヨウ素の甲状腺到達率
- (4) 甲状腺における放射性ヨウ素の有効半減期
- (5) 甲状腺の安定ヨウ素濃度

上記の要素のうち(1)と(3)に関する日本人のデータは豊富である。

すなわち(1)については相見¹⁾と田中²⁾による報告などが代表的で、成人男子の甲状腺重量は20g前後である。

(3)は甲状腺機能検査の目的で主として低ヨード食摂取時に得られたデータが多い。吉沢と草間はこれらのデータを総括して経口摂取後24時間目の甲状腺ヨウ素摂取率をfw、すなわち最大到達率と規定し約0.2をfwと

みなしている。³⁾しかし、Comarらは最初の24時間以後に甲状腺蓄積率の最大値が出現する可能性を実験的に示している。⁴⁾内部被曝推定を正確におこなうためには甲状腺蓄積率の状況をより詳細に検討して得られたfwが必要であると考えられる。

甲状腺部位の放射性ヨウ素蓄積率の測定値と同時に摂取する安定ヨウ素量の定量的関係を調べた日本人についての報告は殆んどない。放射性ヨウ素のfwは同時に摂取する安定ヨウ素量に大きく影響されることから、摂取量の測定ないし推定は甲状腺の内部被曝線量の推定に不可決である。

(4)に関しては経口摂取された放射性ヨウ素の正常日本人について得られたデータはとくに少ない。^{5,6)}

甲状腺の安定ヨウ素濃度について、山県は76試料の平均値として0.85mg/生重量を得ている。⁷⁾

いずれの要因についてもICRPの標準人に関する数値^{8,9)}と日本人の数値は若干異っている。なかんずく、その生物学的半減期は¹²⁹Iによる内部被曝をも考慮すると、ヨウ素摂取量が相対的に少ない地域で得られた数値を日本人の線量推定に適用することには疑問があり、独自のデータの蓄積が必要である。

以上の現状を考慮して本小課題ではヨウ素の生物学的半減期のデータを増すことを第1の目的として、成人男子2名による¹³¹I (Na¹³¹I水溶液) 経口摂取後の甲状腺部位を経時的に計測して、その生物学的半減期を推定した。あわせて、摂取量との定量関係を把握するためにその排泄率と甲状腺到達率の経時変化を観察した。さらに放射性ヨウ素の生物学的半減期、甲状腺への到達率、排泄率などに影響を与える安定ヨウ素の摂取量を推定するために、¹³¹I摂取前2週間に採取した5日間の尿と、摂取後、甲状腺部位の計測日に採取した尿について、安定ヨウ素の定量をおこないつつある。

また大量の尿中の全ヨウ素の定量方法について検討した。

実験方法および経過

正常な日常生活を行っている人についてデータを得る

ことを企画したが、摂取を許可された¹³¹Iの放射能が微量であり、生物学的半減期を推定するために定量し得る甲状腺蓄積量を確保するため、安定ヨウ素摂取に関して若干制限を設けることは避けられなかった。すなわち、¹³¹I経口摂取前2週間は安定ヨウ素を高濃度に含む海藻とくに褐藻の摂取をひかえた。

この間のヨウ素摂取量を推定する目的で2日間隔で5日間、各24時間蓄尿した。現在、その安定ヨウ素の定量をおこなっている。

¹³¹I摂取後は通常の食習慣に復した。

甲状腺内部被曝線量を0.1レム前後におさえることを強く要請されたので、生物学的半減期を推定するのに必要最短期間を3週間と考え、計測可能な放射能が甲状腺部位に残留し得る最小量として74 nCiを¹³¹I摂取量とした。この¹³¹Iを水溶液(Na¹³¹I)として体重67 Kgと62 Kgの被検者A、Bが経口摂取した。

¹²⁵Iの使用も検討したが点線源による予備実験から、検出器の構造上¹³¹Iの74 nCi摂取で受けるより低い線量で目的を達成できないことが明らかになったので、¹²⁵Iは利用しなかった。

甲状腺部位の放射能計測および排泄物中の放射能計測は放医研のNaI型ヒューマンカウンタでおこなった。

(i) 甲状腺部位の計測

摂取された¹³¹Iの放射能が少ないため甲状腺部位以外に分布する¹³¹Iならびに⁴⁰Kが甲状腺部位の放射能計測におよぼす影響をできるだけ避ける目的でコリメータを使用した。

コリメータの先端の開きを16 cmに設定すると、先端は被検者の体表には接して、測定部位以外に存在する¹³¹Iおよび⁴⁰Kからのγ線を遮蔽することができた。この条件で2名の被検者の頸部表面から検出器までの距離はA 25.7 cm、B 27.0 cmであった。ファントムを用いた実験で、甲状腺の存在する深度が表皮下5 cmまでであれば、この幾何学的位置で深さにより、¹³¹I計数効率が有意に変化しないことが確認された。

甲状腺ファントムはORINS型頸部ファントムに準じて直径15 cmのアクリル樹脂製の円筒に水を満し、

深さ 3 cm の位置に 0.6 l の水溶液として 1 3.8 nCi の ^{131}I を吸着させた陰イオン交換樹脂 7.4 g を詰めた塩化ビニル製小容器を、左右 1 個ずつ、体軸に対称になるように設置したものを使用した。

頸部と大腿部の放射能計測には、該当部位に固定した上下 1 対の検出器のうち、コリメータをかけた上側の検出器だけを作動させた。

カリウムファントムと水ファントムの該当部位を被検者と同様な幾何学的位置と測定方法で計測して、 ^{40}K から ^{131}I 定量エネルギー幅への寄与率を求めた。この寄与率を被検者に適用して、被検者の ^{40}K 計測値から、その ^{131}I 計測値への寄与量を推定して、 ^{131}I 計測値を補正した。

甲状腺の ^{131}I 蓄積率の計測値が甲状腺以外の頸部に存在する ^{131}I 計測値から受ける寄与を補正するため、甲状腺以外の頸部に存在する ^{131}I と同濃度であるとみなして大腿部の ^{131}I を計測した。

甲状腺部位の計測値をこの量について補正したものの数値と、甲状腺ファントムで得られた計数効率を用いて甲状腺残留量を推定した。

大腿部における ^{131}I 蓄積量は排泄物中の ^{131}I 校正試料を用いて推定した。

(ii) 排泄物の ^{131}I 計測

尿は最初の 2 4 時間については、 ^{131}I 摂取後 3 時間、3 ~ 6 時間、6 ~ 12 時間および 12 ~ 24 時間に排泄された量を別々に貯留した。その後は甲状腺部位の ^{131}I 計測をおこなう前日から当日までの 24 時間尿を貯留した。

糞便は ^{131}I 摂取後 3 日まで、1 日分ずつ別々に集めた。

排泄物の放射能は被検者を計測したのと同じヒューマンカウンタを使用して計測した。上下 1 対の検出器を試料を入れた容器にできるだけ接近させ、両検出器とも作動させた。水、塩化カリウム水溶液および ^{131}I 校正試料を計測して、 ^{131}I 定量エネルギー幅における ^{131}I 計数効率、 ^{40}K の γ 線からこのエネルギー幅の計数値が受ける寄与を測定日ごとに求めた。次に排泄物を

同一の幾何学的位置で計測して、校正試料の計数効率および寄与率を適用して ^{131}I を定量した。

(iii) 尿中の安定ヨウ素の定量

1 日排泄量のうちその $\frac{1}{2}$ から $\frac{1}{3}$ に相当する 600 ml を分析に供した。安定ヨウ素の回収率を求めるため、 ^{125}I をトレーサとして加えたのち、有機物と結合しているヨウ素を加水分解して遊離させるために、尿を pH に調整してペプシンを加え、1 晩 43°C で振盪した。

この加水分解した尿を氷冷して試料の 1.5 倍量の濃硫酸を加えた後、二酸化マンガンを加えて加熱蒸留をおこない有機物を分解すると同時に発生するヨウ素および留出するヨウ素分画を、塩酸ヒドロキシルアミンを加えたカセイソーダ水溶液に受ける。

この分画を蒸留して水を留出させて、ヨウ素分画を濃縮する。蒸留に先立ち、高濃度に含まれるカセイソーダが同時に濃縮されて、ヨウ素分画の濃縮が妨害されるのをさけるために、陽イオン交換樹脂で Na^+ を捕集して除去した。

第 1 段階の蒸留ではヨウ素分画に少量の有機物が混入して来るので、濃縮されたヨウ素分画について、直ちにヨウ素デンプン反応を適用して、ヨウ素を定量することは困難であり、精製が必要である。また、ヨウ素の尿中排泄量とヨウ素デンプン反応によるヨウ素の定量限界を考慮すると、濃縮分画の体積は大きすぎて適当でない。

定量可能なヨウ素濃度を得るため、四塩化炭素中にヨウ素を抽出して、精製と高濃度化を同時におこなう。四塩化炭素抽出分画を定容し、その一部で ^{125}I の放射能を計測してヨウ素の回収率を求め、残りの試料を 517 m μ で比色して安定ヨウ素を定量する。この数値と回収率から試料中のヨウ素量を推定する。

現在本法を用いて被検者の尿中安定ヨウ素の定量をおこなっている。

試薬と器具に由来する汚染は、試料の分析に使用したのと同量の試薬を 600 ml の蒸留水について使用して、同一分析操作によって定量している。

^{125}I を経口投与したラットから得た尿について、添

加した ^{125}I とし、尿中に含まれている放射性ヨウ素の分析過程上の挙動を検討している。

安定ヨウ素定量方法に関して、有機物の分解剤の選択および分解条件を検討したが、試料が比較的大量で液体であるため、小規模の分析に用いられている方法は必ずしも適当ではなかった。

一方、発生したヨウ素あるいはヨウ素イオンを捕集する上で陰イオン交換樹脂はきわめて有力であったが、樹脂から溶離したのち、安定ヨウ素定量のため、さらにヨウ素を濃縮する段階で適切な方法が見出せなかった。

定量方法については、なお検討すべき点が多い。

結果および考察

^{131}I の甲状腺残留率の生物学的な経時変化を、摂取量の相対値を用いてFig.1に示した。また ^{131}I の尿および糞便への排泄率の経時変化も同時に示してある。

甲状腺の ^{131}I は被検者Aで摂取後1日から3日の間にBでは6時間後から2日後の間に最大蓄積率に達したことが推定される。被検者A、Bは摂取後48時間目と24時間目にそれぞれ33%と11%の蓄積率であった。

最大蓄積率の出現時期はComarらによる11名の正常人の観察では、その6名は摂取後2日後であり、3名については7日後である。またその蓄積率は約20%である。⁴⁾ Bernardらは2名についてその最大蓄積率が摂取後2日目に得られたことを報告している。¹⁰⁾ Colardらは4-コンパートメントモデルにもとづいて、放射性ヨウ素の甲状腺蓄積は摂取後24~48時間に最大になることを導いている。¹¹⁾

したがって甲状腺への最大到達率fwとして甲状腺蓄積率の24時間値を用いると過少評価する可能性が大きい。

甲状腺到達率が放射性ヨウ素と共存する安定ヨウ素量の影響を強く受けることは周知の事実である。したがって本小課題で得られたfwについて被検者間に認められる差異もその尿中の安定ヨウ素量を得た上でその原因を考察すべきであろう。

Table 1に ^{131}I 摂取後24時間の尿中排泄率を示した。

Table 1 経口摂取された ^{131}I の最初の24時間の尿中排泄率の経時変化

経過時間	被検者 A		被検者 B	
	尿中排泄率 (%)	積分値 (%)	尿中排泄率 (%)	積分値 (%)
0 - 3	23.7	23.7	18.0	18.0
3 - 6	12.9	36.6	22.7	40.7
6 - 12	24.0	60.6	30.3	71.0
12 - 24	9.2	69.8	17.2	88.2

(但し、排泄率は初期摂取量に対する数値である。)

Fig. 1 に示したように2日目以降の ^{131}I 尿中排泄率はいちゞるしく減少し、摂取後2週間に排泄された ^{131}I の約90%は第1日目の尿中出现した。糞便中への ^{131}I の排泄率は1%弱できわめて小さく、全排泄率への寄与は完全に無視できた。この排泄率に関する傾向はBernardらが陰イオン交換樹脂で処理して得た蛋白結合型 ^{131}I を含むミルクの1回摂取で得た結果と類似している。¹⁰⁾ 排泄率は本実験の方がやゝ大きい。 ^{131}I の摂取時の化学型の相違および安定ヨウ素摂取量の相違にこのような結果の生じた原因を求め得る可能性がある。

第1日目の尿中排泄率は顕著に大きく、その24時間積分値と甲状腺到達率の和はほぼ初期経口摂取率に等しい。これは尿のヨウ素を定量することで、蓄尿前1日間に摂取されたヨウ素およびその甲状腺到達量を、一定の誤差を許容するならば、推定可能であることを示唆している。とくに集団の平均値を求める場合には、十分よい推定値を得ることができると考えられる。但し水溶液と異なる形状でヨウ素が摂取された場合、その腸管吸収率に対して考慮する必要がある。

甲状腺蓄積率が最大に達した後のヨウ素の生物学的半減期は被検者Aで40日、Bで30日であった。この数値は正常日本人について得られた30日⁵⁾、19~45日(但し有効半減期から筆者が換算した)⁶⁾と一致する。しかし欧米で得られている数値は概して大きく 74 ± 70 日¹⁰⁾

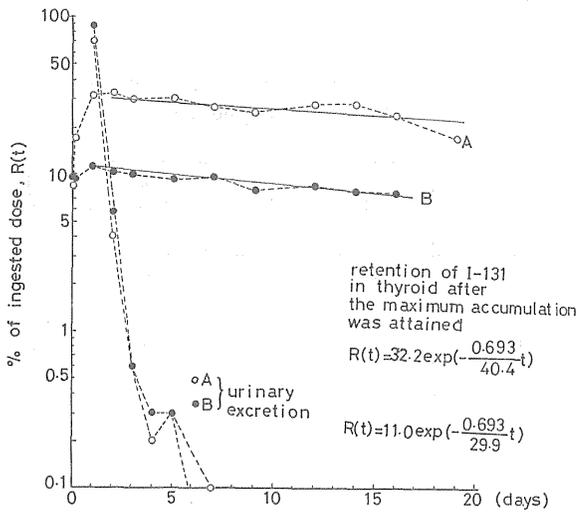


Fig. 1 ^{131}I 経口摂取後の甲状腺蓄積と尿中排泄率に関する経時変化

約90日¹²⁾、108日¹³⁾などであり、ICRPでは100日を採用している。⁸⁾ Colard らによれば、生物学的半減期もまた安定ヨウ素の摂取量に依存している。すなわち4-コンパートメントモデルから50 $\mu\text{g}/\text{日}$ のヨウ素摂取量で158日の生物学的半減期であり、300 $\mu\text{g}/\text{日}$ で95日に短縮される結果が得られる。¹¹⁾ 山県によると日本人のヨウ素摂取量は欧米人よりもはるかに多い。⁷⁾ したがって、日本人と欧米人の間に観察されたヨウ素の甲状腺における生物学的半減期の差異は、存在すると考えられる。

本小課題では放射性ヨウ素による甲状腺内部被曝線量の推定および安定ヨウ素摂取量の推定に関して、若干の基礎的データを得ることができた。

引用文献

- 1) S.Aimi, S.Yashima, M.Sugai, B.Sato, T.Sakai and Y.Nakajima (1952) Studies on the weight and size of internal organs of normal Japanese, Acta Pathol. Japan. 2, 173.
- 2) 田中義一郎・河村日佐男・中原義行(1977), 規格日本人(Reference Japanese)の設定, 日本原子力学会誌 19, 674.

- 3) 吉沢康雄・草間朋子(1976) 日本人の甲状腺に関する正常値について, 保健物理 11, 123.
- 4) C.L.Comar, R.A.Wentworth and J.R.Georgi (1963) Thyroidal deposition in man, rat and dog of radioiodine from milk and non-milk sources, Health phys., 19, 1249.
- 5) S.Tanaka, Y.Mochizuiki, E.Yabumoto, T.A.linuma, T.Kumatori, T.Yamane, T.Akiyama and N.Matsusaka (1967) Protection of thyroid gland and total body from radiation delivered by radioactive iodine, In 'Diagnosis and treatment of deposited radionuclides', Proceedings of a symposium held at Richland, Wash., U.S.A., 15 - 17 May 1967.
- 6) 浜本研・森田陸司・向井孝夫・古松芭子・鳥塚莞爾(1970) 各種放射性医薬品の体内分布について, 核医学 7, 392.
- 7) N.Yamagata and T.Yamagata (1972) Iodine content of thyroid glands of normal Japanese, J. Radiat. Res., 13, 81.
- 8) ICRP pub. 10 (1968).
- 9) ICRP Pub. 23 (1975).
- 10) S.R.Bernard, B.R.Fish, G.W.Royster, Jr., L.B.Farabee, P.E.Brown and G.R.Patterson, Jr. (1963) Human thyroid uptake and bodily elimination of ^{131}I for the case of single and continual ingestion of bound iodine in resin-treated milk, Health phys., 9, 1307.
- 11) J.F.Colard, W.G. Verly, J.A.Henry and R.R. Boulenger (1965) Fate of the iodine radioisotopes in the human and estimation of the radiation exposure, Health phys., 11, 23.
- 12) K.E.Halnan (1964) V. The metabolism of radioiodine and radiation dosage in man, Brit. J. Radiol., 37, 101.
- 13) M.A.Van Dilla and M.J.Fulwyler (1964) Radioiodine metabolism in children and adults after the ingestion of very small doses, Science 144, 178.

Ⅳ 体外被曝線量推定および放射性気体のモニタリング法の開発に関する調査研究

Study on the Estimation of External Exposure due to Ionizing Radiations in the Environment and Development of the Monitoring Techniques of Radioactive Gases in the Atmosphere

本研究は上記課題のもとに、環境放射線による体外被曝という観点から2小課題について研究を行なった。

一つは、施設より放出される放射性物質からの電離放射線が人体に及ぼす線量を推定して行く過程の一部について検討を行なっている。環境での自然放射線は気象条件、大気中放射性核種濃度に関係して大きく変動する。そのためその上に重なった人工放射線の弁別測定が非常に困難になる。もし自然放射線の変動が明確に知れているなら、施設周辺の測定に於て人工放射線寄与分を推定することは比較的容易にできる。しかし現状では、自然放射線の変動の様子がはっきりしないため人工放射線寄与を低レベルで推定することは困難である。このような事情から環境中の自然放射線を環境条件と対比させて検討し、その変動の量的把握をして行くことをこの研究の目的として研究を行った。

さらに人工放射線寄与分の正確な推定のためには、測定機器の持つ特有な偏り、すなわち自分自身の持つ放射性物質からの放射線による寄与、低レベルでの校正上の偏りなどを正確に把握する必要がある。そのためには低バックグラウンド実験室が必須である。このような低バックグラウンド実験室に要求される諸点を検討し、実際建設上の基本方針となる概念的なプランを作り上げた。このプランには、施設内の配置、内部構造、材質、放射線バックグラウンドを下げる対策、安全上の配慮が盛り込まれている。本項については、自然放射線の変動以外の検討事項と同様、本報告では省略した。

先述した自然放射線の変動と環境条件の關係の検討には、長期間の各種観測データが必要であるが、測定器が時期的にも十分になかった關係上京都大学原子炉実験所の協力を得て資料を揃えて検討している。

なお、上記の研究のバックグラウンドとして、昭和50年原子力委員会によって定められた“発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針”がある。日本の現実として、そこで決められている目標値に近い値が測定可能であることを要求されるであろう。

第2の小課題は、大気中の放射性ガスのモニタリング法の開発である。第1の小課題では、施設周辺に焦点をしばって問題を考へて行かねばならないが、本小課題では、 ^{85}Kr を取扱うために、再処理放出の場合を除けばより広域的な汚染を考えることになる。 ^{85}Kr は希ガスであること、半減期が長いことによる。また発生源の増すとともにしだいに大気中レベルが増加して行く可能性がある。希薄な濃度の ^{85}Kr をいかにして正確に測定し、そのレベルの状況がどのようなものであるかを知ることにより、国民のそれによる線量寄与の程度を把握することができる。その結果人工放射性核種による影響を推定し得る。

大気中の ^{85}Kr のモニタリング法として用いられる技術は、複雑で操作が容易でないものが多い。本研究ではサンプリング空気からの Kr (^{85}Kr を含む)の分離、精製装置を試作し、また計測試料の計数用としての液体シンチレーション計数装置の低バックグラウンド化を計っている。また、計測試料作製上必要な条件としてシンチレータ溶媒に対するクリプトンの溶解性について種々の検討を行なった。標準ガスにより計数装置の計数効率、計測上の最適条件の設定も行なっている。

以上の装置により1975年5月より1976年7月にかけて大気中 ^{85}Kr 濃度を調べ考察している。

本小課題に関する研究は発足も早く、順調に推移し本特別研究の期間内に予期された成果を得たものと考えら

れる。また日本における環境中の低レベル⁸⁵ Kr 濃度の測定が可能な基本的な測定システムが確立されたものとみられる。将来さらに、簡易、迅速な方法の確立が望まれる。

Estimation of Dose from Exposure to External Radiation in the Environment.

Siro ABE,
Kazunobu FUJITAKA

Abstract

Meteorological factors which influence the external radiation were analysed. Attention was paid to the relationship between the concentration of the radioactive aerosol and the outdoor radiation level. Twelve kinds of data were obtained at Kumatori Site of Kyoto University which involves three kinds of outdoor gamma radiation data, the atmospheric temperature at two altitudes, 1.5m and 35m, the wind velocity at two altitudes, 11m and 35m, the dryness at 1.5m altitude, solar radiation, the precipitation as rainfall, alpha activity of radioactive aerosol, and beta- and gamma-activities of radioactive aerosol. The mean diurnal variation and annual variation of each factors were obtained from the data of 25 months periods from August 1974 to August 1976. Outstanding was the result that the outdoor gamma radiation varied just slightly in spite of the large variation of the airborne activities and others. It implies that the individual effect due to the factor would compensate and cancel each other. Otherwise the major contribution on the variation might distribute at random with respect to time. Contrary to the apparent independence of the outdoor gamma radiation level of the airborne activity, however, the partial correlation coefficient between them was not negligibly small.

Analysis of each time series of individual data has revealed that the rainfall has the largest influence on the variation of the outdoor gamma radiation level particularly in its initial period. Airborne activity was also revealed to have a strong connection with the atmospheric stability and the wind velocity though it depends on the rainfall just a little. The atmospheric stability could be expressed by the vertical gradient of the atmospheric temperature which is strongest at

the "inversion". However problem remains as to the nature of the wind. Which of the atmospheric turbulence and the prevailing wind corresponds to the wind here will have to be analysed referring to the large scale weather charts.

Regression analysis showed that the atmospheric temperature was the essential cause of the variation of the radiation level. Special attention have to be paid on the temperature dependence of the instrumental systems in monitorings.

Key words

- (1) airborne activity
- (2) annual variation
- (3) atmospheric stability
- (4) atmospheric temperature
- (5) atmospheric turbulence
- (6) correlation coefficient
- (7) diurnal variation
- (8) dryness
- (9) inversion
- (10) meteorological factor
- (11) multiple correlation coefficient
- (12) nitric oxides
- (13) outdoor radiation
- (14) partial correlation coefficient
- (15) planetary wave
- (16) radioactive aerosol
- (17) rainfall
- (18) regression analysis
- (19) solar radiation
- (20) wind velocity

緒言

体外被曝にとって重要な空間放射線をモニターする際

にそのレベルに影響を与えるものは二種類ある。即ち地質的差異と気象条件の変動である。前者はある意味では大スケールの時間変動を表わしているものと言えるが、通常は一定として扱える。気象条件の変動は比較的短い時間変動を表わすものであるが、これもまた年変化、日変化といった規模の時間変動と、もっと短い一過性の変動に分けることができる。この場合、特に放射性核種が地面から放出される割合や、その放射性核種が附着したエアロゾルの挙動などは気象条件の影響を大きく受けるので空間放射線レベル、気象条件、エアロゾル濃度の間の相互作用を詳しく研究することが必要である。今までこの種の研究はいろいろあるが、わずかな例を扱ったケーススタディか、それに準じるものが多く、またはルーチン観測をしたのみで、その結果の解釈にまで至っていないものが大半であった。

大気中エアロゾル濃度と大気安定度の関係は古くから論じられており、定性的にはほぼ確立されていると言える。しかし多くはJacobi and Andre¹⁾やBeck²⁾の計算に基くものである。前者の基礎的な計算はよく引用されていて興味深いものであるが数物理的な興味はともかく現象を把握するためには分類さえ適確なものであれば観測事実を積み上げていく方が实际的であり、本質に容易に近づくことができると思われる。後者の解析も有益であるが幾つかの例だけの計算結果を過大評価はできない。他の多くの計算結果の報告も定常解を求めているのに過ぎない。例えば拡散係数を連続的に変化させたり、濃度の時間変化を追跡してはいない。大気現象は特に地表付近では過渡的なものが多くあるから、計算の便宜上の理由だけで定常解に限定するのは根拠が乏しい。

平均値の議論を蓄積されたデータの解析から行うためには何よりも長時間にわたる連続観測データが不可欠である。空間放射線レベルの変動に対して影響を与えそうな因子のうち最も長周期のものは太陽活動の11年周期変動である。理想的にはこれも考慮した測定が望ましいのだが、数年間で不可能である。その次の長周期の現象としては気象上のいわゆる惑星波という26カ月周期の変動がある。これが直接・間接にどのように空間放射

線のレベルに影響を与えるのかまださだかではない。しかし、無視できるという証明もない以上は2年以上の長時間連続観測が望ましい。一方、降水の問題は原則的に過渡的な現象であるため規則性は期待しにくく、ただ平均しても本質はつかめないと思われる。これはむしろ降水量、持続時間、降水率などのパラメータにつき規格化した上で平均すべきなのかも知れない。降雪に関しても定性的には知られているし、スウェーデンの研究例はよく知られているが、国内で定量的な解析を行った例は余りない様である。

データ

大気の状態を記述する気象因子としては気温、降水、湿度、風速、風向、日射量などであるが放医研においては気温、降水、風速、風向の4つを連続測定している。それに対応して空間 γ 線のデータもNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて採取しているがダストモニターのデータがまだ欠けているため放射性エアロゾル濃度の情報が不足している。しかし、熊取にある京都大学原子炉実験所において同様の連続観測が行われているので、そのデータをあらかじめ形態的に解析することによって予見を得た。データの種類は地上1.5mと3.5mの2カ所における気温、地上1.1mと3.5mの2カ所における風速、地上1.5mにおける乾燥度(乾湿球式で測定しているため実際には湿球で測った気温)、日射量、雨量、放射性エアロゾルより測定した α 線レベル(4時間遅れ)同 $\beta \cdot \gamma$ レベル(1.5時間遅れ)およびいわゆる衛研方式で測った空間 γ 線の強さ、同様に理研方式のもの、および京大独自の方式によるものである。この解析では特に大気安定度の変動に起因する地表付近の放射性エアロゾルの濃度変動が空間放射線のレベルにどれだけ影響を与えるものかという点に注意を払った。通常、ルーチン解析では大気安定度は簡便法で分類されるようであるが、大気力学から言えば温度勾配(リチャードソン数に反映される)を知ることが本来必要なのであり、その意味で京大のデータは望ましいものと言える。

データ解析が行われたのは1974年8月から1976

年8月までの25か月分である。これから年変化まで求めることは可能である。雨量を除く全データは連続記録で採取され、雨量は降雨量5mm毎の記録になっている。全ての記録が欠測なく採取されているわけではなく、特に湿度計が不調でわずか2か月程度しかデータが無い。また空間 γ 線のデータも三種類の検出器のデータがそろったのは一か月に満たない。その他は風速(地上35m)のデータが3か月分程度欠測している外はほぼ80%以上データが採取されている。合計して約500日分のデータがあるので湿度以外については本質的(平均)な挙動を明らかにするには十分と思われる。ただし、主として時系列の変動を見ることに主眼を置いたため絶対値を求めるまでに至っていない。

空間放射線の変動パターン

あらかじめ生データを注意深く点検して欠測の有無、零レベルの変動、ゲインの切替えなどを十分に調べた上で有効な部分のみを選び、各データは1時間値(ものによっては30分値)を読みとった。それから平均的な日変化のパターンを求め、その月毎の平均値から平均的な年変化のパターンを得た。これを図1(日変化)、図2(年変化)に示す。

空間 γ 線レベルそのものを平均値でみると、その日変化はほとんど見られない。衛研タイプ、理研タイプのデータはいずれもほとんど変動しない。ただ京大独自の方式のものは日照時間中に3%程度レベルが上昇しているようである。月による日変化のパターンの差もないようである。年変化でみると衛研タイプのデータは夏(7月)にやや目立ったピークがある。理研タイプのデータではややうねりが見られ、8月に最大値、10月に最小値を与えているが変動幅は10%以内である。京大タイプのデータでは6~9月の夏季にやや高く、12~3月の冬季にやや低くなり、その変動幅は20%程度である。

空間 γ 線レベルの平均的な日変化が余り無いということは変動要因が有効に働いていないか、あるいは時刻によらずランダムに分布していることを意味する。気温、風速、逆転層(放射性エアロゾル濃度)、日射量、湿度な

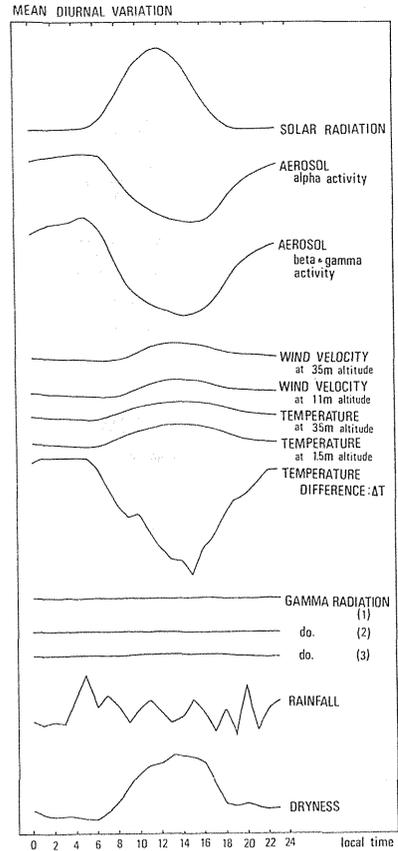


Fig. 1

どはかなりはっきりした日変化のパターンを持っているし、その変動は互に相関を持っているようであるから、これらが互に相殺しているか、又はこれらは皆空間 γ 線レベルに対しては小さな影響しか持たないということになる。降雨もまた大きな要因であるが時間的にランダムな分布をしているため見掛上空間 γ 線レベルの変動には現われないということかも知れない。

空間放射線の変動要因

変動要因を解析するにあたっては平均パターンのみならず、個々の生データも直接解析した。以下にその形態

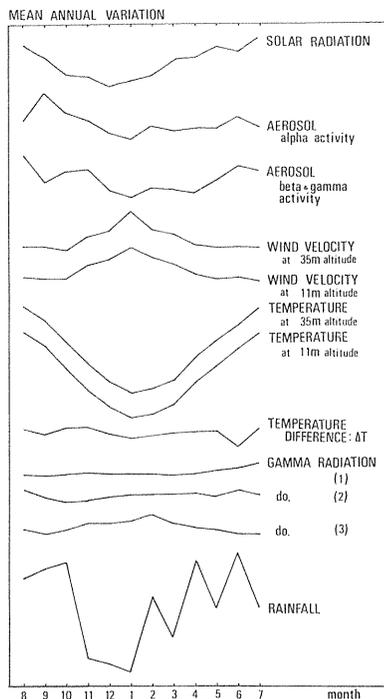


Fig. 2

上の結果を述べる。

- ① 降雨 個々にみると空間 γ 線レベルに最も顕著な影響を与えるものは降雨である。一般に20~30%の上昇をみせる。但し降雨があっても風が強いとレベルの上昇が見られないこともある。降雨は元来一過性の現象であって特に規則性はないので、平均値を用いた議論は結果の応用に制約を与える。その平均的な日変化を見ると、かなりの乱れはあるものの本質的には日変化は無いと言いきらう。同様に平均年変化を見ると11~1月の冬季に少なく9月(台風)、6月(梅雨)に多い。熊取が太平洋側の気候を持つことが反映されている。
- ② 放射性エアロゾル エアロゾルの平均レベルの日変化は日中に低く、夜~早朝に高いのだが、これを月毎

に比べてみると12~1月の冬季には変動幅は小さく、 $\beta \cdot \gamma$ 線レベルで30%程度、 α 線レベルでファクター2であり、夏季は $\beta \cdot \gamma$ 線レベルでファクター2、 α 線レベルでファクター3程度の変動をする。日中のレベルは余り差は無く、主として夜間のレベルの差が影響しているようである。各月の平均レベルから年変化を求めてみると余り大きな変化ではないが(30%以下)冬季に低く夏季に高い。個々のデータで見ると放射性エアロゾルは空間 γ 線には余り影響を与えていない。一般にエアロゾルに対する効果は逆転層 \geq 風 $>$ 雨の順のようである。但し、逆転層と風速とはほとんど同程度である。しかし、たとえ逆転層が形成され、かつ風速も小さい時でさえ空間 γ 線レベルはほとんど影響されない。そしてこのエアロゾルに最も大きい影響を与えているのは大気温度構造である。個々にみても平均値でみても逆転層の形成の有無とほとんど1対1に対応がみられる。その結果風速の大きい時は放射性エアロゾルのレベルは小さくなる(一般に日中)。しかし風速が極めて小さくなると日中でも空間放射線レベルが4%程度上昇をみせることもある。

- ②-a 逆転層 気温そのものの日変化は個々にみても平均値でみても極めて明瞭であって地上1.5mでも、3.5mでも日中14時ごろに最大となり、早朝5~6時に最低となる。気温の場合に重要なのは逆転層を意味する2つの高さの気温差である。地上3.5mの気温から地上1.5mの気温を引いた差を ΔT で表わし、これの日変化を調べてみると明らかに14~15時ごろに ΔT の最小値があり、真夜中~早朝にかけて最高レベルを保っている。つまり逆転層は ΔT 最大の時期に最も発達していることになる。一方 ΔT の年変化は本質的には無いようである。 ΔT の変化は0~+3/33.5mであった。ここに述べた逆転層の性質については独立に非放射性気体を用いた研究も行った。地表大気中の窒素酸化物濃度の時間変動について多量のデータが蓄積されているのを利用してこれを解析したところ、窒素酸化物は放射性エアロゾルと同様に午後14~15時ごろに最小となり、一方年変化はほとんどない。夜間にも濃度の極小が存在する点が放射性エー

ゾルと異なるが、これは光化学反応系の問題と関連する。しかし大気化学の研究者のかなりは逆転層の効果を指摘しており、ここで求めた ΔT の挙動に傍証を与えている。

- ②一b 風速 逆転層の余り強くない時は主として風速の小さい時は放射性エーロゾルのレベルは高く、風速の大きい時はそのレベルは小さい。風速は日中に大きく夜間～早朝に小さいのが一般的であるが、日中であっても気温が低く、日射量の小さい時は風速も小さいままのこともある。2つの高さの風速を比べると放射性エーロゾルに効いているのは地上3.5mよりも地上11mの風のようにである。またどちらの高度でも風速の平均日変化を各月毎に比べてみると12～1月の冬季には変動幅は小さく(20%程度)、逆に夏季には変動幅は大きい(約ファクター2)。この差は主として夜間における風速が夏季には小さいのに対し、冬季には大きいためである(日中の風速は一年中余り変らない)。これから各月毎の平均レベルを求め、平均年変化を調べてみると冬季、特に12月(地上3.5mの風)、1月(地上11mの風)で最大となることが明瞭にわかる。問題なのはこの風が個々にも平均値でも逆転層のパターンとあたかも逆相関をみせることから、大気の乱れに相当するののかという点である。今までのところ風向の解析は行われていない。風向は変動の激しいものである上、局地的な条件で大きく変化するので、卓越風を分離するためには気圧配置図のような広域的な情報を持たなければならない。将来の問題として残される。

- ②一c 降雨 個々にみると放射性エーロゾルは雨が降ると少しレベルが下るらしい。これは夜よりも日中の雨で目立つ。但し全ての場合に顕著というわけではない。

- ③ 気温 気温の上昇は空間 γ 線レベルに影響を与えているようである。この影響は風や逆転層の有無とは独立なものようである。空間放射線のいずれのタイプのデータでも年変化で数%の変動を与えているらしい(6～8月の夏季に上昇する)。日変化は衛研タイプ

や理研タイプのデータでは余り目立たないが、京大独自のものははっきりしていて、10～4月の冬季に3～4%程度の日変化が認められ、5～9月の夏季には目立たなくなる。即ち気温の絶対値によるらしい。

気温の空間 γ 線レベルへの影響は無視できない程度のものであるから気温と関連した他の現象にも注意を払う必要がある。

- ③一a 降雨 降雨の際には気温低下がある。特に急激な降雨の際に低下が目立ち、またどちらかと言うと夜間において目立つ。ただし降雨がゆっくりと続く時はそれはよる気温低下は認めにくいことがある。この気温低下はその降り始めに見られるもので雨が続く時、気温低下もずっと続くわけではない。
- ③一b 日射量 日射量も気温と密接に結びついている。日射量は12時にピークを持つような明瞭な日変化と夏季にピークをもつ年変化を持つ。この日射量に大きな変動があるとそれは必ず気温の変動に反映される。日射量が日中滑らかな変化をする時は気温の変化も滑らかである。日射量のピークと気温のピークが少しずれたり、日没後の気温の減衰が遅いのは大気の熱容量のためである。
- ③一c 湿度 湿度(データとしては乾燥度)のデータはわずかな期間しか無いので年変化は不明だが日変化は明瞭に認められる。ほとんど気温と逆相関の形で日中14時ごろに最低となり、夜～早朝に最高となる。この湿度は間接的に気温を調節していると思われる。

各因子間の相関

- ① 単純相関 上記の考察を定量化するために平均化された各因子間の相関係数を計算した。この場合、素過程を探るためには偏相関係数を求める必要があり、現象論的にとらえるためには単純相関係数で良いことになる。まず後者を求めた。最も長期間にわたってデータのある理研タイプの計測器による空間 γ 線データを採用すると、平均日変化について放射性エーロゾルの $\beta \cdot \gamma$ 線レベルとの相関係数は0.35であり、同 α 線レベルとは-0.33と小さい。平均年変化については

$\beta \cdot \gamma$ 線レベルと 0.22、 α 線レベルと -0.33 とやはり小さい。気温との間でも日変化で -0.29 (地上 1.5 m)、-0.32 (地上 3.5 m) と小さく、年変化でも 0.19 (地上 1.5 m)、0.17 (地上 3.5 m) と極めて小さい。その他の因子との間でも日変化、年変化ともに相関係数は小さく、ただ年変化において日射量との間に 0.52 という値が大きい値として目立っている。これからみて、平均的に見る限り見掛けの相関はほとんど無いことになる。幾つかの因子を中心とする単純相関係数を図 3、図 4 に示す。

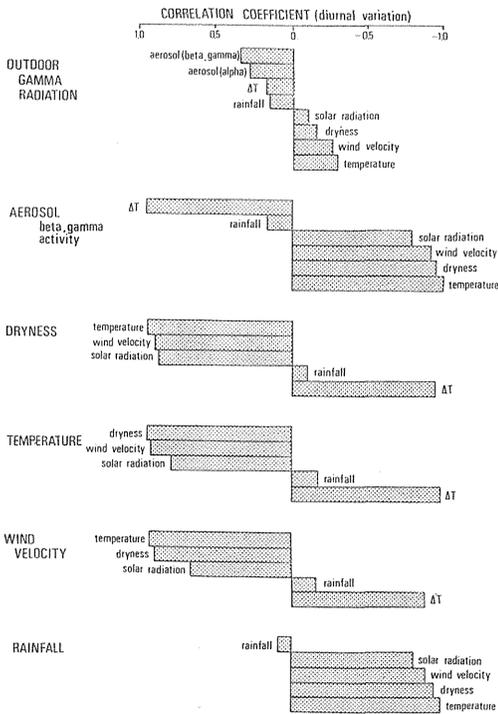


Fig. 3

② 偏相関 本質的な因果関係を調べるためにこれらの因子間の偏相関係数を計算した。コンピュータの記憶容量の制限から全ての因子を考慮に入れることはできず、9種類(エロゾルの α 線レベル、同 $\beta \cdot \gamma$ 線レ

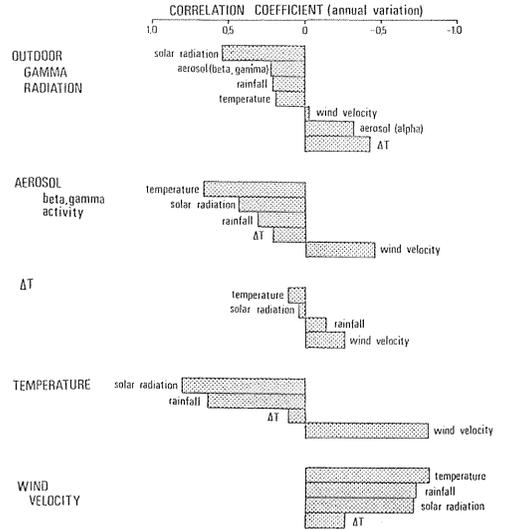


Fig. 4

ベル、地上 1.5 m の気温、地上 3.5 m と地上 1.5 m の気温差 ΔT 、雨量、地上 1.1 m の風速、乾燥度、理研タイプの空間 γ 線) に絞って計算した。この 9 種類の組み合わせによる日変化の重相関係数は 0.99 に達し、極めて良い選択であったことを意味する。年変化の場合は乾燥度を除き 8 種類で重相関係数は 0.93 であった。いずれの場合も、因子を減らすほど重相関は劣化することがわかっている。空間 γ 線レベルに対する日変化の偏相関係数はエロゾルの $\beta \cdot \gamma$ 線レベルでは 0.68 でかなり大きい。また乾燥度に対しても、単純相関に比べて目立って大きくなっている。年変化についてみると、エロゾルの $\beta \cdot \gamma$ 線レベルに対し 0.60、地上 1.5 m の気温に対し -0.51、 ΔT に対し -0.53、日射量に対し 0.79 など単純相関よりずっと大きい。つまり偏相関でみる限り各因子の寄与はまちまちにかなりの大きさを持っているが、それらが重畳されると相殺されて結果的にみかけの相関は小さくなるということを意味する。但し、日変化と年変化で相関の正負

が一貫しないものがあって、その解釈は慎重に検討を要する。風向の解析が待たれる。

- ③ 回帰式 空間 γ 線レベル（理研タイプ）の平均日変化に対する各因子の寄与のし方を表わすために回帰式を求め、各成分寄与の線型結合で表わすと、各項の全体に対する百分率はそれぞれ、エーロゾルの α 線レベルが -0.15% 、同 $\beta \cdot \gamma$ 線レベルが $+5.76\%$ 、地上 $1.5m$ の気温が $+2.01\%$ 、 ΔT が -0.36% 、雨量が -0.02% 、日射量が -0.15% 、地上 $1.1m$ の風速が -2.27% 、乾燥度が $+1.24\%$ となる。特に気温が大きく効いていることがわかる。気温の影響がこれだけあることは、測定機器系の温度依存性に対して注意を払わなければならないことを意味する。

引用文献

- 1) Jacobi, W. and K. André “The vertical distribution of Radon 222, Radon 220 and their decay products in the atmosphere” J. Geophys. Res. 68, p3799, 1963
- 2) Beck, H.L. “Gamma radiation from Radon daughters in the atmosphere” J. Geophys. Res. 79, p2215, 1974

研究発表

- (1) 藤高和信・阿部史朗「大地・大気からの放射線」第5回放医研環境セミナー、1978
- (2) 藤高和信・阿部史朗「人口をパラメータとしてみた窒素酸化物濃度の変化」大気汚染研究、11巻、p30、1977
- (3) 阿部史朗「A New Low-Background Counting Facility for Instrument Calibration」IAEA-SM-180/65, “Environmental Surveillance Around Nuclear Installations” Vol.1, p351, 1974

Ⅳ-2 放射性気体 (^{85}Kr) のモニタリング方法に関する調査研究

岩倉哲男、井上義和、樫田義彦

Development of the Techniques for Monitoring of ^{85}Kr in Environmental Air

Tetsuo IWAKURA
Yoshikazu INOUE and
Yosihiko KASIDA

Abstract

Equipments and procedures used to obtain the data of atmospheric ^{85}Kr concentration are described. The apparatus for the separation and purification of krypton from air are consisted of charcoal and molecular sieve cold traps and a titanium furnace. The purity of the elutriator is detected by chromatographic sensor. All the system are particularly made of metal to eliminate the breakage problems encountered frequently with glass system. One to three cubic meter of air sample can be processed and reduced to several milliliter of krypton. Rapid and accurate dissolving method of krypton in toluene and xylene is devised. Optimum condition for ^{85}Kr measurement in liquid scintillation counting are determined by the use of the gas diluted from LMRI (CEA) ^{85}Kr standard. The absolute measurement of ^{85}Kr activities is carried out by the extrapolated zero-bias technique.

Krypton samples separated from the air collected at Himeji-city in 1972, 1975 and 1976 are analyzed. The data show that atmospheric concentration of ^{85}Kr remained roughly constant ($14 \text{ pCi/m}^3 \text{ air}$) during these years.

Key Words

Krypton-85, Monitoring, Atmosphere, Solubility,
Noble-Gas, Low-Background, Liquid-Scintillation-
Counting

緒 言

原子力発電を主とする核分裂エネルギーの平和利用に伴って放出される気体廃棄物のうち、長寿命核種の代表

的なものとしては、トリチウムとクリプトン-85があげられる。とくにクリプトン-85は、水圏、土壌、生物圏への吸収、吸着が小さく、そのために大気圏からのsinkが無視し得るため、長期間大気中に存在し、地球規模で拡散分布する。その結果、世界レベルで公衆の集団線量を与える。過去においては、原水爆実験による大気中クリプトン-85濃度の増加が観測されているが、今後は、原子力平和利用の進展、とくに核燃料再処理施設の稼働が放出源としての主なものであり、一般環境におけるクリプトン-85の濃度変化を調査することが必要になる。本研究テーマは、この目的にかなった試料採集法、調整法、測定法を開発するのが主な目的である。

文 献 調 査

クリプトン-85に関する知見は、細かい専門別のテーマについて、かなりの文献から得ることができるが、環境放射能物質として、保健物理の見地からまとめられたものは数少ない。そのなかで、われわれにとって役立つと考えられる総説¹⁾、論文を検索し、過去における大気中濃度の経年変化、拡散分布モデル、測定法、線量評価に関連した数値的概念を集約できた。

2.1 発生量と地理的分布

通常の軽水型発電炉よりの生成量は、約 $4 \times 10^5 \text{ Ci} / \text{MWe年}$ と見積られている。燃料棒よりのものを1%と見れば、炉よりの放出は、BWRで $4 \times 10^3 \text{ Ci} / \text{MWe年}$ 、PWRでは、一次冷却水のケミカル・シムの調節

とガス抜き頻度によりかなり異ってくる。一方、核燃料再処理施設では、回収設備がない限り、その99%がスタックから放出される。現在の勢で、発電炉が増え続けるとすると、西暦2000年には、 10^9 Ci/年にも達すると云われる。

Machta²⁾ は、米国イリノイ州モリスに1 Ci/年のクリプトン-85の発生源を仮定し、発生後の拡散分布のパターンを4つの時期 (phase) に分けて数値的解析を行った。

その結果、

phase	影響範囲	大気中濃度
1 (数時間後)	イリノイ州	$1000 \sim 30000 (\times 10^{-20} \text{ Ci}/\text{m}^3)$
2 (数日後)	北米, カナダ	10 ~ 1000
3 (約1月後)	北半球	1 ~ 50
4 (1年以上)	全地球	3.8 ~ 23

となるとともに、1 Ci/年放出あたりの全人類への負荷量を、 $152 \times 10^{-10} \text{ man} \cdot \text{年} \cdot \text{Ci}/\text{m}^3$ としている。

2.2 大気中濃度の経年変化

クリプトン-85の大気中濃度は、1960年頃より増加が認められるようになり、1965年に約10 pCi/ m^3 空気、1970年に15 pCi/ m^3 空気という実測例がある。

1964年当時の地球上の緯度、高度での濃度変化は、フランスのPannetierにより詳しく調査されており、その結果、赤道収束帯 (ITC) ではほぼ様な以外、その南北の温帯では北高南低のパターンが見られ、両極地では高くなっている。しかし、地球全体の一様性は他の放射性降下物に比べて極めて高く、せいぜい30%程度の変化があるにすぎない。

2.3 線量評価

ICRPの勧告によれば、クリプトン-85の一般公衆に対する空気中濃度は、 $3 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 = 3 \times 10^5 \text{ pCi}/\text{m}^3$ である。実際にこの濃度中における人体組織に対する吸収量を submersion model を用いて計算すると、

皮ふ	0.628 rad/年
生殖腺 (男)	$5.01 \times 10^{-3} \text{ rad}/\text{年}$
全身 ($\lambda=0.163$)	$4.25 \times 10^{-3} \text{ rad}/\text{年}$

となり、皮ふ線量が圧倒的に大きく、またICRPの線量当量値のそれぞれ $1/48$ 、 $1/100$ 、 $1/118$ となっている。これは、クリプトン-85に対するICRP値がカテゴリー1の核種とし、決定臓器を全身にとっているために、控え目の値となったものである。

クリプトン-85の人体内へのとりこみは、クリプトンの人体組織に対する分配係数 λ に関係してくる。一般の生理状態では、

空気 \rightarrow 肺 \rightarrow 血液 \rightarrow 人体組織の経路をとるため、

$$\lambda (\text{組織}:\text{空気}) = \lambda (\text{血液}:\text{空気}) \times \lambda (\text{組織}:\text{血液})$$

と考えてよい。ところが、クリプトンの血液に対する溶解度 (水に対する溶解度とほぼ等しい) が小さいために $\lambda (\text{血液}:\text{空気})$ の値は0.05~0.06であり、 $\lambda (\text{組織}:\text{血液})$ の値が、脂肪の5~9を除いてほぼ1であるため、全身の $\lambda (\text{組織}:\text{空気})$ は脂肪の多少によって、0.11~0.30の値をとる。平均値としては、0.163が用いられる。つまり、大気中クリプトン-85濃度に0.163を乗ずると、平均的組織中濃度となる。

クリプトン-85の人体に対するとり込み、排泄の kinetics は、人体組織を3~4のコンパートメントに分けて考えれば充分である。

組織	$t_{1/2}$ (分)	飽和相対存在量 (%)
1. 血液	0.25	3
2. 速い還流性筋組織	2.5	4
3. 他の筋組織	7.5	2.2
4. 脂肪性組織	25	7.1

全身的に見れば、取込みの飽和、および排泄はおおよそ200分で達成される。

実験の方法および経過

3.1 機器の開発、試作

3.1.1 低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置

(1) 構造 クリプトン-85の測定法としては、電離箱、気体計数管、プラスチック・シンチレータ、液体シンチレータなどによる方法が考えられるが、一般環境レベルに適用可能で、計数操作の簡単なこと、および経験の豊富な点から、液体シンチレーション法を採用した。

放射能調査用に試作、開発されたトリチウム測定用低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置をプロトタイプとし、さらに2, 3の改良を加えた。

(a) 反同時計数用のプラスチック・シンチレータの形状を底なし箱形とし、宇宙線に対する検出効率を高めた。

(b) 外部標準線源用の γ 線源を、自動試料交換用のベダルに校正時のみ装填するようにし、試料室内内部において、直接試料下部より照射する構造とした。

(c) 試料サイズは、100 mlまで使用可能とし、多量の試料を導入することにより、低放射能測定における検出限界を下げうる仕様とした。

(2) 性能

検出効率(E) クリプトン-85に対して0.9 cpm/dpm以上
バックグラウンド計数率(B) クリプトン-85測定条件で4~5 cpm
最小検出濃度(C)

$$C = \frac{\sqrt{B}}{2.22 EMt} \approx \frac{\sqrt{5}}{2.22 \times 0.9 \times M \times t} = \frac{1.12}{Mt} \text{ pCi/ml}$$

ここに、Mは試料に導入したクリプトン量 (ml)

tは計数時間 (分)

M=10、 t=10 とすれば、検出可能なクリプトン-85濃度は、

$$C = \frac{1.12}{10 \times 10} = 0.0112 \text{ pCi/ml クリプトン}$$

となる。

本装置の検出部をFig. 1に示す。

3.1.2 クリプトン分離、精製装置の試作

1~3 m³の空気を採取し、この中に含まれる1 ppmのクリプトンを効率よく分離、精製できる装置を試作した。本体は、真空系配管を骨格とする低温吸着、脱離反応装置であり、導入された空気は、

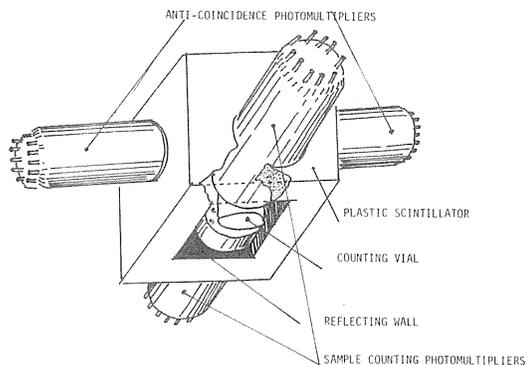


Fig. 1. View of Detector Assembly of Low-Background L.S.C.

Fig. 1

脱水カラム→脱炭酸カラム→活性炭トラップ（液窒温度）→チタンスポンジ・トラップ（高温加熱）→モレキュラーシーブス・トラップ（液窒温度）
によって空気中の水、炭酸ガス、窒素、酸素、メタン、水素、クリプトン以外の希ガスを、バルブ操作により除去する。

精製度は各段出口から処理気体をガスクロマトグラム・センサーに導き、レコーダに記録する。精製されたクリプトンは、液体シンチレーション用バイアルに導入する。

この装置は、輻射した配管構成と広範囲の温度（-196℃~900℃）で使用するため、ガラス製部品による配管は極力避け、ステンレス、銅、真ちゅうを用いた。また、結合部にはスエジロックを多用して取りはずし、配管変更を容易にした。

本装置の概念図をFig. 2に示す。

3.2 クリプトン-85の液体シンチレーション測定法の確立

3.2.1 シンチレータ溶媒に対するクリプトン溶解度と定量性、再現性についての検討

液体シンチレータの代表的溶媒であるトルエン、パラキシレンに対するクリプトンの溶解度の測定のため、

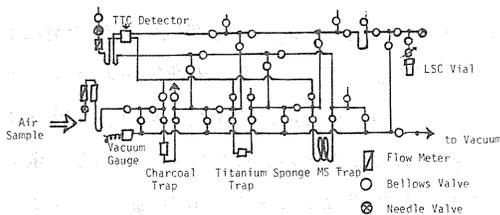


Fig. 2 KRYPTON SEPARATION APPARATUS

テブラポンプを用い、容量法によって溶媒に対するクリプトンの溶解量を温度の関数として求めた。

溶解度 x (mol fraction) は、

$$x = \frac{v / 23,700}{V d / M\ell + v / 23,700}$$

v : 溶解したクリプトン量 (CC)

V : 溶解に用いた溶媒の量 (CC)

d : 溶媒の密度 (g/CC)

$M\ell$: 溶媒の分子量

23,700 : $15^\circ C$ 、1気圧の気体1モルの体積 (CC)

その結果を Fig. 3 に示す。溶解度の対数と温度の逆数との間には、良い直線関係があり、ラウルの法則に従っていることを示している。

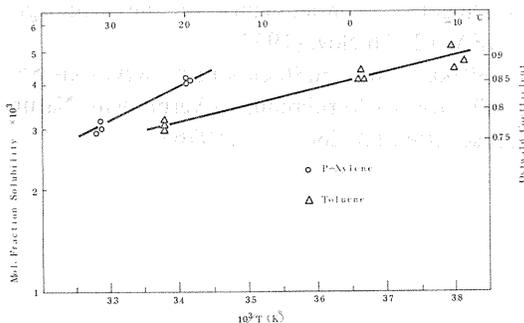


Fig. 3 Solubility of Krypton to Toluene and P-Xylene

なお、トルエンのブゼン係数は、

$-12^\circ C$ で 0.90

$25^\circ C$ で 0.45

であり、 $25^\circ C$ では、溶媒の45%量のクリプトンが溶解できる。

クリプトンをシンチレータへ溶解した後のバイアルのふたについては、ゴム栓と常用キャップ(デルリン製)をエポキシ系接着剤でシールしたものにつき比較した。前者の場合、1週間でトルエンの容量減5%に対してクリプトン-85の放射能は50%に減少したのに対し、後者の場合減少は見られなかった。

3.2.2 測定最適条件の検討と計数効率の決定

フランスLMRIより購入したクリプトン-85標準ガスを市販のクリプトンで正確に希釈して二次標準ガスを作成し、一定量のトルエンシンチレータに溶解した後、液体シンチレーション計数装置で測定した。増幅器の利得と波高選別器のチャンネル巾を変え、クリプトン-85のバランスポイントを求め、さらに計数の figure of merit

$$f = \frac{(\text{計数効率})^2}{\text{バックグラウンド計数率}}$$

が最大となる条件を求めた。この条件でクリプトン-85を1.14 ~ 5.72 ml (STP)溶解した6この標準試料について計数効率を求めた結果、 $93.5 \pm 3.1\%$ の結果を得た。

3.2.3 クリプトン-85の絶対測定法

標準的処法のトルエンシンチレータを用いた場合、1 KeVの電子で約2この光子が発生する。現在、液体シンチレーション計数器に用いられているバイアルカリ型光電子増倍管の量子効率を a ($= 0.25$) とすると、 E keVの電子(β 線)に対する光電子発生率の0確率 $Z(E)$ は、

$$Z(E) = \exp\{-2E(1 - e^{-a})\}$$

したがって、この場合の検出効率は、

$$\epsilon_s = 1 - Z(E)$$

となる。さらに同時計数方式の場合検出効率 ϵ_c は、

$$\epsilon_c \approx \epsilon_s^2$$

である。これらの式を用いると、 E_c は10KeVの電子で約98%となる。クリプトン-85の β 線の最大エネルギーが670KeVであることから、 E_c は99%以上となる。

したがって、波高選別レベルを0に外挿することにより絶対測定が可能になる。Fig. 4にその例を示す。

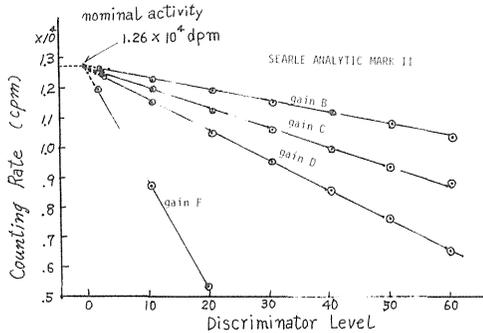


Fig. 4 Absolute Counting by Zero Vias Method

結果と考察

4.1 大気中クリプトン-85濃度の測定

1972年秋、および1975年5月～1976年7月にかけて、姫路市広畑の大気より分離精製された帝國酸素製のクリプトン・ガス5ml～10mlをトルエン・シンチレータ溶解し、計数効率92%、バックグラウンド計数率6.2cpmの条件で測定した。結果をTable 1に示す。この結果から、ここ数年の間にかけて、日本の大気中クリプトン-85濃度は、ほぼ同じレベルで推移していると考えられる。

Table 1 Atmospheric ^{85}Kr Activity in Japan collected at Hirohata, Himeji-city

date	concentration pCi/m ³	2 σ error
Oct, 1972	14.0	0.6
May, 1975	14.6	0.6
Aug, 1975	13.8	0.6
Nov, 1975	14.2	0.6
Mar, 1976	14.0	0.6
July, 1976	14.1	0.6

4.2 考察

大気中のクリプトン-85濃度は、1960年頃より世界各地で測定されており、1960～1966においては、ほぼ直線的に1.2pCi/m³空気の割合で増加し続けたことが知られている。2.3の研究者の予測によれば、その後も増加を続け、今世紀末には、10²～10³pCi/m³空気になるといわれている。しかし、現実には、1968年以降は1.3～1.5pCi/m³空気の値で推移しており、³⁾ 現在までの大気中クリプトン-85増加は、予想されたよりもかなり低いレベルで推移している。

研究発表

- (1) 岩倉哲男, 阿部史朗: 一般環境における ^{85}Kr の問題、放射性希ガスに関するシンポジウム
昭和49年2月8日 京都大学原子炉実験所
- (2) 井上義和, 山田博, 岩倉哲男: 大気中の ^{85}Kr 濃度の測定、第11回日本保健物理学会、昭和51年3月10日 近畿大学

参考文献

- 1) W.P.Kirk: Krypton-85, A Review of the Literature and an Analysis of Radiation Hazard. USEPA (1972)
- 2) L.Machta et.al.: Regional and Global Scale Dispersion of Krypton-85 for Population-Dose Calculations, Symposium on the Physical Behavior of Radioactive Contaminants in the Atmosphere, IAEA, 12-16 Nov. (1973)
- 3) A.Sittkus und. H.Stockburger: Krypton-85 als Indikator des Kernbrennstoffverbrauchs. Naturwissenschaften 63, 266-272 (1976)

V トリチウムの食物連鎖における動向と生物への影響に関する調査研究

Behaviour of Tritium in the Food Chain and its Biological Effects

【概説】

本研究ははじめ次の4小課題で発足した。

- (1) トリチウムの植物・動物系における動向
環境衛生研究部 樫田義彦、新井清彦、武田洋 (49年度より)、稲葉次郎 (51年度)、一政祐輔 (51、52年度外来研究員)
- (2) メダカ胚核酸等におけるトリチウム代謝
生物研究部 上野昭子、一政祐輔 (50年度研究生)
- (3) トリチウム水の魚卵発生に及ぼす影響
環境衛生研究部 市川龍資、須山一兵
- (4) トリチウムによる染色体異常の線量効果の研究
遺伝研究部 堀雅明、中井斌

この中(2)は分担の上野技官の海外留学のため中断されたが、茨城大学理学部生物学教室一政祐輔博士を外来研究員として招き、51年は「生物卵におけるトリチウムの摂取代謝に関する研究」として継続され、更に52年は「トリチウムの生物に及ぼす影響研究における実験手法の確立」としてメダカについて確立した手法をラッテの実験に適用し、両棲類と哺乳類のトリチウム代謝の相関性を求めることができた。

(4)は黒岩常祥、田中信徳博士により「トリチウム水によるフタマタタンポポの染色体影響の報告」¹⁾があり人体に及ぼす影響が問題となったので、ヒトの培養リンパ球について追試することとなり、48、49年度に相互に協力して成果をあげた²⁾。しかし分担者が本来の遺伝に関する低線量の特別研究課題の一部として継続したいとの意向であったので49年度で打ち切った。

計画ではトリチウム研究の安全性、特殊性から施設としてバイオロン棟を要求したが実現せず、次の設備、装置をととのえて、実験の効率を高めることにした。

- (i) トリチウム用簡易ファイトロン (50年度) 小糸工業。
- (ii) 自動液体クロマトグラフ装置 (50年度) 日本分光。
- (iii) トリチウム脱水定量装置 (51年度) 大亜真空。
- (iv) トリチウム表面汚染計 (52年度) アロカ。
- (v) 自動水耕装置 (52年度) 大西熱学。

(v)は実験材料の植物の栽培、(i)はトリチウム水等による栽培を目的とし、共に小課題(1)の植物系実験に使用した。(ii)は小課題(2)及び(1)の氨基酸等の分析用、(iii)は生物試料の自由水と有機結合のトリチウムを分離する目的の凍結乾燥用の装置である。(iv)は全実験に共通のトリチウム汚染の検出用で、従来のふきとり試験に代るサーベーターの開発である。

¹⁴C O₂ 中で栽培標識した桑で飼育した蚕の卵の突然変異発生の実験では、¹⁴C O₂ 150mCiを必要とした。この経験からトリチウムの植物-動物につながる食物連鎖実験には少くも¹⁴Cの10倍量約1Ciから出発して、植物の栽培とか動物の飼育とか生物を長期に扱う必要がある。この規模の実験は現有施設では不可能のため、植物系、動物系を独立的に実験して基本データを集めるにとどめた。しかし独立的な実験も通覧すると次のような興味ある結果につなげられる。(4)のヒトの小リンパ球の染色体異常頻度はHTO0.1μCi/mlで6.46% (対照3.88%)を示すが、細胞死につながる染色体の二動原体、環状、逆位等を指標とすると20μCi/ml以上の濃度を要する。(2)のメダカ卵は1mCi/mlで飼育したが発生には異常ない。これは(3)のヒラメ、クサフグ、メダカ卵の孵化率や生残率について1mCi/ml濃度では変化なく、10mCi/mlにおいてクサフグ稚魚の眼径を指標としてはじめて異常を認めたことで再確認された。マウスについてのトリチウムのLD₅₀³⁰が10mCi/gであることと対比し

て興味ある知見といえよう。

本研究発足後漸くわが国でも京大、東北大遺伝研等でもトリチウムの生物影響研究が取り上げられるようになったが、情報の交換や実験手法の検討のため東大理学部江上信雄教授を代表とする「 β 線放射性核種の内部照射に関する基礎的研究」総合研究（50、51年度）及び茨城大理学部秋田康一教授を代表とする「核融合に伴う生物医学的問題に関する先駆的基礎研究」核融合特定研究（51、52年度）に参加して、実験について批判を仰ぐ機会を得、裨益すること大であった。

1) 黒岩常祥、田中信徳：THO水のCrepisの染色体に対する影響、遺伝誌47、356（1972）

2) 堀雅明、中井斌：低レベルトリチウムの遺伝的効果について、保健物理11、1~11（1976）

Hori T. Nakai S.: Unusual dose-response of chromosome aberrations induced in human lymphocytes by very low dose exposure to tritium, Mutations Res. 50, 101~110(1978)

Tritium Behavior in Radio ecological
Food Chain

K. ARAI,
H. TAKEDA,
Y. KASIDA

Abstract

As a radioecological study of tritium concerning with the food chain, the metabolic mechanism of tritium in the plant and the animal was investigated. *Ceratopteris pterioides* was cultured in a glass cylinder containing 1ℓ of tritiated water under natural light during 28 days and 3 days. The tritium concentration of the former was higher than that of the latter and the largest leaf showed the maximum concentration of tritium. The tritium activities of free water in the leaf segments cultured with tritiated water during one hour and 96 hours were observed to be 55% and 75% of initial concentration. The incorporation of tritium in the dried parts of the samples increased linearly with the time of light exposure, but the tendency decreased with cultivation, under darkness.

The tritium activities in free water of rice at the period of seed and ripe time were observed approximately similar level, but in dry residue, the incorporation of tritium in the rice was observed the higher concentration at the ripe season than seedseason.

Rates of tritium uptake by soybean under HTO vapor atmosphere in the chamber were measured. It required 1 day through leaves to achieve 15% activity of control.

The uptake of HTO under high humidity (90%) through soybean leaves required 5 hours for reaching 66% under standard irrigation and 72% under little irrigated condition activity of vapor. On the other hand, the uptake of HTO under low humidity of 69% was shown 45% and 33% in the above mentioned condition, respectively.

As an animal case the incorporation, distribution

and retention of tritium in various tissues of rats were investigated during about 100 days following administration of tritiated water and tritiated leucine, and the radiation dose in various tissues was calculated.

In the early period after the administration of tritiated water, the bulk of tritium in the tissues existed in a form of tritiated water and excreted rapidly with a biological half-life of about 3.5 days for most of tissues. However, the excretion of the tissue bound tritium incorporated into the tissue constituents was relatively slow and the retention curves were considerably different among individual tissues. In general, those tissues which considered to be metabolically active, e.g. liver and intestine, showed higher incorporation and faster excretion of tritium. On the other hand, those tissues which considered to be metabolically inert, e.g. fat tissue and muscle, showed lower incorporation and slower excretion of tritium. Consequently, at the end point of this experiment the highest concentration of total tritium was observed in fat tissue, brain and muscle. The results suggested that the incorporation of tritium from tritiated water into organic compounds and the excretion of tissue bound tritium were related to metabolic activity of the tissue. The radiation dose from tritiated water was more or less uniform for most of tissue although it was considerably low for fat tissue which shows very low water content.

In case of the administration of tritiated leucine, the excretion of tritium was relatively slow compared with that in the case of tritiated water, and the radiation dose received from tritiated leucine was 2 to 3-fold higher than that from tritiated water.

Key Words

Ceratopteris, Rice, *Oryza sativa*, Soybean, *Glycine max.*, Tritiated water, Sample oxidizer, Food chain, Photosynthesis, Metabolism, Intake, Retention, Excretion, Radiation doses, Distribution, Vapor transport, Radioecology, Environmental contamination, Dose estimation, Biological half-life, Assimilation, Liquid scintillation counting, Tritium compounds, Leucine, Adipose tissue, Muscle, Brain

緒言

食物連鎖によるトリチウム（以下T）の被曝を考えると、その1次の形態は、酸化トリチウム（以下HTO）にて行動するものと推定される。¹⁾

HTOの人体に摂取される経路は、飲料水および食物を経過するものが考えられる。食物として摂取された場合は、T化有機化合物として、吸収されるので、飲料水として摂取された場合に比較して、より複雑な過程を経る。同時に、体内残留期間も、長期化することが知られている。²⁾

食物連鎖も、植物系と動物系が複雑にからみ合っており、構成されているが、Tの動向に関しては、飲料水として、直接摂取する以外、大部分が植物の吸収同化作用を通して、得られるところの、植物性食品の摂取を経由すると考えられる。

一方、原子力施設等から放出されるトリチウム（T）は、その大半がトリチウム水（HTO）の形で存在し、¹⁾環境中での拡散も迅速で、また生物体内へも、呼吸器、消化器、皮膚を通じて容易に摂取される、生体内でのTは、実質上、体液として挙動するが、その一部は、交換反応や代謝過程を通じて生体内の各種有機物へ取り込まれ結合性Tとなることが知られている。^{8,9,10)}また、Tは低エネルギー、短飛程のβ放射体であり、生物物質中1μm以内で、そのエネルギーの大半が消費される。^{11,12)}これらのことを考慮すると、Tの生物影響を評価するには、生体内でのTの挙動を定性的、定量的に詳細に解明する必要がある。

実験方法及び結果

A) 植物系

1) ミズワラビのT吸収同化実験

ミズワラビの個体、または葉片を用い、ガラス容器（0.3～1ℓ）中のHTO（ 2.5×10^4 pCi/μℓ程度）にて培養し、T吸収に対する、経過時間および、明暗の影響を調査した。この試料は、水中にて生育するので、メダカなどの水生動物と同時に採るので、小規模の実験には良い材料である。

2) 穀類のT吸収同化実験

米・麦・大豆などの畑作物については、 $\frac{1}{5000}$ アールのワグネルポット（以下鉢）の土壤中に播種し、3本に間引きして調整し、屋外の自然環境下で育苗した。

T投与は、内容積1700ℓのトリチウム用簡易ファイトロン内に、鉢植え苗を設置して実施した。

光源は自然光を用い、温度・湿度・灌水量は、実験目的に適合するように、その都度調整した。

3) マウスのT吸収同化実験

マウス（C57BL）におけるT摂取実験には、実験2により得られた、米・麦の一部、およびHTOを投与して、経日的に採尿して、T濃度の分布を調査した。

4) 空気中のT濃度測定

内部を真空にした、丸型3口フラスコを用い、コックを開いて試料空気を吸引し、その後冷却法にて凍結捕集後親水性液体シンチレーターに溶解して、液体シンチレーション法にて、T濃度を測定し、気圧・温度・フラスコ内容積・T濃度より、T比放射能濃度を算出する。

5) 組織のT濃度測定

採取した生物試料を、凍結捕集装置にて、水分と乾燥試料に分離する。得られた水分は、一定量を親水性シンチレーターに溶解し、乾燥試料は、自動燃焼法を併用し、それぞれ液体シンチレーション法にて、T濃度を測定した。

以上の実験により次の知見がえられた。

1) HTO中にて培養したミズワラビ組織中のT濃度は、経時的に上昇するが、組織中の自由水と乾燥組織ではFig 1で示すごとく、上昇のパターンが異っている。

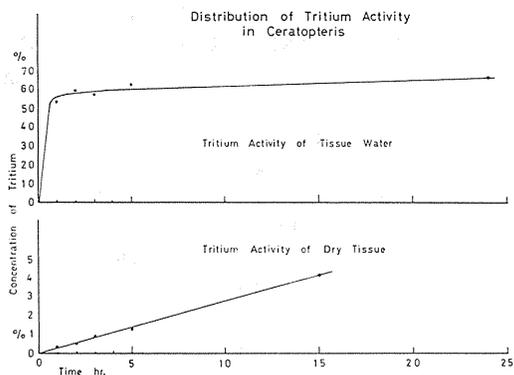


Fig 1 Distribution of Tritium Activity in Ceratopteris

乾燥組織中に取り込まれたTは、光合成同化作用によるものが、主成分と考え、明・暗両条件で、比較検討した。自由水のT濃度は、Table 1のごとく、両者の差が見られないが、乾燥組織に含まれるT濃度は、Table 2のように、明条件で高く、光合成に基づくことを示唆している。

Table 1 Activity of Tritium in Free Water (Ceratopteris pterioides)

Sample	Time hr							
	1	2	3	5	24	48	72	96
	53	59	57	62	65	63	69	75%
	55	—	—	—	53	—	—	—%

(Light 2.85×10^4 pCi/ μ l)

(Dark 2.21×10^4 pCi/ μ l)

Table 2 Distribution of ^3H Activity in Ceratopteris pterioides (pCi/mg in Dry Tissue)

Sample	Time	1	2	3	5	24hr.
		Light	Cultivated in THO	66	108	195
Cultivated in HTO+1hr.H ₂ O	36		53	93	160	591
Dark	Cultivated in THO	33	—	47	—	162
	Cultivated in HTO+1hr.H ₂ O	25	—	25	—	—

(Tritium Activity in HTO 2.25×10^4 pCi/ μ l)

さらにこれを確認するために、 ^{14}C の取り込みと比較実験をおこなった結果(Fig 2)、 ^{14}C の取り込みとTのそれは、同様の型を示し、更にTable 3、4はこれらのことを支持する。

これらは、HTOにて培養したミズワラビの乾燥試料中に含まれるT濃度を、葉の部位ごとに測定したもので、先端に近い、同化活性度の高い葉に最高のT濃度が示されている。

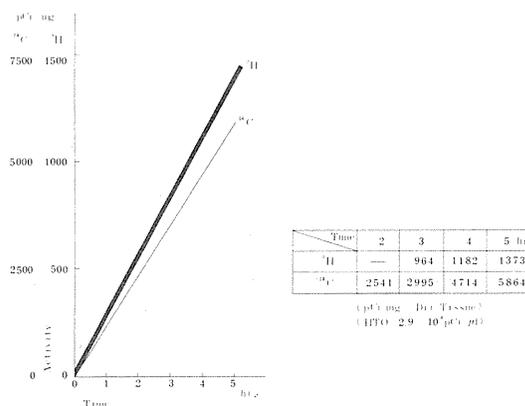


Fig 2 Assimilation of ^3H and ^{14}C by Ceratopteris pterioides

Table 3 Distribution of ³H Radioactivity(dpm/mg d.w.)

SAMPLE	28 Days	3 Days
5	4612	—
7	5564	3430
8	6333	—
9	6910	4042
10	7806	—
11	14878	3696
12	10216	—
13	7542	5164
Bud	8323	—
Root	—	6934
Medaka	611	—
HTO	15989	(dpm/μl)

Plant: Ceratopteris pterioides

Table 4 Distribution of Tritium in Ceratopteris ³H Radioactivity of Each Fraction (dpm/mg d.w.)

FRACTION No.	80% EtOH		NaOH		Residue (dpm/Residue d.w.)	
5	3412	1187	13	146		
7	3474	1144	—	—		
8	3953	1309	21	227		
9	4803	1234	40	334		
10	5397	1258	47	378		
11	10053	1793	192	2117		
12	6160	1986	521	4851		
13	4544	1860	431	4590		

HTO 1.6×10⁴ dpm/μl, after 28 days

2) 発芽45日目の大豆苗に、20 mCi/300ml/鉢のHTOを投与し、以後軽水(以下HHO)にて培養した植物の、葉部組織中のT濃度分布について、Table 5の値が得られている。表に示すごとく、自

Table 5 TRITIUM ACTIVITY in SOYBEAN LEAVES

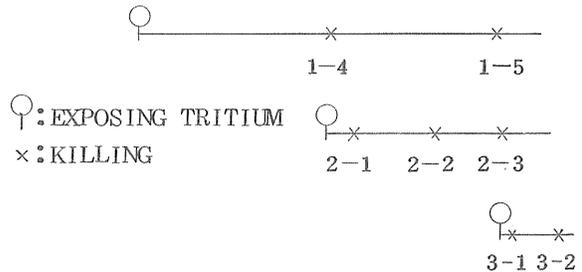
Leaf No.	Tritium Activity	
	in Free Water (pCi/μl)	in Dried Tissue (pCi/mg)
2	1310	21.4
3	1240	44.1
4	1320	93.6
5	1250	143
6	1260	132

由水においては、部位により、ほとんど変化が見られないが、乾燥組織においては、先端部を除いて、上位葉に高い傾向が見られた。また、葉・莢・種子の相互間での、T濃度変化は、Table 6のごとく、生活サイクルによる、同化活性度の差と見られる。

Table 6 UPTAKE OF TRITIUM IN SOYBEANS DRIED RESIDUE (pCi/mg)

No.	SHELL	BEANS
1-4	31.4	9.86
1-5	29.1	7.73
2-1	10.9	10.5
2-2	12.3	65.9
2-3	9.32	60.5
3-1	2.50	1.82
3-2	6.36	12.7

MAY 21 SOWING
 JULY 10 20
 AUGUST 1 10 20 31 DATE



生活サイクルによる組織別同化力の変化を示す例は、水稻による実験でも (Table 7) が得られている。この結果、乾燥組織に取り込まれたT濃度は、

Table 7 DISTRIBUTION of TRITIUM ACTIVITY in RICE Oriza Sativa L. (Koshihikari)

	Tritium Activity in Free Water (pCi/μl)		Tritium Activity in Dried Tissue (pCi/mg)	
	Germinating Time	Ripe Time	Germinating Time	Ripe Time
Blade	5450	6040	559	286
Rice	7210	9100	77	689

葉と種子において、発芽期と登熟期では、全く逆になることが了解される。

3) 大豆は、空気中のHTO水蒸気を媒介として、かなりのTを吸収同化する(Fig 3)。

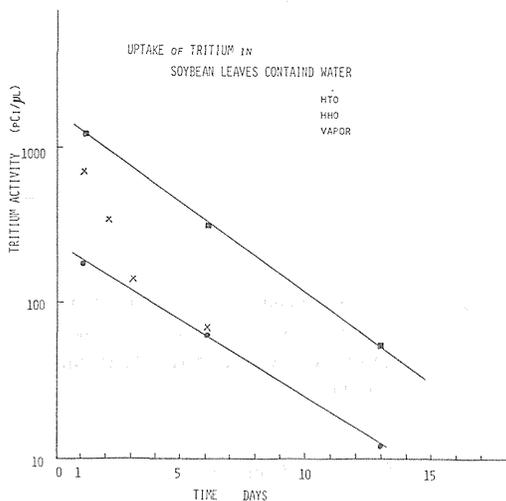


Fig 3 UPTAKE OF TRITIUM IN SOYBEAN LEAVES CONTAINED WATER

Tの一般環境に対する問題を、食物連鎖的に検討するとき、空気中の水蒸気に混在するTの、植物体による直接的吸収は、最も解明を要する点の一つと考えられる。

そこで、さらに各種の条件下において、大豆葉面による、Tの取り込み量を測定した。

葉柄が下垂するまで、灌水量を減少した苗を、湿度90%以上のHTO水蒸気を含んだ、空気中で培養すると、5時間後には、葉柄の下垂が回復するのが認められた。これは、葉面吸収作用により、体内水分を回復した結果で、4) このときのTの取り込み量は、(Table 8)、葉部水分において、空気中水蒸気のT濃度の72%を示していた。対照とした標準状態の大豆は、6.6%なので、葉面吸収力の差が、空気中水蒸気の取り込みに影響していることが認められた。5)6)

Table 8 TRITIUM ACTIVITY IN FREE WATER OF SOYBEAN LEAVES

HUMIDITY	STANDARD IRRIGATION	LITTLE IRRIGATION
HIGH	66%±7(*48.2)	72%±6(*53.6)
LOW	45%±8(*17.5)	32%±13(*12.7)

TRITIUM ACTIVITY IN VAPOR=100% (*)=pCi/μl

しかし、葉面吸収によって起る、組織中のT濃度分布は、経根吸収の場合と同様の動向を示し、特別な差異は認められなかった。

4) 植物-動物系の食物連鎖の実験例として、T標識化米および、麦とHTO水をマウスに投与して、Tの摂取状態を観察し、Table 9の値を得た。HTOで0.4 mCi/匹・投与後、尿中T濃度測定値では、

Table 9 Tritium Concentration

days	No. 1 nCi/ml	No. 2 nCi/ml
0	1.84×10 ⁴	9.72×10
1	1.36×10 ⁴	6.76×10
2	9.55×10 ³	5.16×10
4	5.91×10 ³	3.21×10
6	2.92×10 ³	1.96×10
8	1.62×10 ³	1.16×10
11	4.77×10 ²	4.32×10
15	1.82×10 ²	1.59×10
18	6.51×10	6.25×10
22	2.45×10	2.16×10
26	1.21×10	1.16×10
29	9.03	—
33	6.82	5.91
36	4.77	—
37	—	3.82
42	3.86	2.73
57	1.86	1.11

C57BL MOUSE

age 115 days
weight 35-40g

TRITIUM WATER

specific activity 0.1mCi/ml
used volume 4ml/mouse/day

半減期 2.4 日を得ている。しかし、標識化米・麦では、T 濃度が低く、適切なる測定値を得るには、10 倍又はそれ以上の濃度が、望ましいことが判明した。

B) 動物系

HTO、T-ロイシンは、使用時に生理食塩水で適当に希釈し、Wistar系雄ラット1匹当たり1 mlにあわせて投与した。

ラットはその後経時的にエーテル麻醉下屠殺し、取り出した組織(7~11コ)をそのまま、あるいは、凍結乾燥処理(-196°C)後の乾燥試料を、サンプルオキシダイザー(Packard社製)にて試料調製を行ない液体シンチレーション計数法によりT放射能を測定した。また、生化学的方法で分離した各種生体成分中のT放射能はProtosol(NEN社製)で溶解後、水溶性シンチレータ、Aquasol-2(NEN社製)を添加しBeckman-230液体シンチレーション計数器で測定した。

1) 体内諸組織へのHTOの取り込み

ラット(雄、2.5~3.0ヶ月令、平均体重350g)に、体重g当たり0.5 μCiのHTOを腹腔内投与、あるいは経口投与(経口ゾンデを使い胃内へ直接注入)し、約15時間、体内諸組織中のT濃度を調べた(Fig 4)。腹腔内の場合、投与後急激に血液ならびにその他の組織中のT濃度は増加し、1時間後にはほぼ平衡に達した。

一方、経口投与の場合、各組織中のT濃度は6~9時間後に最高値に達し、投与方法によってHTOの体内諸組織への移行速度に差がみられた。

いずれの投与方法であっても、その最高T濃度にはほとんど差がなく、経口的に摂取する場合であっても、HTOは、ほとんど完全に吸収されることを示している。

各組織間での最高T濃度は、血液が最も高く、睪丸、腎臓、肝臓の順で、組織間のT濃度差は、各組織の含水量の差による。

Table 10に、凍結乾燥法によって求めた各組織

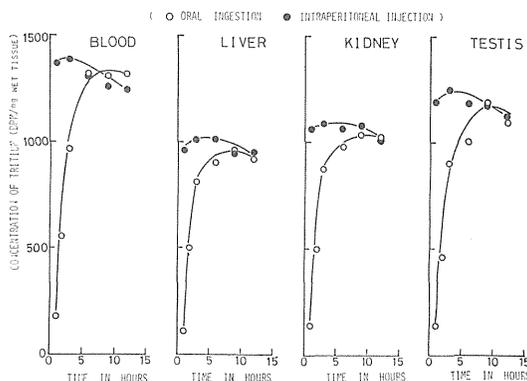


Fig 4 Incorporation of tritium into various tissues after oral and intraperitoneal administration of HTO

Table 10 Water Content of Various Tissues of Rat

Tissue	Water Content* (%) ± S.E.
Liver	69 ± 2
Kidney	73 ± 2
Testis	85 ± 3
Spleen	74 ± 2
Lung	76 ± 3
Heart	73 ± 2
Intestine	72 ± 3
Muscle	71 ± 2
Brain	75 ± 2
Fat Tissue	15 ± 3

*Water content was expressed as average of ten experiments with standard error.

の含水量を示す。

2) 体内諸組織からのHTOの排出とその生物学的半減期

ラット(雄、2.5~3.0ヶ月令、平均体重380g)に、体重g当たり6.0 μCiのHTOを経口投与し、100日間、体内諸組織の組織中全T濃度と組織結合性T濃度を測定した。

組織中全Tの排泄曲線 (Fig 5) は投与後25日まで、脂肪組織を除いたすべての組織で、ほぼ同様な排泄パターンを示し、25日以降は、時間の経過に従い組織間での相違が顕著である。特に筋肉や脳では相対的にその排泄が遅く、肝臓や小腸では速く排泄し、最終的にT残留量の多い組織は脂肪組織、脳および筋肉であった。

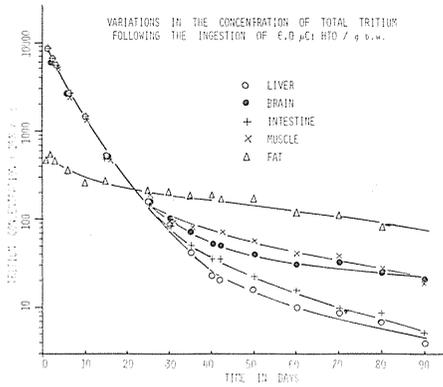


Fig5 Variations in the concentration of total tritium following the ingestion of $6.0 \mu\text{Ci}$ HTO/g b.w.

各組織における結合性Tの挙動を調べると、投与後初期のTの取り込みは、肝臓が最も高く、次に、小腸で、逆に低いものは、脂肪組織、筋肉であった。しかしこれは20日前後において逆転し最終的にT残留量の多い組織は、脂肪組織、脳、筋肉であった (Fig 6)。

この結合性Tが投与後初期に組織中の全Tの中で占める割合は各組織で1~5%程度であるが時間を経るに従い増加し、40日後には50~80%となり、その後はほぼ平衡に達した。Fig 7 には肝臓の例を示す。この結果は、投与後初期に生体内で大半を占めるHTO (体液中T) が比較的にすみやかに

排泄されるのに比べ、組織に一旦結合したTはその排泄が遅いことを示している。

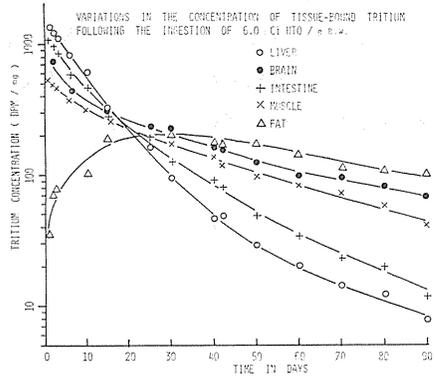


Fig6 Variations in the concentration of tissue-bound tritium following the ingestion of $6.0 \mu\text{Ci}$ HTO/g b.w.

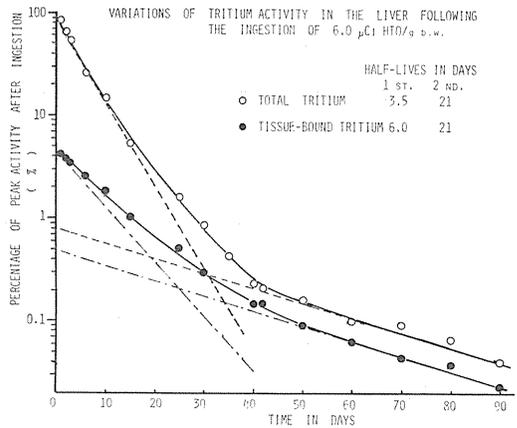


Fig7 Variations of tritium Activity in the liver following the ingestion of $6.0 \mu\text{Ci}$ HTO/g b.w.

組織中全Tと組織結合性Tの排泄曲線はいずれも指数関数的に2つの成分の和として表わされた。各成分の生物学的半減期をTable 11に示す。組織中全Tの半減期は第1成分では組織間に差異がなく約3.5日で、第2成分は各組織でかなり異なり、対応する組織の結合性Tのそれとほぼ一致した。これらの結果はT排泄曲線の第1成分が「HTO」、第2成分が結合性Tの排泄に対応することを示唆している。

Table 11 Half-Lives of Total Tritium and Tissue-Bound Tritium after The Ingestion of HTO.

Tissues	Half Lives in Days			
	Total Tritium		Tissue-Bound Tritium	
	Short C.	Long C.	Short C.	Long C.
Blood	3.5	1.7	-	-
Liver	3.5	2.1	6.0	2.1
Kidney	3.5	2.3	5.8	2.3
Testis	3.5	2.5	6.9	2.7
Spleen	3.5	3.5	5.8	3.5
Lung	3.5	2.6	5.5	2.6
Heart	3.5	2.7	7.0	2.7
Intestine	3.5	1.7	6.3	1.8
Muscle	3.5	3.5	6.8	3.6
Brain	3.5	4.1	7.5	4.3
Fat Tissue	3.4	5.2	-	5.4

3) 肝組織成分へのTの取り込みと分布

HTO投与(6.0μCi/g体重)したラットから取り出した肝臓を凍結乾燥処理後、Schneider法(変法)にて、冷PCA*溶性画分、アルコール・エーテル溶性画分、熱PCA溶性画分、アルカリ溶性画分に分離し、各組織成分中へのTの取り込みと分布を調べた(Table 12)。最も高い取り込みは低分子化合物が抽出される冷PCA溶性画分で、12時間後に全結合性Tの74%を占めた。しかし50日後には23%へ減少した。

核酸抽出画分である熱PCA溶性画分では、12時間後に1%であったものが50日後には15%へ増加した。Fig 8には低分子化合物画分(冷PCA

* Perchloric acid (過塩素酸)

Table 12 Distribution of tritium in various fractions of lyophilized rat liver after the ingestion of tritiated water.

Time (Day)	Cold PCA soluble (%)	Ethanol-ether soluble (%)	Hot PCA soluble (%)	Alkali soluble (%)
0.5	74	4.7	1.0	20
1	65	13	3.1	19
15	36	28	5.9	29
30	30	25	13	32
50	23	28	15	34

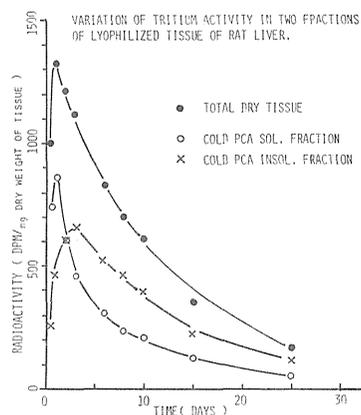


Fig8 Variation of tritium activity in two fractions of lyophilized tissue of rat liver.

溶性画分)と高分子化合物画分(アルコール・エーテル、熱PCA、アルカリ溶性画分)中の結合性T量の経時変化を示す。

4) T-ロイシンの体内挙動およびHTOとの比較

ラット(雄、2.5~3.0ヶ月令、平均体重380g)に、体重g当たり0.1μCiのT-ロイシンを経口投与し、100日間、体内諸組織の組織中全Tと組織結合性Tの放射能を測定した。

T-ロイシンの場合、投与直後から、組織中全Tの中で組織結合性Tの占める割合は60~70%を越え、両者の排泄パターンに差異はみられなかった

(Fig 9)。Fig 10には各組織における組織中全Tの経時変化を示した。

他の組織では10~20倍高いT濃度が認められた。

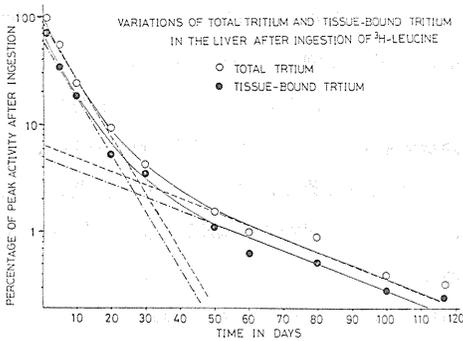


Fig 9 Variations of total tritium and tissue-bound tritium in the liver after ingestion of ^3H -leucine

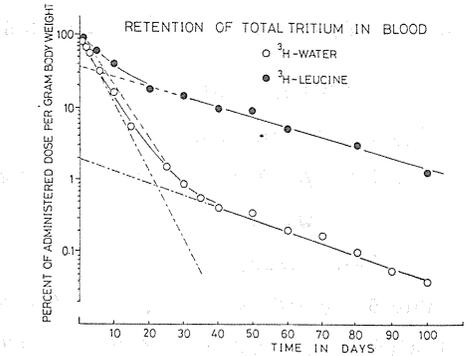


Fig 11 Retention of total tritium in blood

T-ロイシン投与後のTの排泄曲線も、指数関数的に2つの成分の和として表わされ、その第2成分の傾きは、HTOの場合とほぼ一致した。HTOとT-ロイシンの各組織における生物学的半減期 Table 13 によって両者の第2成分には各組織において相関性が認められた。

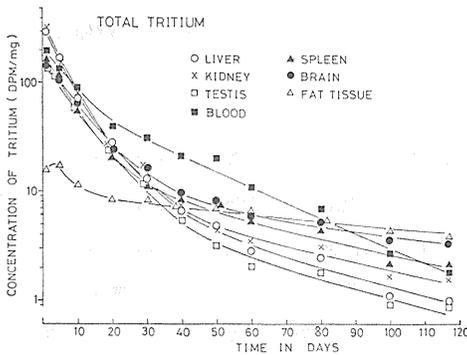


Fig 10 Variations in the concentration of total tritium following the ingestion of ^3H -leucine.

HTOとT-ロイシン投与後のT排泄速度の比較を行った。

血液の例を示す(Fig 11)。T-ロイシンはHTOに比べ排泄がかなり遅く、50日以降は血液で約30倍、そ

Table 13 Doses (rem) to Various Tissues of Rat after Ingestion of Tritiated Water and Tritiated Leucine for 100 Days.

Tissues	Doses from Ingestion of 6.0 $\mu\text{Ci/g}$ b.w.	
	Tritiated Water	Tritiated Leucine
Blood	9.5	23.6
Liver	7.0 (9.3%)	21.6 (72%)
Kidney	7.4 (6.9%)	23.5 (75%)
Testis	7.6 (4.2%)	12.7 (58%)
Spleen	7.0 (8.1%)	15.6 (88%)
Brain	7.1 (8.5%)	16.7 (64%)
Fat Tissue	2.0 (6.4%)	5.7 (88%)

Parentheses show percentage contributions from tissue bound tritium

5) HTO、T-ロイシンの各組織における被曝線量 HTO、T-ロイシン投与後100日間各組織がうけた被曝線量を次式により、組織内のTはすべて

均一に分布していると仮定し、Tの線質係数(Q・F)は1として求めた。

$$D = C \times T_{1/2} \times (1 - e^{-0.693 t / T_{1/2}}) \times \epsilon \times 73.8$$

C : 初期T濃度 ($\mu\text{Ci/g}$)

$T_{1/2}$: 実効半減期 (Day)

ϵ : T β 線の実効エネルギー (平均エネルギー \times Q・F.)

t : 時間 (Day)

Table 5の線量値はいずれも、ラット体重 ϑ 当り6.0 μCi を投与したもとして算出した。HTOの場合、血液と脂肪を除く組織はほぼ同じ線量値を示し、組織結合性Tから全線量に対する寄与率は、脂肪組織を除いてどの組織も10%以内であった。一方、T-ロイシンの場合、各組織で幾分異なり、HTOの場合に比べ、睪丸、脾臓、脳で約2倍、血液で2.5倍、肝臓、腎臓、脂肪組織で約3倍高い線量値を示した。また、組織結合性Tからの線量寄与率は58~88%の範囲にあり、いずれの組織もHTOの場合に比べかなり高い値を示した。

考 察

A) 植物系

環境に発生したTが、植物系食物連鎖を経て、人間に摂取される現象の大部分は、降水中に含まれるTが、経根吸収により、植物に同化されることにより発生する。又農作物は、その種類により、可食部位と、収穫時期が定まっている。それ故、Tが植物に吸収された時期と、その作物の種類の設定が、それを食品とした人間の被曝線量推定に必要となる。米・麦・大豆のように、種子を可食部位とする作物では、植物に対してTの接触があっても、種子の完成された後の時期では、可食部分にはほとんど同化固定されない、これに対して、登熟期には、非常に多く取り込まれる。開花期以前の接触による種子の蓄積も、あまり多くない。

全生育期間は、米・麦で6ヶ月、大豆4ヶ月と見られるが、その内で、吸収されたTが、可食部分に多量

に蓄積されるのは、約1ヶ月である。その後半においては、急速に吸収が減少するので、この時期のT接触については、10日~20日の差でも、食品としたときの被曝線量には、大差が起るであろうことが推定される。即ち、被曝線量推定には、いかなる時期に、その植物がTと接触したかを知ることが、いかなる部位を食品とするか、ということと共に重要である。

経根吸収による、降水中のT摂取以外に、直接葉面より、空気中水蒸気に含まれるTが、吸収同化されるが、その量は、植物の種類によって、無視できぬものがある。

植物に対して、摂取された時期・部位に対する配慮は、経根吸収と同様であるが、降水が見られなくとも、発生する所に特異性がある。

T被曝の食物連鎖の解析を実行する場合、サンプリングにより推定することもできるが、パラメーターを用いた推測法が考えられる。この場合、T濃度・気象などの要因以外に、時期・種類・部位などの、植物学的な要因によるパラメーターが、重要な意味を持つ⁷⁾、これらのパラメーターをさらに充実させ、それらの食品を摂取したときの、消化・吸収における、動物学的パラメーターと併せて、今後のT被曝問題解明の推進に資することを期したい。

B) 動物系

HTOとして体内に取り込まれたTは、その含水量によって各組織中のT濃度に幾分かの差異を与えるが、実質的には体液として全身にほぼ一様に分布し、さらに投与後25日まではすべての組織で同じ排泄パターンを示した。しかし、その後これらの排泄パターンに差がみられ体内各組織中のTの分布は不均一になった。これは体液中T(HTO)の排泄速度の差によるものではなく、組織成分(有機物)へのTの取り込みおよび排泄が組織によって異なるためによるものであった。

一般に代謝活性の高い組織では、組織成分へのTの取り込みは高く排泄は早い、代謝活性の低い組織では、取り込みは低く排泄は遅い。

特に脂肪組織や脳のように比較的脂質成分の多い組

織でT排泄速度が遅く、最終的に高いT残留がみられることは、生物学的に、さらには放射線影響の面から注目すべきである。

また、われわれの結果は、HTOから組織成分へのTの移行がまず低分子化合物で起り、このT結合物質が代謝をうけ高分子化するであろうことを示唆した。一方で、核酸のような比較的代謝回転速度(turnover rate)の遅い物質に取り込まれたTは、その量は少くとも排泄は遅い傾向がみられた。有機物へ取り込まれたTは、その有機物自身の新陳代謝系に従って体内を挙動すると考えられる。したがって、HTOの体内挙動を解明するには、水の代謝研究のみならず体内の各種有機物の代謝研究が必要である。なお、HTO投与後、有機物へ取り込まれるTの量は全T投与量からすれば僅かなものであり、その危険度評価は体液中のT(HTO)に主眼をおき考慮すべきかもしれない。しかし、組織結合性Tは生体内の特定の部位で比較的長期の連続的な被曝線源であることを考えると、それによる生物影響は軽視できない。

一方、T-ロイシン投与の実験において、その被曝線量がHTOの2~3倍高くなることを明らかにした。また予備的な実験として、Tの肝組織内における生化学的分布を調べてみると、HTOの場合と異なり、投与後1日目に全結合性Tの80%が蛋白質画分であるアルカリ溶性画分に見い出された。これらのことは、Tの危険度評価を、HTOとその他のT-標識化合物では区別して考えなければならないことを示唆している。

引用文献

- 1) Peterson H.T., Martin J.E., Weaver C.L. and Harward E.D.: "Environmental Tritium Contamination from Increasing Utilization of Nuclear Energy Sources. IAEA pp35~60 (1969)
- 2) Bond V.P.: "Long-Lived Isotopes Arising from Nuclear Power Production: ^3H and ^{85}Kr Human and Ecologic Effects of Nuclear Power Plants". Charles C. Thomas Publisher, pp511~532 (1974)
- 3) Quebedeaux B. Chollet E: "Growth and Develop-

ment of Soybean (*Glycinemax*[L] Merr.) Pods" *Plant Physiol.* **55** 745-748 (1975)

- 4) Boyer J.S.: "Recovery of Photosynthesis in Sunflower after a Period of Low Leaf-Water Potential" *Plant Physiol.* **47** 816-820 (1971)
- 5) Sionit N. Kramer P.J: "Water Potential and Stomatal Resistance of Sunflower and Soybean Subjected to Water Stress during Various Growth Stages" *Plant Physiol.* **58** 537-540 (1976)
- 6) Housley TL, Fisher DB: "Estimation of Osmotic Gradients in Soybean Sieve Tubes by Quantitative Autoradiography" *Plant Physiol.* **59** 701-706 (1977)
- 7) König LA, Winter M. Tachlinski W: "Relationship Existing between Tritium Releases from Different Sources and The Contamination of Air, Water and Plants" IRPA, 4th Int. Cong. 613-620 (1977)
- 8) Pinson E.A., Anderson E.C: Body Absorption, Distribution and Excretion of Tritium in Man and Animal. LA-1218 (1951)
- 9) Siri W.F., Evers J: Tritium Exchange in Biological Systems. "Tritium in the Physical and Sciences" - IAEA, Vienna, 1961, Vol 2 71-84
- 10) Thompson R.C, Ballow J.E.; Long Term Retention of Tritium in the Rat and Sheep. HW-28636 (1953)
- 11) Person S.: Lethal and Mutagenic Effect of Tritium Decay produced by Tritiated Compounds. "Biological Effects of Transmutation and Decay of Incorporated Radioisotopes." IAEA, Vienna, 1968, 29-64
- 12) Feinendegen L.E.: Tritium-labeled Molecules in Biology and Medicine. Academic Press, New York, 309-353 (1967)

V-2-A トリチウム水のメダカ卵核酸、アミノ酸および脂質へのとりこみ

上野 昭子 (生物研究部)

一政 祐輔 (外来研究員)

Incorporation of Tritium from Tritiated Water into Nucleic Acids, Amino Acids and Lipids of *Oryzias latipes* Eggs

Akiko M. UENO and
Yusuke ICHIMASA

Abstract

Eggs of *Oryzias latipes* were kept at 25°C in tritiated water from a few hours after fertilization to the day before hatching. When eggs were kept at 25°C in 10 $\mu\text{Ci/ml}$ of HTO a radioactivity of $46.8 \pm 5.72 \times 10^{-4}$ $\mu\text{Ci/wet egg}$ was found at an equilibrium activity level, whereas the dry egg contained only about 1% of the radioactivity of the wet egg.

The radioactivity of tritium in nucleic acids (DNA plus RNA) isolated from eggs incubated with 10, 100 and 1000 $\mu\text{Ci/ml}$ of HTO was closely proportional to HTO concentrations. Tritium in DNA isolated from the eggs treated with 100 $\mu\text{Ci/ml}$ of HTO had a specific activity of 8.48 $\mu\text{Ci/g}$ matter. The DNA radiation dose was estimated to be 2.4 rads/day DNA. The experiment of the DNA separation into individual bases revealed that all four bases, but especially thymine, were labeled. Incorporation of tritium into both DNA and RNA was observed at the same stages at which these macromolecules were synthesized during embryogenesis. After the transfer of the tritiated eggs into tritium-free water subsequent incubation indicated that the loss of tritium from the DNA of the eggs was very slow.

Variable radioactivities were also found in the free amino acids extracted from eggs incubated in 1000 $\mu\text{Ci/ml}$ of HTO for 9 days. The specific radioactivities of individual amino acid separated by using thin-layer chromatographic technique were about 200 to 20000 $\mu\text{Ci/mole}$.

Lipids were extracted from these eggs by the method Bligh and Dyer and analyzed by means of

thin-layer chromatography. Determination of the radioactivity in various fractions of lipid revealed that the activity in phospholipids was much higher than that in neutral lipids. Among phospholipids lecithin showed the highest activity (42.3% of the total lipid activity) although the content of lecithin was only 13.6% of the total lipid. The specific activities of tritium in lecithin and triglyceride were found to be 7367 and 505 dpm/ μmole , respectively.

The tritium radioactivities among three kinds of lipid moiety namely, unsaponifiable matter, fatty acid and alcohol component were found to be, respectively, 3.1, 10.2 and 86.6% for lecithin and 30.5, 14.0 and 55.5% for neutral lipid. When the eggs kept in tritiated water for 3 days after fertilization were transferred to tritium-free water, the radioactivity in lipid declined very gradually, the loss during the following 3 days being only 14% of that found just before the transfer.

Key Words:

Oryzias latipes, Eggs, Tritiated water, Nucleic acids, Intake, DNA, Radiation dose, Thymine, RNA, Amino acids, Thin-layer chromatography, Lipids, Phospholipids, Lecithins, Triglycerides.

緒言

トリチウム水の水生生物への影響を知るための基礎的知見として、また食物連鎖におけるトリチウムの行動の

研究の一環として、トリチウム水のメダカ胚核酸、蛋白質質などへのとりこみを研究した。

実験方法および経過

実験材料：当日産卵されたメダカ受精卵を集めてトリチウム水の入ったペトリ皿に入れ、これを密閉容器内に納めて25℃で飼育する。飼育中のトリチウム濃度を一定に保つため毎日新鮮なトリチウム水と交換する。飼育を終え、後処理をおこなう前に、付着したトリチウムを除くため、蒸留水で4回洗浄する。

実験操作

1) 核酸の分離

メダカ受精卵約300個を1、0.1、0.01 mCi/ml のトリチウム水中で産卵直後より孵化直前まで9日間飼育、水洗した卵をKirby 変法により処理する。すなわち6% P-アミノサリチル酸ナトリウム、1% ラウリル硫酸ナトリウムを加えてホモジナイザーで卵を磨砕し、これと等量の(フェノール500g、m-クレゾール70 ml、水55 ml、8-ヒドロキシキノリン0.5 g)の混液を加え、20分間室温で攪拌、40分遠心分離する。水層に酢酸ナトリウムを加え、pH5.8、2%濃度とする。再びフェノール・クレゾール混液で10分間抽出、遠心分離する。上層の水層10 mlに酢酸ナトリウム0.2 gの割合で加え、冷却した2-エトキシエタノールを静かに水層の上に注ぐ。両層をガラス棒で攪拌すると核酸は糸状沈澱となって棒にからみつく。繊維状の核酸を2-エトキシエタノールで1回、70%エタノールで2回洗った後、0.01M 酢酸ナトリウムに溶解しpH5.8とする。この核酸試料にはRNAが混在しているので、リボヌクレアーゼで処理してこれを除く。

2) DNA塩基の分離

DNA乾燥試料を6 N HCl、105℃、3時間封管中で加水分解し、生成物を少量の水で処理してTLC-セルローズ板(メルク製)上、エタノール、濃塩酸、水(70:20:10 v/v)混液で展開する。紫外線で検出した斑点をかきとり0.1 N HClで抽出、Bendichの

紫外外部吸収データから各塩基の量を測定した。

3) 遊離アミノ酸試料の調製

メダカ卵400個をHTO 1 mCi/ml 中で孵化直前まで飼育。これに蒸留水4 mlを添加し、ホモジナイズする。沸とう水中15分間抽出後、超遠心し、上清を濾過、濃縮し、70%エタノールで溶解、再び超遠心(105000G、60分)し上清を蒸発濃縮、蒸留水で稀釈する。これをイオン交換Amberlite IR120(1.8×5 cm)のカラムに吸着させてから1 N NH₄OHで溶出し、フラクションコレクターで分取し、ニンヒドリンによりアミノ酸分画を検出する。

4) 脂質試料の調製

メダカ卵300個に蒸留水10 mlを加えホモジナイズ。これにメタノール15 mlとCHC l₃ 7.5 mlを添加し室温で10分間放置する。更にCHC l₃ 7.5 mlと水7.5 mlを加え遠心分離(2500 rpm、10分)する。上層にCHC l₃ 10 mlを加えてホモジナイズして再度遠心分離。第1回及び第2回目の遠心の下層部分を加えあわせて脂質試料とする。

5) トリチウムの測定

生または乾燥卵はハイアミン-OHで60℃、30分、核酸類は5%三塩化酢酸で90℃、15分処理後、ジオキサシンシンチレーター15 mlを加え、液体シンチレーション計数機で測定した。

精製したアミノ酸試料は二次元薄層クロマトグラフの斑点をかきとり、0.1 N塩酸で抽出した後、また脂質も同様のTLC分画より試料を調製して液体シンチレーション法で測定した。

結果および考察

1) 卵および核酸へのとりこみ

卵全体へのトリチウムのとりこみ量は、卵が10 μCi/ml のトリチウム水で処理されたとき、46.8 ± 5.72 × 10⁻¹⁰ Ci (生卵1個当り)で、乾燥卵ではその約1%であった。とりこみの速度はFig 1に示した通り緩慢で、トリチウム水添加後約2日で飽和点での濃縮係数はほぼ1で、特に卵内で濃縮されること

はない。

DNA+RNA の核酸試料ではHTOの濃度が1、0.1、0.01mCi/mlの時のとりこみ量はそれぞれ582.1±105.1、58.5±15.9、5.7±1.2 dpm/eggで、濃度に完全に依存した。

Table. 1 メダカ卵のDNA、RNA およびDNA塩基中のトリチウム水の比放射能

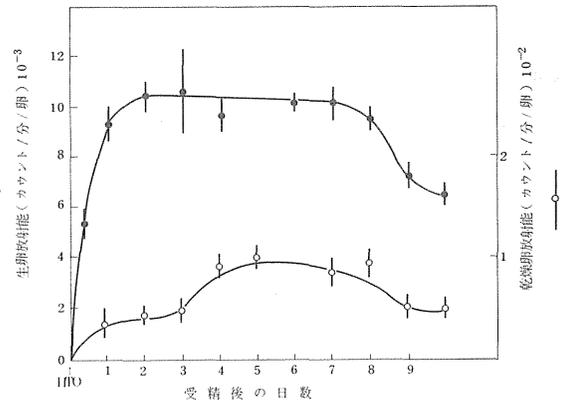
核 酸	比 放 射 能
DNA	8.4 8 ± 0.5 2 μCi/g
RNA	3.3 4 ± 0.5 1 "
DNA塩基	比放射能
シトシン	4 1 4 1 ± 3 3 3 μCi/mole base
チミン	1 6 2 0 1 ± 1 3 3 8 "
アデニン	2 3 3 7 ± 5 8 3 "
グアニン	1 4 1 8 ± 1 2 8 "

トリチウム水0.1mCi/ml中で飼育した卵のDNAへのとりこみは8.48μCi/gで、Bondらの式により、とりこまれたトリチウムによるβ線のDNAへの吸収線量は約2.4 rad/day/g DNAとなった。DNAを構成塩基に加水分解し、各々の塩基へのとりこみ量をしらべた結果 (Table 1)、トリチウムは4種類の塩基のすべてにとりこまれるが、特にチミンへのとりこみ量が多いことがわかった。また、Fig 2に示した通り、卵発生の各段階におけるとりこみ量はこれらの核酸が合成される時期と一致して増大する。

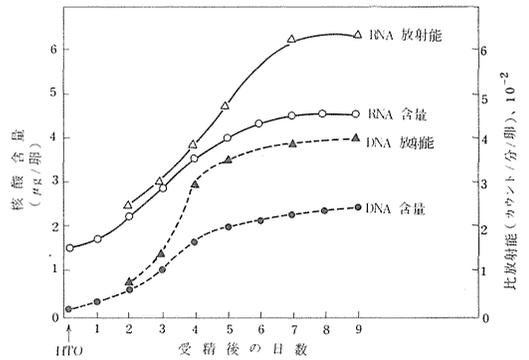
トリチウム水中に7日間飼育した後、トリチウムのない水に卵を移して3日間飼育したところ、DNAのトリチウムは殆んど減少しないのに対し、生卵、乾燥卵ではかなり急激に減少し、その生物学的半減期は生卵で1日以内、乾燥卵で1.5日ぐらいであった。

2) 遊離アミノ酸へのとりこみ

トリチウム水は種々のアミノ酸にとりこまれ、その量はアミノ酸の種類によって大きな差があった (Table 2)。特にグルタミン酸、アラニン、アルギニン等で比活性が高い。このとりこみ量の差はアミノ酸の代謝の途中にトリチウムをとりこみやすい過程



第1図 メダカ卵へのトリチウム水のとりこみ



第2図 メダカ卵核酸へのトリチウム水のとりこみ

があるためか、比較的安定な形でとりこまれたものだけが残り不安定なものはづれてしまうためか等の推定ができる。

3) 脂質へのとりこみ

メダカ卵300個の生体重は557.0±20.3mg、その脂質重量は12.3±0.5mgで、卵gあたりの脂質重量は22.0±1.0mgであった。全脂質量を秤量後、TLC法で分画し、デンシメトリーで定量する。また、

Table 2 遊離アミノ酸中のトリチウムの比放射能

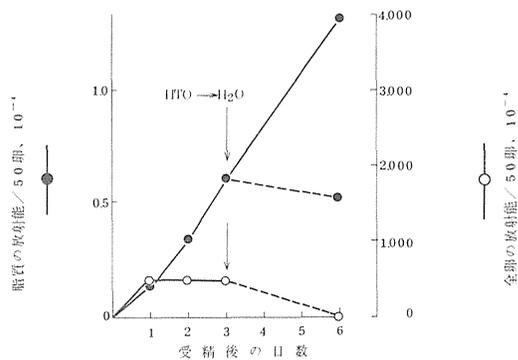
アミノ酸	分子式	N含量%	比放射能 dpm/ μmole
グルタミン	$\text{C}_5\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_3$	19.2	41285
アルギニン	$\text{C}_6\text{H}_{14}\text{N}_4\text{O}_2$	32.2	28733
アラニン	$\text{C}_3\text{H}_7\text{N}\text{O}_2$	15.7	16295
スレオニン	$\text{C}_4\text{H}_9\text{N}\text{O}_3$	11.8	5777
グリシン	$\text{C}_2\text{H}_5\text{N}\text{O}_2$	18.6	5744
アスパラギン	$\text{C}_4\text{H}_8\text{N}_2\text{O}_3$	21.2	4435
セリン	$\text{C}_3\text{H}_7\text{N}\text{O}_3$	13.3	2207
トリプトファン	$\text{C}_{11}\text{H}_{12}\text{N}_2\text{O}_2$	13.7	2125
チロシン	$\text{C}_9\text{H}_{11}\text{N}\text{O}_3$	7.73	1924
リジン	$\text{C}_6\text{H}_{14}\text{N}_2\text{O}_2$	19.2	666
ロイシン	$\text{C}_6\text{H}_{13}\text{N}\text{O}_2$	10.7	591
フェニルアラニン	$\text{C}_9\text{H}_{11}\text{N}\text{O}_2$	8.48	577
バリン	$\text{C}_5\text{H}_{11}\text{N}\text{O}_2$	11.9	333

斑点をかきとって試料を調製し、トリチウムの放射能を測定した。脂質組成および比放射能はTable 3に示した。メダカ卵の脂質量は生体重の2.2%で、中性脂質8.0%、ホスホリピド2.0%の組成からなり、主成分はトリグリセリド(5.0%)、ステロール(9.3%)、レシチン(13.6%)であった。また、卵脂質の比放射活性はホスホリピドのほうが中性脂質より高かった。卵脂質にとりこまれた放射活性の7.0%はリン脂質に分布し、特にレシチンに4.2%、ホスファチジルエタノールアミンに1.3.4%が分布していた。一方、中性脂質には28.5%が分布し、主な分布は未定の脂質画分とトリグリセリドにみられた。

図3は胚子発育の前半にトリチウム水中で飼育したあと、トリチウムのない水で飼育したときの取りこみ量の変化を示している。6日間トリチウム水で飼育しつづけると脂質へのトリチウムの取りこみはほぼ直線的に増大するが、3日後に蒸留水に移して、さらに3日飼育した場合はやや放射活性の低下がみられたが、その速度は遅く、3日間で約10%の減少がみられたにすぎない。これは脂質がいわゆる第3成分であることを示唆している。3日後蒸留水に替えた場合の各脂

Table 3 脂質成分中のトリチウムの比放射能

脂質成分	脂質組成 %	脂質重 mg	比放射能 dpm/mg 脂質
中性脂質			
モノグリセリド	1.4	0.2	1,030
UK ₁	0.9	0.1	2,010
UK ₂	5.6	0.7	5,766
脂肪酸	5.6	0.7	1,889
トリグリセリド	50.0	6.2	625
ステロール	9.3	1.1	1,491
ステロール エステル	8.4	1.0	1,292
ホスホリピド			
リゾレシチン	0.7	0.1	13,200
p-UK ₁	1.4	0.2	15,200
レシチン	13.6	1.7	10,035
ホスファチジル エタノールアミン	1.9	0.2	36,180
p-UK ₂	1.1	1.1	122,860



第3図 メダカ卵脂質へのトリチウム水のとりこみ

質成分へのトリチウムの分布を調べたが、その分布に著しい差はみられなかった。すでに述べたように、レシチンには全脂質の4.2%の放射能が分布しているので、アルカリ分解後、その構成分子へのトリチウムの分布をしらべたところ、86.6%はアルコール画分(コリンおよびグリセロールを含む)に、10.2%が脂肪酸画分に分布していた。この様な傾向は、他のホ

スホリピド成分についてもみられた。一方、中性脂では放射活性の56%がアルコール成分に分布し、つぎにステロイド成分に31%が分布していた。メダカ卵の脂質は一部はエネルギー源に使われ、一部は胚子発育にもなって胚子に吸収されると考えられるので、トリチウム水中で飼育された卵では胚子発育につれてトリチウムが卵から胚子に移行し、主として膜の主要成分の一つであるリン脂質に分布して、かなり長期間体内に存続するものと推定される。

研究発表

- 1) Akiko M. Ueno: "Incorporation of Tritium from Tritiated water into Nucleic Acids of *Oryzias latipes* Eggs", *Radiation Research* 59, 629-637 (1974).

V-2-B トリチウム水のラット脂質へのとりこみ

一政祐輔*、武田 洋、櫻田義彦

Incorporation of Tritium from Tritiated Water into Tissue Lipids of Rats

Y. ICHIMASA,
H. TAKEDA,
Y. KASIDA

Abstract

Male Wistar-strain rats weighing approximately 380 g were used. Each animal was given a single oral administration of 5 μ Ci or 15 μ Ci of tritiated water per g body weight. Animals were sacrificed by decapitation, and blood, brain, liver, testis, and adipose tissue were quickly removed. The distribution of tritium activity in these tissues and blood were investigated for 90 days. Lipids were extracted from various tissues with chloroform-methanol mixture (2:1, v/v) and analyzed by means of thin-layer chromatography.

The incorporation of tritium in tissue lipids was the highest in adipose tissue, followed by brain, testis, and liver. The biological half-lives for tritium in various tissues were as follows: 33 and 213 days in brain, 80 days in adipose tissue, 10 and 38 days in testis, and 6 and 24 days in liver. Radiation dose given to each tissue during the period of 10 days (10–120 days after the HTO administration) ranged from 0.1 to 3.5 rads. The activity of various lipid components in the four tissues was determined during the period of 10–120 days. The major portion of activity in liver and testis was found in phospholipids and triglycerides, and the activity in phospholipids of both tissues decreased with time, whereas the activity in triglycerides of testis tended to increase slightly. In adipose tissue, almost all of the activity was distri-

buted in triglycerides. In brain, the major part of the activity was recognized in phospholipids. Distribution of tritium among various phospholipid components in liver, testis and brain was also examined at 10 and 87 days after the tritium administration. The activity in phosphatidylinositol, phosphatidylethanolamine, and cerebroside of brain was retained much more than that in phospholipid components of the other tissues.

Key Words

Tritiated Water, Radiation Doses, Intake, Biological Half-life, Lipids, Phospholipids, Triglycerides, Retention, Tissue, Distribution, Rats

緒言

核エネルギーの平和利用や核実験等によって自然界に放出されたトリチウム (T) は水圏にはトリチウム水 (HTO) となって分布する。自然界の HTO は主に呼吸、摂取、及び拡散などを通して、動植物体に代謝され、代謝的に活性な有機化合物に取り込まれることが明らかにされつつある。

脂質は主要な貯蔵成分、あるいは生体膜の重要な構成成分として生体に存在するが、脂質への HTO からの T の取り込みが非常にすみやかであることは、ニワトリ⁽¹⁾ やラット⁽²⁾ を用いた実験で報告されている。メダカ卵の場合でも同様な取り込みがみられたが、ホスホリピドのなかでも、ホスファチジルコリンに特に多く分布することが明らかになった (著者ら、投稿中)。

* 外来研究員、Visiting Researcher

本研究は V-2-A のトリチウム水のメダカ脂質へのとりこみ実験をラットについて追試し、とりこみ機序を比較した故に本章にとりまとめた。

ラット脂質に取り込まれたTの生物学的半減期が長いことは報告されている⁽³⁾が詳細は明らかでないので、今回はラットを実験動物に用いて、臓器間でのHTOからのTの脂質成分への取り込みの特異性、及びその排泄速度の各臓器における差異について検討した。

実験方法

HTOのラットへの投与 使用したラットはWistar系雄の2.5～3.0ヶ月の生体重380g前後のもので、HTOはゾンデを用いて胃内に直接投与し、その後は飲料水と固型飼料を自由に与えて空調下で飼育した。

臓器の採集 ラットはエーテルで軽く麻酔してから断頭することによって殺し、けい動脈から滴下する血液を採血した。血液凝固防止剤には1%ヘパリン溶液を用いた。脳、肝臓、脂肪組織、睪丸を1～2g集め、それらの表面に附着している血液は生理食塩水で軽く洗うことにより除去した。これらの臓器はただちにドライアイスで凍結したあと、-20℃で脂質分析のために保存した。

脂質抽出、分析、及び放射能の測定 各臓器の脂質は20倍量のクロロホルム：メタノール(2:1、V/V)で抽出後、1/4 M NaClで非脂質性成分を除いた。脂質成分の分析のための薄層クロマトグラフィ及び、脂質各成分の放射能の測定は、Ichimasa and Akitaに準じた。すなわち、脂質の分画はメルクのシリカゲル60プレートを担体に用い、リン脂質成分の分離には展開溶媒にクロロホルム：メタノール：酢酸：水(25:15:4:1、V/V)を、また中性脂質成分の分離には展開溶媒に石油エーテル：エーテル：酢酸(35:15:1、V/V)を用いた薄層クロマトグラフィでおこなった。クロマトグラフィで分離後、脂質各成分にとり込まれたTの放射活性は、0.2% 2'-7'-ジクロロフルオレセインの9.8%エタノール溶液を薄層板にスプレーし、UVライトで各脂質成分のスポットを検出し、それらのスポットをバイアルにかき取り、Okuyama and Wakilら⁽⁴⁾のシンチレーターカクテルを加えることにより、パッカード3380型液シンで測定した。なお、血液の放射能の測定は血液50μlをSoluen-350/

isoPropanol(1:1)で溶解後、H₂O₂で脱色し、シンチレーターに0.5N HCl/Insta-gel(1:9)を加えて液シンで測定した。

実験結果

HTO投与後、10日目に臓器脂質に取り込まれた放射能は脂肪組織が最も多く、次いで脳、肝臓、睪丸の順であり、10日目以後における放射能の減衰は肝臓、睪丸に比べて脂肪組織と脳では遅いことが明らかになった(Fig 1)。

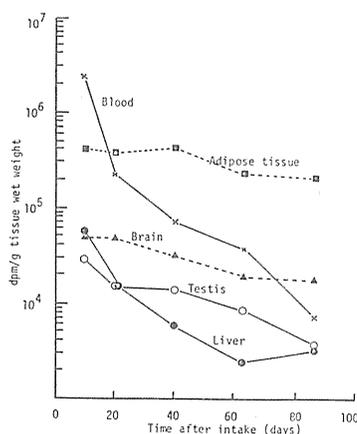


Fig 1 Tritium retention in lipids of rat tissues (dpm/g wet tissue)

これら臓器脂質に取り込まれた放射能の半減期はTable Iに示した。すなわち、半減期の長いものは脳では33日と213日の2つの成分であり、脂肪組織では80日であるのに対して、肝臓で6日と24日、睪丸では10日と38日と短いことがわかった。血液の放射能の半減期は2.6日と14日の2つのタイプに区別された。これは、脳と脂肪組織の脂質の一部は半減期の長い成分を含んでいることを示唆するものである。HTO投与10日から120日目までの110日間の吸収線量は脂肪組織で3.5 radで、睪丸では0.1 radであった。

Fig 2には、T dpm/mg 脂質を示したが、睪丸

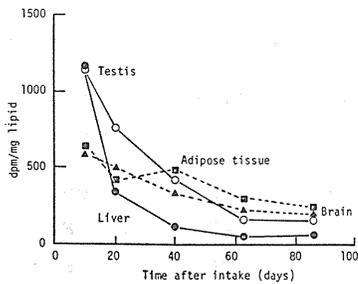


Fig 2 Tritium retention in lipids of rat tissues (dpm/mg lipid)

肝臓で高く、脳、脂肪組織の約2倍であった。その経時変化をみると、いつれの臓器でも60日迄に放出されずに各臓器に残ったTは、その後も放出されにくいことが明らかになった。

次に、肝臓、睪丸、脂肪組織、脳の脂質各成分中のTの減衰をFig 3、Fig 4に示した。肝臓、睪丸では、HTOからのTはホスホリピド、トリグリセリドに最も高く取り込まれたが、どの成分の放射能も総脂質の減衰とほぼ平行して減衰した。但し、睪丸のトリグリセリドの放射能は10日目から60日の間、むしろ若干増加の傾向を示した(Fig 3)。

脂肪組織ではトリグリセリドへのTの取り込みが最も高く、他の成分へのTの取り込みはトリグリセリドの1/50以下であり、脂質へのTの取り込みの大部分はトリグリセリドであることがわかった。また、その減衰が遅いことも脂肪組織の特徴である。一方、脳では、ホスホリピドへのTの取り込みが最も高いことは肝臓、睪丸と同様であるが、その減衰は両者に比較して遅く、これが脳におけるTの半減期が著しく長い原因と思われる。

なお、脳のもう一つの特徴はステロールのTがほとんど減衰しないことである(Fig 4)。

次に、各臓器のホスホリピド成分の変化について調べた(Table 2)。脂肪組織の脂質成分の放射能はほとんどが中性脂質なので、脂肪組織は除いた。Table 2

Table 1 Biological half-lives of tritium in tissue lipid and dose rate

Tissue	Biological half-lives		Dose rate (rad/110 days)
	T1	T2(days)	
Brain	33	213	0.4
Adipose tissue	80		3.5
Testis	10	38	0.1
Liver	6	24	0.1

$$D = 73.8EA_0 T_{1/2} [1 - \exp(-\frac{0.693}{T_{1/2}} t)]$$

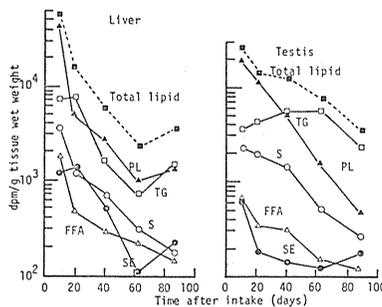


Fig 3 Tritium retention in lipid components of rat liver and testis

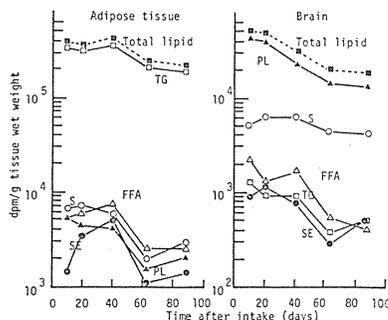


Fig 4 Tritium retention in lipid components of rat brain and adipose tissue

Table 2 Distribution of tritium activity in complex lipids of rat tissues

	Liver		Testis		Brain	
	10	87day	10	87day	10	87day
(dpm/g tissue wet weight)						
Spot L	1,151	102	620	29	706	294
H	1,727	91	484	32	1,038	294
I	617	85	453	20	249	-
X	1,028	-	-	-	1,079	477
C	2,467	135	1,027	60	1,951	600
Phosphatidyl choline	14,186	287	6,298	91	15,524	2,448
Phosphatidyl serine	2,179	100	620	38	1,204	367
phosphatidyl inositol	1,645	114	368	31	3,196	1,432
G	3,084	133	2,868	38	789	453
D	493	-	1,124	17	1,494	355
phosphatidylethanolamine	9,128	133	3,488	87	9,422	2,766
Cerebroside	1,933	88	1,744	37	4,026	2,619
Cardiolipin	1,480	41	213	20	830	135

にはHTO投与後10日目と87日目の結果を示したが、肝臓、睪丸、脳のいずれの場合でも、ホスファチジルコリン、ホスファチジルエタノールアミンにTの取り込みが高いことが明らかになった。肝臓、睪丸のホスホリピドのT活性は87日目においては10日目の活性の1/10~1/80に低下するのに対して、脳の場合では、T活性の低下は小さく、ホスファチジルコリンとカルジオリピンで1/6であるのに対して、ホスファチジルセリン、ホスファチジルイノシトール、ホスファチジルエタノールアミン、セレブロシドでは、1/2~1/3であることが明らかになった。

以上の結果は、HTOからのTの脂質分画への分布、及びそのTの放出は臓器によって異なるのみでなく、脂質成分の種類によっても異なることを明らかに示すものである。

考 察

Tの生物に及ぼす影響研究の一環として、HTOから

のTのラット各臓器脂質への取り込み、その減衰について検討してきた。脂質の研究の面からのみでも臓器間及び脂質成分間において、その特異性が存在することが明らかになった。このことはHTOの生体分子ターゲットを生体分子の局在性のレベル(生体内各臓器、細胞内小器官)で検討する必要性を示唆するものと考えられる。

- 1) L.Brady, D.R.Romsos and G.A.Leveille (1976) *In vivo* estimation of fatty acid synthesis in the chicken (*Gallus domesticus*) utilizing $^3\text{H}_2\text{O}$. *Comp. Biochem. Physiol.*, 54B; 403-407.
- 2) R.Fears and B.Morgan (1976) Cholesterogenesis from tritiated water in rats: Evidence against the existence of diurnal rhythms (2. Effect of meal-feeding). *Biochem. Soc. Trans.*, 4; 60-62.
- 3) R.C. Thompson and J.E. Ballou (1954) Studies of metabolic turnover with tritium as a tracer. IV. Metabolically inert lipid and protein fractions from the rat. *J. Biol. Chem.*, 198; 883-888.
- 4) H. Okuyama and S. J. Wakil (1973) Positional

specificities of acyl coenzyme A: glycerophosphate and acyl coenzyme A: monoacylglycerophosphate acyltransferases in *Escherichia coli*. *J. Biol. Chem.*, 248; 5197-5205.

V-3 トリチウム水の魚卵発生に及ぼす影響

市川 竜資、須山 一兵

Effects of Tritiated Water on the Embryonic Development of Fish

Ryushi ICHIKAWA,
Ippei SUYAMA

Abstract

Artificially fertilized eggs of common flounder, *Paralichthys olivaceus* and a species of puffer, *Fugu niphobles* were reared until hatching in tritiated sea water of various concentrations. No significant difference in their hatchability was observed between control and tritiated water groups of 10^{-8} to 10^{-2} Ci/l. However, a decrease in puffer egg hatchability was observed in tritiated water of very high concentrations, i.e., 1 and 10 Ci/l. Although the eye diameter of the 10 Ci/l larvae was found to be only about 57 per cent that of the control, the body weights of both groups were nearly equal, possibly due to the larger amount of residual yolk in the 10 Ci/l larvae. Naturally spawned eggs of the Japanese killifish, *Oryzias latipes* were reared in tritiated water of 10^{-2} and 1 Ci/l for eight days and transferred into non-radioactive water. Hatched larvae were fed with powdered artificial fish food and *Daphnia* for the next 30 days. Comparing with the control, both survival rates and the mean fork lengths were slightly reduced in the groups treated with the tritiated water, but the differences were not statistically significant.

The eggs of *Oryzias latipes* were incubated in tritiated water (0 – 10 Ci/l) or were irradiated continuously with γ -rays (0 – 132 rad/day) for eight hours immediately after fertilization. The rate of chromosome abnormalities at the end of the treatments was calculated as a ratio of the number of cells with chromosome bridge(s) observed at anaphase to the total number of cells of the same mitotic stages. The frequency of chromosome bridges increased significantly when the eggs were reared in tritiated water of the concentrations more than 1 Ci/l (> 37 rad) or irradiated with γ -rays of 293 rad or more.

Key Words

Paralichthys olivaceus, *Fugu niphobles*, tritiated water, hatchability, eye diameter, body weight, *Oryzias latipes*, survival rate, fork length, chromosome bridge, yolk, larvae, gamma-radiation, x-radiation, cobalt 60, Cesium 137

緒言

原子力施設から放出されるトリチウムは、これを除去することが現在の技術では技術的に不可能なため、廃液中の他の核種よりもはるかに多い。それ故、ある海域にかなりの量のトリチウムが放出されることは避けられない。しかし、最終的に人に至る海の世界連鎖を通してのこの核種の生物濃縮はあまり大きくないので、原子力施設周辺では廃液中の他の核種に比べてあまり重要でない。しかし、沿岸漁業資源の保護の観点からは、水生生物の胚発生に及ぼす環境水中の放射性核種の生物学的影響については重大な懸念がある。本研究は、魚卵の発生に及ぼすトリチウム水の生物学的影響を知るために行った。

(1) 海産魚卵の胚発生に及ぼすトリチウム水の影響

原子力施設から沿岸海域に放出されるトリチウムの魚類資源に及ぼす影響を検討する目的で、海産魚卵をトリチウム添加海水中で発生させ、孵化率及び形態的影響を調べた。

材料と方法

ヒラメ (*Paralichthys olivaceus*) とクサフグ (*Fugu niphobles*) の卵と精子を採集し、別々に実験室に持ち帰り人工受精させた。ヒラメ卵の場合は、受精卵は水面に浮かぶので容易に見分けることができた。クサフグ卵は実体顕微鏡下で観察し、受精卵だけを選んで使用した。受精卵は種々の濃度のトリチウム海水中に孵化まで浸漬し、孵化直後にフォルマリン固定を行った。トリチウムによる卵の吸収線量は次式¹⁾により算定した。

$$D = 51.2 Q \cdot E_m \text{ rad/day}$$

ここで、D: 卵のβ線吸収線量

Q: 水及び卵のトリチウム濃度 ($\mu\text{Ci/g}$)

E_m : β線の平均エネルギー、トリチウムでは
0.0057 MeV

この計算では、トリチウムは卵内に均一に分布していること及び水から卵へのトリチウムの濃縮はないことを仮定している。

結果

孵化実験-I

ヒラメ受精卵を媒精4時間後に、 10^{-8} Ci/l から 10^{-2} Ci/l までの種々の濃度のトリチウム海水に入れた。この時点で、卵は16細胞期ないし32細胞期にあった。水温 $15 \pm 2^\circ\text{C}$ で、受精後72~96時間の間で孵化が見られた。結果はTable 1に示す。コントロール群と 10^{-2} Ci/l までのトリチウム濃度の群との間では、孵化率について有意差は観察されなかった。

Table 1 The hatchability of flounder eggs in different concentrations of tritiated water

トリチウム濃度 (Ci/l)	92時間の積算線量 (rad)	供試卵数	孵化率 (%)
コントロール	—	703	82.8
10^{-8}	10^{-5}	941	79.2
10^{-6}	10^{-3}	735	82.4
10^{-4}	0.11	890	88.5
10^{-2}	11	661	80.3

孵化実験-II

受精後約1時間20分のクサフグ卵(2細胞期)を、ヒラメ卵での結果を考慮して、 10^{-4} Ci/l、 10^{-2} Ci/l のトリチウム水添加海水に入れた。孵化は水温 23°C で、受精後140~180時間の間に見られた。結果をTable 2に示す。

1 Ci/l 群の孵化率がコントロール及び他の2群よりやや低かった。

Table 2 The hatchability of puffer eggs in different concentrations of tritiated water

トリチウム濃度 (Ci/l)	180時間の積算線量 (rad)	供試卵数	孵化率 (%)
コントロール	—	911	41.6
10^{-4}	0.22	798	44.0
10^{-2}	22	779	41.2
1	2,160	846	36.7

Table 3 Body weight and eye diameter of newly-hatched larvae of puffer

トリチウム濃度 (Ci/l)	130時間の積算線量 (rad)	供試卵数	孵化率 (%)	体重 (μg)	眼径 (μ)
コントロール	—	403	97	722 ± 4.9	244 ± 1.3
10	15,600	400	87	76.2 ± 4.1	140 ± 1.7

成長実験

トリチウムの影響による形態的異常を検知するためにクサフグ受精卵を受精後約19時間に極めて高濃度(10 Ci/l)のトリチウム海水に入れた。この実験には、前夜に受精させた卵を実体顕微鏡で調べて、順調に発生の進んでいるものだけを選び用いた。トリチウム水添加海水に入れた時点での発生段階はのう胚期であった。孵化は、水温27℃で受精後約150時間目で起った。結果をTable 3に示す。

10 Ci/l 群の孵化率は、コントロール群のものより明らかに低いけれども、Table 3に示すように極めて高い積算線量を考える時、それほどひどい減少ではない。しかし、多くの差違が両群の孵化稚魚の間に観察された。例えば、コントロール群の孵化稚魚は、容器の中層を活発に泳ぎ廻ったが、10 Ci/l トリチウム海水群の孵化稚魚は水底に動かずに横たわるだけであった。顕微鏡観察によれば、トリチウム海水群の稚魚はコントロール群に比して体がかなり小さく、ずんぐりした体形をしていた(Fig 1)。体色は、トリチウム群に比べてコントロール群で顕著に黒いことも観察された。もっとも、この原因が表皮黒色素胞の密度の相違によるものか、黒色素胞の形態的相違によるものか確認はしていない。

フォルマリン固定稚魚の姿勢が一定していないために稚魚の体長を正確に測定することができなかったので、各群20個体を任意に選んで眼径を測定した。トリチウム水添加海水群の眼径の平均値はコントロール群のそれの約57%であった。

また、各群20個体を任意に選んで口紙で水分を取り除いた後、体重を測定した。トリチウム海水群はコントロール群よりわずかに大きい平均体重を示した。

考 察

水生生物のトリチウム水への長期被曝の影響に関する情報は、ごく限られている。Blaylock 等²⁾の 7×10^{-2} Ci/l から 5×10^{-1} Ci/l までの濃度のトリチウム水中でコいの卵を孵化させた実験では、コントロールとの間に孵化率に有意差は見られなかった。Strand 等の³⁾ニジマス卵を 10^{-5} Ci/l から 10^{-2} Ci/l ま

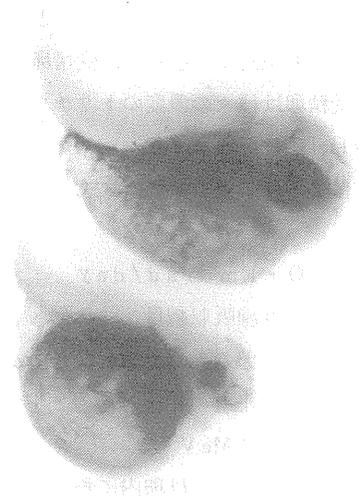


Fig 1 Newly-hatched larvae of puffer
upper : Control
lower : Larva hatched in tritiated
water (10 Ci/l)

での濃度のトリチウム水中で孵化させた実験でも、明瞭な孵化率の減少は見られなかった。

Walden は⁴⁾、胚発生期間中、0.5、1.0及び2.0 Ci/l のトリチウム水中に浸漬した three-spine stickleback (トゲウオの仲間の淡水魚)と English sole (シタビラメの類、海産魚)の孵化稚魚の眼径を測定し、両種について、1.0及び2.0 Ci/l のトリチウム濃度で眼径の有意な減少を観察している。

10^{-2} Ci/l までのトリチウム濃度では、有意な孵化率の減少の見られなかったヒラメ及びクサフグについての本研究の結果は、淡水魚に関する上述の孵化率の結果と一致している。Waldenの報告した眼径の減少は、およそ、1 Ci/l で10%、2 Ci/l で20%と計算できるが、本実験のクサフグでは、10 Ci/l で約40%の減少であった。10 Ci/l 群の孵化稚魚の体重が僅かに

Table 4 The hatchability, survival and growth rate of *Oryzias latipes* exposed to tritiated water during its embryogenesis.

トリチウム濃度 (Ci/l)	供試卵数	孵化尾数(率)	30日間生残数(率) ※1	尾及長(mm) ※2
コントロール	(1) 51	45 (88%)	24 (47%)	1.27±3.8
	(2) 53	51 (96%)	29 (55%)	1.19±3.3
10 ⁻²	(1) 59	57 (97%)	26 (44%)	1.11±3.9
	(2) 57	55 (96%)	29 (51%)	1.16±3.5
1	(1) 51	50 (98%)	27 (53%)	1.14±4.0
	(2) 65	63 (97%)	27 (42%)	1.14±3.2

※1. 供試卵数に対する割合

※2. 30日目にホルマリン固定後測定

Table 5 The hatchability, survival and growth rate of *Oryzias latipes* irradiated with X-rays immediately after fertilization.

X線線量(R)	供試卵数	孵化尾数(率)	30日間生残数(率) ※1	尾及長(mm) ※2
コントロール	49	47 (96%)	32 (65%)	1.28±4.3
100	41	40 (98%)	31 (76%)	1.28±4.2
200	50	49 (98%)	38 (76%)	1.23±4.4
500	56	55 (98%)	42 (75%)	1.11±4.5
1,000	57	54 (95%)	38 (67%)	1.19±4.2
2,000	79	13 (16%)	2 (3%)	1.38

※1. 供試卵数に対する割合

※2. 30日目にホルマリン固定後測定

コントロール群を上廻るのは、コントロール群より形態形成が遅れており、孵化までに消費したエネルギーが少いため、残存卵黄量が多いことによると推測される。

(2) メダカ稚魚の成長に及ぼすトリチウムの影響

(1)の実験では孵化までの影響を観察したが、本実験では、トリチウム水中で孵化させた稚魚を清浄水中に移し、その後30日間飼育して、生残率及び成長を調べ、発生中のトリチウム被曝が生存及び成長に及ぼす影響の有無を検討した。なお本実験では飼育の容易な淡水魚のメダカ(*Oryzias latipes*)を用いた。また、比較のため、X線照射したメダカ卵の発生と成長も調べた。

方法と結果

産卵直後のメダカ受精卵を10⁻² Ci/lと1 Ci/lの濃度のトリチウム水に、25℃で8日間浸漬した。その後清浄水に移し、孵化稚魚は人工餌料粉末とミジンコを餌として、30日間飼育した。その間毎日死亡魚を数え、又、実験終了時点で稚魚をホルマリン固定して、尾又長を測定した。結果をTable 4に示す。

孵化率はコントロール(1)で88%とやや低かった他は、すべて96~98%であり、差は検知されなかった。用いた卵数に対する30日間の生残率は2回の実験の平均で、コントロールの51%に対し、両群とも47.5%と幾分低かったが、有意差ではなかった。尾又長の平均は、コントロールの1.22mm、10⁻² Ci/lの群1.14mm、1

Ci/l 群の1 1.4 mmとわずかながら成長の遅れが見られたが、この遅れは統計的に有意ではなかった。

又、受精直後のメダカ卵に100、200、500、1,000及び2,000 RのX線を照射し、孵化後30日間上記の方法で飼育観察した。結果をTable 5に示す。

0~1,000 Rの照射では孵化率は95~98%で影響は見られないが、2,000 R照射では16%に低下した。生残率はコントロールの65%に対して、100~1,000 R照射では67~76%でむしろ高かったが、2,000 R照射群では3%に低下した。しかし、尾又長の平均はコントロールと各照射群との間に有意な差が検知されなかった。2,000 R照射群で最後まで生き残ったのはわずか2尾で、その尾又長は1 4.0 mmと1 3.5 mmであった。

考 察

本実験は未だ予備実験の段階である。この種の実験を継続するに際しては、容器の大きさや餌の量と魚の数などについて考慮を払う必要がある。特に、成長途次の魚では、“トビ”の現象が見られ、共喰いが起る。また、本実験では、飼育期間がわずか1ヶ月間であったが、稚魚が成長して生殖可能になるまでの期間をカバーする実験が必要であろう。

(3) メダカ初期発生に及ぼすトリチウム水の影響

従来形態的影響の検出とは別に、トリチウム水中で発生させたメダカ卵の発生初期における染色体異常の頻度を求めた。また、 γ 線連続照射したメダカ卵についても染色体異常頻度を求め、両データを比較した。

方法と結果

受精直後のメダカ (*Oryzias latipes*) 卵をトリチウム (0~10 Ci/l) 水中で、25℃で飼育した。処理開始後約8時間で卵を押しつぶし、醋酸オルセイン染色をして、染色体異常を観察した。染色固定した時点でのメダカ卵の発生段階は胞胚初期ないし胞胚後期であった。染色体異常として細胞分裂後期および末期にみられる染色体橋の形成をとりあげ、分裂後末期にある全細胞に対

する染色体橋のみられる細胞数の割合をもってその頻度を示した。又、受精直後のメダカ卵を¹³⁷Cs及び⁶⁰Co γ 線源を用いて8時間連続照射し、トリチウム水中飼育卵と同様の処理を行い、染色体異常頻度を求めた。

正常分裂像をFig 2に、染色体橋の1例をFig 3に示す。染色体異常の頻度はTable 6に示す。

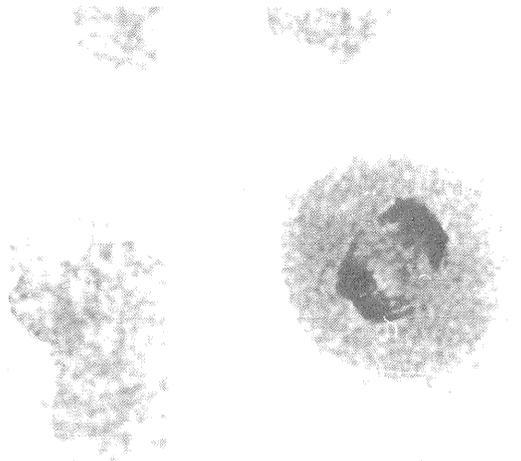


Fig 2 Normal mitosis.



Fig 3 Chromosome bridge (10^{-1} Ci/l)

Table 6 The frequency of chromosome bridges in embryos of *Oryzias latipes* exposed to tritiated water or γ -rays.

処理	濃度 (Ci/l)	線量 (rad)	分裂数 (後末期)	染色体橋 数	橋 %
コントロール		0	5,435	28	0.52
	10^{-1}	4	2,214	20	0.90
3H	10^0	37	2,115	22	1.04
	10^{+1}	370	1,565	43	2.75
^{137}Cs		43	2,183	16	0.73
		293	1,258	27	2.15
^{60}Co		1,056	1,252	48	3.83

染色体異常頻度は、コントロールの0.5%に対し、トリチウムの 10^{-1} Ci/l 群(推定線量、4 rad)で0.9%、1 Ci/l 群(同37 rad)で1%、10 Ci/l 群(同370 rad)で2.8%と、1 Ci/l 群以上で有意差が見られた。これをヒラメ卵、クサフグ卵の孵化率に及ぼす影響の重験結果と比較すると、染色体橋の頻度はそれより低い濃度で検出されるということができる。

References

- 1) ICRP: in "Report of Committee IV on Evaluation of Radiation Doses to Body Tissues from Internal Contamination due to Occupational Exposure." Pergamon Press, Oxford, 1968, pp. 12-15
- 2) B.G. Blaylock, P. Rohwer, G.U. Ulrickson and C.P. Allen: Oak Ridge National Laboratory Ecological Science Div., Ann. Progress Rept. July 31, 1970, 9-11 (1971)
- 3) J.A. Strand, W.L. Templeton and E.G. Tangen: in "Radionuclides in Ecosystems" (ed. by D.J. Nelson), vol. 1, National Technical Information Service, U.S. Department of Commerce, Springfield, 1971, pp 445-451
- 4) S.J. Walden: *ibid.*, vol. 2, pp. 1087-1097 (1971)

Publication

- 1) Ryushi Ichikawa and Ippei Suyama: "Effects of Tritiated Water on the Embryonic Development of Two Marine Teleosts." Bull. Jap. Soc. Sci. Fish. 40(8) pp. 819-824 (1974)