

NIRS-R-25

特別研究「環境と食物連鎖に係わる
公衆の被曝評価に関する調査研究」

(昭和63年度～平成4年度)

最終報告書

平成6年3月

放射線医学総合研究所

Final Report on the Project Research
“Assessment of Radiation Exposure of the Public
to Radioactivities Related to the
Environment and Food Chain”

(April 1988 ~ March 1992)

March 1994

National Institute of Radiological Sciences

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

序

昭和63年度から5ヶ年計画で実施されている本特別研究は、青森県六ヶ所村に建設が予定されている核燃料再処理工場をはじめとする核燃料サイクル施設を重点に、原子力施設周辺環境と公衆の被曝線量評価に重要な情報を得ると共に、被曝の低減化に資することを目的としている。そのため、(1) 放射性核種の環境中移行の解析とこれに必要な各種移行パラメータ群の算定、(2) 年齢群別、性別代謝特性を含む日本人の身体的生理的特性を考慮した代謝モデルの設定に関する研究、(3) 誘導限度設定のための線量当量評価モデルの開発、の3中課題につき9小課題を設けて研究を分担した。

(1) 沿岸海域での挙動に関しては、フィールド調査およびトレーサー実験により、微量安定元素ならびに天然および人工長半減期核種の生物濃縮を検討した。特に沿岸生物の動的解析に必要な代謝速度等のパラメータを算出した。陸圏環境中での挙動に関しては、トレーサー実験によってヨウ素の土壌から水稲への移行係数について土壌種による変動を検討すると共に⁹⁹Tcについても水稲及び陸稲への移行係数を求めた。またトリチウムの植物体内への移行係数、土壌表層中での有機形トリチウムの分解速度を求めた。

(2) 人体および食品試料の分析結果から²²⁶Ra、²³²Th および²³⁸Uの1人1日あたりの摂取量の全国平均値を求め、実効線量当量を推定すると共に、標準日本人の器管重量をパラメータとして骨表面細胞および赤色骨髄における α 線年線量当量を算定した。また動物実験によって¹²⁶Sbの幼若期・胎児期の代謝特性を明らかにし、³H、¹⁴C化合物の母乳から乳幼児への移行と線量係数の試算を行なった。

(3) 日本人の身体特性に適合した体内被曝線量計算システムの開発を行なうと共に試作したファントムの¹³⁷Csに対する計数効率を求め年令別¹³⁷Csの臓器・組織線量の算定を行なった。また蛍光ガラス線量計の基本的特性を調べた。さらに対外、呼吸器被曝にも影響を与える自然因子として降雨沈着で低下した大気中放射性核種濃度の回復所要時間の推定を行なった。

尚、各中課題毎の研究成果概要を担当のグループリーダーがまとめている、本特別研究で得られた成果は、環境放射線安全研究の基礎的および開発的知見を多く含み公衆の被曝線量評価に重要な情報を提供するものと確信している。

特別研究班長 鈴木 讓

目 次

特別研究「環境と食物連鎖に係わる公衆の被曝評価に関する調査研究」 序	鈴木 謙	
1. 環境安全評価のためのパラメータに関する研究 概況	中村 清	1
1-1 沿岸海域における安定元素及び長半減期核種のキャラクタリゼーション		
① 海洋生物中の金属元素のキャラクタリゼーション	石井 紀明	2
Characterization of Elements in Marine Organisms	T. Ishii	
② 沿岸生物中の $^{239, 240}\text{Pu}$ および ^{137}Cs 濃度	中村 清, 長屋 裕, 山田 正俊	7
$^{239, 240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs Concentrations in Coastal Marine Organisms	K. Nakamura, Y. Nagaya and M. Yamada	
1-2 沿岸海域における生物濃縮パラメータ		
① 海洋環境中のテクネチウム-99	平野 茂樹	10
Concentration of Technetium-99 in Marine Environment	S. Hirano	
② 海藻およびウニによる ^{95m}Tc の蓄積	中村 良一, 中原 元和, 松葉 満江, 鈴木 謙	14
Accumulation of ^{95m}Tc by Marine Algae and Sea Urchin	R. Nakamura, M. Nakahara, M. Matsuba and Y. Suzuki	
③ 海産軟体動物の放射性元素濃縮パラメータ	中原 元和, 中村 良一, 松葉 満江, 鈴木 謙	19
Concentration parameters for radionuclides by marine molluscs	M. Nakahara, R. Nakamura, M. Matsuba and Y. Suzuki	
1-3 長半減期核種の農作物への移行パラメータの設定に関する研究		
① 放射性ヨウ素の大気から水稲への沈着	内田 滋夫, 村松 康行, 吉田 聡, 住谷みさ子, 大桃洋一郎	24
The deposition of radioiodine onto rice plant from atmosphere	S. Uchida, Y. Muramatsu, S. Yoshida and Y. Ohmomo	
② ヨウ素-129の土壌から水稲への移行	村松 康行, 内田 滋夫, 吉田 聡, 住谷みさ子, 中島 敏行, 大桃洋一郎	27
Transfer of I-129 from soil to rice plants	Y. Muramatsu, S. Uchida, S. Yoshida, M. Sumiya, T. Nakajima and Y. Ohmomo	
③ テクネチウムの土壌から農作物への移行	柳沢 啓	31
Transfer Factors of Technetium from Soil to Various Agricultural Products	K. Yanagisawa	
1-4 化学形を考慮したトリチウムの環境挙動 — 特に有機形トリチウムについて —	井上 義和, 宮本 霧子, 岩倉 哲男	35
Transfer of Environmental Tritium into Organically Bound Form in Foodstuffs and Plant	Y. Inoue, K. Miyamoto and T. Iwakura	
2. 公衆のための代謝モデルの設定に関する研究 概況	中島 敏行	40
2-1 長半減期核種の食品-人体系における移行と体内分布並びに標準日本人の生理的特性	河村日佐男, 白石久二雄, 五十嵐康人, 山本 政儀, 田中義一郎	41
Transfer of long-lived radionuclides from diet to man and their body content and physiological characteristics of Reference Japanese Man	H. Kawamura, K. Shiraiishi, Y. Igarashi, M. Yamamoto and G. Tanaka	

2-2	放射性物質の年齢群別体内代謝 西村 義一, 武田 洋, 湯川 雅枝, 稲葉 次郎, 上島 久正, 市川 龍資 Experimental Study on Biokinetics of Radionuclides in Age Groups Y. Nishimura, H. Takeda, M. Yukawa, J. Inaba, H. Joshima and R. Ichikawa	50
3.	誘導限定設定のための被曝線量評価モデルの開発 概況 内山 正史	56
3-1	体内被曝線量算定モデルの開発とデータベースの整備	
①	実効線量当量の計算コード IDES の整備 本郷 昭三, 山口 寛, 竹下 洋, 岩井 敏 Development of Internal Dose Calculation Model and the Data Base Updated IDES (Internal Dose Estimation System) S. Hongo, H. Yamaguchi, H. Takeshita and S. Iwai	57
②	臓器吸収線量評価のためのファントムについて 竹下 洋, 山口 寛, 本郷 昭三, 岩井 敏, 岩井 一男 Phantoms for Calculations of Absorbed Organ Dose H. Takeshita, H. Yamaguchi, S. Hongo, S. Iwai and K. Iwai	62
3-2	公衆の実効線量当量算定法の確立	
①	環境放射線による集団実効線量の推定 丸山 隆司, 野田 豊, 竹下美津江, 岩井 一男 Estimation of collective effective dose equivalent from environmental radiation and radioactive materials in Japan -a preliminary study- T. Maruyama, Y. Noda, M. Takeshita and K. Iwai	67
②	放射性セシウムによる内部被曝線量推定とファントム 内山 正史, 中村 裕二 Estimation of Internal Dose from Radiocesium and Phantom M. Uchiyama and Y. Nakamura	75
3-3	体外、呼吸器被曝に影響を与える環境パラメータの検討 藤高 和信, 古川 雅英, 松本 雅紀, 阿部 道子, 阿部 史朗 A Study on Environmental Parameters Which Affect External and Respiratory Dose K. Fujitaka, M. Furukawa, M. Matsumoto, M. Abe and S. Abe	80

1. 環境安全評価のためのパラメータに関する研究 概 況

この中課題のグループでは公衆の被曝評価をするための研究のうち、未だデータの充分でないパラメーターを求め、燃料再処理工場を初めとする大型原子燃料サクル施設を念頭に置きつつ、新技術導入による超微量元素定量やシミュレーションにより、環境と食物連鎖から吸入または経口摂取による人体への放射性核種の移行を求め、環境安全評価の精度向上に資するよう調査研究を行った。

1-1では、ICP-MS法により、 ^{238}U を質量で測定する方法に習熟し、海産生物中の ^{238}U 含量のスクリーニングを行った。その結果、 ^{238}U の濃縮係数は魚肉が最も低く、頭足類のエラ心臓が最も高いことが判明し、さらにマダコのエラ心臓に含まれる ^{238}U の物理化学形、局在性等について精査した。また長半減期人工核種としては $^{239,240}\text{Pu}$ を選定し、各種の海産生物中の濃度を測定した。Pu濃度の低い日本沿岸では、貝類や海藻を指標生物とするのが良く、魚類はモニターとしては不相当であることが示唆された。

1-2では、長寿命人工核種であるがベータ線のみを放出するためデータの少ない ^{99}Tc に着目し海洋環境中の濃度測定およびトレーサー実験を行った。その結果、沿岸海中では大型原子力施設周辺でのみ検出されること、海藻中の ^{99}Tc の濃度変動は海水中のそれに対応していることが分かった。またウニによるTcの濃縮には餌の寄与が大きいことが判明した。軟体動物によるRI濃縮実験の結果、 ^{57}Co 、 ^{103}Ru 、 ^{65}Zn では餌の寄与が大きな役割を占めるのに対し、 ^{137}Cs や ^{54}Mn では海水の寄与が大部分であ

ることを見出した。

1-3では、これも長寿命核種であるが日本産の植物に対してデータの少ない ^{129}I 、 ^{99}Tc について濃縮実験を行った。特に欧米にはデータの少ない水稻への移行係数に集中的に実施した。その結果、土壌から水稻への ^{129}I および ^{99}Tc の移行ではIAEAの推奨値は過大であること、葉菜の一部を除いては他の野菜への ^{99}Tc の移行係数に関しIAEAの値は大き過ぎることが判明した。また有機ヨウ素の大気から水稻への乾性沈着について、モミ表面への沈着速度は小さいけれども、内部への浸透性が大きいことから、無視できないことを明らかにした。

1-4では環境から人体への有機形T(OBT)の移行率について研究した。その際、環境から植物性食品へのOBTの移行特性を比放射能比(有機形T/組織自由水T)を指標として検討を行った。その結果、T濃度が定常的平衡下の環境で成育した生物の比放射能は、1を超えることはなく、むしろ同位体効果のため1以下になる可能性が高いことが判明した。しかしながら、多量のT沈着のため一時的に環境HTO濃度が上昇した後減少するような変動の大きな非定常的条件下では、比放射能比は1より大きくなる場合があることを立証した。

以上のように、このグループの今研究期間において各種の重要なパラメーターが得られたが、超微量の放射性核種の測定のように人手、時間のかかるテーマではまだ知見が不足である。今後の息の長い継続的な研究が必要であろう。

中 村 清

1-1 沿岸海域における安定元素及び長半減期核種の キャラクタリゼーション

① 海洋生物中の金属元素のキャラクタリゼーション

石井 紀 明 (海洋放射生態学研究部)

Characterization of Elements in Marine Organisms

Toshiaki Ishii

Division of Marine Radioecology

Characterization of elements was carried out to clarify the mechanisms of bioconcentration and the physiological roles of elements in marine organisms.

The concentrations of ^{238}U in fifty-five species of marine organisms were measured by inductively coupled plasma mass spectrometry. The concentrations of ^{238}U in soft tissues of marine animals ranged from 0.076 to 500ng/g wet wt. Especially, the branchial heart of

cephalopod molluscs showed the specific accumulation of ^{238}U . The concentration factor of the branchial heart of *Octopus vulgaris*, which indicated the highest value, was calculated to be about 10^3 by comparing it with the concentration of ^{238}U ($3.2 \pm 0.2\text{ng/ml}$) in coastal seawater of Japan. The concentrations of ^{238}U of twenty species of algae ranged from 10 to 3700ng/g dry wt.

1. 緒言

海洋生物の体内には、水素から超ウラン元素まで周期表に示されているあらゆる元素が取り込まれていると考えられるが、元素濃度が生物の種類によって大きく異なること、また同一生物種でも成長段階、採取時期や生息場所の違いによって著しい濃度差が観察されることは一般に良く知られている現象である。

このような種特異性、体内濃度の変動、極端な不均一分布にはどのような生理機構があるいは金属親和性物質が関与しているのだろうか？ 上記の問題点に対して、正しい解答を与え、かつ生体における金属元素の生理学的役割を解明するためには、目的元素のキャラクタリゼーションが的確に実行されていなければならない。

更に放射線科学的な活用法としては、もしキャラクタリゼーションが完全に遂行されているならば、そこから得られた貴重な情報を基にして、放射性物質の臓器沈着防止剤、あるいは体外除去剤としての高機能性錯体を開発したり、あるいは放射性廃液の処理処分に非常に有効な試薬を合成することもできる。

2. 研究方法

- 試料：生物試料は、茨城県を中心として北海道から九州までの太平洋沿岸に生息する約200種を用いた。試料は70℃で48時間乾燥後、硝酸+過塩素酸で湿式分解した。
- 分析方法：海洋生物中の元素のキャラクタリゼーションに用いられた分析法は高周波プラズマ発光分析法、

X線マイクロアナリシス、X線回析法、広域X線吸収微細構造解析法等であるが、特に今回の特別研究で導入された高周波プラズマ質量分析装置が精力的かつ有効に用いられた。

3. 結果

生物を含めた環境試料中の金属元素の存在量は超微量であるため、現在考えられる最高の検出感度、分離能力を有する分析機器をもってしてもキャラクタリゼーションの実施が非常に困難である場合が多い。しかしながら、今回の特研では上記の最新かつ最強の機器分析法を海洋生物中の元素のキャラクタリゼーションに適用することによってTable 1に示すような結果を得た。今回はその中からウランに限定して報告する。

a. 海洋生物中のウラン濃度

ウランはアクチノイド元素群に属しており、天然には3つの同位体 (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U) が存在しているがいずれも非常に長い物理学的半減期を示す α 放射体である。

α 粒子の、線量当量に関わる線質係数がX, γ , β 線と比べて20倍も大きいことを考慮した時、 α 放射体であるウラン、特に99.280%と高い存在比を示す ^{238}U の環境試料中における濃度の把握は保健物理や環境科学等の分野では生物の放射線障害に関わる重要な研究課題となっている。特に海水中での ^{238}U 濃度は、元素濃度で約3ng/ml, 放射能濃度で40 $\mu\text{Bq/ml}$ と他の α 放射体に比べてかなり高いことが知られており多くの海洋生物について ^{238}U の濃度レベルを調査する必要がある。更には、 ^{238}U を特異

Table 1 Distribution, concentration and chemical form of the specific elements in five species of accumulators collected from the coast of Japan

Species	Localized tissue	Element	Concentration	Chemical form
Wasuregai (bivalve mollusc)	Kidney (granule)	Mn	40000 ppm	Phosphate
Hirejakogai (bivalve mollusc)	Kidney (granule)	Ca	130000 ppm	Phosphate
Yukinokasa (gastropod mollusc)	Radula (tooth)	Fe	500000 ppm	Oxide
Madako (cephalopod mollusc)	Brachial heart (granule)	U	25 ppm	Organo metallic compound
Erako (polychaete)	Radiole (epidermis)	V	5100 ppm	Ion

Table 2 The concentrations of ²³⁸U in fresh samples of marine animals collected from coast of Japan

Species Japanese name	Scientific name	Tissue or Organ	²³⁸ U concentration (ng/g wet) (μ Bq/g wet)	
Fishes				
Kuromaguro	<i>Thunnus thynnus</i>	Muscle	0.27	3.3
Mebachi	<i>Thunnus obesus</i>	Muscle	0.32	4.0
Sake	<i>Oncorhynchus keta</i>	Muscle	0.29	3.6
Kinmedai	<i>Beryx splendens</i>	Muscle	0.14	1.7
Kichiji	<i>Sebastes macrochir</i>	Muscle	0.076	0.94
Hirame	<i>Paralichthys olivaceus</i>	Muscle	0.32	4.0
Suzuki	<i>Lateolabrax japonicus</i>	Muscle	0.25	3.1
Ainame	<i>Hexagrammos otakii</i>	Muscle	0.52	6.4
Masaba	<i>Scomber japonicus</i>	Muscle	0.89	11.0
Isaki	<i>Parapristipoma trilineatum</i>	Muscle	0.30	3.7
Tachiuo	<i>Trichiurus lepturus</i>	Muscle	0.48	6.0
Katsuo	<i>Euthynnus pelamis</i>	Muscle	0.13	1.6
Sanma	<i>Colotabis saira</i>	Muscle	0.71	8.8
Maiwashi	<i>Sardinops melanostictus</i>	Muscle	0.45	5.6
Maiwashi	<i>Sardinops melanostictus</i>	Whole body	5.70	70.7
Molluscs				
Madako	<i>Octopus vulgaris</i>	Arm muscle	0.25	3.1
		Liver	85	1050
		Branchial heart	5000	62000
		Jaw	120	1490
Mizudako	<i>Paroctopus dofleini</i>	Arm muscle	0.99	12
		Branchial heart	710	8800
Iidako	<i>Octopus ocellatus</i>	Arm muscle	0.89	11
		Branchial heart	1160	14400
Kaminariika	<i>Sepia lycidas</i>	Trunk muscle	0.70	8.7
		Liver	92	1140
		Branchial heart	250	3100
		Jaw	190	2400
Kuroawabi	<i>Nordotis discus</i>	Foot muscle	0.51	6.3
		Liver	4.8	60
Wasuregai	<i>Cyclosunetta menstrualis</i>	Soft part	35	430
Kotamagai	<i>Gomphina melanaegis</i>	Soft part	19	240
Ubagai	<i>Spisula sachalinensis</i>	Soft part	19	240
Agemakigai	<i>Sinnovaluca constricta</i>	Soft part	33	410
Himejako	<i>Tridacna crocea</i>	Soft part	300	3720
Shiranamigai	<i>Tridacna naxima</i>	Soft part	110	1360
Chosenhamaguri	<i>Meretrix lamarcki</i>	Soft part	12	150
Murasakiigai	<i>Mytilus edulis</i>	Soft part	16	200
Crustaceans				
Kurumaebi	<i>Penaeus japonicus</i>	Tail muscle	0.87	11
		Tail muscle	1.6	20
Shako	<i>Oratosquilla oratoria</i>	Foot muscle	0.42	5.2
		Liver	15	190
Gazami	<i>Portunus trituberculatus</i>	Foot muscle	0.62	7.7
		Liver	22	270
Hiratsumegani	<i>Ovalipes punctots</i>	Foot muscle	0.62	7.7
Echinoderms				
Bafununi	<i>Hemicentrotus pulcherrimus</i>	Gonad	250	3100
Kitamurasakiuni	<i>Strongylocentrotus nudus</i>	Gonad	130	1610

1gU = 12.4kBq = 0.336 μ Ci (1ngU = 12.4 μ Bq = 0.336fCi).

的に濃縮する生物を検索・抽出できれば、 ^{238}U 高濃度蓄積生物の体内摂取に伴う公衆の内部被曝線量の低減に役立つものと考えられる。

このような観点から、海洋生物のウラン濃度についてのスクリーニング作業の必要性が強調されているにもかかわらず、日本産海洋生物の可食部中のウラン濃度に関する報告例が非常に少ないのが現状である。

新しい多元素高感度分析法としての誘導結合プラズマ質量分析法（以下 ICP-MS）が希土類元素、鉛、ウラン等の重元素の分析に有効であることをすでに報告している¹⁻²⁾ が、今回は ICP-MS を海洋生物中の ^{238}U の分析に適用し、主に可食部について ^{238}U 濃度を測定した。

日本沿岸に生息する海産動物33種の主に可食部における ^{238}U の分析結果を、元素濃度 (ng/g 生) と放射能濃度 ($\mu\text{Bq/g}$ 生) を併記して Table 2 に示す。

魚肉中の ^{238}U の濃度は0.076~0.89 (平均0.37 \pm 0.22) ng/g 生の範囲にあり1ng/g 生を越える種は存在していない。Ichikawa ら³⁾ は日本産魚類3種の魚肉類の ^{238}U 濃度について0.44~2.9ng/g 生の値を報告しているが、今回の報告値とはほぼ一致する。

日本産頭足類の ^{238}U 濃度についてはこれまで全く報告例をみないが、可食部である腕や胴筋肉中の ^{238}U 濃度は魚類と同レベルで1ng/g 生以下である。これに対して、肝臓、顎、エラ心臓の値はかなり高く、特にマダコのエラ心臓では5000ng/g 生と異常なほど蓄積されており、今回分析した試料の中では最も高い値を示した。またエラ心臓の ^{238}U 濃度を腕筋肉の値と比べると20000倍もの濃度差がみられており顕著な不均一分布が観察された。同じような傾向はミズダコ、イイダコ、カミナリイカについても観察されることから頭足類のエラ心臓は ^{238}U を特異的に濃縮する器官であると判断された。

本邦産二枚貝、巻貝、カニ、エビそしてウニ類の可食部中の ^{238}U 濃度についても頭足類と同様現在のところ報告例は皆無に等しいが、Table 2 に示すようにこれらの生物

中の ^{238}U 濃度は魚肉と比べて同等もしくはやや高い値を示す場合が多く、特に二枚貝の軟体部とウニ類の卵巣では高めであったがマダコのエラ心臓には及ばない。

b. マダコのエラ心臓中におけるウランの存在場所と化学形

以上述べてきたようにマダコのエラ心臓にはウランが高濃度に蓄積されているが、マダコのエラ心臓はウランだけでなくコバルト⁴⁾、アクチノイド元素⁵⁾、希土類元素⁶⁾ 等をも高濃度に蓄積することが知られておりこれらの元素に対して親和性をもつ生体構成成分の種類と量に関するトレースキャラクタリゼーションの必要性が指摘されている。

元素の存在場所の特定は、電子顕微鏡による形態観察で行なうのが通常の攻め方である。すなわちエラ心臓の組織をパラフォルム-グルタルアルデヒドで固定後エポキシ樹脂に包埋する。そのあと超薄切片 (0.1 μm) を作成し、切片はナイロンメッシュに載せる。電子染色をしないで形態観察を行なった結果、細胞内において電子密度の非常に高い顆粒状物質の存在が確認された。

更にこの顆粒に対して局所 X 線分析を実施すると、この顆粒状物質から、硫黄、亜鉛、鉄、コバルト、ニッケル、そしてウランの特性 X 線が検出された。この結果からエラ心臓中のウランの大部分は細胞内顆粒中に局在していると推定された。

元素の生体内での存在状態は、有機金属化合物の形で存在している場合は生化学的手法による親和性成分の同定、無機化合物の場合はシンクロトン放射光による EXAFS 法、また結晶性物質のものについては X 線回析法等で推定できる。

高速液体クロマトグラフィー、電気泳動法、アミノ酸分析法等で調査した結果、ウランの親和性物質は、最終代謝産物であるアデノクロームというタコ、イカ類に特有の色素であると考えている。

c. 海藻中のウラン濃度

日本産海藻中の ^{238}U の値を、1 種当たり 3~5 試料の

Table 3 The concentrations of ^{238}U in dry samples of marine algae collected from the coast of Japan

Species Japanese name	Scientific name	Part	^{238}U concentration (ng/g dry) ($\mu\text{Bq/g}$ dry)	
Anaosa	<i>Ulva pertusa</i>	Whole body	10	120
Tsunomata	<i>Chondrus ocellatus</i>	Whole body	300	3700
Harigane	<i>Ahnfeltia paradoxa</i>	Whole body	190	2400
Kushibenihiba	<i>Ptilota pectinata</i>	Whole body	620	7700
Akabe	<i>Neodisea yendoana</i>	Whole body	500	6200
Makusa	<i>Gelidium amansii</i>	Whole body	110	1400
Hijiki	<i>Hizikia fusiforme</i>	Whole body	500	6200
Wakame*1	<i>Undaria pinnatifida</i>	Whole body	600-3700	7400-46000
Arame	<i>Eisenia bicyclis</i>	Whole body	380	4700
Akamoku	<i>Sargassum horneri</i>	Whole body	670	8300
Oobamoku	<i>Sargassum ringgoldianum</i>	Whole body	520	6400
Hahakimoku	<i>Sargassum kjellmanianum</i>	Whole body	400	5000
Umitoranoo	<i>Sargassum thunbergii</i>	Whole body	470	5800
Nejimoku	<i>Sargassum sagamianum</i>	Whole body	420	5200
Fushisujimoku	<i>Sargassum confusum</i>	Whole body	620	7700
Uganomoku	<i>Cystophyllum hakodatense</i>	Whole body	180	2200
Sujime	<i>Costaria castata</i>	Whole body	250	3100
Chigaiso	<i>Alaria crassifolia</i>	Whole body	680	8400
Makonbu	<i>Laminaria japonica</i>	Whole body	240	3000
Sugamo*2	<i>Phyllospadix iwataensis</i>	Whole body	270	3300

*1 Average concentration of five samples is 1720ng/g on a dry basis.

*2 Strictly speaking, Sugamo is classified into marine phanerogams.

平均濃度としてTable 3 に示す。

Table 3 にみられるように海藻中の ^{238}U 濃度は魚肉に比べるとはるかに高い値であるが、乾燥重量当たりの値であることを考慮すれば軟体動物の二枚貝の軟体部よりやや高い程度であると考えてよい。しかしながら種によって大きな濃度差がみられ、今回分析した20種の中ではアナアオサが最も低い値の10ng/g 乾、最も高い値を示したのは1986年4月に茨城県の磯崎海岸で採取したワカメでその元素濃度は3700ng/g 乾であった（なおワカメ4試料の平均濃度は1720ng/g 乾である）。

Miyakeら⁷⁾は、本邦産海藻についてウランの放射化学分析を行い、その結果として12種の中ではオキツノリが40ng/g 乾と最も低く、またイシゲが最も高い値の2350ng/g 乾を示したと報告している。また Miyake らによる12種の平均ウラン濃度は590ng/g 乾であり、本調査で得た平均濃度である450ng/g 乾と大差ない。

一方、原田ら⁸⁾は、石灰藻およびコンブ類について中性子放射化学分析法でウラン濃度を求めた結果として北海道産マコンブで130と514ng/g 乾の値を報告しているが、今回の青森産のマコンブの値に比べて大きな差はみられない。

d. ウランの濃縮係数

濃縮係数は環境放射能の分野では、原子力施設から放出される放射性核種によって一般住民が受ける被曝線量を推定するための評価モデル式の中で用いられている。濃縮係数は単位重量当たりの海水中の元素濃度に対する生物中の元素濃度の比として定義されているが、一生物種が絶対的濃縮係数をもつということはなく、成長段階、生息場所、雌雄差、食性等の生物学的あるいは環境条件によって変わりうるものであることを承知の上で濃縮係数を算定した。なお海水中の ^{238}U 濃度としては、青森県沿岸水5試料 (^{238}U 濃度; 3.1 ± 0.1 ng/ml, 塩分; 33.8~34.0%), 及び茨城県沿岸水5試料 (^{238}U 濃度; 3.3 ± 0.1 ng/ml, 塩分; 33.8~34.1%) の計10試料の平均として 3.2 ± 0.2 ng/ml の値を用いた。

Table 4 は、魚肉、頭足類の筋肉とエラ心臓、貝類の軟体部、甲殻類の筋肉、棘皮動物の卵巣そして海藻について各グループの平均濃度を求め、海水の値で除することにより濃縮係数を算定したものであるが、魚肉の濃縮係数は最も低い値の0.1であり濃縮が起きていないことを示している。また頭足類のエラ心臓の濃縮係数の平均は500であり、最も高いマダコのエラ心臓における濃縮係数は1000であった。Guaryら⁵⁾は、地中海のモナコ沖で採取したマ

ダコのエラ心臓中の自然および人工放射性各種について分析し、 ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{232}Th , ^{210}Pb , ^{210}Po が高濃度に検出され、この時のエラ心臓のこれらの核種に対する濃縮係数は概ね 10^4 であったこと報告している。

以上述べてきたようにマダコのエラ心臓はいくつかの元素を高濃度に蓄積する特殊な器官であるが、このような特異的濃縮能力を有するマダコを重金属や放射性核種による海洋汚染に対するモニタリング生物として適用することは可能であると考えられる。

e. ウランの放射能濃度

^{238}U の放射能濃度は ICP-MS で求めた元素濃度に12.4 (1ng/g 生 = $12.4 \mu\text{Bq/g}$ 生) を乗ずることにより換算できる。各生物種における ^{238}U の放射能濃度が Table 2, 3 に示されている。

^{238}U は放射性壊変系列のウラン系列の最初の核種で、その壊変生成物 ($^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{222}\text{Rn} \dots \rightarrow ^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po} \rightarrow \text{安定 Pb}$) の中には海洋生物への自然放射性核種による放射線被曝を考えた時、主要な被曝源になるものが少なくない。たとえば ^{234}U は ^{238}U の娘核種の一つであるが、海水中では ^{234}U と ^{238}U とは放射平衡になく、 ^{234}U が平均して13%程度過剰に含まれていることが地球化学的に証明されている。Miyakeら⁷⁾は海藻について ^{234}U と ^{238}U の放射能濃度の同位体比を求め、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 1.12$ と報告しているが、海藻に限らずあらゆる海洋生物は ^{234}U と ^{238}U とを区別しないで取り込んでいると推測できるので ^{234}U の生体中の放射能濃度は ^{238}U のそれとほぼ一致すると考えられる。

^{210}Po も、ウラン系列に属す α 線放出核種であるが、海洋生物による ^{210}Po の蓄積性が非常に高いことから ^{210}Po は自然放射性核種の中では主要な放射線被曝源の一つと考えられ、これまで多種類の海洋生物中の ^{210}Po について調査研究が行われてきた。Cherryら⁹⁾は、多数の研究者によって調べられた多種類の海洋生物中の ^{210}Po の放射能濃度をまとめているが、 ^{210}Po 濃度と今回分析した ^{238}U 濃度とを比較してみると、 ^{238}U 濃度は ^{210}Po 濃度をやや下回る値であることが分かった。

ここでマダコのエラ心臓に着目して自然および人工放射性核種の α 放射体による被曝線量を計算してみる。今回の分析で得られた ^{238}U の放射能濃度の62mBq/g 生に ^{238}U とほぼ放射平衡に達している ^{234}U の放射能濃度62mBq/g 生を加え、更に Guaryら⁵⁾ が測定した ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{232}Th , ^{210}Po の放射能濃度の合計 (25mBq/g 生) を加え

Table 4 Average concentrations and concentration factors of ^{238}U for groups of marine organisms

Organisms	Tissue of or Organ	Average conc. (ng/g wet wt.)	Concentration factor
Fishes	Muscle	0.37 ± 0.22	0.1
Cephalopod molluscs	Arm and trunk muscle	0.79 ± 0.30	0.2
Bivalve molluscs	Branchial heart	1500 ± 1800	500
	Soft part	68 ± 93	20
Crustaceans	Tail and foot muscle	0.88 ± 0.45	0.3
Echinoderms	Gonad	190	60
Algae	Whole body	$90 \pm 70^*$	30
Seawater		3.2 ± 0.2 ng/ml	

* Converted from 450 ± 340 ng/g dry wt. into 90 ± 70 ng/g wet wt. using average dry wt. percent (20%) of twenty species

ると149mBq/g 生となる。ここで生体中に α 放射体が37mBq/g 生 (=1pCi/g) で存在すると年間被曝線量として0.0187Sv に相当する被曝を受けると概算されるのでマダコのエラ心臓における現時点で知り得た代表的な α 放射体からの線量当量の総和は約75mSv/年 (旧単位では7.5rem/年) という値になる。

4. 結 論

海洋生物中の金属元素のキャラクタリゼーションを実行することによって、その濃度・分布・化学形を明らかにすることができた。特に、 α 核種の中では海水中で最も高い放射能濃度を示すウランについてはその放射能濃度と濃縮係数も併せて報告することができた。しかし、海水中にはウラン系列以外にトリウム系列 (^{232}Th 等) やアクチニウム系列 (^{235}U 等)、更には壊変系列を構成しない ^{40}K 、 ^{87}Rb 等、併せて55の地球起源の自然放射性核種が存在している。また ^{239}Pu や ^{242}Cm 等の超ウラン元素も原子力施設から水圏に放出されている。海洋生物は、これらの核種を選択的に、あるいは非選択的に体内に取り込み蓄積していると考えられる。そして最終的にはこれらの核種から放出される α 、 β 、 γ 線により体内被曝を受けることになるが、放射性核種の海洋生物に対する遺伝学的、資源学的影響についてはあまり研究が進んでいるとはいえない。この点については、水産食品摂取に伴う放射性核種の人体への移行率と併せてこれからの検討課題としたい。

また、マダコのエラ心臓にはCo、希土類元素やアクチニド元素に体して高い親和性を示す物質が存在することか

ら、この親和性物質が放射性核種の除去剤、あるいは放射性廃液からの重要核種の回収剤 (捕集剤) として活用できる可能性の有無についても検討を進めていきたいと考えている。

〔研究発表及び参考文献〕

- 1) Ishii, T., Takaku, Y., Ishikawa, M., Matsuba, M., Kurosawa, M. and Koyanagi, T.: *Environ. Sci.*, 2 (3), 177-191, 1989.
- 2) 石井紀明: 放射線科学, 33 (3), 75-85, 1990.
- 3) Ichikawa, R. and Ohno, S.: *Nippon Suisan Gakkaishi*, 47 (2), 289, 1981.
- 4) Ueda, T., Nakahara, M., Ishii, T., Suzuki, Y. and Suzuki, H.: *J. Radiat. Res.*, 20, 338-342, 1979.
- 5) Guary, J. C., Higgs, J. W., Cherry, R. D. and Heyraud, M.: *Mar. Ecol. Prog. Ser.*, 4, 123-126, 1981.
- 6) Ishii, T., Ishikawa, M. and Nakahara, M.: *Annual Report of National Institute of Radiological Sciences*, NIRS-28, 81-82, 1989.
- 7) Miyake, Y., Sugimura, Y. and Mayeda, M.: *J. Oceanogr. Soc. Japan.*, 26, 123-129, 1970.
- 8) 原田武夫・大石圭一・小山睦夫: 日本水産学会誌, 49 (7), 1135-1141, 1983.
- 9) Cherry, R. D. and Shannon, L. V.: *Atomic Energy Review*, 12, 3-45, 1974.

② 沿岸生物中の^{239, 240}Pu および¹³⁷Cs 濃度

中村 清、長屋 裕、山田 正俊 (海洋放射生態学研究所)

^{239, 240}Pu and ¹³⁷Cs Concentrations in Coastal Marine Organisms

Kiyoshi Nakamura, Yutaka Nagaya and Masatoshi Yamada
(Division of Marine Radioecology)

Several marine biological samples were collected from the Pacific coasts of Ibaraki and Aomori Prefecture in 1987 to 1991. Ash samples were digested with hot nitric acid, and ^{239, 240}Pu and ¹³⁷Cs were purified by ion exchange processes, then their alpha and beta radioactivities were measured.

^{239, 240}Pu contents by coastal fishes were higher in viscera, and muscle usually showed the lowest value. On the contrary, ¹³⁷Cs contents were rather higher in muscle.

The differences of radionuclide concentrations were found among species, but no definite regional variation

was observed between the Ibaraki and Aomori coasts.

^{239, 240}Pu concentration in fish was not found to be a good indicator for pollution of marine environment, because it is very low.

¹³⁷Cs contents of pelagic fishes showed clear difference between warm water species and cold water ones.

Concentrations of the radionuclides in bivalves and algae were also discussed and it was indicated that their radioactivities were high enough for radioactive pollution indicator.

1. 緒言

人工の長寿命放射性核種の内では、環境中の超ウラン元素の研究は¹³⁷Csや⁹⁰Srと比べてデータの少ないのが現状である。これは環境中の存在量が微量であること、核物質であるために容易に実験に取り組めないこと等によるものである。

海洋中に新たに人工放射性物質が投入された場合の生物による濃度を予測する際には、安定元素の分析によって濃縮係数を調べておく方法、RIトレーサー実験によって取り込み速度、排出速度、生物学的半減期、濃縮係数等を求めておく方法および日本付近では主に放射性降下物由来である放射能の野外生物中濃度を測定する方法が考えられる。大気圏内での核爆発実験が中止されて以来、環境中の放射能レベルは下がってきており、日本付近の沿岸海洋中でも、チェルノブイリ事故時に一時的に¹³⁷Csレベルが上昇した時を除いては年々減少している。しかしながら、超ウラン元素については我が国には実験施設がないので海産生物の飼育によるトレーサー実験は不可能であり、安定元素は存在しないので安定元素法による推定も出来ない。そこで今のところ野外試料の分析によるパラメータの取得が、我が国沿岸の生物濃縮研究の唯一の方法となる。

本研究では超ウラン元素としては海洋生物中に比較的存在量の多い^{239, 240}Pu濃度を測定し、¹³⁷Cs濃度と対比しつつ解析した。

2. 研究方法

茨城県沿岸および青森県太平洋沿岸より海産生物(魚類、軟体類、甲殻類、棘皮類、海藻)を入手し、試料とし

た。両地域は地理的に類似している。所々に岩礁地帯を持つが、全体的には南北方向に単調な砂地の海岸線であり、10km沖でも水深50m以内と浅い。両沿岸とも寒流(親潮)と暖流(対馬暖流、黒潮)の影響を受けている。

試料を各部位に分け、110℃で熱風乾燥し、450℃で灰化後、熱硝酸で溶解した。なお、個体の小さい動物および海藻は全体を試料とした。陰イオン交換法により¹³⁷Csと^{239, 240}Puを分離後、¹³⁷Csはリンモリブデン酸アンモニウムによる捕集、^{239, 240}Puは陰イオン交換法により分離精製を行なった。¹³⁷Csは塩化白金酸セシウムの沈殿として、また^{239, 240}Puはステンレススチール板へ電着して測定用試料とした。¹³⁷Csの測定には低バックグラウンドベータ線測定装置を使用し、プルトニウムはシリコン検出器付アルファ線スペクトロメーターにより測定した。

青森県および茨城県で漁獲された外洋性のシロザケ(雌雄別)、カツオ、イナダさらには和歌山県で採取した暖海性の回遊魚メバチについても分析し、沿岸生物と比較検討した。

3. 結果と考察

1987年から1990年の茨城県沿岸と青森県太平洋沿岸の海産生物の分析結果を表1および表2に示す。海産動物の放射能レベルは著者等が1981~1984年に測定した結果と同程度を示した。即ち、¹³⁷Csで $10^1 \sim 10^2$ mBq/kg-raw, ^{239, 240}Puで $10^{-1} \sim 10^1$ mBq/kg-rawであった。沿岸魚類の^{239, 240}Puについては内臓(消化管内容物を含んでいる)の放射能濃度が最高であり、エラ、皮、骨がこれに次ぎ、一般的には筋肉中の濃度が最低である。一方、¹³⁷Csでは筋

Table. 1 Radionuclide concentrations in Ibaraki Organisms (1988-1990)

生物	種名	部位	^{239,240} Pu (mBq/kg-raw)	¹³⁷ Cs (mBq/kg-raw)
魚類	コノシロ	筋肉	2.8 ± 0.3	131 ± 7
		内臓	21.4 ± 1.7	64 ± 4
	マアナゴ マコガレイ	筋肉	0.08 ± 0.08	42 ± 3
		筋肉	0.05 ± 0.07	72 ± 4
		内臓	4.8 ± 0.4	128 ± 7
メバル	筋肉	0.2 ± 0.2	108 ± 6	
	内臓	3.0 ± 1.0	187 ± 14	
貝類	チョウセンハマグリ	軟体部	1.2 ± 0.2	133 ± 7
	コタマガイ	〃	1.3 ± 0.2	134 ± 7
	サラガイ	〃	3.3 ± 0.5	246 ± 16
	モスソガイ	〃	2.7 ± 0.3	107 ± 45
頭足類	マダコ	筋肉	0.8 ± 0.2	54 ± 4
	イイダコ	全体	2.4 ± 0.3	46 ± 4
褐藻	ヒジキ	全体	4.0 ± 0.5	181 ± 8
	アラメ	〃	2.8 ± 0.3	146 ± 5
	ウミトラノオ	〃	27.2 ± 1.3	234 ± 11
紅藻	ツノマタ	〃	4.5 ± 0.6	233 ± 15
	ハリガネ	〃	19.2 ± 2.1	214 ± 14
	フクロノリ	〃	5.1 ± 0.6	192 ± 13
	テングサ	〃	42.1 ± 3.6	473 ± 52

Table. 2 Radionuclide concentrations in Aomori Organisms (1987-1989)

生物	種名	部位	^{239,240} Pu (mBq/kg-raw)	¹³⁷ Cs (mBq/kg-raw)
魚類	ヒラメ	皮	0.4 ± 0.3	148 ± 11
		筋肉	0.1 ± 0.3	300 ± 11
		内臓	0.1 ± 0.2	155 ± 15
		骨	0.6 ± 0.3	—
		エラ	0.6 ± 1.0	44 ± 30
	ヒラメ (幼魚)	皮	0.2 ± 0.2	74 ± 15
		筋肉	0.19 ± 0.07	266 ± 11
		内臓	1.0 ± 1.3	159 ± 26
		骨	0.9 ± 0.1	—
		エラ	0.4 ± 0.6	96 ± 89
	アイナメ	皮	0.0 ± 0.1	218 ± 22
		筋肉	0.0 ± 0.1	522 ± 18
		内臓	4.6 ± 0.4	92 ± 7
		骨	2.5 ± 4.1	—
		エラ	0.3 ± 0.3	221 ± 48
アイナメ (幼魚)	筋肉	0.19 ± 0.07	166 ± 11	
	内臓	5.0 ± 0.6	33 ± 30	
	骨	0.2 ± 0.3	—	
棘皮動物	キタムラサキウニ	生殖巣 殻	4.2 ± 0.8 18.1 ± 9.3	129 ± 15 —
貝類	ホタテガイ	筋肉 内臓	1.5 ± 0.3 5.1 ± 0.4	67 ± 27 11 ± 11
	ウバガイ	軟体部	5.7 ± 0.3	42 ± 13
褐藻	マコンブ	全体	10.8 ± 1.2	155 ± 33

肉中の濃度が最高値を示す。海産生物中での放射性物質濃度は生物に対する親和性とその核種の物理化学形に左右される。海水中で¹³⁷Csの大部分は溶解形であり、海水と同様の動きをするが、Puの可成りの部分は粒子形で存在することが知られている。^{239,240}Puと¹³⁷Csで魚体中の濃度分布が異なる傾向は、これら放射性核種の物理化学形の違いによるものと思われる。

茨城県沿岸魚類の筋肉および内臓中の^{239,240}Pu濃度は青森県沿岸産魚類のそれに比較して高い傾向が見られ、筋

Table. 3 Radionuclide concentrations in Ibaraki fishes (1991)

魚種	採取場所	部位	^{239,240} Pu (mBq/kg-raw)	¹³⁷ Cs (mBq/kg-raw)
マコガレイ	磯崎	筋肉	0.2 ± 0.03	226 ± 12
		内臓	1.0 ± 0.1	93 ± 13
	大洗	筋肉	0.1 ± 0.03	163 ± 12
		内臓	27.4 ± 1.0	1190 ± 66
アイナメ	磯崎	筋肉	0.2 ± 0.05	193 ± 25
		内臓	15.9 ± 0.7	181 ± 39
	大洗	筋肉	0.2 ± 0.04	247 ± 20
		内臓	3.6 ± 0.3	725 ± 55

Table. 4 Radionuclide concentrations in Pelagic fishes (1989)

魚種	採取場所	部位	^{239,240} Pu (mBq/kg-raw)	¹³⁷ Cs (mBq/kg-raw)
シロザケ	三陸沖	皮	0.11 ± 0.05	56 ± 11
		筋肉	0.05 ± 0.06	133 ± 12
		内臓(含消化管)	0.7 ± 0.2	67 ± 9
		骨	0.2 ± 0.2	—
カツオ	三陸沖	エラ	0.03 ± 0.03	17 ± 4
		皮	0.5 ± 0.1	116 ± 24
		筋肉	0.17 ± 0.09	438 ± 16
		内臓	0.6 ± 0.3	370 ± 29
メバチ	熊野灘	消化管	1.9 ± 0.6	472 ± 24
		骨	0.3 ± 0.3	—
		エラ	0.6 ± 0.3	175 ± 32
		皮	0.1 ± 0.1	226 ± 31
メバチ	熊野灘	筋肉	0.06 ± 0.06	458 ± 14
		内臓	0.2 ± 0.1	488 ± 56
		消化管	0.2 ± 0.1	471 ± 34
		骨	0.9 ± 0.9	—
		エラ	0.3 ± 0.3	239 ± 32

肉中の¹³⁷Cs濃度では青森産の方が高いように見受けられる。沿岸海水中の放射能濃度では殆ど差がないので、生物の種類による異なった親和性によるものかも知れない。

1991年に茨城県沿岸の磯崎と大洗で漁獲された2種類の魚類について分析してみたのが表3である。この結果からは、内臓中の^{239,240}Pu濃度が筋肉よりも高い点が認識され、¹³⁷Cs濃度も含めて内臓中の放射能濃度の差が極めて大きいことが分かるが、魚種、地域による差異の一定の傾向は見られない。これらのことは、海水中の放射能濃度に変化の少ない場合には、魚類中の¹³⁷Cs、^{239,240}Pu濃度では、海洋放射能のモニターには使えないことを示している。なお、内臓には消化管内容物を含んでいるので、その寄与が大きいものと思われる。現在の日本沿岸では^{239,240}Pu濃度が低く、特に魚類の部位ではかろうじて内臓が有意の濃度を表わすものと思われたが、これ程差があるのでは、測定値を指標として使いにくいことが分かった。

深海性の魚類では、その環境中の¹³⁷Cs濃度で計算すると濃縮係数が異常に大きくなることや沿岸の魚類でもトレーサー実験により、¹³⁷Csの濃縮には餌の寄与が大きいことが知られている。今回の測定で^{239,240}Pu濃度にバラツキの大きいことやPuの複雑な物理化学形を考慮すると、魚類のPu濃縮についても餌の寄与があることが示唆される。

表4に外洋性魚類の分析結果を示す。シロザケは寒海性、カツオ、メバチは暖海性の魚類である。シロザケの¹³⁷Cs濃度は、沿岸魚類と同程度かやや低く、カツオやメ

Table. 5 ^{137}Cs concentrations in Pelagic fishes (1991)

魚種	部位	青森県沿岸	茨城県沿岸	
シロザケ	雄	皮	83±4	73±4
		筋肉	145±4	149±5
		内臓	105±6	103±7
		精巢	134±13	102±5
		エラ	77±7	102±10
	雌	皮	73±4	77±5
		筋肉	89±2	178±5
		内臓	121±6	146±8
		卵巣	50±3	51±3
		エラ	69±5	84±8
イナダ	筋肉	270±7	306±20	
	内臓	238±6	278±7	

バチより明らかに低かった。これは北部北西太平洋の ^{137}Cs の低濃度の水塊の影響によるものと思われる。 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は沿岸魚類と同様に内臓や消化管を除いては極めて低く、その差異は比較出来ない。

青森県と茨城県で漁獲された回遊魚について、 ^{137}Cs 濃度を比較し、表5に示した。イナダ（プリの幼魚）の ^{137}Cs 濃度は採集地による差は認められず、暖海性の魚のため、シロザケより高濃度であった。シロザケについても同一回遊群であったかと思える程、採集地による差はなく、雌雄差も生殖巣を除いて認められなかった。精巢（シラコ）は卵巣（スジコ）より高濃度の傾向を示した。1個体当たりの ^{137}Cs の全蓄積量を計算すると平均で345mBq/尾となった。部位別の ^{137}Cs の蓄積割合は筋肉に約75%と最も多く、残りが生殖巣、内臓、皮、エラの順であった。同時に $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の測定も行なったが、筋肉や皮に比べ、生殖巣に高い傾向を示した。

軟骨魚として、1992年に捕獲されたアカエイを分析したところ、筋肉、内臓、骨の ^{137}Cs 濃度はそれぞれ590±26mBq/kg-raw, 221±14mBq/kg-raw, 277±23mBq/kg-rawであった。一般に硬骨魚類の骨では ^{137}Cs は極めて微量しか検出されないが、アカエイの骨の ^{137}Cs がかなり高濃度であるのは興味があるところである。

無脊椎動物や海藻類では魚類より高濃度の $^{239,240}\text{Pu}$ が

検出された。貝類や頭足類の軟体部は魚類の筋肉に比べて ^{137}Cs で低く、 $^{239,240}\text{Pu}$ で高い濃度の傾向であった。特に貝類は海産動物の $^{239,240}\text{Pu}$ 検索の指標として適当であると思われる。またキタムラサキウニの殻は魚類の硬組織より $^{239,240}\text{Pu}$ が高濃度であるのは興味深いことである。

海藻は他の放射性核種と同様に、相当の $^{239,240}\text{Pu}$ の濃縮傾向を示した。 ^{90}Sr や ^{99}Tc 、 ^{60}Co 等では褐藻に特異的に濃縮されることが知られているが、 ^{137}Cs 、 $^{239,240}\text{Pu}$ では紅藻でも高い濃縮を示した。海藻の放射性核種の濃縮機構の研究が必要である。

4. 結論

沿岸の海産生物中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度を測定し、 ^{137}Cs 濃度と比較しつつ検討した。日本人の消費量が多いこと、大型固体が得られるので細かな部位に分けられることから魚類を中心に検討したが、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度が低いため精査するに至らなかった。特に内臓では有意の濃度が得られたが、消化管内容物の影響と思われる個体差のため海洋の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の指標には適さなかった。今後、野外生物試料の分析による $^{239,240}\text{Pu}$ の研究材料には、貝類が有望と思われるが、他の無脊椎動物も広く、スクリーニングする必要がある。また海藻については本研究期間中には青森県太平洋沿岸ではマコンブ以外の入手が出来なかったので、細かく調べなかったが、最近他の海藻類も得られる見通しとなったので、今後は海藻も大いに研究することとしよう。

【研究発表】

1. Nagaya, Y., Suzuki, Y. and Nakamura, K.: $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs Concentrations in Some Marine Organisms, Mostly from the Ibaraki and Aomori Coasts, Japan, 1987-1989. *Nippon Suisan Gakkaishi*, 56, 1599-1604, 1990.
2. 山田正俊・中村 清・鈴木 謙：第29回理工学における同位元素研究発表会、東京、1992. 6.
3. 山田正俊・中村 清：第30回理工学における同位元素研究発表会、東京、1993. 7.

1-2 沿岸海域における生物濃縮パラメータ

① 海洋環境中のテクネチウム-99

平野 茂樹

Concentration of Technetium-99 in Marine Environment

Shigeki Hirano

Division of Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences

ABSTRACT

Seawater and brown algae have been collected along the coast of Ibaraki Prefecture. Technetium-99 was preconcentrated from seawater by anion exchange resin, Bio-rad AG1-X8, Cl-form, 50-100 mesh, and was extracted by 30% tri-n-octylamine (TOA) : xylene solution, followed by back-extraction with 5MNaOH solution. Technetium-99 was re-extracted into 2-butanone which was removed by rotary evaporator. The residue was dissolved in diluted sulfuric acid solution, in which 20mg of cupric ion was added. Technetium-99 was co-precipitated with cupric ion car-

rier as TcS by adding a thioacetamide solution. Algae were dried and ignited in an electric furnace at 450°C for 36h. The ash were digested with 4N nitric acid solution on a hot plate to leach technetium-99 into the nitric acid solution. The solution was centrifuged and the supernatant was processed by liquid extraction with 30% TOA-xylene solution as in the analysis of seawater.

Among several species of brown algae, the highest concentration of technetium-99 was obtained in *Sargassum thunbergii*, which was found to be a useful indicator of technetium-99 in marine environment.

1. 緒言

テクネチウムは天然にほとんど存在しない元素であったが原子核エネルギーの解放に伴い種々の同位体が生成されるようになり、これまでに質量数90から110まで30の核種が知られている。大部分の同位体が短寿命であるが、97, 98および99の質量数のものが長寿命核種であり、この内⁹⁹Tcはウラン、トリウム或いはプルトニウムの核分裂による収率が高く¹⁾、従って使用済み核燃料の再処理-リサイクルの過程における挙動が注目される²⁾。また放射性医薬として近年大量に使用されている^{99m}Tcも壊変の結果⁹⁹Tcになるのでその処理後の行く末についても大きな関心を持たれている。

核燃料再処理の結果生じる⁹⁹Tcの大部分は、他の高レベルの放射性廃棄物と共にガラス固化されて地層処分が考えられているが、その安全評価について色々な議論が出されておりどのようなシナリオを考えるかによって⁹⁹Tcの重要性が異なってくる。また⁹⁹Tcは極端に長い半減期を有することから超ウラン元素と同様に高レベル廃棄物の群分離、消滅処理に関する研究開発も行なわれている³⁾。

他方、環境中には大気圏の核爆発実験により多量の⁹⁹Tcが放出されており、また北大西洋では主に英国および仏国が核燃料再処理の結果生じた放射性廃液を一時期大量に放出しており、その結果海水中の⁹⁹Tc濃度の増加している事が知られている⁴⁾。

海洋環境に放出された⁹⁹Tcは幾つかの理由により人間の生活に関わりを持つと考えられている。その理由は物理的半減期が長く海水に安定な形、 TcO_4^- イオンで⁵⁾溶存するために拡散希釈以外にその濃度が減少しない事である。第二に海水中に長期に渡って安定な状態にある⁹⁹Tcを褐藻類⁶⁾、特に *Sargassum* sp. に良く濃縮され、またこれらを餌とするアワビ等にも蓄積される事が知られており、従ってこれらの海産物を食品として利用する人間にも蓄積する事が予想される。

我々は1988年以来海水および海藻中のテクネチウムの分析法⁶⁾を開発すると共に各地沿岸で採取した海産物試料中の⁹⁹Tc濃度の定量を続けている。その結果茨城、千葉および青森県で採取した海藻中の⁹⁹Tcの濃度変動について幾つかの知見を得た。また海水中の⁹⁹Tcの濃度については茨城県那珂湊市磯崎において採水してその経時変化に検討を加えた。

2. 実験方法

テクネチウム-99の分析には図1に示される方法で行なった。テクネチウムはその同位体がすべて放射性であるために収率補正としての安定同位体が無い。従って環境試料の分析に当たって個々の分析の収率補正は行わず、^{99m}Tcを用いたトレーサー実験で得られた収率で代用し、その収率は海藻の分析には0.7、そして海水の分析にはイ

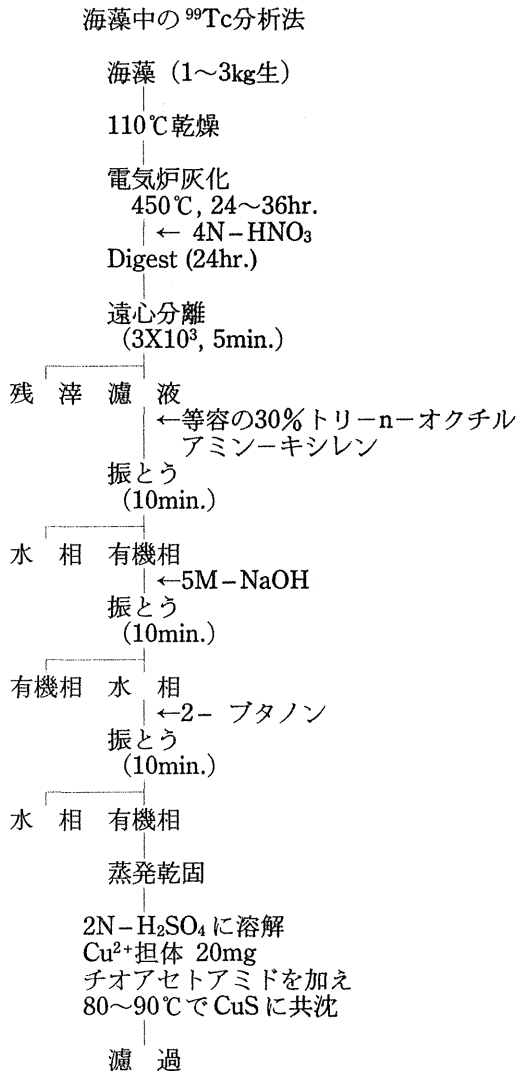


Fig. 1. Scheme for the determination of ⁹⁹Tc in seaweeds.

オン交換樹脂に対する吸着補正として更に0.95を掛けたものをすべての分析に使用した。⁹⁹Tcの放射能の測定には富士電気 K. K 製のピコベータを使用し、β max: 0.292 MeVのスペクトルを確認して行なった。

3. 結果

図2にこの方法を用いて定量したアラメ、*Eisenia bicyclis*の⁹⁹Tcのβ-スペクトルを示す。これは1987年夏に磯崎漁港付近で採取したもので13.6Ci/kg・生の値を示した。この試料はその後1992年までの間数回に渡って繰返しピコベータにより測定され、⁹⁹Tcの濃度の減少の無い事また長半減期核種のコンタミネーションによる0.292 MeV以外のスペクトルの生長の無い事を確認している。

海水中の⁹⁹Tc濃度については1988年から継続して分析定量を行なっている。図3に放医研那珂湊支所でポンプ揚水した海水の⁹⁹Tc濃度の変化を示した。図の斜線で示したヒストグラムは100ℓずつAG 1-X8, 50mlに通過させた後、500ℓないし、1,000ℓ分をまとめて分析した値を示した。また黒塗りのヒストグラムはAG 1-X8, 250mlに海水500ℓを通過させたものを分析定量した。下向きの矢印で示した点は分析を行なったが検出限界以下

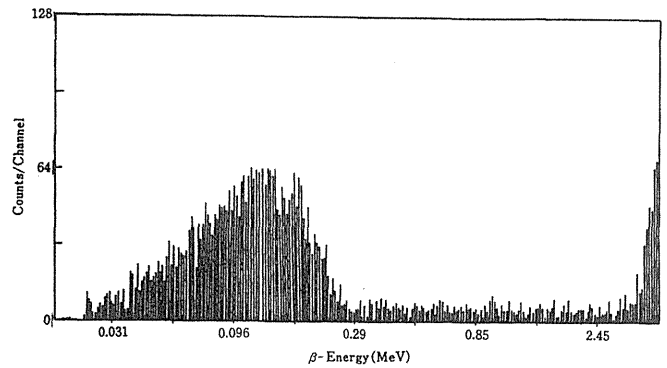


Fig. 2. Beta-spectrum of ⁹⁹Tc in *Eisenia bicyclis*.

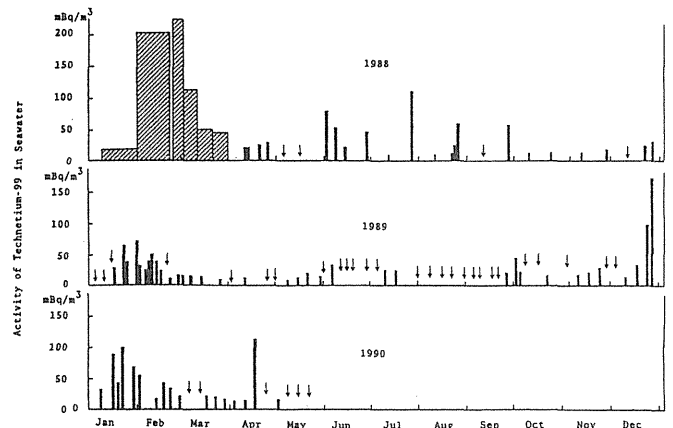


Fig. 3. Concentrations of ⁹⁹Tc in seawater collected at the Coast of Nakaminato-shi.

(10mBq)であった事を示す。この図から1988年の2月と3月に200mBq/m³を越える値、また1989年12月から翌1990年1月にかけて150mBq/m³を越える高い濃度を観測した。また他の時期の⁹⁹Tc濃度変動についてははっきりした規則性は見られなかった。これらの値は日本近海の⁹⁹Tcのバックグラウンドを示すものではなく、後に示すが那珂湊以外の地方で測定した海水中の⁹⁹Tc濃度は10mBq/m³以下であった。従って、那珂湊沿岸の⁹⁹Tc濃度の変動は原子力関連施設に由来すると思われる。

1988年前半の⁹⁹Tc濃度の高かった時期に採集分析したアラメの⁹⁹Tc濃度変化を図4に示す。縦軸の上半分にはBq/kg・生としてアラメの濃度を、下3分の1の部分にはmBq/ℓで海水中の濃度を表わした。測定数が少ないが海水の変動にほぼ対応してアラメの⁹⁹Tc濃度が変化する事がわかる。

図5には同じ時期に採集分析したウミトラノオ、*Sargassum thunbergii*の⁹⁹Tc濃度変化を示した。前述アラメの場合よりも測定数が多いので海水の濃度変化に良く対応して変化している様子が観察される。更に、この種はこれまで分析された中で一番高い濃縮係数を示し、テクネチウムのモニタリングの指標生物として使用できそうである。このウミトラノオは褐藻類に属しホンダワラと近緑の種で、関東地方の岩礁地帯では普通に見られる海藻である。また干潮時には容易に採取できる所に生息している為にサンプリングが容易である利点がある。しかし一年生の海藻である為に8月から11月までの期間は未成長であるのでは採集できない事と、東北地方以北にはあまり生息

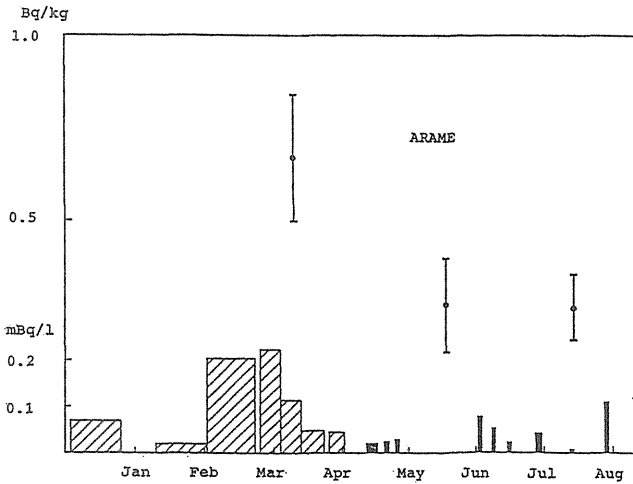


Fig. 4. Change in the concentrations of ^{99}Tc in *Eisenia bicyclis* with those in seawater.

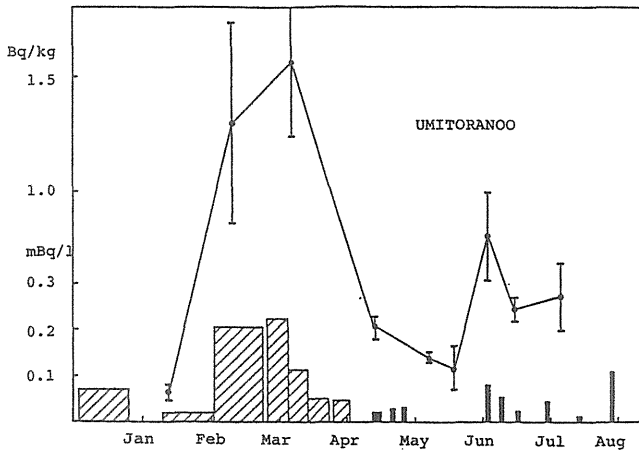


Fig. 5. Change in the concentrations of ^{99}Tc in *Sargassum thunbergii* with those in seawater.

していない点が指標生物としては欠点となる。

次に那珂湊以外の地点で採取されたウミトラノオについて分析した結果を表1に示す。北茨城市五浦の磯のウミトラノオを1989年以来継続して採取・分析しているが、ここで得られるウミトラノオは東海村の原子力施設の影響をほとんど受けていないと考えられるので日本近海における海水のテクネチウムのバックグラウンド値を示すと思われる。ウミトラノオはその成長段階で ^{99}Tc の濃縮が異り、成長の早期には5,000前後の比較的低い値を示し、7月頃の成熟期には20,000前後の高い値になる事がトレーサー実験等でわかっている。この濃縮係数を用いて実測したウミトラノオの ^{99}Tc 濃度からその場所における海水の濃度を測定した値が表1の右端の欄に載せてある。すなわち数 mBq/m^3 であろうと推定される。

表2に他の褐藻類の ^{99}Tc 濃度の値を示した。また同様にその場所の海水の濃度の推定を行なって右端の欄に示した。

表3には青森県の各地で実測した海水のテクネチウム濃度を示したが、いずれも一回測定であり、表の値の誤差は単に計数誤差であるので信頼度のあまり高くない値である。ここで述べた海水の分析法ではバックグラウンド値を測定できるほど検出感度がまだ良くないのである。

Table 1. Concentrations of ^{99}Tc in *Sargassum thunbergii* collected at the Coast of Kita-ibaraki-shi. Concentrations of the nuclide in seawater were estimated from those of the Alga.

		^{99}Tc 濃度	ウミトラノオ
採集日	^{99}Tc 濃度	^{99}Tc 海水濃度	推定値* mBq/m^3
	$\text{mBq/kg} \cdot \text{生}$		
ウミトラノオ (五浦)	1989-3-10	10.6 ± 6.6	$0.53 \sim 2.1$
	5-8	18.3 ± 6.8	$0.92 \sim 3.7$
	6-5	16.9 ± 2.7	$0.85 \sim 3.4$
	7-19	18.2 ± 2.3	$0.91 \sim 3.6$
1990-3-14	5-14	6.3 ± 7.2	—
	7-23	7.3 ± 2.8	$0.36 \sim 1.5$
		9.3 ± 2.3	$0.47 \sim 1.9$
1991-4-16	6-13	2.9 ± 1.2	$0.15 \sim 0.58$
	7-11	10.9 ± 1.7	$0.55 \sim 2.2$
		14.9 ± 0.09	$0.75 \sim 3.0$

* 濃縮係数を5,000~20,000として計算した。

Table 2. Concentrations of ^{99}Tc in *Hizikiya fusiforme*, *Sargassum sagamianum* and *Sargassum horneri*.

		^{99}Tc 濃度	ヒジキ、ネジモク、アカモク	
採集日	^{99}Tc 濃度	^{99}Tc 海水濃度	推定値* mBq/m^3	
	$\text{mBq/kg} \cdot \text{生}$			
ヒジキ (銚子)	1990-3-30	3.9 ± 0.52	0.8	
	1991-4-18	6-14	1.98 ± 0.42	0.40
		7-12	2.3 ± 1.1	0.46
			2.2 ± 1.1	0.44
ネジモク (御宿)	1989-5-9	3.6 ± 1.0	0.7	
アカモク (青森)	1990-6-20	3.0 ± 0.67	0.6	

* 濃縮係数を5,000として計算した。

Table 3. Concentrations of ^{99}Tc in seawater collected at several area in Aomori Prefecture.

		^{99}Tc 濃度	海水 (青森)
六ヶ所村	1990-7-9		N. D.
鱒ヶ沢	7-10	6.0 ± 2.3	mBq/m^3
泊	1991-9-24	3.7 ± 2.3	mBq/m^3

4. まとめ

日本近海の ^{99}Tc 濃度はまだかなり低く、一部の地域を除き 1mBq/m^3 前後の濃度であろうと予想される。この値は現在のところ直接海水を分析定量して測定できる限界より低いので種々の褐藻類の測定値からの推定であるが、褐藻類は実測値であるので海洋環境中にはすでに ^{99}Tc が広く存在しているのは確かである。海洋における ^{137}Cs の分布はよく調査されており海域により多少の違いはあるが、 3mBq/l 前後の値を示している。セシウムとテクネチウム

は共に海水中で溶存状態にありその挙動が類似しているとされている。 ^{99}Tc の海水中の濃度が 1mBq/m^3 とすると $^{137}\text{Cs}/^{99}\text{Tc}$ の放射能比が 3×10^3 となり、核実験で生成した両者の放射能比を ^{137}Cs の減衰を考慮して核分裂収率から求めると約 3.5×10^3 となり非常によく一致する。

[参考文献]

- 1) G. H. Cartledge, J. Am. chem. Soc., 77, 2658 (1955)
- 2) T. J. Anderson and R. L. Walker, Anal. chem., 52, 709 (1980)
- 3) 久保田益充、日本原子力学会誌 29, 775 (1987)

- 4) R. J. Pentreath et al. "Marine radioecology" P. 203 (1979), NEA-OECD, TOKYO.
- 5) R. E. Wildung et al. Health Phys., 32, 315 (1977)
- 6) S. Hirano et al. RADIOISOTOPES, 37, 186 (1989)

[研究発表]

- 1) S. Hirano, M. Matsuba and H. Kamada, RADIO-ISOTOPES, 37, 186 (1989)
- 2) S. Hirano and M. Matsuba, Radiochimica Acta, 63, 79-82 (1993)

② 海藻およびウニによる ^{95m}Tc の蓄積

中村 良一、中原 元和、松葉 満江 (海洋放射生態学研究部)
鈴木 謙 (那珂湊支所長)

Accumulation of ^{95m}Tc by Marine Algae and Sea Urchin

Ryoichi Nakamura, Motokazu Nakahara, Mitsue Matsuba and Yuzuru Suzuki*
Division of Marine Radioecology. *Laboratory for Radioecology, Nakaminato

It is necessary to investigate the accumulation of technetium by marine algae popular in Japan and it is also important to examine the contribution of food to the accumulation of the nuclide by sea urchin which grazes algae.

In the laboratory tracer experiment, some species of algae and sea urchin were kept separately for 7 days in sea water containing ^{95m}Tc (uptake experiment) and then transferred into non-radioactive sea water to be held for 28 days with the frequent renewal of the sea water (excretion experiment). No food was given during

the uptake experiment to prevent the urchins from accumulating ^{95m}Tc through food. Another experiment was done by feeding urchins with ^{95m}Tc labeled algae in the non-radioactive sea water.

Five species of brown algae showed CFs in the range of 900 and 35000 but CFs of green and red algae were 1-4. Sea urchin accumulated more ^{95m}Tc through food (brown algae) than directly from sea water, so that the main pathway of technetium accumulation by sea urchin was estimated to be brown algae which were the most favorite food of the organism.

1. 緒言

海産生物が我が国の食品中で重要な地位を占めているため、海洋の放射能汚染に関する問題は他国に比べより真摯な対応を求められる。また一方では、我が国の電力需要の相当な部分を原子力に依存している現実もある。求められるものは二者択一ではなく、両立への方策である。そのためにはまず第1に正確な情報収集、第2にはそれらの情報の分析、最後に、海産物の安全確保とエネルギー供給の両立のための対策である。海洋放射能による被曝評価には、海洋と放射性物質に関する情報として、様々な移行パラメータと、そのパラメータを用いて海洋での放射能の移行循環を明らかにするための移行モデルがある。海洋での移行パラメータには、海流、波浪などによる希釈、拡散や海中懸濁物、堆積物への吸着、沈着など、また、海底への沈降や滞留など放射性物質の海洋における挙動に関するあらゆる現象に伴う極めて広範囲なパラメータが含まれるが、サブグループ1-2の課題は「沿岸海域における生物濃縮パラメータ」で海産生物による放射性元素の蓄積に関するパラメータを扱う、我が国において利用(食用)される海産生物種は多岐に及び、漁獲量が多い生物種だけを調べて事足りるとするわけにはいかない。それは種によって思わぬ特異的濃縮を示す生物がみつかることなど¹⁾、予測を越えた蓄積現象を見逃さないためである。

海藻はこれまでもストロンチウム²⁾、ルテニウム³⁾、コバルト^{4), 5)}、ヨウ素などの元素に対する高い蓄積が報告され、海産食品としても重要である。またキタムラサキウニ (*Strongylocentrotus nudus*) は茨城県以北の太平洋沿岸における水産上の重要種の一つであり、バフンウニ (*Hemisen-*

trotus pulcherrimus) も食用種であるため貝類と共に濃縮パラメータの解明を必要とする無脊椎動物である。無脊椎動物は一般に魚類より高い濃縮を示すことが知られ、被曝評価の上でも重要である。また、生息海域における移動範囲が狭いため、魚類などの活動範囲の広い生物に比べ沿岸放出された放射性廃液による影響を受け易い上に、これら2種のウニは主たる餌が海藻である点においても放射生態学上注目に値する生物である。さらに、生殖巣だけが可食部分であることも他の生物とは異なり注目に値する。

テクネチウムは海藻への蓄積が高いことで知られるが⁷⁻⁹⁾、日本産の海藻に関しては、種別に濃縮係数(CF)、取り込み定数(α)および排出定数(β)などの濃縮パラメータを調べた報告はほとんど見あたらない。また、海藻を餌とするウニへの移行に関しても不明である。したがって、RIトレーサー実験を行い、海藻によるテクネチウムの濃縮パラメータを求め、ウニによる蓄積については、海水から直接取り込む場合および餌(海藻)を経由して取り込む場合の2つの経路の蓄積を比較検討した。

2. 方法

茨城県那珂湊市の海岸より緑藻のアナアオサ (*Ulva pertusa*)、褐藻のウミトランノオ (*Sargassum thunbergii*)、ネジモク (*Sargassum sagamianum*)、アラメ (*Eisenia bicyclis*)、ヒジキ (*Hizikia fusiforme*)、紅藻のハリガネ (*Ahnfeltia paradoxa*)、ツノマタ (*Chondrus ocellatus*) を、また、青森県六ヶ所村沿岸からマコンブ (*Laminaria japonica*) を採取し、付着物を除いたのち、ミリポア・フィルター (Pore size: $0.45 \mu\text{m}$) で濾過した海水で飼育した。飼育海水

にはあらかじめ、 ^{95m}Tc (NaTcO_4) を添加し、水温を15℃に、植物培養灯による照度を水面で約6000ルクスに保ち、給気は十分に行った。7日間の取り込み実験期間中飼育海水の ^{95m}Tc 濃度を一定に保つため、低下した場合にはさらに適量の ^{95m}Tc を追加した。7日間 ^{95m}Tc を取り込ませたのち、海藻を非汚染海水中に移し、毎日海水を交換しながら28日間の排出実験を行った。取り込み実験中に4回各海藻を飼育水槽から取り上げ、非汚染海水中で1~2分間すすぎ、海藻表面から汚染海水を洗い流したのち、軽く水を切り、種類別にポリ袋に入れてゲルマニウム半導体検出器(セイコーE G & G社製)で ^{95m}Tc を測定した。測定後は再び海藻をもとの飼育海水に戻し、取り込み実験を続けた。また、飼育水も同様に測定した。排出実験中も同様な方法で適宜11回測定を行った。

キタムラサキウニおよびバフンウニも那珂湊市沿岸で採取し、各10個体を1個体ずつ別々に仕切りを付けたプラスチックのカゴに入れて海藻と同じ条件で飼育、測定し、飼育海水からの ^{95m}Tc の取り込みと非汚染海水に移したのちの排出を観察した。また、餌(海藻)からの蓄積を調べるために、 ^{95m}Tc を含まない海水で飼育中のウニにあらかじめ ^{95m}Tc を取り込ませておいた海藻を餌として1回だけ与えたのち、ただちにウニ全身の ^{95m}Tc を測定し、その値を100としてその後経日的に測定し体内残留率を求めた。

3. 結果および考察

Fig. 1 に5種のアラメによる ^{95m}Tc の7日間の取り込みとその後28日間の排出の実測値および指数関数の近似曲線

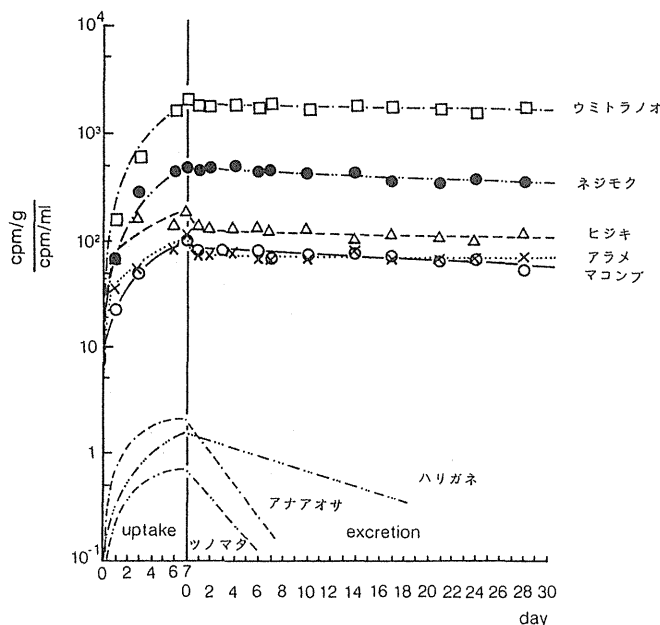


Fig. 1 Uptake and excretion of ^{95m}Tc by marine algae

を示し、他の3種のアラメについては実測値が互いに重なり合うために近似曲線のみを示した。横軸に実験経過日数、縦軸に取り込み実験期間中の飼育海水の平均 ^{95m}Tc 濃度(cpm/ml)に対する海藻の濃度(cpm/g)の比を対数目盛で表示した。排出曲線が1コンポーネントのものはネジモク、ハリガネ、アナアオサおよびツノマタの4種と多く、2コンポーネントと判断されるウミトラノオ、ヒジキ、アラメおよびマコンプについても短半減期成分はわずかに認

められる程度で長半減期成分が大部分を占めているが、このような排出パターンはセシウムなどと異なって海藻によるテクネチウム蓄積の特徴を示すものと思われ、その理由として、1コンポーネントの場合、海藻中のテクネチウムの代謝プールは1つすなわちテクネチウムは海藻の内部に取り込まれて代謝、排出され、海藻表面への吸着とそこから離脱だけに関わるテクネチウムはほとんどないと推測される。また、2コンポーネントの場合でも、表面吸着はわずかな割合に止まると思われる。取り込みおよび排出データの解析は柴田により開発された「濃縮係数計算プログラム」¹⁰⁾を用いたが、計算により求めた海藻による ^{95m}Tc の蓄積曲線をFig. 2に示した。褐藻の5種は取り込

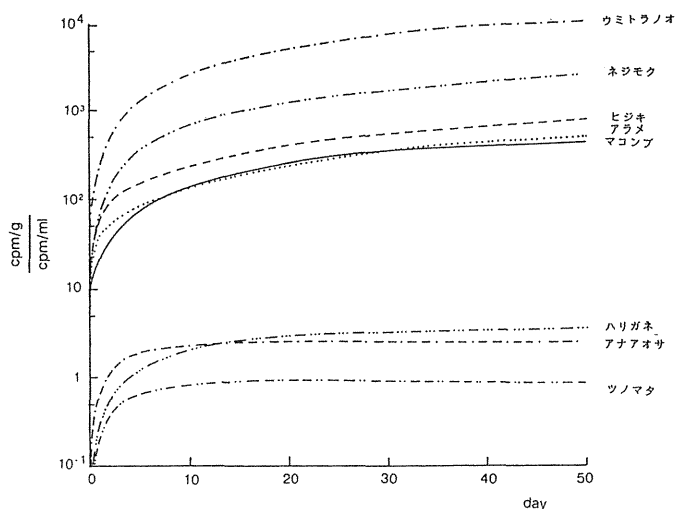


Fig. 2 Accumulation of ^{95m}Tc by marine algae

み開始から50日で $10^2 \sim 10^4$ の濃縮を示しさらに増加傾向にある一方、緑藻と紅藻の濃縮はわずかに1前後と極端に低い値を示し、しかも、既に濃度平衡に達している。計算結果の濃縮パラメータをTable 1に示した。 ^{95m}Tc は褐藻に特異的に高い濃縮を示し、特にウミトラノオの濃縮係数は極めて高く、排出もアラメに次いで遅いことが明らかになった。また、実験に用いた褐藻の中では食用とするヒジキおよびマコンプへの ^{95m}Tc の蓄積が比較的低いことも判明した。

キタムラサキウニおよびバフンウニによる海水からの ^{95m}Tc の取り込み、排出および蓄積曲線をFig. 3に示した。両種共対数近似曲線は2コンポーネントから成り、バフンウニの排出がキタムラサキウニに比べてやや速いが、Table 3に示したように海水からの ^{95m}Tc の濃縮係数はいずれも注目するほどの値ではなく、 $^{103}\text{Ru}^{11}$ 、 $^{137}\text{Cs}^{11}$ 、 $^{54}\text{Mn}^{12}$ などとほぼ同等の大きさであった。

天然の海においてウニは海水からと同時に餌(海藻)からもテクネチウムを取り込むため、濃縮係数(CF)を海水経路の成分(CF_w)と餌(海藻)経路の成分(CF_f)とに分けて考えることができ、海水、餌(海藻)、ウニの間に ^{95m}Tc の濃度平衡が成立していれば $\text{CF} = \text{CF}_w + \text{CF}_f$ となる。そして経路別成分の CF_w 、 CF_f は次のような式で表わされる。

Table 1 Parameters in the bioconcentration of ^{95m}Tc by marine algae

		concentration factor (CF)	uptake rate (u)	turnover rate (β)	biological halflife (Tb1/2, day)	main component of fitting curve
Green algae	<i>U. pertusa</i>	2.3	0.777	0.338	2.0	1 component
Brown algae	<i>S. thunbergii</i>	35000	268	0.008	90	long component
	<i>S. sagamianum</i>	4900	67.9	0.014	50	1 component
	<i>E. bicyclis</i>	2600	10.4	0.004	174	long component
	<i>H. fusiforme</i>	2400	18.1	0.008	89	long component
	<i>L. japonica</i>	870	13.6	0.016	44	long component
Red algae	<i>A. paradoxa</i>	3.5	0.289	0.082	8.4	1 component
	<i>C. ocellatus</i>	0.8	0.247	0.292	2.4	1 component

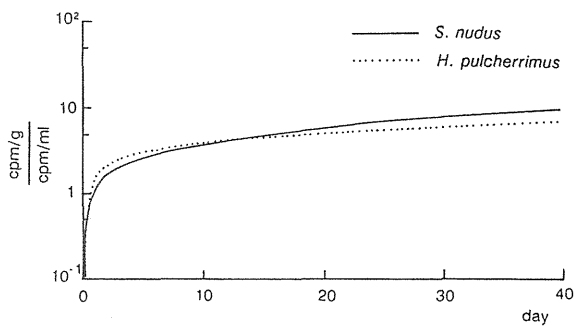
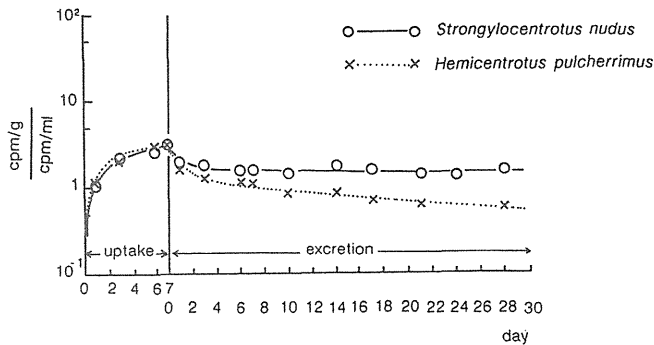


Fig. 3 Uptake of ^{95m}Tc from seawater and its excretion by sea urchin (whole body)

$$\text{海水からの取り込み (呼吸器管、体表など)} \quad CF_w = \frac{\text{取り込み定数 (} u_w \text{)}}{\text{排出定数 (} \beta_w \text{)}}$$

$$\text{餌 (海藻) からの取り込み (消化管)} \quad CF_f = \frac{\text{取り込み定数 (} u_f \text{)}}{\text{排出定数 (} \beta_f \text{)}}$$

$$= \frac{\text{海藻の CF} \times \text{腸管吸収率 (AR)} \times \text{日間摂餌率 (0.06)}}{\text{排出定数 (} \beta_f \text{)}}$$

ウニの CF_f を求めるためには4つのパラメータを必要とするが、日間摂餌率は文献値より6% (0.06) とし¹³⁾、海藻の CF は既に Table 1 に示してある。また、^{95m}Tc のウニ腸管吸収率および排出定数は^{95m}Tc でラベルした海藻をウニに与える実験で求められる。Fig. 4 に^{95m}Tc を取り込ませた海藻をキタムラサキウニに投餌した後の体内残留率 (retention %) の経日変化を指数関数で近似した曲線を示した。餌としてウニに与えた海藻は8種類中の6種で、これらの排出曲線 (体内残留曲線) はすべて排出の速い成分

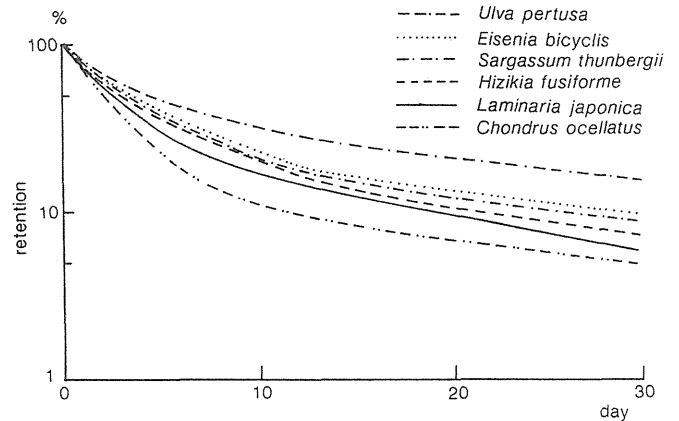


Fig. 4 Retention of ^{95m}Tc taken in through food (algae) by *Strongylocentrotus nudus*

と遅い成分の2つの成分に分けられるが、それぞれの成分をウニの代謝プールに当てはめると排出の速い成分はウニの消化管を通過するだけの^{95m}Tcの挙動を表わし、一方、遅い成分はウニの消化管から吸収され代謝系に入ってから排出される^{95m}Tcを表わすと考えられる。それ故、速い成分の割合と傾きは吸収されない^{95m}Tcの部分と消化管の通過速度を表わし、遅い成分の割合と傾きはそれぞれ^{95m}Tcの吸収率と排出速度 (排出定数) を表わす。したがって、近似式の計算結果から求めた^{95m}Tcのパラメータを Table 2 に示した。バフンウニについても同様の投餌実験を行い、パラメータを求めた。吸収率および排出定数に餌の海藻種による有意差は認められない。ウニの種別間では吸収率の平均値はキタムラサキウニが0.25、バフンウニが0.24でほぼ等しいが、排出定数の平均値はキタムラサキウニが0.040であるのに対してバフンウニが0.057とやや速い排出速度を示し、前述の海水から取り込まれた^{95m}Tcの排出と同様の傾向を示した。吸収率は¹³⁷Cs、⁵⁴Mn、⁶⁵Znなどに比べて低く、排出定数は¹³⁷Cs、⁵⁴Mn、⁶⁰Coより小さいが、⁶⁵Znよりは大きい¹²⁾。Fig. 5 に前述の CF_f の計算式とパラメータから求めた餌 (海藻) からの^{95m}Tcの蓄積曲線を示した。キタムラサキウニによる蓄積がバフンウニに比べてやや高い傾向があるが、海水からの蓄積も含めて全体の蓄積パターンに大きな差は認められない。しかし餌 (海藻) の種類別では明らかな差があり、ウミトランオを最高レベルとする4種の褐藻が $10^2 \sim 10^4$ と極めて高い蓄積レベルを示したのに対し、緑藻のアナアオサおよび紅藻のツノマタは海水からの蓄積よりも遥かに低いレベルで

Table 2 Parameters of ^{95m}Tc for calculation of CF_f of sea urchin

food (algae)		<i>S. nudus</i>		<i>H. pulcherrimus</i>	
		absorption rate (AR)	turnover rate (β_f)	absorption rate (AR)	turnover rate (β_f)
Green algae	<i>U. pertusa</i>	0.33	0.026	0.30	0.047
Brown algae	<i>S. thunbergii</i>	0.27	0.037	0.16	0.068
	<i>E. bicyclis</i>	0.27	0.034	0.30	0.068
	<i>H. fusiforme</i>	0.19	0.051	0.18	0.037
	<i>L. japonica</i>	0.29	0.054	0.23	0.076
Red algae	<i>C. ocellatus</i>	0.15	0.037	0.28	0.047

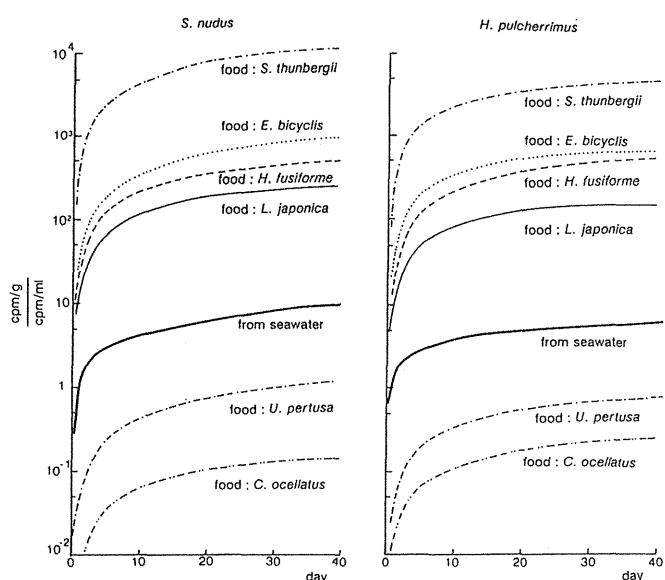


Fig. 5 Accumulation of ^{95m}Tc by sea urchin through food (algae) and from water

あった。濃縮係数 (CF) の餌 (海藻) 経路の成分 (CF_f) および海水経路成分 (CF_w) の計算値を Table 3 に示し、餌の寄与率 (F%) を求めてウニによるテクネチウム蓄積における主たる蓄積経路を決定した。言うまでもなく、両種のウニ共に、褐藻を食べ続けた時にテクネチウムの高い蓄積が起きるが、中でもウミトラノオからの濃縮が著し

い。投餌実験で ^{95m}Tc の吸収率や排出定数に餌 (海藻) の種類別の差がなかったことからこれらの CF_f の差は主として餌とする海藻の濃縮係数の違いによる。すなわち、ウニはテクネチウムの濃縮の高い海藻を餌とすることによって自身にもテクネチウムを蓄積する。しかしながら、両種のウニ共に、 CF_f は餌としたいずれの海藻の CF をも上回ることがなかった。ウニによるテクネチウムの主たる蓄積経路は餌とする海藻種によって明確に分けられ、セシウム、マンガンなどの蓄積経路とは異なることが分かった¹²⁾。ウニの種別間の CF_f の差は前述のように排出定数 (β_f) の違いによると考えられる。また、アラメ餌のテクネチウムの CF_f は ^{137}Cs , ^{54}Mn および ^{60}Co よりはかなり大きい、 ^{65}Zn よりは遥かに小さい値であった¹²⁾。

これまではウニ全身の蓄積について述べてきたが、ウニを食品として見る場合、可食部分は生殖巣に限られる。したがって、ウニを殻、生殖巣およびその他の部位に解剖し、蓄積経路別に各部位に対する重量分布 (%)、テクネチウムの濃度分布 (%) および、 CF_w または CF_f を Table 4 に示した。いずれの場合でもテクネチウムはウニの体液が大部分を占めるその他の部位に最も多く分布し、 CF_w および CF_f の値も最も高かったが、食用に供する生殖巣への分布は最も小さく、ウミトラノオ餌の場合でもキタムラサキウニの生殖巣の CF_f は 1900 で全身の CF_f の 15000 に比べて遥かに小さい値であった。

また、バフンウニの生殖巣についても同様の CF_f 値であった。

Table 3 CF and uptake pathways of ^{95m}Tc by sea urchins

food		<i>S. nudus</i>			<i>H. pulcherrimus</i>		
		CF_f	F% ^{#1}	main pathway	CF_f	F% ^{#1}	main pathway
Green algae	<i>U. pertusa</i>	1.8	3.7	water	0.9	9	water
Brown algae	<i>S. thunbergii</i>	15000	99.7	food	4900	99.8	food
	<i>E. bicyclis</i>	1200	96	food	690	99	food
	<i>H. fusiforme</i>	540	92	food	700	99	food
	<i>L. japonica</i>	280	86	food	160	95	food
Red algae	<i>C. ocellatus</i>	0.2	0.4	water	0.3	0.3	water
CF_w		45			9		

#1 F% : contribution of food, $F\% = \frac{\text{CF}_f}{\text{CF}_f + \text{CF}_w} \times 100$

Table 4 Distribution of ^{95m}Tc among tissues and organs of a sea urchin and CF of those parts

sea urchin	pathway		whole body	shell (including spine & Aristotle's lantern)	gonad	others (body fluid, digestive tract etc.)
<i>S. nudus</i>	Accumulation from water	weight percent	100	45.7	12.8	41.5
		^{95m}Tc distribution (%)	100	10.7	2.4	86.9
		CF _w	45	11	8	94
<i>S. thunbergii</i>	Accumulation through <i>S. thunbergii</i>	weight percent	100	37.5	10.2	52.3
		^{95m}Tc distribution (%)	100	8.3	1.3	90.4
		CF _f	15000	3300	1900	26000
<i>H. pulcherrimus</i>	Accumulation from water	weight percent	100	47.2	11.2	41.6
		^{95m}Tc distribution (%)	100	34.6	3.2	62.2
		CF _w	9	7	3	13
<i>S. thunbergii</i>	Accumulation through <i>S. thunbergii</i>	weight percent	100	47.8	16.9	35.3
		^{95m}Tc distribution (%)	100	26.4	7.0	66.6
		CF _f	4900	2700	2000	9200

4. 結論

海産生物の中では海藻への放射性核種の蓄積が一般的に高い。テクネチウムに関しても褐藻の一種で 10^4 の濃縮係数が得られ、他の褐藻でもほぼ 10^3 の高さであった。しかしながら、今回実験した緑藻、紅藻では1桁の値であり、海藻の濃縮係数としてはむしろ低いほうである。テクネチウムは環境での挙動をヨウ素と比較され、土壌や海底堆積物への吸着が少ないことや褐藻および海産魚の甲状腺、胆のうに濃縮されることなど確かに共通する性質もある。しかしながら、ヨウ素は緑藻、紅藻にもかなりの高さで蓄積されるのに対して、今回の結果のようにテクネチウムとは明らかな差も見られる。海藻を餌とする動物はアワビ、サザエなど様々であるが、ウニに関しては海水からのテクネチウム蓄積は高くはないが、褐藻を餌とする場合には褐藻の濃縮係数の大きさがウニによる餌経路の蓄積に大きく影響し、高い値を示す。しかしながら、ウニによる餌経路のテクネチウムの濃縮係数が餌の海藻自身の濃縮係数より高い値を示すことはなかった。ウニの臓組織別のテクネチウム分布を調べると体液が大半を占める部位への濃縮が最も高く、可食部である生殖巣への蓄積が最も低い値を示した。

以上、海産生物を用いたRIトレーサー実験では、生物濃縮に関わる様々な情報が得られ、特に、緊急時の様な環境放射能の濃度平衡が成立していない場合にも生物中濃度を予測することが可能な濃縮速度定数などを求めることが出来る。また、生物濃縮に対する餌の寄与の大きさを推定可能なこともRIトレーサー実験のメリットである。今後とも、海産生物全般に対し系統立てて濃縮パラメータを収集すると同時に、これまで余り行なわれていなかった淡水、汽水生物にも研究範囲を拡大し、被曝評価のためにトレーサー実験を十分に活用する計画である。

[参考文献]

- 1) T. Ishii, Y. Takaku, M. Ishikawa, M. Matsuba, M. Kurosawa and T. Koyanagi : *Environ. Sci.*, 2 (3), 177-191, 1989.
- 2) T. Ueda, Y. Suzuki and R. Nakamura : *NIPPON*

SUISAN GAKKAISHI, 41, 691-698, 1975.

- 3) F. Morgan : "Disposal of radioactive wastes Vol. 2" (Conference proceedings, Monaco, 16-21, November 1959), pp. 19-24, IAEA, Vienna (1960).
- 4) K. Nakamura and Y. Nagaya : *J. Oceanogr. Soc. Japan.*, 33, 1-5, 1977.
- 5) Y. Suzuki, R. Nakamura and T. Ueda : *JRAX*, 17, 115-126, 1976.
- 6) 桂英輔、中道律子 : 栄養と食糧、12, 37-39, 1960.
- 7) L. Jeanmaire et al : *Marine Pollution Bulletin*, 12, 29-32, 1981.
- 8) S. Bonotto et al : *Marine Pollution Bulletin*, 19, 61-65, 1988.
- 9) 渡部輝久、鎌田博 : 保健物理、20, 227-240, 1985.
- 10) 柴田貞夫 : 第25回理工学における同位元素研究発表会要旨集、p, 180, 1988.
- 11) 中村良一、上田泰司、石井紀明、中原元和、鈴木讓 : 昭和62年度日本水産学会秋季大会講演要旨集、p, 125, 1987.
- 12) R. Nakamura, M. Nakahara, Y. Suzuki and T. Ueda : *NIPPON SUISAN GAKKAISHI*, 52, 703-710, 1986.
- 13) T. Tamura : in "Senkai Zoshoku Gaku, Suisan Gaku Zenshu No. 2" (ed. by M. Shiga), Koseisha-Koseikaku, Tokyo, pp. 297-302, 1968.

[研究発表]

- 1) 中村良一、鈴木讓、中原元和 : ウニ及び海藻による ^{95m}Tc の蓄積、日本放射線影響学会第31回大会口頭発表、1988, 10. (広島).

③ 海産軟体動物の放射性元素濃縮パラメータ

中原 元和、中村 良一、鈴木 讓、松葉 満江 (海洋放射生態学研究所)

Concentration parameters for radionuclides by marine molluscs

Motokazu Nakahara, Ryoichi Nakamura, Yuzuru Suzuki and Mitsue Matsuba
Division of Marine Radioecology

Accumulation of radionuclides from seawater and from food by marine molluscs was observed in the laboratory experiments to get bioconcentration parameters for the nuclides. The radionuclides investigated were ^{57}Co , $^{95\text{m}}\text{Tc}$, ^{103}Ru , ^{137}Cs , ^{65}Zn and ^{54}Mn . Several species of molluscs containing pelecypods, gastropods and cephalopod were used for the experimental organisms.

For the uptake experiment from seawater, the organisms were kept for more than seven days in radioactive seawater containing those radionuclides together. Then the organisms were transferred into non-radioactive seawater to observe the loss of the nuclides from the organisms. Biphasic loss curves were observed for all of the nuclides.

Bioconcentration parameters, such as uptake rate,

excretion rate, biological half-life and concentration factor at steady state were estimated from the uptake and excretion curves of the nuclides by the organisms by applying an exponential model.

In the uptake experiments from radioactive food, the phytoplankton (*Tetraselmis tetrathele*), the brown algae (*Eisenia bicyclis*) and the viscera of abalone (*Haliotis discus*) were fed to bivalves, herbivorous gastropods and carnivorous molluscs, respectively. After single feeding of the labelled food with the nuclides, retention of the nuclides in whole body of the organisms was followed for several weeks or more. The organisms showed relatively high retention of the nuclides in whole body, except ^{137}Cs and ^{54}Mn . Retention of ^{137}Cs and ^{54}Mn in the organisms one day after feeding of radioactive food was lower than 25% of the radioactivity dosed.

1. 緒言

今特研においては中課題「環境安全評価のためのパラメータに関する研究」の中の小課題「沿岸海域における生物濃縮パラメータ」を分担した。原子力施設等から海洋に導入された放射性元素は、そこに生息する海洋生物を汚染する。我が国においては魚類をはじめ種々の海洋生物を水産食品として利用しているため、放射性元素の環境放出による公衆の被曝評価を行なう場合には、海洋生物の汚染の程度を予測するのに必要な濃縮係数等の生物濃縮パラメータが不可欠となる。海産の哺乳類を除く海洋生物は、海水に溶存する酸素を体内に取り込むために鰓呼吸をするが、その際に海水中の放射性元素も体内に取り込まれる。海洋生物はこの様に海水中の放射性元素を直接吸着および吸収するが、この汚染経路の他に海洋生物では餌からの放射性元素の取り込み経路がある。海洋の生態系では、動物は自身の成長、生存および種属維持のために餌を必要とし、被食・捕食の関係が複雑に絡み合って食物連鎖が形成される。放射能で汚染された餌を摂取することで、放射性元素も消化管から栄養物と共に吸収される。被食・捕食の関係はその後も続けられ、放射性元素は食物連鎖を通して低次生産者から高次の消費者に移行していく。

ここでは沿岸海域に生息が多く、魚について漁獲量の高い軟体動物について放射性元素の海水取り込み・餌取り込みの両方の経路について検討し、さらに食物連鎖について

も検討した。

2. 研究方法

海産軟体動物には二枚貝類、巻貝類およびイカ・タコの仲間の頭足類が主要なグループとして含まれる。これらのグループを食習性で見ると、二枚貝類は海水に懸濁する植物プランクトンその他を濾過して摂餌する草食性で、頭足類は貝・甲殻類や魚などを食べる純然たる肉食性である。一方、巻貝類にはサザエやアワビの様に海藻を食べる草食性のグループとバイヤニシの仲間の様な肉食性のグループがある。厳密には、バイの仲間は主に死んだ動物を食べる腐肉食性である。頭足類以外の軟体動物は比較的移動性に乏しく、また安定元素や放射性元素を良く蓄積するので¹⁻⁸⁾、特定海域の放射能汚染の指標生物としても有効と考えられる。実験に供した軟体動物の種類とサイズ等についてTable 1にまとめた。

海水および餌からの取り込み実験は、複数の放射性元素をトレーサーとする方法で行った。海水からの取り込み実験では、数種類の放射性元素 (RI) を同時に添加した海水中で供試生物を10日間前後飼育してRIを取り込ませ、その後非汚染海水に移して生物からのRIの排出を長期間観察した。生物全身によるRIの取り込み・排出の観察は、生物個体にナンバーを付けたり、または1個体づつカゴに入れて識別した5~10個体の放射能を経時的に計測

Table 1 Mollusca used in the experiment

	Japanese name	scientific name	Size (g)	food habit
Pelecypoda	Ubagai	<i>Spisula sachalinensis</i>	151.4±10.0	herbivorous
	Hotategai	<i>Patinopecten yessoensis</i>	65.0±9.4	herbivorous
Gastropoda	Sazae	<i>Batillus cornutus</i>	30.2±6.0	herbivorous
	Kuroawabi	<i>Haliotis discus</i>	14.7±2.6	herbivorous
	Bai	<i>Babylonia japonica</i>	63.5±5.4	saprophagous
Cephalopoda	Iidako	<i>Octopus ocellatus</i>	54.2±11.2	carnivorous

して行った。これらの連続測定用の個体とは別のグループから経時的に2~3個体を解剖して、RIの各部位への分布も観察した。得られた各RIの全身及び他の部位の蓄積・排出のグラフにコンパートメント・モデルを当てはめて、取り込み定数、排出定数、平衡に達した時の濃縮係数等の生物濃縮パラメータを求めた。

餌からの取り込み実験では、二枚貝のウバガイ、ホタテガイに植物プランクトン (*Tetraselmis tetraathele*) を、サザエ、クロアワビに海藻のアラメを、バイ、イイダコにクロアワビの内臓を餌として使用した。各々の餌生物は前もって前記のRIを高濃度を含む海水中で一週間飼育または培養してRIを取り込ませた。実験は汚染餌を1回だけ投与し、その後は非汚染の餌を適宜与えながら全身への放射能の移行およびその後の減少を観察した。

3. 結果及び考察

海水取り込み実験におけるウバガイ全身の取り込み・排出の状況を Fig. 1 に、それから計算された生物濃縮パラメータを Table 2 に示した。海水から放射性元素を14日間取り込ませた後、排出に移すと元素の種類によって程度の差はあるが、多くの海洋生物は排出初期に速く排出される成分 (1st component) と、その後比較的ゆっくりと排出される成分 (2nd component) の2成分からなる排出カーブを示す。排出の遅い成分は実際に生物体内に取り込まれて代謝の流れに乗って排出されたものと考えられるが、排出の速い成分は生物の体表面にゆるく付着したり、組織の隙間に入り込んだものが生物の体から離れたと推測されている。他の軟体動物についても各々の種類毎に生物濃縮パラメータが求められたが、その内の濃縮係数と生物学的半減期を Table 3 にまとめた。濃縮係数は個々のコンポーネント毎に求められた濃縮係数の和であり、生物学的半減期は、その元素の代謝を代表していると考えられる排出の遅いコンポーネントの値である。表中の元素の中では、¹³⁷Cs がすべての生物種で10以下の濃縮係数を示し、また生物学的半減期も種間でそれほど大きな差が見られないのに対し、⁵⁷Co、⁶⁵Znなどは数百から千と概して大きな濃縮

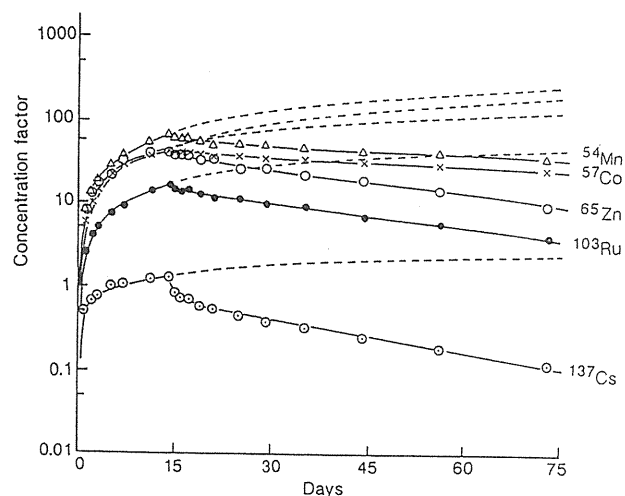


Fig. 1 Accumulation and excretion of radionuclides by *Spisula sachalinensis* (from seawater at 10°C)

Table 2 Bioconcentration parameters of radionuclides for whole body of *Spisula sachalinensis* (from seawater at 10°C)

	⁵⁷ Co	¹⁰³ Ru	¹³⁷ Cs	⁵⁴ Mn	⁶⁵ Zn
1st comp.					
Uptake rate (day ⁻¹)	5.3319	3.9643	0.6085	4.0414	7.4530
Excretin rate (day ⁻¹)	0.9462	1.3411	0.9664	0.3991	0.8555
Tb _{1/2} (day)	0.7	0.5	0.7	1.7	0.8
CF	5.6	3.0	0.6	10	8.7
2nd comp.					
Uptake rate (day ⁻¹)	2.9085	1.3837	0.0605	4.3314	3.1545
Excretin rate (day ⁻¹)	0.0087	0.0255	0.0304	0.0078	0.0231
Tb _{1/2} (day)	80	27	23	89	30
CF	336	54	2.0	554	137

Table 3 Concentration factors (CF) and biological half-lives (Tb) of radionuclides estimated for whole body of mollusca by the uptake experiment from seawater

Organisms	⁵⁷ Co		^{95m} Tc		¹⁰³ Ru		¹³⁷ Cs		⁶⁵ Zn		⁵⁴ Mn		Water temp.
	CF	Tb (days)	CF	Tb (days)	CF	Tb (days)	CF	Tb (days)	CF	Tb (days)	CF	Tb (days)	
Ubagai	340	80			50	30	2	20	140	30	550	90	10°C
Hotategai	2700	330			500	190	4	20	830	50	920	50	10°C
Sazae	950	110	120	110	250	70	2	20	810	100			15°C
Kuroawabi	800	90	430	200	170	280	10	30	2700	120			15°C
Bai	160	110	20	130	290	180	4	50	440	150			15°C
Iidako	770	90	30	60	10	40	10	10	1700	60			15°C

係数を示し、濃縮係数・生物学的半減期ともに種間の差も大きかった。マダコの鰓心臓とCo、^U^{9,10}など、シャコガイの腎臓とCo¹¹、ワスレガイの腎臓とMn¹²、アワビとTc¹³、カキとCu、Zn⁵等、軟体動物には特定の元素を特異的に濃縮するものが報告されているが、この様な元素で

は全般に種間の差も大きくなるようである。

海水取り込み14日目にウバガイを解剖し、殻、殻を開けた時に出てくる液、肝臓（厳密には消化盲のう）、肝臓を除く軟体部に分けて、各部位へのRIの分布%をTable 4に示した。¹⁰³Ru, ⁵⁴Mnは殻、¹³⁷Cs, ⁶⁵Znは軟体部への分布が大きく、⁵⁷Coはその中間の分布割合であった。殻への分布は表面への吸着によるものと考えられる。一方、殻の内液にも⁵⁷Co, ¹³⁷Cs, ⁶⁵Znの3元素は20~26%の分布を示し、ほとんど分布の見られない¹⁰³Ru, ⁵⁴Mnと明らかな差が見られた。ウバガイで観察された各RIの体内分布の傾向は、他の貝類でも同様であった。

餌の取り込み実験におけるウバガイの測定結果をFig. 2に示した。汚染餌摂取直後の全身の放射能を100%として、その後の放射能の減少を体内残存%として表した。汚染餌投与後の糞の排泄を観察すると、摂取後数時間から24時間までに最大の排泄が見られ、遅くとも48時間までに排泄が終了するようであった。ウバガイの測定結果でも汚染餌摂取後2日目位まですべてのRIは急激に減少するが、この部分は糞の排泄と大いに関係していると思われる。Fig. 2から判断すると、⁵⁷Co, ⁶⁵Znは餌から生物へ移行して保持され易く、¹³⁷Cs, ⁵⁴Mnは生物に保持されにくいようである。¹⁰³Ruはその中間であった。

汚染餌投与後3日目にウバガイを解剖して各RIの体内分布を観察した(Table 5)。⁵⁷Co, ¹⁰³Ru, ⁶⁵Znは50%以上が肝臓中に存在したが、¹³⁷Cs, ⁵⁴Mnは肝臓以外の軟体部に多かった。肝臓に分布の高かった3核種は生物に保持されやすい核種でもあり、両者の関連が暗示された。

次に各生物種毎に汚染餌摂取後1日目の各RIの体内残存%と排出の遅い成分の生物学的半減期をTable 6に示した。体内残存%は種間で差が見られるが、⁵⁷Co, ^{95m}Tc, ¹⁰³Ru, ⁶⁵Znは¹³⁷Cs, ⁵⁴Mnに比較して大きな残存%を示した。これらの値を魚での実験結果¹⁴⁻¹⁶⁾と比較すると、Co, Ru, Znでは軟体類が数倍以上高く、Cs, Mnでは逆に魚の方が高い結果となり、両者で餌経由の元素取り込みにかなりの差があることが示唆された。

生物学的半減期では¹³⁷Cs, ^{95m}Tcでは種間の差があまりないのに対し、⁵⁷Co, ¹⁰³Ru, ⁶⁵Znでは10倍程度の差が見られ、概して巻貝類は排出が遅い傾向を示した。生物学的半減期を海水取り込み・餌取り込みで比較すると、巻貝類の⁵⁷Co, ⁶⁵Znを除いて、他は餌取り込みのほうが半減期は短くなった。この原因としては、海水取り込みと餌取り込みでRIの体内分布に大きな差があるのが第一に考えられるが、取り込み経路によって生物体内での代謝に差がある可能性もあり、さらに検討を要するものと思われる。

最後に、海水取り込み・餌取り込み実験の結果を用いて単純な食物連鎖を想定して濃縮係数を計算した。餌取り込みによる濃縮係数の計算法はTable 7に示した。食物連鎖の想定は、植物プランクトン(*Tetraselmis tetrathele*)から出発し、二枚貝のウバガイ、イイダコ、最後に腐肉食性のバイであり、濃縮係数

Table 4 Distribution % of radionuclides in *Spisula sachalinensis* (from seawater)

	Weight %	⁵⁷ Co	¹⁰³ Ru	¹³⁷ Cs	⁵⁴ Mn	⁶⁵ Zn
Shell	43.4	37.7	76.7	2.8	65.2	9.6
Fluid	35.5	26.0	1.9	20.5	1.5	22.2
Liver	0.8	5.2	1.9	7.8	2.6	14.2
Other soft parts	20.3	31.1	19.5	68.9	30.7	54.0
Total	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

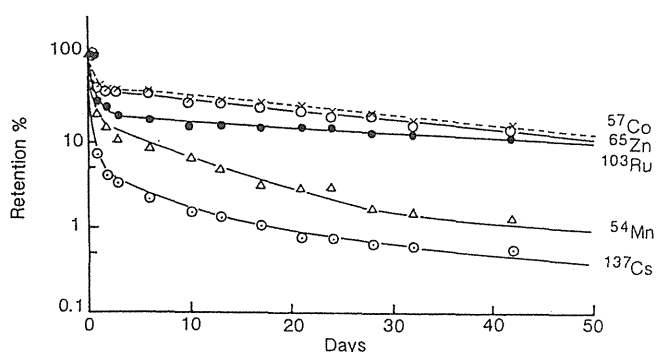


Fig. 2 Loss of radionuclides from *Spisula sachalinensis* after single feeding (at 10°C)

Table 5 Distribution % of radionuclides in *Spisula sachalinensis* (from food)

	Weight %	⁵⁷ Co	¹⁰³ Ru	¹³⁷ Cs	⁵⁴ Mn	⁶⁵ Zn
Shell	43.4	1.3	6.2	2.3	9.0	0.8
Fluid	35.5	24.2	8.6	9.6	7.1	15.1
Liver	0.8	55.7	71.4	20.9	20.7	64.6
Other soft parts	20.3	18.8	13.8	67.2	63.2	19.5
Total	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

Table 6 Retention % (Re %) and biological half-lives (Tb) of radionuclides estimated for whole body of mollusca by the feeding experiment

Organisms	⁵⁷ Co		^{95m} Tc		¹⁰³ Ru		¹³⁷ Cs		⁶⁵ Zn		⁵⁴ Mn	Water temp.	
	Re %	Tb (days)	Re %	Tb (days)	Re %	Tb (days)	Re %	Tb (days)	Re %	Tb (days)			
Ubagai	43.0	30			29.6	100	7.5	20	40.9	30	21.6	10	10°C
Hotategai	70.1	40			72.6	160	20.1	20	90.6	50	18.5	10	10°C
Sazae	69.9	130	71.6	30	88.2	40	5.8	10	77.5	100			15°C
Kuroawabi	66.2	330	55.7	40	43.4	70	6.3	10	96.7	250			15°C
Bai	42.7	30	57.3	40	56.8	50	22.8	30	59.8	280			15°C
Iidako	73.1	100	78.2	10	45.3	10	26.4	10	56.2	50			15°C

Table 7 Calculation of concentration factor in the uptake experiment from food

$$\text{Uptake rate constant } (u_f) = \frac{CF_f \times S \times D \times W \times R}{W \times S} = CF_f \times D \times R$$

CF_f : Concentration factor of food
 S : Radioactivity of seawater (cpm/ml)
 D : Rate of food intake
 (g food weight/g body weight/day)
 W : Body weight of organism (g)
 R : Retention ratio

$$\text{Concentration factor} = u_f / \lambda_f$$

λ_f : Excretion rate constant

Table 8 Change of concentration factors by food chain

	Phytoplankton (<i>Tetraselmis</i>)	Ubagai (Soft parts)	Iidako (Whole body)	Bai (Soft parts)
	CF from food			
⁵⁷ Co	10400	390 (from seawater) → 730	1800 (from seawater) → 2600	1100 (from seawater) → 1230
¹⁰³ Ru	5100	390 (from seawater) → 420	90 (from seawater) → 100	190 (from seawater) → 250
¹³⁷ Cs	25	0.1 (from seawater) → 20	0.5 (from seawater) → 10	6 (from seawater) → 20
⁵⁴ Mn	10200	90 (from seawater) → 350		
⁶⁵ Zn	58000	2300 (from seawater) → 3500	2900 (from seawater) → 4600	39000 (from seawater) → 40000

はプランクトンを除いて軟体部について計算した (Table 8)。食物連鎖の出発点となる植物プランクトンの濃縮係数は別の RI トレーサー実験から推定した。Table 7 に示した様に、餌からの濃縮係数の計算には生物が 1 日当たり食べる餌の量 (日間摂餌量) が必要であるが、ここでは以前行った摂餌実験の結果からウバガイは殻を含めた全体重の 0.06% とし、イイダコ、バイは全体重の 2.5% を食べると仮定した。また、餌を食べた後の放射性元素の残存率 (Retention ratio) は、Table 6 の値を用いた。各生物毎の RI 蓄積における海水取り込みと餌取り込みの寄与を比較すると、⁵⁷Co, ¹⁰³Ru, ⁶⁵Zn では餌の寄与が大きな割合を占めるのに対し、¹³⁷Cs では海水の寄与が大部分で、餌からの取り込みは殆んど影響を与えないようであった。⁵⁴Mn についてはイイダコ、バイのデータが欠けているが、少なくとも植物プランクトンから二枚貝のウバガイ軟体部への ⁵⁴Mn の移行は低く、¹³⁷Cs 同様海水の寄与の方が大きくなりそうである。食物連鎖による放射性元素の動きを見た場合、⁵⁷Co, ¹⁰³Ru, ¹³⁷Cs では高次の消費者への蓄積増加傾向は見られなかったが、⁶⁵Zn ではしだいに濃縮が増す傾向が見られた。

4. 結論

種々の海産軟体動物の放射性元素濃縮を海水取り込み・餌取り込みについて水槽実験で観察し、生物濃縮パラメー

タを求めた。その結果、元素によっては生物の種類で濃縮係数・生物学的半減期等のパラメータに大きな差があることが判った。また、餌からの取り込みでは、生物の食習性の違いによって元素の濃縮の程度がかなり異なる可能性が示された。今後は、他の主要生物、主要元素についての生物濃縮パラメータの蓄積を図ると共に、天然の生態系での食習性や食物連鎖等の情報を収集して海洋生態系の放射能汚染の予測をより実態に近づける努力が必要と思われる。

[参考文献]

- 1) Boyden, C. R. (1974) : Trace element content and body size in molluscs. *Nature*, 251, 311-314
- 2) Bryan, G. W., G. W. Potts and G. R. Forster (1977) : Heavy metals in the gastropod mollusc *Haliotis tuberculata* (L.). *J. mar. biol. Ass. U. K.*, 57, 379-390.
- 3) Bryan, G. W. (1979) : Bioaccumulation of marine pollutants. *Phil. Trans. R. Soc., Ser. B*, 286, 483-505.
- 4) Cunningham, P. A. (1979) : The use of bivalve molluscs in heavy metal pollution research. In "Marine Pollution : Functional Responses", pp. 183-221, ed. by W. B. Vernberg, et. al., Academic Press.
- 5) 生田國雄 (1972) : ミドリガキに関する研究. 宮崎

- 大学農学部研究報告, 19, 1-116.
- 6) Ireland, M. P. and R. J. Wootton (1977) : Distribution of lead, zinc, copper and manganese in the marine gastropods, *Thais lapillus* and *Littorina littorea*, around the Coast of Wales. Environ. Pollut., 12, 27-41.
 - 7) Phillips, D. J. H. (1977) : The use of biological indicator organisms to monitor trace metal pollution in marine and estuarine environments-A Review. Environ. Pollut., 13, 281-317.
 - 8) Romeril, M. G. (1971) : The uptake and distribution of ^{65}Zn in Oysters. Marine Biology, 9, 347-354.
 - 9) Nakahara, M., T. Koyanagi, T. Ueda and C. Shimizu (1982) : Uptake and Excretion of Cobalt-60 Taken up from Seawater by *Octopus vulgaris*. Nippon Suisan Gakkaishi, 48, 1739-1774.
 - 10) 石井紀明、中原元和、松葉満江、石川昌史 (1991) : 誘導結合プラズマ質量分析法による海洋生物中の ^{238}U の定量. 日水誌、57, 779-787.
 - 11) Ueda, T., Y. Suzuki, R. Nakamura and M. Nakahara (1982) : Accumulation of Co by Bivalve *Tridacna crocea*. Nippon Suisan Gakkaishi, 48, 1293-1297.
 - 12) Ishii, T., K. Ikuta, T. Otake, M. Hara, M. Ishikawa and T. Koyanagi (1986) : High Accumulation of Elements in the Kidney of the Marine Bivalve *Cyclosunetta menstrualis*. Nippon Suisan Gakkaishi, 52, 147-154.
 - 13) Spies, R. B. (1975) : Uptake of Technetium from Seawater by Red Abalone *Haliotis rufescens*. Health Physics, 29, 695-699.
 - 14) Reed, J. R. (1971) : Uptake and excretion of ^{60}Co by Black Bullheads *Ictalurus melas* (Rafinesque). Health Physics, 21, 835-844.
 - 15) 市川龍資、木村健一、須山一兵 (1972) : 海洋生物における ^{60}Co のとりこみ試験. 放射性廃棄物固化体からの放射性核種の容出と環境での移動に関する試験 (昭和47年度原安協報告書), 71-81.
 - 16) Pentreath, R. J. (1973) : The accumulation and retention of ^{59}Fe and ^{58}Co by the plaice. *Pleuronectes platessa* (L.). J. Exp. Mar. Biol. Ecol., 12, 315-326.

[研究発表]

- 1) 中原元和、中村良一、石井紀明、鈴木 譲 : 昭和62年度日本水産学会秋季大会口頭発表、1987. 10 (函館)
- 2) 中原元和、中村良一、鈴木 譲、石井紀明 : 日本放射線影響学会第31回大会口頭発表、1988. 10 (広島)
- 3) 中原元和、中村良一、石井紀明、鈴木 譲 : 平成元年度日本水産学会秋季大会口頭発表、1989. 10 (宮崎)
- 4) 中原元和、中村良一、鈴木 譲 : 日本放射線影響学会第33回大会口頭発表、1990. 10 (仙台)
- 5) 中原元和、中村良一、鈴木 譲 : 平成3年度日本水産学会春季大会口頭発表、1991. 4 (東京)
- 6) 中原元和、石井紀明、中村良一、鈴木 譲 : 平成4年度日本水産学会春季大会口頭発表、1992. 4 (東京)
- 7) 中原元和、中村良一 : 平成4年度日本水産学会秋季大会口頭発表、1992. 10 (下関)
- 8) 中原元和 : 海洋生物の放射性元素濃縮と食物連鎖、放医研環境セミナー報文集、No.20 (NIRS-M-93), 13-22, 1993.

1-3 長半減期核種の農作物への移行パラメータの設定に関する研究

① 放射性ヨウ素の大気から水稻への沈着

内田 滋夫, 村松 康行, 吉田 聡, 住谷 みさ子 (環境放射生態学研究部),
大桃 洋一郎 (環境科学技術研究所)

The deposition of radioiodine onto rice plant from atmosphere

Shigeo Uchida, Yasuyuki Muramatsu, Satoshi Yoshida, Misako Sumiya, Yoichiro Ohmomo*
Division of Radioecology, *Institute for Environmental Sciences.

ABSTRACT

Radiation dose estimations are usually made with the aid of assessment models in which model parameters such as the transfer factors of radionuclides from one environmental compartment to another are involved. In simple models the parameters are often described as the concentration ratio of a radionuclide between two compartments, when the system is under equilibrium condition.

In this paper, the authors introduce the values of the parameters of radioiodine obtained by tracer experiments. Laboratory experiments on the transfer parameters of radionuclides from the atmosphere to rice plant were carried out in the atmosphere-to-crops system (deposition pathway).

It is known that the typical chemical species of gaseous iodine in the atmosphere are elemental iodine (I_2) and methyl iodide (CH_3I). The deposition characteristics of both chemical species of gaseous iodine to rice grains were obtained. Mass normalized deposition velocity (V_D)

and grain number normalized deposition velocity (V_s) of gaseous elemental iodine (I_2) and also methyl iodide (CH_3I) on unhulled rice were measured. Both V_D and V_s of methyl iodide were about one percent of those of elemental iodine. Distribution pattern of methyl iodide between unhulled rice and brown rice was significantly lower than that of elemental one.

For wet deposition, we investigated the retention of radioiodines (iodide [I^-] and iodate [IO_3^-]) on rice grains and their translocation from the surface of the grains to brown rice. Though the ears were dipped into the solution containing $^{125}I^-$ or $^{125}IO_3^-$ more than 15 min., both iodine species in the solutions were hardly taken up to the rice grains. The transfer rates of iodide and iodate, which are defined as 'the amount of the iodine in brown rice' divided by 'the amount of iodide in unhulled rice', were about 0.015 and 0.04, respectively. The rates were not changed with time after the radioiodine application.

I. はじめに

環境中に放出された放射性核種による人体への被曝線量の算定・評価には、線量算定モデルとそれに用いられるパラメータが必要である。これらの放射性核種が人体へ移行してゆく経路は、幾つか考えられる。どのような経路を想定するにしろ、モデルとそれに用いられるパラメータの精度が、人体への被曝線量評価の精度を左右することになる。

農作物への移行¹⁾は、大別すると大気から直接農作物の表面に沈着する経路(沈着[大気]経路)と土壌から根を通して移行する経路(経根吸収[土壌]経路)の2種類がある。前者は、さらに乾性沈着と湿性沈着とに分けられる。これらの経路における移行パラメータは、核種により異なる²⁾だけでなく、農作物や土壌の種類などにより異なるため、欧米で求められたパラメータ値をすべて、そのまま利用することは出来ない。特に、米に関しては上記の移行経路のいずれについても欧米ではデータがなく、わが国独

自でデータを蓄積してゆく必要がある。

本研究は、大気から水稻への長半減期核種(^{129}I)の移行パラメータに関して研究を行ったものである。すなわち、ガス状ヨウ素(I_2 および CH_3I)の水稻への沈着移行について、トレーサ実験によりわが国の環境条件下における沈着速度を求めた。また、雨水等に溶けている放射性ヨウ素の水稻への移行については、 I^- および IO_3^- の2つの化学形を用いて、モミへの沈着量及び玄米への移行を調べた。

II. 実験方法

本実験では、ポット栽培した水稻を用いて沈着実験を行った。乾性沈着の場合は、Fig. 1に示すように、ある生育段階の水稻を放医研ヨウ素曝射装置内に置き、安定ヨウ素(I_2 および CH_3I)を暴露した。暴露後、沈着速度を求めるため水稻各部位を採取した。さらに、ビニールハウス内で収穫まで栽培し、沈着したヨウ素の生物学的半減期を

求めた。一方、湿性沈着の場合は、実験室内で放射性ヨウ素 (I^- および IO_3^-) を添加した $CaCl_2$ 溶液 ($Ca \approx 2ppm$) を用いて、モミへの沈着量やモミから玄米への移行量に関し、化学形の違い、さらに経過時間による違いを検討した (Fig. 2)。

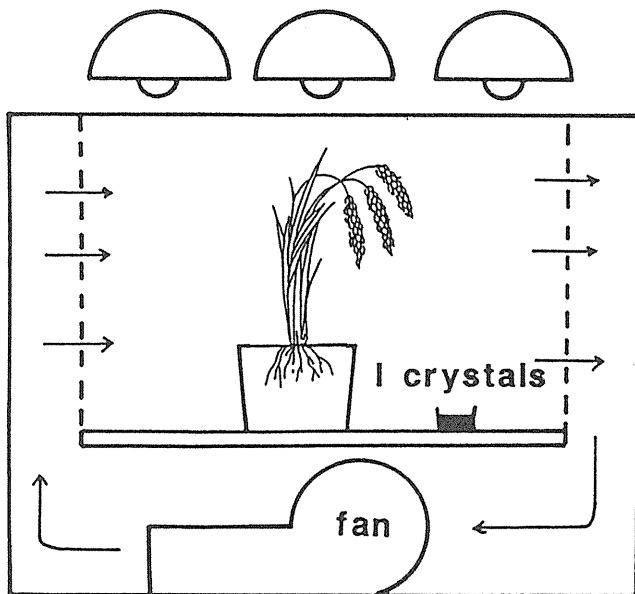


Fig. 1 Schematic of the iodine exposure chamber.

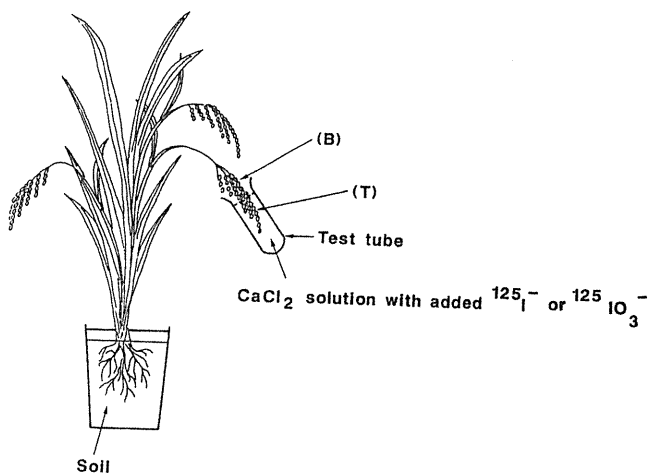


Fig. 2 Illustration of the uptake experiment from unhulled rice. (T): top of the ear (dipped part of the ear); (B): bottom of the ear (non-dipped part of the ear).

Ⅲ. 実験結果および考察

1. 乾性沈着

(1) 転流

最初に、転流の有無を検討した。水稻は、生育期間が長く、可食部の部位であるモミに比べて、茎葉部の表面積は大きいので、この茎葉部に沈着する放射性ヨウ素の量は、モミよりもかなり大きいものと考えられる。したがって、茎葉部に沈着した ^{129}I が可食部である米へ転流するかどうかは、線量評価上、重要なパラメータとなる。実験の結果、出穂期以前および以後、ともに、 I_2 のモミ以外の部位からの転流はほとんどない³⁾ことが明らかとなっ

た。また、 CH_3I についても、同様の結果⁴⁾が得られた。

(2) モミへの沈着速度

沈着速度は、沈着面のタイプ、沈着物質の物理的・化学的性状、気象条件などにより異なる。放射性ヨウ素の農作物への沈着については、これらの条件の中でも特に大気中のヨウ素の化学形が重要である。

3つの生育段階におけるモミへの元素状ヨウ素 (I_2) および有機ヨウ素 (CH_3I) の沈着速度^{5,6)}を Table-1 に示す。元素状ヨウ素の単位重量当たりの沈着速度 (V_D) は、 $0.07 \sim 1.0$ の範囲であり、1ヶタ以上の変動があるが、100粒当たりの沈着速度 (V_S) で表した場合は、 $0.2 \sim 0.6$ となり、その変動幅は約3倍程度である。これは、モミの重量変化は大きいけれども、その表面積は、出穂期に大気中に露出してから収穫まで、ほとんど変化しないためと思われる。一方、有機ヨウ素では、生育時期による変動はあまり無いが沈着速度は、元素状ヨウ素の約百分の一である。

モミへの沈着速度について、粒当たりの沈着速度 (V_S) を被曝評価で用いられる単位面積当たりに生育する植物への沈着速度 (V_G) [$cm \cdot s^{-1}$] へ換算すると、 I_2 では約 $7.6 \times 10^{-3} cm \cdot s^{-1}$ 、 CH_3I では $2.5 \times 10^{-5} cm \cdot s^{-1}$ になる。

Table 1-1 V_D and V_S values of elemental iodine (I_2) for unhulled rice grain at different growth stages.

Growth stages	V_D	V_S
	$cm^3 g^{-1} s^{-1}$	$cm^3 (100grains)^{-1} s$
Heading period	1.0 ± 0.06	0.62 ± 0.1
Milky stage	0.073 ± 0.02	0.22 ± 0.05
Dough stage	0.15 ± 0.03	0.44 ± 0.07

Table 1-2 V_D and V_S values of methyl iodine (CH_3I) for unhulled rice grain at different growth stages.

Growth stages	$V_D (\times 10^{-3})$	$V_S (\times 10^{-3})$
	$cm^3 g^{-1} s^{-1}$	$cm^3 (100 grains)^{-1} s^{-1}$
Heading period	1.0 ± 0.2	0.67 ± 0.1
Early dough stage	0.45 ± 0.08	1.1 ± 0.2
Late dough stage	0.35 ± 0.03	1.0 ± 0.2

(3) 生物学的半減期

モミに沈着したヨウ素の生物学的半減期を得るため、安定ヨウ素を曝射後、収穫期まで栽培を続けた。そして、適当な間隔でサンプリングを行い、粒当たりのヨウ素含量の変化を検討した。元素状ヨウ素の結果⁷⁾を Fig-3 に示す。横軸は曝射直後からの経過日数を、たて軸は100粒当たりのモミのヨウ素含量を曝射直後の値で除した相対濃度を示す。この結果から、モミに沈着したヨウ素は、ほとんど減少しないことがわかる。この実験は、糊熟期 (後期)

[Run-B] および黄熟期 [Run-C] のモミに曝射した場合の結果である。有機ヨウ素に関してもほぼ同じ結果⁴⁾が得られた。

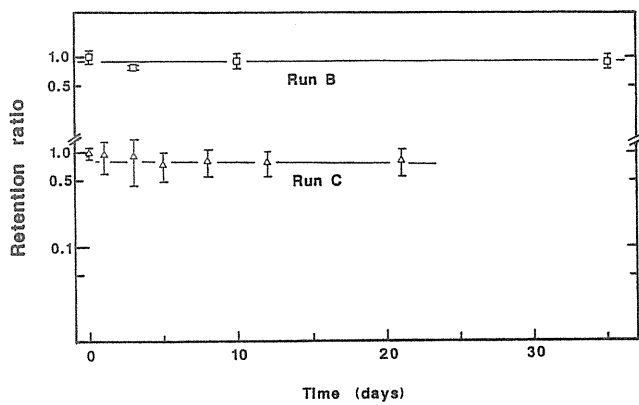


Fig. 3 Retention ratios of iodine deposited in unhulled rice as a function of time (i.e., days after iodine exposure).

Retention ratio is defined as the iodine content in unhulled rice samples after exposure divided by that in unhulled rice samples at harvest.

これらの結果から、モミに沈着したガス状ヨウ素 (I_2 および CH_3I) は、モミからほとんど脱離しないことがわかる。

(4) モミ、玄米、白米間の分配比について

モミ、玄米および白米のヨウ素含量の比^{5,6)} (100粒当たり)を Table-2 に示す。モミのヨウ素量を100とすると、 I_2 の場合、玄米は5、白米は2であり、ほとんど内部へ浸透しないことが分かる。一方、 CH_3I では、モミ表面から内部へ浸透する割合が高く、玄米へは30、白米へは21である。

これまで、大気から葉菜類への沈着に関し、有機ヨウ素は沈着速度が元素状ヨウ素に比べて小さいため、あまり問題とはならなかった。しかし、これらの結果から、有機ヨウ素はモミ表面への沈着速度は葉菜類と同様に小さいけれども、内部への浸透性が大きいことから、大気から米への移行に関しては、無視できないことが明らかとなった。

Table-2 Distribution of iodine in rice grain

Deposited species	Grain (unhulled) (%)	Brown rice (%)	Polished rice (%)
I_2	100	5	2
CH_3I	100	30	21

2. 湿性沈着

湿性沈着すなわち、雨水中に含まれる放射性物質がどの程度農作物へ移行するかというデータは、少ない。本実験は、雨水中に溶けた放射性ヨウ素のモミへの沈着およびモミ表面から玄米への移行を検討したものである。

本実験により得られた結果⁸⁾を、以下に示す。

(1) 放射性ヨウ素を添加した水溶液にモミを浸す時間を15分から120分まで変化させても、モミに沈着する ^{125}I 量は、あまり増加しなかった。この傾向は、 I^- でも IO_3^- でも同じである。雨水中の放射性ヨウ素は、積極的にモミ表面へ沈着するのではないことが分かった。この結果から、放

射性ヨウ素のモミへの湿性沈着移行では、連続降水時間よりもモミが保持できる雨量が重要なファクターである事が示唆された。

(2) モミ表面から玄米への放射性ヨウ素の移行率は、 I^- では、モミに付着している ^{125}I の約1.5%、 IO_3^- では約4%であった。また、この移行率は、モミを ^{125}I 水溶液に浸潤後、20日以上植物栽培装置無いで生育させても、ほとんど同じであった。したがって、モミ表面から玄米へは、 I^- および IO_3^- とも移動しがたい事、特に一度乾燥するとほとんど動かないことが明らかとなった。

IV. おわりに

本研究では、トレーサ実験により農作物への種々の移行パラメータを求めてきた。この農作物への移行パラメータは、土壌や農作物の種類、降水量、気温や湿度などに影響されるため、わが国独自のデータを求める必要がある。今後、安定元素または放射性核種の分析データからフィールドにおけるデータを蓄積するとともに、これらデータのデータベース化も検討しなければならない。

[参考文献]

- 1) 大桃洋一郎, 内田滋夫, 住谷みさ子: 原子力誌, 27, 388-394, 1985.
- 2) 内田滋夫, 鎌田 博, 横須賀節子, 大桃洋一郎: 保健物理, 22, 511-522, 1987.
- 3) Sumiya, M., Uchida, S., Muramatsu, Y., Ohmomo, Y., Yamaguchi, S. and Obata, H.: Hoken Butsuri, 22, 265-268, 1987.
- 4) 住谷みさ子, 村松康行, 内田滋夫, 大桃洋一郎, 小畑仁, 山口秀甫: 有機ヨウ素の大気から水稻への移行, 日本放射線影響学会第31回大会要旨集, p. 83 (1988).
- 5) Uchida, S., Sumiya, M., Muramatsu, Y., Ohmomo, Y., Yamaguchi, S., Obata, H. and Umebayashi, U.: Health Phys., 55, 779-782, 1988.
- 6) Muramatsu, Y., Ohmomo, Y., Uchida, S., and Sumiya, M.: Transfer of elemental iodine and methyl iodide from the atmosphere to rice plants and leaf vegetables, in "Proceedings of the International Symposium on Radioecology", Znojmo, October 12-16, 1992.
- 7) Uchida, S., Muramatsu, Y., Sumiya, M. and Ohmomo, Y.: Health Phys., 60, 675-679, 1991.
- 8) 内田滋夫, 吉田 聡, 村松康行, 住谷みさ子, 大桃洋一郎: 湿性沈着による放射性ヨウ素の米への移行, 日本放射線影響学会第34回大会要旨集, p. 94 (1991).

② ヨウ素-129の土壌から水稲への移行

村松康行、内田滋夫、吉田 聡、住谷みさ子、中島敏行
(環境放射生態学研究所)
大桃 洋一郎 (環境科学技術研究所)

Transfer of I-129 from soil to rice plants

Y. Muramatsu, S. Uchida, S. Yoshida, M. Sumiya, T. Nakajima (Division of Radioecology, NIRS)
Y. Ohmomo (Institute for Environmental Sciences)

From a radioecological viewpoint, ^{129}I is an important radionuclide released from nuclear facilities into the environment. This is because it has a long half-life ($1.6 \times 10^7\text{y}$) and affinity for the thyroid gland. Although its level is very low, this nuclide has been detected in the vicinity of nuclear fuel reprocessing plants. When making an environmental safety assessment it therefore is necessary to study the transfer of iodine to agricultural crops. Because of high rice consumption in Japan and other Asian countries particular attention must be paid to rice plants.

Radiotracer experiments on the transfer of iodine in the soil-rice plants systems have been carried out. Two typical soil types in Japan, Andosol and Gray lowland soil, were used in the experiment. The soil-plant transfer factors, which are defined as "concentration of the nuclide in a plant organ" divided by "concentration of the nuclide in a dry soil", were 0.002-0.0007 for brown rice (unhulled rice) and 0.5-3.2 for flag leaves. It was observed that the transfer factors were, in general,

higher in Andosol than in Gray lowland soil. The ratio of radioiodine in brown rice to polished rice was about 1:0.3. The transfer factors for polished rice was estimated to be 0.001-0.002.

Most of the radioiodine tracer added to the soil was absorbed by the soil phase at the beginning of the experiment. However, the iodine started to desorb into the soil solution with the growth of rice plants. This suggested that root exudates and/or artoysis might be participated in the desorption process. The iodine desorption was enhanced markedly by the addition of organic substances such as straw pieces and glucose to the soil. Eh dropped considerably after the soil was waterlogged due to microbial metabolisms. A reverse correlation was seen between the desorption ratios and soil Eh.

Iodine was found to be volatilized from soil-plant system as gaseous organic iodide. Iodine emission was highly stimulated by plant cultivation. The chemical species of iodine volatilized was identified as methyl iodide (CH_3I) from gas chromatography.

1. 緒言

^{129}I は半減期が1600万年と長く、また、ヨウ素は土壌に吸着され易いため、 ^{129}I が環境中に放出された場合土壌に蓄積される傾向にある¹⁾。そのため、安全評価にあたっては、短寿命の ^{131}I では問題とされなかった土壌からの経根吸収経路についてのデータを集めることが重要である。特に、日本人の食事に占める米の割合は高いことから、水稲への ^{129}I の移行量を推定することが不可欠である。土壌から農作物への移行量を算定する場合のパラメータとして、移行係数 (Tf: Transfer factor) が用いられている。この値は主として欧米で得られたものであり、米に関する研究例は極限られたものしかない。そこで、本特研では、安全評価上必要な ^{129}I の水稲への移行係数を設定することを目的として研究を実施した^{2)~8)}。

2. 実験

栽培実験には、日本の代表的な土壌である黒ボク土 (Andosol) と灰色低地土 (Gray lowland soil) を使用し

た。放射性トレーサーとして ^{129}I を用いると半減期が長いため実験後の汚染物の保管や処理が大変であるため、 ^{125}I (半減期60日) を使用した。土壌に ^{125}I (2MBq) 及び肥料を添加し良く混合した後、5千分の1アール、又は、2千分の1アールのワグネルポットに入れ、それに水稲 (日本晴) の苗を植えた。土壌溶液中の濃度を調べるためにポラスカップを設置した。管理区域にある植物栽培装置 (バイオトロン) に入れ収穫期まで栽培を行った。日中の照度は約70,000ルクスであった。バイオトロンは、放射性物質がもしも揮散した場合にも対処できるよう、内部の空気は活性炭トラップを通し除染して排気するよう設計されている。Fig. 1に水稲のポット栽培の様子と各部位の名称を示す。

田植えされた苗は、葉数を増しながら分けつし、30~40日程度経過すると分けつは止まる。分けつ期の次の伸長期 (30~35日) では、節間がのび穂の始原組織が活動し穂の分化が始まり、花粉母細胞と胚のう母細胞の減数分裂が行われる。田植えから70~80日程度経過すると出穂

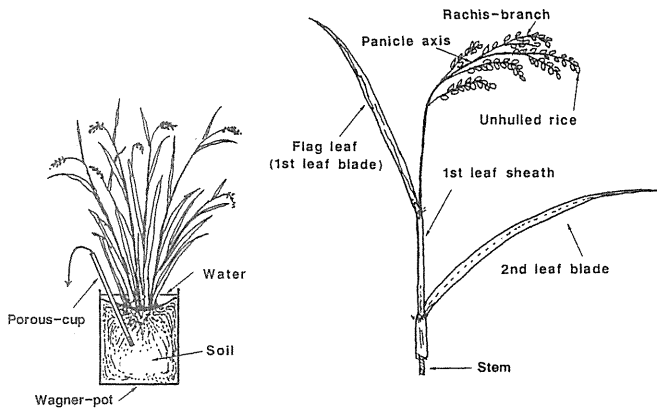


Fig. 1 Illustrations of the pot experiment and a rice plant.

し（出穂期）、当日または翌日から開花し始め受精する。受精後、胚と胚乳が発達し、15日目頃になると見かけの大きさは完成した玄米とほぼ同等まで発育する。デンプンなど貯蔵養分は35日目位まで増加し続ける。この出穂に続く時期を結実期と言い、その中をさらに細かく、乳熟期、糊熟期、黄熟期、完熟期に分けている。

収穫時は、本栽培条件では田植えから110~120日目位であった。稲を籾、枝梗、茎、葉等の各部位に分け、籾はさらに、籾殻、玄米（白米、糠）に分けた。植物各部位中の¹²⁵I濃度は、NaIシンチレーションカウンターで測定した。移行係数（Tf）は、「植物（部位）中の核種濃度」を「土壌（乾燥）中の核種濃度」で割った値として定義した。

3. 結果及び考察

(1) 水稻各部位へのヨウ素の移行係数

出穂後の各部位に取り込まれた¹²⁵Iを土壌との比（移行係数の相当）で表し、Fig. 2にまとめる（黒ボク土に関するデータ）。籾（unhulled rice）を除けば、各部位への移行係数は出穂後も増加傾向にあることが分かる。籾の値が減少したのは、澱粉の蓄積に伴う籾の重量増加のためである。

収穫時の各部位における移行係数（黒ボク土のデータ）をTable-1にまとめる。玄米への移行係数は0.006という値が得られた。この値は葉（止葉）における値である3.2と比べ非常に小さい。これは、葉茎部にヨウ素が吸収されても米までは移行しにくいことを示唆する。また、玄米を精米する過程で¹²⁵Iは除かれ、通常の精白米（歩どまり90%）では玄米に比べて¹²⁵Iの濃度は約70%減少した（Fig. 3）。このことから、白米への移行係数を計算すると0.002となる。

(2) 水稻へのヨウ素の移行係数に及ぼす土壌の種類の影響

上に述べた結果は、1種類の黒ボク土（東海村で採取）の値であり、その後の実験で他の土壌（灰色低地土）についても調べた。結果をTable-2に示す。灰色低地土で得られた値は、黒ボク土で得られた値に比べ全般的に小さかった。出穂期以降の土壌溶液中の¹²⁵I濃度は灰色低地土のほうが低く、それを反映してヨウ素の水稻への移行係数も灰色低地土で栽培したほうが小さい値を示すのである

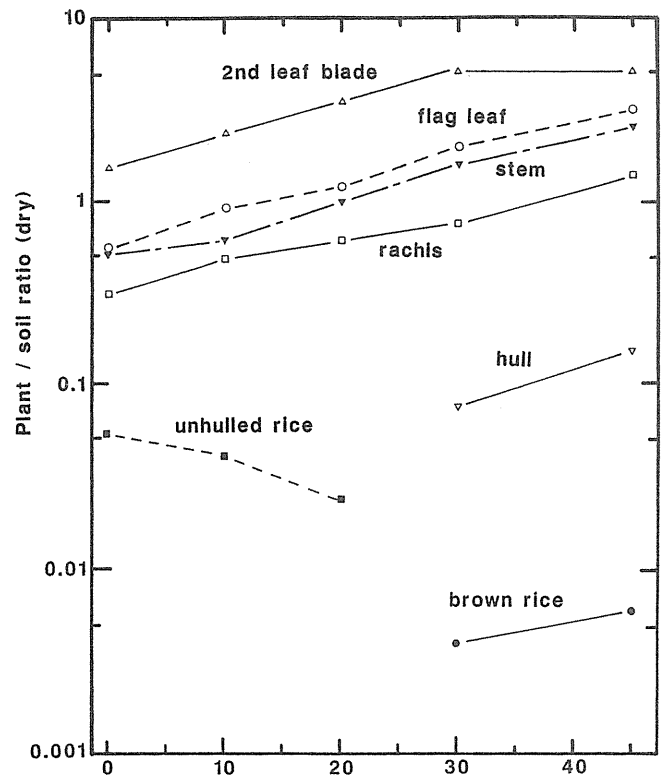


Fig. 2 Ratios (dry basis) of ¹²⁵I between rice plant and soil in accordance with time.

Table-1 Transfer factor (Tf) of radioiodine from Andosol to rice plants (dry basis).

	Tf
Brown rice	0.0060 ± 0.013
Hull	0.15 ± 0.066
Rachis	1.4 ± 0.21
1st leaf blade (flag leaf)	3.2 ± 1.4
2nd leaf blade	5.1 ± 0.97
3rd leaf blade	2.6 ± 0.60
Root	9.0 ± 2.0

± standard deviation for 4 pots.

Table-2 Transfer factor (Tf) of radioiodine from Gray lowland soil to rice plants (dry basis).

	Tf
Brown rice	0.0022 ± 0.0005
Unhulled rice	0.024 ± 0.009
Rachis	0.17 ± 0.10
1st leaf blade (flag leaf)	0.66 ± 0.12
2nd leaf blade	1.3 ± 0.38
Stem	0.38 ± 0.10

± standard deviation for 6 samples.

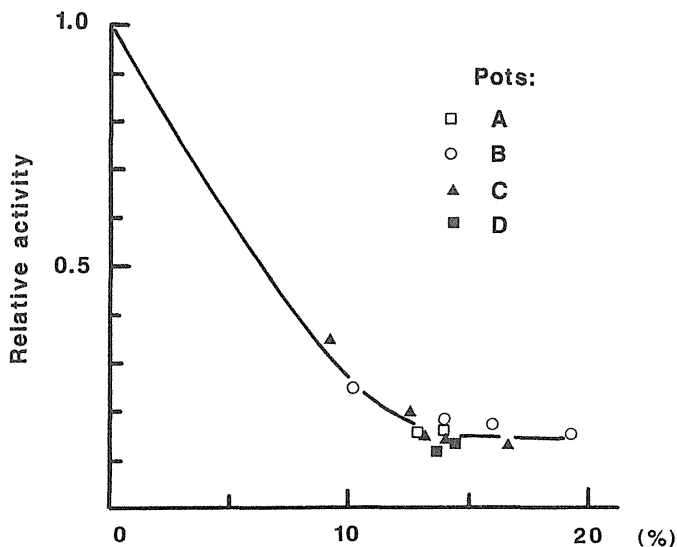


Fig. 3 Loss of radiiodine from rice by polishing.

う。このことから、ヨウ素の土壌への吸着が植物への移行量を左右する重要なファクターの1つであると考えられる(後に述べる)。

灰色低地土から玄米への移行係数は0.0022であり、白米への移行係数は前述した白米と糠でのヨウ素の分布を考慮し計算すると、0.0007となる。

ヨウ素の白米への移行係数を測定した例は高城ら⁹⁾による安定ヨウ素の分析から求めた値(0.002)と結田¹⁰⁾のRI実験から求めた値(0.0011)がある。これらの値と、本実験で求めた黒ボク土の値(0.002)と灰色低地土の値(0.0007)は比較的良好一致を示す。このことから、白米への¹²⁵Iの移行量を算定するパラメータである移行係数は0.001~0.002程度(安全側に見ると0.002)と言える。この値をIAEAがまとめたヨウ素の農作物可食部への値である0.02と比べると約1桁低い。これは、IAEAの値が主として野菜などで得られた値を基にしているためと考えられる。米への移行係数としてIAEAの値を用いると過大評価になるため、実際に即した評価を行うためには、本研究で米に対して得られた値を使用することが望ましい。

(3) 土壌へのヨウ素の吸着と土壌溶液への溶出

雨水や灌漑水中のヨウ素の化学形は I^- (ヨウ化物イオン)又は IO_3^- (ヨウ素酸イオン)と考えられている。これらのヨウ素イオンの土壌への吸着機構については今だ不明な点が多い。有機物含量が多い土壌での土壌-溶液間の分配係数(Kd)は通常500以上と高い値を示す。つまり、 $^{125}I^-$ として添加したほとんどのヨウ素が土壌に吸着されており、土壌溶液中のヨウ素濃度は非常に低いことを意味する。

しかし、Kd値は土壌を乾燥することにより低くなり、加熱することにより大幅に低下することが認められた。また、ガンマ線を照射し滅菌することでもKd値が下がるが、加熱による影響に比べるとその割合は小さい。加熱することによるKd値の低下は今のところ解明されていないが、ヨウ素の吸着に関与している土壌中の有機物や酵素が加熱したことで分解されたことが原因している可能性がある。Fig. 4(a)に、水稻の栽培期間に採取した土壌溶液中

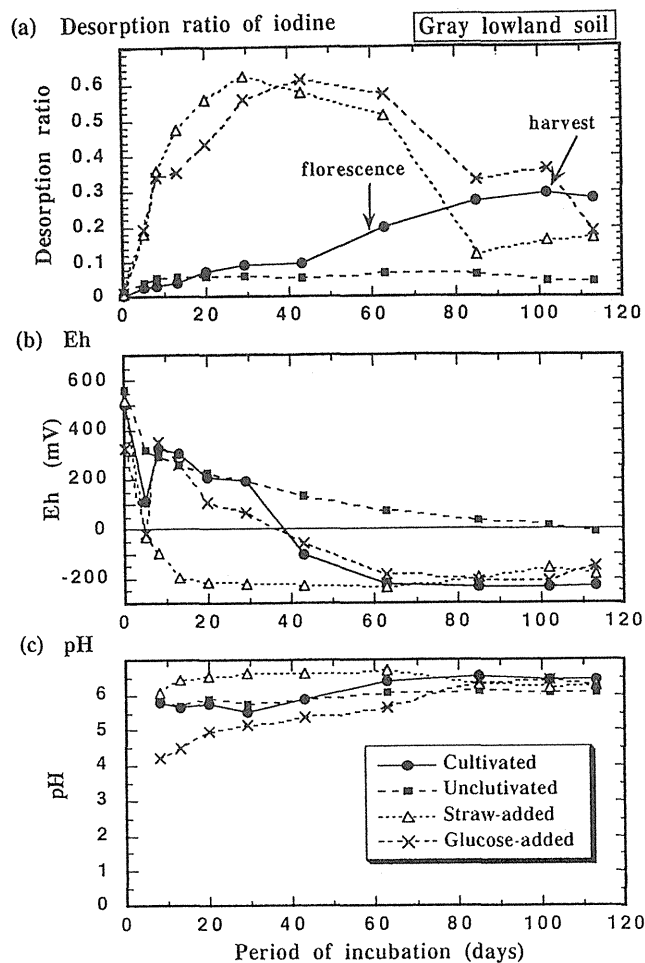


Fig. 4 Temporal changes of (a) desorption ratio of iodine, (b) Eh and (c) pH in Gray lowland soil after waterlogging.

の¹²⁵I濃度の変化を示す。図には、作付(cultivated)以外に比較として、無作付(uncultivated)及び無作付に稲ワラ(straw)又はブドウ糖(glucose)を1%添加し、ポットから採取した土壌溶液中の¹²⁵I濃度も合わせて示してある。これは、稲を栽培することによる影響、及び稲ワラや糖を加えることで土壌中の微生物の活動を活発にして影響を調べることを目的として行った実験である。図から分かるように、水稻を作付けたポットでは、田植え後数日間を見ると¹²⁵Iは土壌にはほとんど吸着されており、土壌溶液中の濃度は非常に低かった。しかし、溶液中の¹²⁵I濃度は水稻の成長とともに増加し、栽培後半では添加した¹²⁵Iの最大30%が土壌溶液中に溶出していた。

一方、無作付けで無添加のポットでは、土壌溶液中の¹²⁵Iの濃度は常に低かった。このことから、植物の生育が土壌からのヨウ素の溶脱に影響を与えていることが分かる。水稻の根が土壌中で成長するに伴い、根からの生成物や根の分解物により土壌微生物の活動が盛んになり、酸素が消費され土壌中で還元状態が発達する。還元状態が進むとヨウ素の土壌への吸着が低下するため、溶液中の¹²⁵I濃度が増加すると推定される。稲ワラや糖を添加したポットから採取した土壌溶液中の¹²⁵Iの値は実験開始後急速に上昇した。これも上で述べたと同様に、ワラや糖を加えることにより微生物の活動が盛んになり、還元状態が急速に進んだことによりヨウ素が溶け出したと考えられる。

Fig. 4 (b) には、土壌中の酸化還元電位 (Eh) の変化を示す。土壌を湛水することにより、Eh が急激に下ることが分かる。これは、微生物が酸素を消費することに起因する。Eh の値は、無作付けのものよりも、ワラや糖を添加したもののほうが顕著に低かった。Fig. 4 (a) と (b) から、土壌溶液中の ^{125}I 濃度の上昇は、Eh の低下と深い関係にあることが明らかである。しかし、ブドウ糖を添加した例からも分かるように、Eh の変化と ^{125}I 濃度が完全には連動していない場合もあり、Eh 以外にもヨウ素の溶出に關与する要因があると思われる。

Fig. 4 (c) に pH の変化を示した。ブドウ糖を加えたポットで、湛水した初期に pH が低下することが認められた。しかし、その他のポットでは、それほど大きな変動はなかった。これらのことから考えても、土壌溶液中への ^{125}I の顕著な溶出は pH の変化では説明がつかない。

(4) ヨウ素の水稲から大気への揮散

土壌に添加した ^{125}I の一部が、栽培期間中にガス化し大気中に揮散することが認められた。揮散は土壌表面からではなく、主として植物の地上部からであった。揮散したヨウ素の化学形態は種々のトラップやガスクロマトグラフィーを用いて調べたところ、 I_2 など無機物ではなく、有機ヨウ素(ヨウ化メチル)であることが明らかになった¹¹⁾。栽培期間中に1ポットから揮散した量は添加量の1割程度であった。

土壌中のヨウ素がガス状の有機ヨウ素に変化するメカニズムは次の様に考えられる。湛水して還元状態が進むと土壌に吸着していたヨウ素が I^- として溶け出す。 I^- が土壌微生物や酵素の作用によりメチル化される。生じたヨウ化メチルは、メタンの放出のように、水稲の根より吸収され、茎や葉を通過し大気中に移行すると推定される。

ヨウ素の水田から大気への揮散経路は、長半減期核種である ^{129}I の長期間における環境移行を予測する場合、無視することができないであろう。

4. 結論

長半減期核種である ^{129}I の土壌から米への移行に関する研究を行った。その結果、ヨウ素の土壌から白米への移行係数 (Tf) は、土壌によっても差はあるものの、0.001~0.002程度であることが明らかになった。安全側に考えると、白米のTf値は0.002を用いるとよいであろう。

土壌中でのヨウ素の挙動について調べたところ、通常では土壌に吸着され易いことから、時間と共に蓄積される傾向にあると考えられる。しかし、水田のように湛水状態で稲を植えることにより土壌溶液中にヨウ素が溶けだしてくることが分かった。これは、水稲の根の作用や土壌中の有

機物(稲ワラ・糖など)があることにより、微生物の活動が活発になり還元状態が生じるためと考えられる。酸化還元電位 (Eh) を測定したところ、Eh が低下するに伴いヨウ素が溶け出す傾向にあった。

土壌中に無機形として添加した放射性ヨウ素が有機化されガス状となり大気中に揮散することが認められた。

これらの研究結果は、 ^{129}I の土壌-植物系での挙動を理解する上で重要と考えられる。また、日本の食生活を考慮した被曝線量算定を行う上で必要な米へのTf値を設定できたことは意味深い。

[参考文献及び研究発表]

- 1) 村松康行、大桃洋一郎：環境中でのヨウ素の分布と挙動について、放射線科学、31, 199-203, 1988.
- 2) Y. Muramatsu and Y. Ohmomo: I-129 and I-127 in environmental samples collected from Tokaimura, Japan. Sci. Total Environ., 48, 33-43, 1986.
- 3) Y. Muramatsu, S. Uchida, M. Sumiya, Y. Ohmomo and H. Obata: Tracer experiments on transfer of radio-iodine in the soil-rice plant system. Water, Air and Soil Pollution, 45, 157-171, 1989.
- 4) Y. Muramatsu, S. Uchida, P. Sriyotha and K. Sriyosha: Some considerations on the sorption and desorption phenomena of iodide and iodate on soil. Water, Air and Soil Pollution, 49, 125-138, 1990.
- 5) Y. Muramatsu, S. Uchida and S. Yoshida: Radiotracer experiments on the desorption of iodine from paddy soil with and without rice plants. RADIOISOTOPES, 40, 440-443, 1991.
- 6) Y. Muramatsu, S. Uchida and Y. Ohmomo: Root-uptake of radioiodine by rice plants. J. Radiation Res., 34, 214-220, 1993.
- 7) S. Yoshida, Y. Muramatsu and S. Uchida: Studies on the sorption of I^- and IO_3^- onto Andosol. Water, Air and Soil Pollution, 63, 321-329, 1992.
- 8) 内田滋夫、村松康行、住谷みさ子、大桃洋一郎、山口秀甫：放射性ヨウ素の土壌から水稲への移行に関する基礎的研究、RADIOISOTOPES, 38, 57-62, 1989.
- 9) 高城裕之、木村敏正、小林宏信、岩島清、山縣登：水田土壌から米への安定ヨウ素の移行について、保健物理、20, 251-257, 1985.
- 10) 結田康一：第30回日本放射線影響学会要旨、p30, 1987.
- 11) 村松康行：ヨウ素、「大気の化学」化学総説、日本化学会編、1990.

③ テクネチウムの土壌から農作物への移行

柳 沢 啓 (環境放射生態学研究部)

Transfer Factors of Technetium from Soil to Various Agricultural Products

Kei Yanagisawa
Division of Radioecology

Laboratory experiments of the transfer of technetium from soil to various kind of agricultural products have been carried out.

The soil to plant transfer factors of Tc for rice plants were ≤ 0.005 for the grains and about 1.1 for the lower leaf blade. In contrast to this, higher transfer factors were found for wheat plants i.e. 0.027 for the grains (hulled) and 230 for the lower leaf blade. The Tc concentrations in the grains of both plants were lower than in the leaves.

In the case of vegetables, transfer of technetium from soil to edible parts of vegetables have also been studied. Transfer factors of Tc for leaf vegetables such as spinach and komatsuna were considerably higher than those for non-leaf vegetables (e.g. carrot, onion, sweet

potato, tomato). Values for cabbages and Chinese cabbages were intermediate. Older leaves contained higher Tc than younger ones. It was suggested that Tc was readily taken up through roots and transported with water into leaves without any significant deposition in roots and stems. Technetium accumulated in leaves, while water was transpired from the leaves. This nuclide was associated strongly with constituents in leaves and hardly translocated into the other parts of the plants such as tubers, bulbs and fruits. The transfer factors (on a wet weight basis) in edible parts of vegetables obtained in this study were as follows; cabbage: 0.3, Chinese cabbage: 0.1, spinach: 2.4, komatsuna: 1.1, carrot: 0.3, onion: 0.05, sweet potato: 0.03 and tomato: 0.03.

1. 緒言

テクネチウムは天然には殆ど存在しない元素であり、同位体はすべて放射性核種である。現在、環境中に見出されるテクネチウムは主としてウラン等の核分裂によって生成した核種であり大部分フォールアウトに由来すると考えられている。テクネチウムの同位元素の中で⁹⁹Tcは核分裂収率が同位体中最も高く(約6%)、しかも半減期が極めて長い(21万年)ことから環境中に放出された場合、長期間にわたって、食品を通じて人体に取り込まれる可能性のある核種の1つである。環境から農作物への主たる移行経路は、圃場において栽培される農作物の可食部へ土壌から移行する経根吸収であろう。こうした放射性核種の可食部への移行量を推定するパラメータとしては移行係数(Transfer factor)が用いられている。これは、収穫時の農作物可食部中の放射性核種濃度を土壌(乾燥)中の核種濃度で割った値として定義される。各種放射性核種に関する値がIAEAやNRCがまとめており、安全評価においてはそれらの値が農作物中の放射性核種の濃度を推定するために使用されることが多い。

IAEA(1982)¹⁾が推奨するテクネチウムの移行係数は農作物一般について5とされている。この値を用いると農作物(生重量)は栽培された土壌(乾土)中のテクネチウム濃度の5倍の濃度になる。

テクネチウムは種々の原子価をとるが、環境中に放出された場合、水中では7価である過テクネチウム酸イオン

(TcO_4^-)が最も安定であると考えられている。このイオンは水に溶けやすく、また、植物にも吸収されやすい。従って実験室内で水耕や短期間の土耕実験で、培地と栽培された植物の濃度比を求める実験を行うと、100をこえる極めて高い濃度比が得られることがある。テクネチウムはこうした水に溶けやすく、植物に吸収され易い化学形があると同時に還元されると水に不溶の4価のイオンに変化する。従って環境中に存在するテクネチウムは、酸化条件では7価、還元条件では4価の原子価である可能性が高い。こうしたテクネチウムの化学的な性質を考慮すると水田土壌のように還元状態の発達する土壌条件下で栽培される稲への移行係数を求めることは極めて重要である。還元状態の発達はテクネチウムの還元、不溶化を促進し、土壌から稲への移行係数が、畑作物よりも小さくなることが期待される。畑作物については、その可食部が異なる場合、移行係数が異なることが予想される。すなわち、葉菜類のように経根吸収された養分が可食部である葉にそのまま移行する場合は、吸収されたテクネチウムの大部分が可食部へ蓄積されると考えられる。これに対し、根菜類、イモ類、野菜類等の場合は可食部の肥大、発達が葉の光合成産物の転流に大きく依存しており、1度蒸散流と共に葉に移行したテクネチウムの再転流など、経根吸収したテクネチウムの体内における挙動によって大きく異なることが予想される。このような観点から、本研究では以下に述べるような実験を行った。

2. 実験

1) 水稲と小麦の土耕法による栽培実験

東海村周辺で採取した黒ボク土壌2.8kgに化成肥料(N : P : K = 8 : 20 : 18) 3 g およびトレーサーとして^{95m}Tc (NH₄^{95m}TcO₄ : 半減期61日)98kBqを添加して1/5000 アールワグネルポットに充填した。これに発芽後20日間経過したイネの苗(品種:日本晴)を1ポット当たり2本移植して灌水し、人工気象室内で栽培した。小麦は発芽3日目の苗(品種:農林61号)を5℃に3週間保ち低温処理を行った後、1ポット当たり2本移植し、人工気象室に移した。実験に使用したポットは、イネ、コムギ各2ポットであった。栽培条件は昼14時間28℃および夜10時間24℃とし、照度は植物の葉の高さにおいて70,000 luxであった。これらを収穫するまで5ヶ月間栽培した。散水は脱イオン水を使用して適時行った。栽培期間中イネ、コムギ栽培土壌からポーラスカップを使用して土壌溶液を採取し、土壌溶液中の^{95m}Tc濃度の経時変化を求めた。栽培終了後収穫したイネおよびコムギの地上部は、種子、種子殻、シコウ、止葉、2葉、3葉および茎等に解体し、^{95m}Tc濃度を測定

した。栽培に使用した土壌は、根をとり除いて^{95m}Tc濃度を測定した、移行係数は収穫時における各植物体試料中の^{95m}Tc濃度を実験開始時と終了時における土壌中の^{95m}Tc濃度の中央値で除した値とした。

2) 各種野菜の土耕法による栽培実験

1) と同じ黒ボク土壌に化成肥料(N : P : K = 14 : 10 : 13) 3 g および消石灰1 g を添加した後、1) と同様に^{95m}Tcを添加して野菜の栽培実験を行った。実験に使用した野菜と栽培期間をTable 1に示す。これらを移植または播種して人工気象室で栽培した。栽培条件は2種類とした。すなわち(1)昼14時間28℃、夜10時間24℃および(2)昼12時間24℃、夜12時間20℃とした、(1)は、トマト、サツマイモおよびニンジンの栽培に使用し、(2)は、ホウレンソウ、キャベツ、ハクサイ、タマネギおよびコマツナの栽培に使用した。照度は両者とも葉の高さで約70,000 luxであった。収穫後、植物体を、葉、果実、株、茎等に解体し、各器官の^{95m}Tc濃度を測定した。移行係数は1)と同じ方法で求めた。

Table 1. Vegetables chosen for the experiments

Commen name	Scientific name	Precultivation period	Cultivation period
Cabbage	<i>Brassica oleracea L. var. capitata L.</i>	25 d	60 d
Chinese cabbage	<i>Brassica campestris L. var. pekinensis Ruper.</i>	25 d	60 d
Spinach	<i>Spinacia oleracea L.</i>	none (seed)	50 d
Komatsuna	<i>Brassica rapa L.</i>	none (seed)	40 d
Onion	<i>Allium cepa L.</i>	25 d	90 d
Carrot	<i>Daucus carota L.</i>	none (seed)	60 d
Sweet potato	<i>Ipomoea batatas Lam.</i>	none (cutting)	90 d
Tomato	<i>Lycopersicon esculentum Mill.</i>	30 d	90 d

3. 結果と考察

1) 土壌からイネおよびコムギへの移行

Table 2に土壌からイネおよびコムギ各器官への^{95m}Tcの移行係数を示した。両者を比較するとイネよりもコムギへの移行係数が各器官において著しく高い値であった。イネ及びコムギにおいて個体内各器官への移行係数を比較すると葉においては下位葉への移行係数が高く、可食部であ

る子実への移行係数は他の器官と比較して低かった。子実への移行係数はコムギにおいては0.027でありイネにおいては0.005以下であることからIAEAの移行係数(5)と比較すると両者とも著しく低い値であり、IAEAの値をそのまま適用すると明らかに過大評価となる。穀類は食品として消費量が多いことからこれらの結果は穀類についてより実際に即した移行係数を求める必要がある事を示唆している。

Table 2. Transfer factors of ^{95m}Tc from soil to various parts of wheat and rice plants (on a dry weight basis)

	Rice	Wheat
Grain (hulled)	≤0.005	0.027 ± 0.011
Hull	≤0.02	0.36 ± 0.17
1st leaf	≤0.03	120 ± 50
2nd leaf	≤0.03	90 ± 10
3rd leaf	0.059 ± 0.002	150 ± 58
4th leaf	0.076 ± 0.011	230 ± 38
5th leaf	1.1 ± 0.36	
Stem	≤0.03	2 ± 0.25

本研究で得られた移行係数と土壌溶液中の^{95m}Tc濃度の経時変化を比較するとFig. 1のようにイネ栽培土壌においては栽培開始時より短期間に土壌溶液中の^{95m}Tc濃度が低下した。これに対し、コムギ栽培土壌より採取した土壌溶液では、栽培開始時から40日間までは土壌溶液中の^{95m}Tc濃度の低下が認められず、収穫時までイネ栽培土よりも高濃度の^{95m}Tcが見い出された。両者における^{95m}Tc濃度の変化は、灌水状態と畑状態における土壌中のテクネチウム挙動を反映していると推察される。すなわち、灌水条件下では、土壌中の微生物の活動により土壌中の還元化が進み、7価の過テクネチウム酸(TcO₄⁻)の化学形で添加した^{95m}Tcが還元されて、水に不溶の4価に変化してイネに吸収されにくくなったと考えられる。これに対し、コムギ栽培土壌では、還元が進行せず、栽培期間を通じて^{95m}Tc

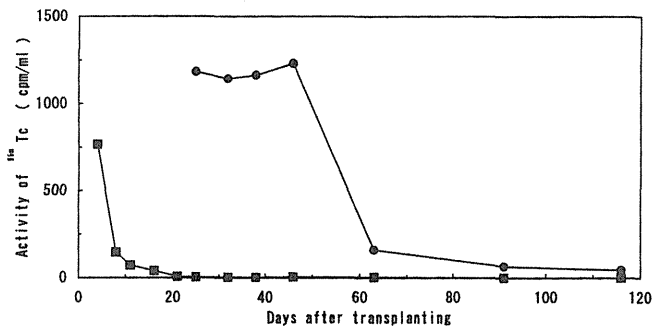


Fig. 1 Changes in the activity of ^{95m}Tc in soil solution as a function of time.

■: soil solution collected from the flooded soil.
●: soil solution collected from the non-flooded soil.

Table 3. Activity ratio of ^{95m}Tc between plants and nutrient solution after 24 hour exposure

	Rice plants	Wheat plants
Shoot	8.2 ± 6.1	10.5 ± 1.5
Root	2.9 ± 1.4	4.3 ± 0.6

(note)

±: Standard deviation of 3 Samples.

が吸収され、止葉（第1葉）あるいは種子に^{95m}Tcが移行し、イネと比較して、コムギへの移行係数が高くなったと推察される。こうした点を確認するために、発芽後、3週間水耕栽培したイネおよびコムギ幼植物を、^{95m}Tcを添加した水耕液に24時間曝露して水耕液と茎葉の^{95m}Tc濃度比を求め、両者を比較した。Table 3に示すように^{95m}Tcの水耕液から茎葉への移行については両者にほとんど差はなく、先に述べたように各器官への移行係数の差は灌水状態と畑状態によるものと考えられる。

2) 土壌から各種野菜可食部への移行

本実験で得られた^{95m}Tcの土壌から各種野菜可食部への移行係数をTable 4に示す。これらの移行係数は試料を採取する際に、食品として使用されないと考えられる部分を除き、残った部分の^{95m}Tc濃度を測定して移行係数を求め

Table 4. Transfer factors of Tc from soil to edible parts of vegetables (average values)

vegetables	wet	dry
cabbage	0.3	1.3
Chinese cabbage	0.1	0.8
spinach	2.4	17
komatsuna	1.1	11
carrot	0.3	1.9
onion	0.05	0.5
sweet potato	0.03	0.08
tomato	0.03	0.3

た結果である。すなわち、キャベツおよびハクサイの場合は、結球した葉の外側2~3枚までを可食部とし、これらよりもさらに外側の葉は除いた。ホウレンソウおよびコマツナの場合は、子葉など黄化した葉を除いた残りを可食部とした。ニンジンおよびサツマイモの場合は、土壌の混入をさけるために表皮を除いた残りを可食部とし、タマネギは表面の枯れた部分を除去した残りを可食部とした。トマトの果実は全体を可食部とした。

野菜の移行係数は通常、生重量当たりの放射性核種の濃度を乾燥土壌中の放射性核種の濃度で除した値で表すが比較のため野菜の乾燥重量当たりの^{95m}Tc濃度を用いて求めた値も表示した。表に示したように^{95m}Tcの野菜可食部への移行係数は野菜の種類すなわち、利用する器官が異なると移行係数も異なることがわかる。これらの中ではホウレンソウ、コマツナのように緑色の葉を利用する野菜で移行係数が最も高く、キャベツおよびハクサイのように結球野菜では同じ葉菜でありながらホウレンソウあるいはコマツナと比較すると低い値が得られた。こうした相違はテクネチウムの植物体内における挙動の特徴を示唆していると考えられる。すなわち根から吸収した水を盛んに蒸散している葉には水とともに吸収されたテクネチウムが蓄積し、結球した葉、根、果実など蒸散が少ない器官にはテクネチウムが蓄積されていない事が推察される。また、可食部が主として葉で合成された炭水化物を貯蔵する器官（サツマイモ）や葉の光合成産物で生長する器官（トマト、ニンジン、タマネギ）において移行係数が低いのは、葉に移行したテクネチウムが植物体内において再転流されにくい事をも示唆している。

本研究で得られた移行係数をIAEAの値と比較するとホウレンソウ、コマツナでは妥当と考えられるが、他の野菜では、先に述べた、イネ、コムギと同様IAEAの値は高すぎると考えられる。

本研究で得られた移行係数を文献値と比較するとコムギの葉で得られた値を除き、著しく低い値であった。すなわち、植物体乾燥重量当たりのTc濃度に基づいて算出された移行係数であるが、クローバーで80~280²⁾、牧草で76~390およびタンブルウィード（雑草の1種）で76~390³⁾などである。これらは、葉を主とした地上部全体に関する移行係数であり、本実験で得られたコムギの葉における移行係数と同様である。こうした文献値や本実験で得られた結果から、現在テクネチウムの移行係数として農作物の可食部全体に関するIAEAの推奨値を被曝評価にそのまま用いることは過大評価となる事が示唆される。したがって、テクネチウムの移行係数は農作物の種類ごとに（穀類、イモ類、葉菜、根菜、果菜等）求めていく必要がある。

4. 結論

テクネチウムの土壌から農作物可食部への移行係数を各種農作物について実験的に求めた。その結果、本実験の範囲では、コマツナおよびホウレンソウのような緑色の葉を可食部として用いる葉菜以外の農作物ではいずれも、IAEAが推奨しているテクネチウムの農作物可食部に関する移行係数よりも低い値であった。特に興味深い事は、我が国において主食として広く栽培されている稲への移行係数が低かった事である。日本において、米は主食として消

費量も多く、栽培面積も広いことから、米への移行係数を正確に求める事は精度の高い被曝評価を行う上で重要である。

参考文献

- 1) IAEA: "IAEA Safety Series No. 57, Generic Models and Parameters for the Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases", pp. 61, Vienna (1982)
- 2) J. M. Mousny and C. Myttenaere: "Environmental Migration of Long-Lived Radionuclides", pp. 353-358, IAEA, Vienna (1982)
- 3) R. C. Routson and D. A. Cataldo: Health Phys., 43, 685 (1978)

研究発表

- 1) 柳沢啓、鎌田博：第26回理工学における同位元素研究発表会。口頭発表、1989. 7. (東京)

- 2) 柳沢啓、鎌田博：第27回理工学における同位元素研究発表会。口頭発表、1990. 7. (東京)
- 3) 柳沢啓、村松康行、鎌田博：第28回理工学における同位元素研究発表会。口頭発表、1991. 7. (東京)
- 4) 柳沢啓、村松康行：第29回理工学における同位元素研究発表会。口頭発表、1992. 7. (東京)
- 5) 柳沢啓、村松康行：第30回理工学における同位元素研究発表会。口頭発表、1993. 7. (東京)
- 6) K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: Topical Symposium on the Behavior and Utilization of Technetium '93, Poster Session. 1993. 3. (仙台)
- 7) K. Yanagisawa., Y. Muramatsu and H. Kamada: Tracer Experiments on the Transfer of Technetium from Soil to Rice and Wheat Plants, RADIO-ISOTOPES, 41, 397-402, 1992.
- 8) K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: Transfer Factors of Technetium from Soil to Vegetables, Radiochimica Acta, 63, 83-86, 1993.

1-4 化学形を考慮したトリチウムの環境挙動 — 特に有機形トリチウムについて —

井上 義和、宮本 霧子、岩倉 哲男 (環境衛生研究部)

Transfer of Environmental Tritium into Organically Bound Form in Foodstuffs and Plant

Yoshikazu Inoue, Kiriko Miyamoto-Tanaka and Tetsuo Iwakura
Division of Environmental Health

ABSTRACT

From the significance, with respect to dose, of organically bound tritium (OBT) in diet, transfer of environmental tritium into OBT was investigated by evaluating a specific activity ratio (SAR) of OBT to that of tissue free water tritium (TFWT) for environmental samples. The mean values of SAR of Japanese rice and Chinese rice observed 0.8 and 0.6, respectively suggested that the specific activity of OBT became less than unity due to the isotope discrimination in the assimilation process under the steady state condition. The SAR of about unity was also demonstrated for various kinds of world-wide foodstuffs. The extremely high SAR values reported by Italian researcher are therefore discounted.

The SAR of about two observed in pine needles near tritium emitting facilities suggests a longer residence time of OBT than that of TFWT in plants causes the SAR over unity during a later period after a tritium discharge. The SAR value less than 0.4 observed in market foods near facilities suggests that atmospheric HTO vapor affects both TFWT and exchangeable OBT and causes the SAR less than about 0.4 during a short period after a tritium discharge. These phenomena should be taken into account to evaluate a variation of SAR under the non-steady state condition. The direct OBT formation in plant by elemental tritium was disregarded by a T₂ gas release experiment in Canada.

1. 緒言^{1,2)}

施設から放出される³H(T)の公衆に対する線量を評価する現実的なモデルの開発とその信頼性を確かめる検証研究が、現在世界的に着目されて研究されている。その中で未解決の課題は、環境から人体への有機形(OBT)の移行率(速度)とその線量寄与に関する諸問題である。従来HTOのみからの被曝を仮定していたが、食物中のOBTの一部が直接人体内の有機組織に効率的に取り込まれ、滞留時間も長いことから、OBTの線量寄与が無視出来ないと考えられるに至った。すなわち、Etnierらは、飲食物中に含まれるOBTの割合が増加するとともに、全線量は体水分のTのみからの線量よりも増大することを示した。生物体内の組織自由水TをTFWT(Tissue Free Water Tritium)、有機形Tまたは組織結合TをOBT(Organically Bound Tritium)と呼ぶと、線量は食品の比放射能比、SAR(Specific Activity Ratio=OBT/TFWT濃度比)の増大とともに増大すると言え換えることが出来る。

他方、武田らは動物を用いてHTOとT標識食品を投与する比較実験を実施した結果、T食品の線量換算係数は、HTOの2倍以上であることを示した。以上のことから、環境移行・線量評価モデルの中に、Tが環境から動物・植物性食品中へOBTの形で生成・移行する過程を組み込む

ことが重要であることが分かる。生物のTの比放射能比は、濃度が平衡で定常状態の環境中では1または1以下であること、すなわち同位体濃縮が起こらないことが食物連鎖系を含む多くのトレーサ実験により確立されていた。ところがアメリカやイタリアの1970年代の人体組織を含む種々の環境試料のSARが、1を大きく越える例が相次いで報告され、OBT問題が注目され出した。アメリカの1970年代前半と後半の2度の測定例は、土壌→植物→動物→人の食物連鎖段階において、SARが全て1を超え、下位になるほどSARが小さくなり1に近づくことを示した。また核実験に由来する環境HTO濃度がピークを示した1963年以降、時間が経過するほどSARが増大する傾向を示した点が注目に値する。

本研究では、主に環境から植物性食品へのOBTの移行特性を比放射能比(SAR)を指標として検討した。本報告では、SARが1を超える“みかけの濃縮”問題に焦点を絞り、その機構およびSARの変動要因について述べる。測定法については、水分形T(TFWT)は、凍結乾燥器または真空蒸留装置を用い、コールドトラップで回収した。有機形T(OBT)は、乾燥試料を低温灰化装置により燃焼し水に変えコールドトラップで回収した。T濃度は、試料水を蒸留精製後、低バックグラウンド液体シンチ

レーシヨン計数器で測定した。SAR は、両者の T 濃度比 (OBT / TFWT) で示される。

2. 結果

1) 自然環境で生産された食品の比放射能比

(1) 日本と中国の米の SAR³⁾

日本全国から1985年産の精米を生産地の17道府県から27試料、消費地の10道府県から10試料、合計37試料採取した。また、中国の黒龍江省の4カ所の生産地で1983-84年産の精米4試料を採取し、測定した。TFWTとOBTの比放射能およびSARの平均値を表1に示した。日本の米のSARは約0.8で、中国のそれは約0.6であった。この結果、自然環境で生育する米のSARは1を超えないことが実証された。稲の場合は、水素源が生産期間中T濃度がほぼ一定と考えられる水田の水であることから、同位体分別効果のため1以下になったと考えられる。この結果は濃度平衡の定常状態の下で生育する植物のSARは、1を超えないという多くのトレーサ実験の結果とも一致する。我々の結論は、その後秋田県内の水田で収穫直後に採取した籾を測定した久松氏(秋田大)らの追試の結果(SAR, 0.6)により再確認された。

Table 1 The specific activity of TFWT and OBT, and the specific activity ratio of Japanese rice and Chinese rice

Country	Year of production	TFWT Bq l ⁻¹ , ±2SD	OBT Bq l ⁻¹ , ±2SD	SAR ±2SD
Japan	1985	2.7±0.7	2.0±0.8	0.83±0.32
China	1983-85	10.8±0.8	6.7±0.8	0.62±0.05

(2) 世界の食品の SAR^{4,5,6)}

日本人は食物の多くを外国産食品に頼っているため、その放射能濃度は国民線量評価上からも重要であるが、ここではそのTFWTとOBT濃度を測定し、SARについて検討した結果について述べる。世界で1980年後半に生産された加工品を含む種々の植物性、動物性食品について、TFWTとOBT濃度を測定した。1例として、ヨーロッパの食品の結果を図1に示した。生産地が気候学的に異なる数カ国に及び、食品種も不統一であるため、濃度は1~6Bq/lの広い範囲を示した。平均値は約3Bq/lであった。両化学形の濃度は、大多数が互いにほぼ同じ濃度を示し、SARの平均値は、約1.2となった。北半球の数カ国で生産された種々の食品のTFWT濃度とOBT濃度の各国の平均値間の相関は、図2に示す様に非常に良く、Tレベルが他地域と比べて数倍高い中国の場合を含め、食品のSARの各地域の平均値がほぼ1であることが分かった。また、食品のT濃度は各国のフォールアウトTレベルと近かった。

地球規模核実験から約25年が経過し、T濃度が平衡に近づきつつある自然環境で生産された食品についての上述の結果は、定常的・濃度平衡下の環境で生育した生物の比放射能は、1を大きく超えることはないことを示唆している。この結果は、イタリアの環境試料の高いT濃度、特に

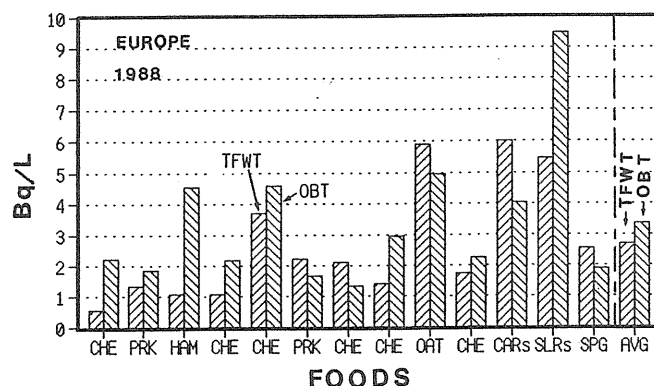


Fig. 1 The specific activity of TFWT and OBT in European foods

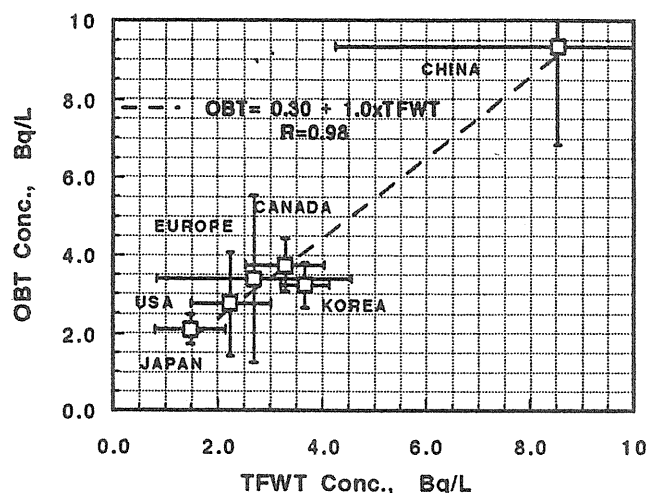


Fig. 2 Correlation of the specific activities between TFWT and OBT in foods in the northern hemisphere

異常に高いOBT濃度とその結果としての大きなSAR値の報告を否定するものである。

2) 1を超えるSARが観測される機構および変動要因 (1) 環境中でのOBTとTFWTの滞留時間差⁷⁾

1982年6月、東海村内の研究用重水炉から大気中へ通常の週間放出率の10~10²倍のHTOの放出があった。この放出は、放出地点から南西約700mの地点で通常より1桁高い月間降雨と松葉のTFWT濃度の上昇をもたらしたが、OBT濃度は、同年前半期の2倍程度の上昇に留まった。その後月間降水のT濃度が急速に低下するのに伴い、TFWT濃度も見かけの半減期約10日で急速に低下したが、一方OBT濃度の低下速度は極めて緩慢であった。このためOBT濃度は1983年末までに常にTFWT濃度より高い状態、すなわちSARが1を超える状態が長期間継続した。図3は松葉のSARの年平均値の変化を示している。SARが1まで低下するまでに約3年間が経過したと推定される。この現象は、地球規模核実験によりTの高沈着があった1963年から約7~13年が経過したアメリカで、環境試料のSARが1より大きい状態が長期間継続した例と類似している。これらのことから、一時的に多量のTが放出された後では、生成したOBTの滞留時間がTFWTよりはるかに長いので、SARが1より大きい状態が長期間観測されると推定される。

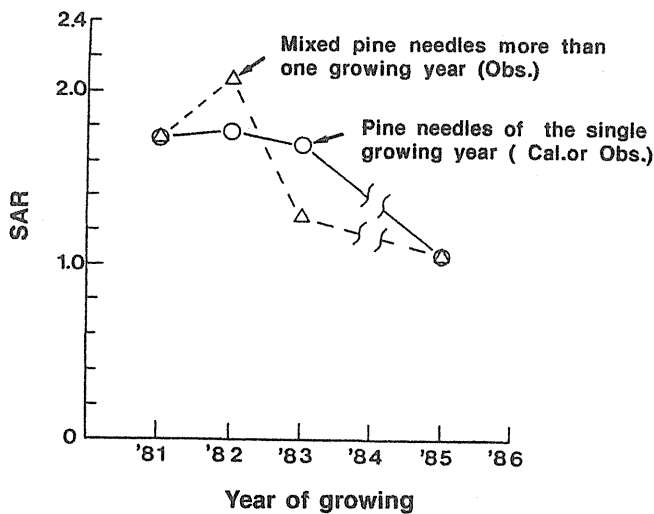


Fig. 3 The change with time of the annual average specific activity ratio of tritium in pine needles collected near tritium emitting facilities

(2) 大気中 HTO の濃度変動が SAR に及ぼす影響⁸⁾

施設から放出される大気中の水蒸気形 T が市販食品中の水分および有機水分を汚染する実態とその機構および除染の可能性について研究した。測定試料は、カナダの原子力施設から約10km離れた Deep River の町で非密封状態で販売されていた数原産国の穀類と豆類14試料 (A群) およびカナダを含む世界各国産の非汚染試料 (B群) を比較対照試料とした。図4に示す様にA群のTFWT濃度は20~160BqL⁻¹の範囲を示し、B群の食品の濃度より約10~100倍高かった。一方、SARは、B群のSARが約1であるのに対し、A群のSAR全て約0.4あった。またA群のOBT濃度は、図5に示す様に極低濃度T水で2回洗浄すると全て原産国の環境レベルに近い8BqL⁻¹以下となった。これらのデータを解析するため、大気と食品間のT平衡に関する数式を導入した。その結果、大気から食品間への最大取り込み率は、TFWTが大気HTO濃度の約40%、OBT濃度が同約14%に達したことが判明した。この取り込み率は、交換性水素含有率の高い炭水化物を多く含む穀類で高く一定であったのに対し、交換性水素含有率の低い脂肪を

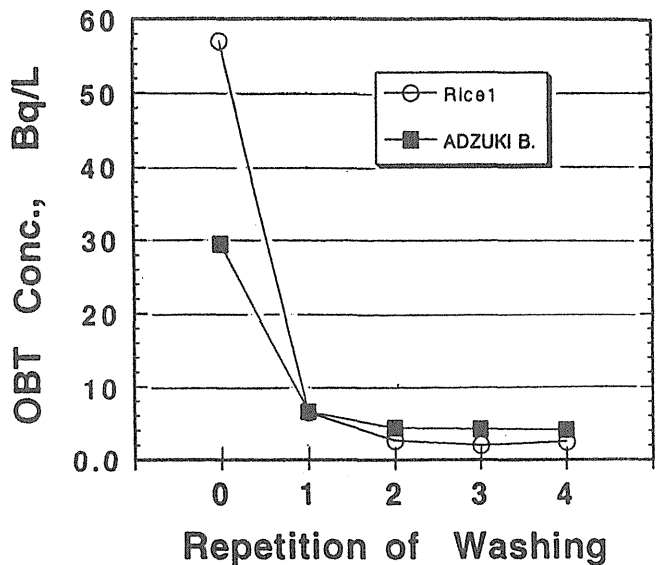


Fig. 5 Change of OBT concentration in contaminated foods with repetition of washing with tritium-free water

多く含む豆類では低かった。このことは、取り込み率が食品の有機物の成分割合により大きな影響を受けることを示唆している。これらの結果は、取り込みの機構が大気-食品間のHTOの拡散と引き続き同位体交換であり、汚染が食品中の水分のみならず有機成分の交換性水素まで及ぶことを示している。なお、このT汚染は水洗や煮炊きなどの調理過程で除去されると考えられる。

この現象を再現し取り込み速度を調べるため、日本産の穀類、豆類の5種類を1セットにして密封容器に詰めチョークリバー原子核研究所でDr. M. Brown 他との協力を得て、1週から4週間連続して空気に曝露する実験を行い、試料中のTFWTとOBT濃度の測定を行った。同時に空気中のHTO濃度と気温、相対湿度および試料の含水率を測定した。その結果、測定期間中の相対湿度は、第1週目が最低の約50%で、第3週目が最大の約70%であった。この間、各試料の含水率は前週と比較して、第1週は-30%~-50%減少し、第2週は、10%~30%の増加し、第3、4週目は変化が無かった。試料中のTFWT濃度の変化(図7)については、第1週目は、空気のHTO濃度と相対湿度が共に低かったため、TFWT濃度は全く上昇しなかった。第2週目には、空気のHTO濃度の急激な上昇(図7)と湿度の緩やかな上昇に対応して、TFWT濃度が急激に上昇した。第3、4週目では、空気のHTO濃度の漸減傾向に対応して、TFWT濃度も漸減した。これらの結果は、食品のTFWT濃度が大気中濃度の時間変化と対応して速やかに変化することを示唆している。また、大気-食品間のHTO沈着過程の必要条件は、HTO濃度差と水蒸気圧差であることが示された。結論としては、a) 大気に曝されている食品は、速やかに大気-食品間のHTO濃度差および水蒸気分圧差に比例してHTOを取り込む。b) 有機成分の交換性水素も食品水分のHTOと速やかに交換する。c) 有機成分の組成比および交換性水素の割合は、食品の種類によりほぼ一定であるので、大気HTOによる汚染を受けた食品のSARは、約0.4以下の食品固有値を示す。d) 線量評価モデルの信頼性を向上させる

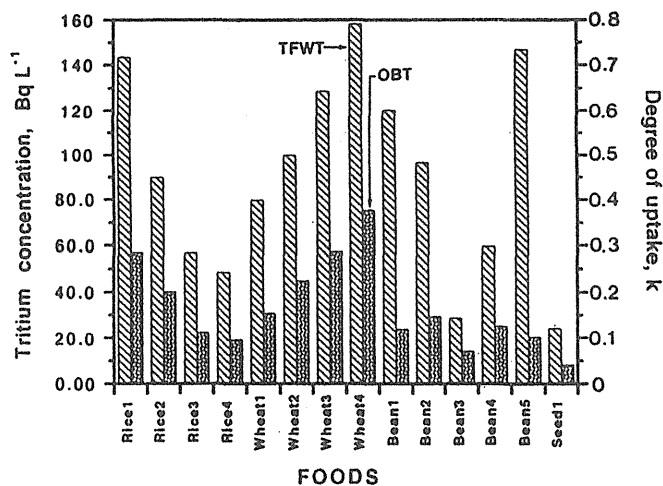


Fig. 4 The tritium concentration of TFWT and OBT in foods, and a degree of tritium uptake from the atmosphere in Deep River

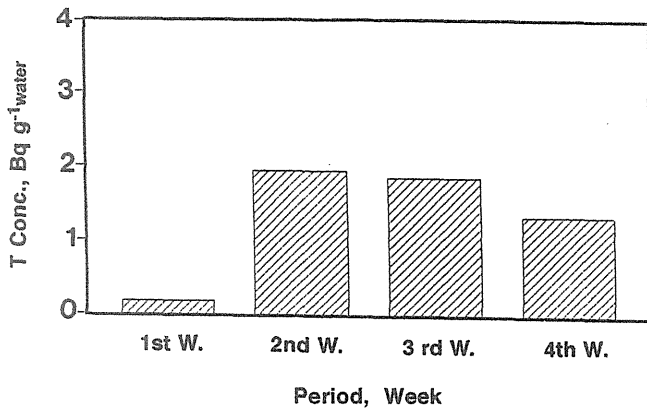


Fig. 6 The weekly tritium concentration in the atmospheric water vapor during the exposure of foods

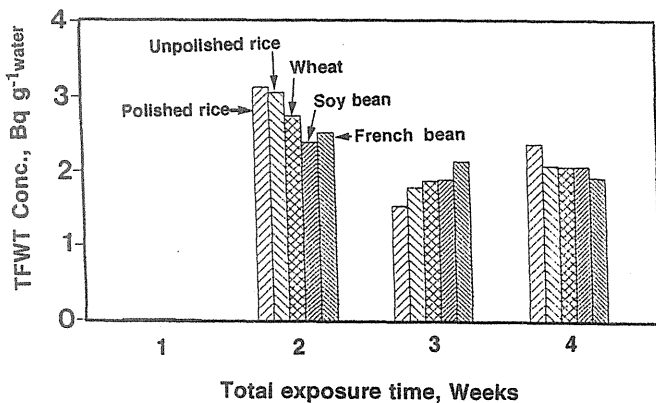


Fig. 7 Change with time of TFWT concentration in foods during the exposure to air HTO

ためには、食品の大気HTOの取り込み過程をモデルに新たに組み込む必要がある。

(3) 大気HTが植物OBTの生成に及ぼす影響

高島らは、1983年に採取した日本の21カ所の松葉中のTを分析した結果、TFWT濃度の平均値が、46pCi/l、OBT濃度が66pCi/l、そしてSARが1.5と報告した。SARが1を超える原因として、比放射能(T/H原子数比)がHTOより $10^4 \sim 10^5$ 倍高い大気中のHTの直接取り込みであると示唆した。アメリカの研究者らもかなり以前この考えを示唆していたが、その後一政らは、室内実験によるHTの植物による酸化速度の測定結果に基づきこの可能性が低いことを指摘した。我々は、この可能性を野外測定により検証することにした。

野口らは、カナダでのHTの野外放出実験に参加し、松葉を採取しそのTFWT濃度を測定した。我々は同一試料を乾燥後、燃焼しOBT濃度測定を行う仕事を分担した。結果の1部を図8(経葉+経根摂取の例)と図9(経根摂取の例)に示した。大気中を拡散したHTは、表面土壌で細菌により酸化された後、その1部は大気中へと蒸発することは既にわかっている。その結果として、図8に示されているように、松葉は気孔を通じてHTOを取り込み、TFWTの濃度が T_2 ガス放出直後より上昇する現象が認められた。その後、大気中のHTO濃度が低下するに伴いTFWTの濃度も低下した。一方、土壌中をゆっくり拡散したHTOは根を通じて松に取り込まれ松葉の

TFWT濃度が徐々に上昇する現象が、放出後約40時間経過した後観測された。一方、実験期間中ビニール袋で覆われた松葉(図9)では、経根経由に相当するTFWT濃度の緩やかな上昇のみが放出直後より観測された。一方、OBTの生成、特に非交換性OBT(Cに結合したT)については、経葉+経根摂取および経根摂取の両者とも、放出後約6日間、明確な濃度上昇は認められなかった。なお、図8に示された放出後数時間におけるOBT濃度の一時的な上昇は、交換性OBT(O, N, Sに結合したT)の濃度上昇によるもので、HTの直接沈着によるOBT生成ではないと解釈できる。この放出実験では、観測値点での大気中HTの比放射能(T/H比)は、大気中HTOのその約400倍高かったのも、もしHTの松葉への直接沈着がOBTの生成の原因であるなら、実験期間中に非交換性OBTの濃度が上昇し、長期間持続する現象が観測されるはずであるが、そのような現象は認められなかった。したがって、HTのOBTへの直接沈着説は、今回の野外実験により否定された。

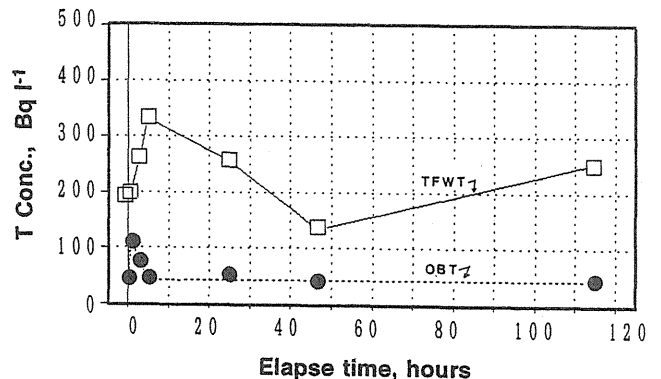


Fig. 8 Change with time of TFWT and OBT concentration in naked pine needles after exposure to T_2 gas released into the open field (leaves and roots pathways)

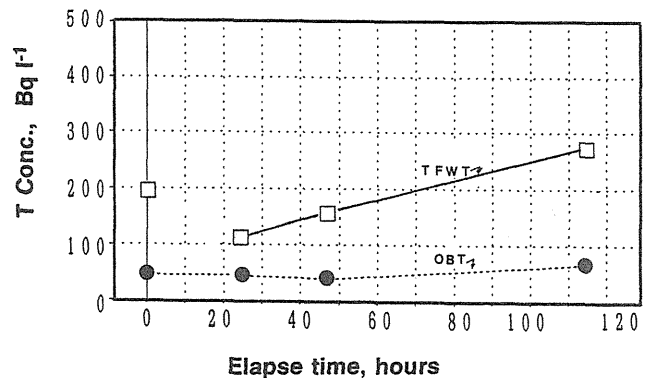


Fig. 9 Change with time of TFWT and OBT concentration in shielded pine needles after exposure to T_2 gas released into the open field (roots pathway)

3. 結論

以上の結果を総合して以下のようにまとめることができる。

1) T濃度が定常的平衡下の環境で生育した生物の比放射

能比 (OBT/TFWT) は、1 を超えることはない。すなわち、同位体濃縮は起こらず、むしろ同位体効果のため1以下になる可能性が高い。

- 2) 比放射能比が変動し、1 から大きくずれる可能性として次のような場合が考えられる。
 - a) 植物のように同一地点で生 (成) 育する生物に関しては、多量の T 沈着のため一時的に環境 HTO 濃度が上昇した後減少する非定常条件下では、生物体内に生合成された OBT は、滞留時間が TFWT のそれより長いので、SAR は 1 より大きくなり、その状態が長期間継続する。
 - b) 動・植物などが、高 (低) レベル環境で生 (成) 育後、食品などとして低 (高) レベル環境に移動した (運搬された) 場合、OBT のみが生産時の高 (低) いレベルを保持しているため、測定された SAR は 1 以上 (下) を示す。 () 内は逆の場合である。SAR が 1 からずれる程度は、環境中の HTO 濃度の変化の大きさと交換性有機水素の含有率に依存する。
- 3) 元素状 (T_2 , HT, DT) トリチウムは、植物の OBT 形成に直接的には寄与しない。

4. 論文発表

- 1) 井上義和：環境トリチウム研究の最近の動向、日本原子力学会誌、31, 791-795 (1989).
- 2) 井上義和：植物および食品への 3H の移行特性・・・OBT について、“環境と公衆の安全のためのアプ

ローチ ——放射性核種の生態系移行・代謝・線量推定——” 岩倉哲男、中島敏行編、放射線線医学総合研究所、NIRS-M-93、80-88 (1993).

- 3) Inoue, Y. and Iwakura, T.: Tritium concentration in Japanese Rice, J. Radiat. Res., 31, 311-323 (1990).
- 4) Inoue, Y. and Iwakura, T.: Classification of tritium levels in foods by production regions, Proc. China-Japan Workshop “Radiation Biology, Medicine and Protection”, 300-310, Beijing (1992).
- 5) Hisamatsu, S., Inoue, Y. and Takizawa, Y.: Tritium concentrations in some European Foods. J. Environ. Radioactivity 10, 251-255 (1989).
- 6) Hisamatsu, S., Ohmura, T., Takizawa, Y., Katsumata, T., Inoue, Y., Itho, M. Ueno, K. and Sakanoue, M.: Tritium level in Japanese diet and human tissue, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 156, 89-102 (1992).
- 7) Inoue, Y. and Iwakura, T.: Behavior of organically bound tritium in some plants under equilibrium and non-equilibrium environmental conditions, Proc. Third Japan-US Workshop on Tritium Radiobiology and Health Physics, 74-82, IPPJ-REV-3 (1989).
- 8) Inoue Y., Tanaka-Miyamoto, K. and Iwakura T.: Uptake of atmospheric tritium by market foods. Fusion Technol., 21, 494-499 (1992).

2. 公衆のための代謝モデルの設定に関する研究 概 況

(1) 長半減期核種の食品-人体系における移行と体内分布並びに標準日本人の生理的特性

核燃料サイクルの整備を背景に、データの少ないアクチノイド核種等の摂取と体内分布を解明し、日本人の代謝モデル設定に資するとともに、被曝線量算定に必要な日本人の各年齢群別の人体特性の標準値を設定することを目的とする。

体内 P_a の高精度定量法の国際比較分析による検証および長半減期核種の ICP 質量分析による画期的な定量法ならびに R_a の高精度新分析測定法を確立した。これらの方法により、日本人成人男子の ^{232}Th 、 ^{238}U および ^{226}Ra の代表的な摂取量および ^{226}Ra の体内量を測定した。また、日本人成人男子の全身114器官・組織の重量と組成および1、5、10、15歳児の器官重量等の標準値を得た。

これらの結果を ICRP の代謝データならびに標準人の値と比較検討し、 ^{226}Ra 、 ^{232}Th および ^{238}U の食品-人体系における被曝線量の推定に応用した。

(2) 放射性物質の年齢群別体内代謝

動物実験を通じ、放射性物質濃度の年齢依存性とその代謝機構を明らかにし、より精度の高い年齢群別の単位摂取量当り（線量係数）の線量を設定する目的で本研究を行ってきた。以下の成果を得ることができた。

種々の核種を各年齢群別ラットに投与し、その体内残留率を調べた結果、核種の残留曲線パターンが三種に大別できた。また、 ^3H 化合物、亜鉛などは母乳から乳児への移行が無視できないほど大きいことを明らかにした。これらの実験を通じて得られたパラメータを IDES に適用し、年齢群別の線量係数を作表化することができた。

これらの研究成果は世界的に少ない乳幼児の代謝データであり、貴重なデータとして評価され、その多くが ICRP Publ. 56 に引用されている。

中 島 敏 行

2-1 長半減期核種の食品-人体系における移行と体内分布 並びに標準日本人の生理的特性

河村 日佐男、白石 久二雄、五十嵐 康 人* (環境放射線生態学研究部、*平成2年度まで)
山本 政 儀† (昭和63-平成元年度外来研究員)、田中 義一郎‡ (特別研究員)

Transfer of long-lived radionuclides from diet to man and their body content and physiological characteristics of Reference Japanese Man

Hisao Kawamura, Kunio Shiraishi, Yasuhito Igarashi*, Masayoshi Yamamoto† and Gi-ichiro Tanaka‡
Division of Radioecology, *1988-91, †Visiting Scientist, ‡Senior Research Counselor

ABSTRACT

In view of the development of the nuclear fuel cycle in Japan, it is urgently needed to establish dose assessment models and related metabolic parameters for long-lived radionuclides for Japanese. Therefore, intake and body content of actinides (Pu, Th, U) and a related alpha-emitting nuclide (Ra) were studied along with physiological aspects of Reference Japanese Man as the basic model for dosimetry. The ultimate purpose of the program was to examine applicability of the ICRP models and parameters (for workers) to members of the public.

The result of an interlaboratory comparison of $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ determination including our result was published. Alpha spectrometric determinations of ^{226}Ra in bone yielded representative adult bone concentration levels in Tokyo, 0.42 (mean) and 0.35 (median) mBq/g ash. The Ra-Ca O.R. (bone-diet) was obtained which was similar to the values in Sapporo and Kyoto reported by Ohno et al. Specific effective energies for alpha radiation from ^{226}Ra and its daughters were calculated using the ICRP dosimetric model for bone and masses of source and target organs of Reference Japanese Man. Annual

dose equivalents in red marrow and bone surfaces were 10 and 145 μSv , respectively as estimated from the median adult bone Ra concentration.

Diet samples collected by the duplicate portion method from 31 locations in Japan in summer and winter, 1981-2 were analysed for ^{232}Th and ^{238}U by the newly developed ICP-MS technique. The daily intake per person of ^{232}Th and ^{238}U were 1.7 and 8.8 mBq, respectively. Using IDES with Japanese physical parameters and other parameters of ICRP, weighted dose equivalent commitments for single year intakes were estimated as 0.4 μSv for ^{232}Th and 0.3 μSv for ^{238}U .

Reference Japanese data including the adult, adolescent, child and infant of both sexes was extensively studied by Tanaka as part of the activities associated with the ICRP Task Group on Reference Man Revision. Normal data on the physical measurements, mass and dimensions of internal organs and body surfaces and some of the body composition were analyzed in relation to the nutritional conditions of the Japanese population.

Some of the planned work remains to be done later in a different program.

1. 緒 論

環境放射線からの内部被曝線量評価に関わる食物連鎖のなかで、経口摂取すなわち食物等からの放射性物質の取り込みと体内蓄積とは、最も重要な過程と考えられる^{R1)}。一方、核燃料サイクルに関連して、環境中の長半減期核種核種による人体の被曝線量の推定のための代謝モデルおよびパラメータの確立が重要とされている。そこで、ヒトにおける実際のデータがとりわけ少ないアクチノイドおよび関連核種の摂取量および体内量に関する研究ならびに標準日本人の生理的特性に関する研究を進め、ICRPの値との比較検討を行った^{R2)}。

人体中のPuについては、前特研で検討しており、今特研では、核燃料として利用可能な天然アルファ放射体であ

るU、Thおよび関連元素のRaに重点を置いた。研究方法として、画期的な高感度と迅速性をもつICP質量分析の長半減期核種への応用開発およびRaの新しい化学分離-アルファ・スペクトロメトリー法を開発使用した。

日本人に関して、放射性核種の摂取量を求める研究は1960年代より行われてきているが、分析方法に恵まれず、試料収集が小規模であり、日本人の代表値としては充分とは考えられない。そこでTh、UおよびRaの全国規模での摂取量の測定をとりあげ、ICP-MSが非放射性元素(安定元素)だけでなく、長半減期の放射性核種(pptレベル)の定量分析にも極めて有効とされたためその利用を図った。

人骨中の ^{226}Ra については、U系列の長半減期アルファ

放射体であること、Rnの親核種であることなどにより、大きな関心が払われてきたが、日本人については1960年代の文部省総合研究の成果があるものの人工の多い東京を中心とするデータが未確定であった^{R3)}。そこで、アクチノイドの関連核種として代謝モデルと線量評価の観点から²²⁶Raの骨内量と摂取量について検討した。

標準日本人については、元素摂取量の検討および特別研究員による正常人の器官重量と栄養的背景の解析をふまえて成人男子の全身モデルの設定を行い、各年令群の器官質量の標準値を検討し、ICRP Publication 56の日本人への適用上重要な成果を得た。

2. 研究方法

1) 誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) による²³²Th、²³⁸U等の定量法

ICP-MSは超高感度の元素定量法として近年新たに開発、装置が市販された。そこで、体内のTh等の分析研究のため、その適用を検討し、人体組織試料の長半減期アルファ核種(Th, U)に体して高感度かつ迅速な分析法であることを見出し¹⁾、²¹⁰Biなどを用いる内部標準法により

精度向上を図った²⁾(図1および表1参照)。また、これを食餌試料にも応用した^{3, 4)}。ICP-MSによる長半減期核種の定量法はこれを契機に飛躍的に進展した⁵⁾。

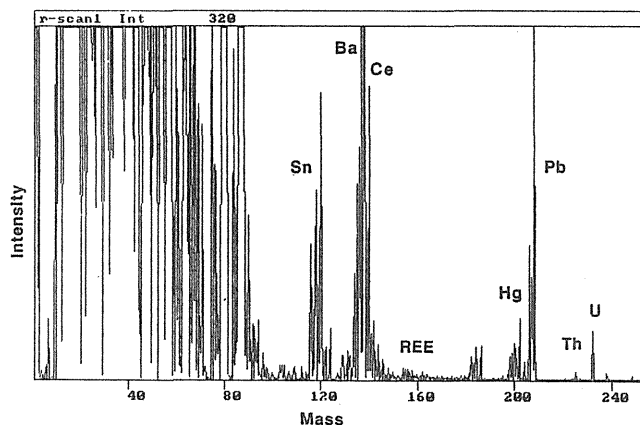


Fig. 1. A full mass range scan with ICP-MS of NIRS Human Bone.

Table 1. Concentrations of Th and U in the biological reference samples corrected by the ²¹⁰Bi internal standard.

Sample	Matrix concentration in solution ($\mu\text{g ml}^{-1}$)	Measurement No.	Observed (ng g^{-1})		Literature (ng g^{-1})	
			Th	U	Th	U
Orchard Leaves ..	350	1	67.0 \pm 1.7	30.5 \pm 0.7	64	29
		2	66.0 \pm 1.7	33.2 \pm 0.8	—	—
Bovine Liver ..	750	1	3.80 \pm 0.16	0.89 \pm 0.06	—	0.71
		2	3.29 \pm 0.15	0.89 \pm 0.06	—	—
Mussel ..	300	1	43.6 \pm 1.3	93.5 \pm 1.4	39, 40, 41	77
		2	44.3 \pm 1.3	96.9 \pm 1.4	—	—
		3	43.4 \pm 1.3	99.2 \pm 1.4	—	—
Chlorella ..	460	1	8.46 \pm 0.38	139 \pm 1	5.6	94, 130
		2	8.93 \pm 0.39	137 \pm 1	—	—
		3	8.62 \pm 0.39	138 \pm 1	—	—
Human Bone ..	400	1	181 \pm 8	55.6 \pm 3.3	—	—
		2	181 \pm 8	58.8 \pm 3.4	—	—
		3	153 \pm 7	66.2 \pm 3.6	—	—
Human Lung ..	400	1	39.0 \pm 1.0	7.49 \pm 0.27	52	8.1
		2	40.4 \pm 1.0	7.98 \pm 0.28	—	—
		3	41.1 \pm 1.0	7.83 \pm 0.28	—	—

2) アルファスペクトロメトリーによる²²⁶Raの定量法

従来、人骨および食品中の²²⁶Raは、主として²²²Rnのエマネーション法により定量されたが、感度および分析能率の点で必ずしも十分とはいえなかった^{R3)}。そこで、0.5M硝酸-90%メタノール溶液から陰イオン交換樹脂カラム上に分離濃縮したうえ、CyDTA-陽イオン交換樹脂カラム法によりRa分画を精製し、これを銀板に電着した後、Si検出器によりアルファスペクトロメトリーをおこなう方法を開発した⁶⁾。回収率補正のため、²²⁵Ra(β)トレーサーを添加し、1~2週間後に、娘核種のひとつである²¹⁷At(α , 7.06 MeV)と²²⁶Ra(α , 4.78および4.60 MeV)とを同時に測定した。5,000分測定で検出下限は約0.2mBqと良好で、2-4gの人骨灰化試料で十分であった。日常食試料のばあい、灰分5g前後を用い、²²⁶Raを含まないBaを担体としてBaSO₄共沈法により濃縮操作を行った⁷⁾。

3) 食餌からのTh, Uの摂取量

陰膳方式(Duplicate portion study)により、成人男子5人1日分を全国31都道府県より1981-82年にかけて夏および冬に収集した乾燥灰化したものを用いた⁴⁾。得られた灰分の約0.25gを秤量し、数ml程度の高純度混酸(硝酸-過塩素酸)でさらに湿式灰化後、10%高純度硝酸に溶解して、ICP-MSの分析試料とした。ICP-MS法の分析条件は表2に示した。ICP-MSでは、化学干渉よりも物理干渉と同重体による干渉が問題となる。また、本分析法の利点を生かすため、試料の前処理を少なくし、効率の良い測定条件を設定する必要がある。種々検討の結果、調製した食餌試料の塩濃度が500~1,000ppmになるよう希釈して測定すればマトリクスの影響が避けられることがわかった(図2)。測定時に、内部標準として²³²Th、²³⁸Uの定量に最適とされる²¹⁰Biを10ng/mlになるように添加した。標準物質NIST SRM 1571 Orchard Leavesの

Table 2. Operating conditions of ICP-MS.

Instrument	VG Isotopes PlasmaQuad PQ2 Plus
<i>Mass analyzer-</i>	
Scan mass range	207.98 - 240.60 a.m.u.
Number of channels	1,024
Number of scan sweeps	1,200
Dwell time	320 μ s/channel
Analysis time	ca. 3 min.
Mass regions	from 210.00 to 230.00 and 233.00 to 237.00 a. m. u.
<i>Plasma torch-</i>	
Frequency	27.12 MHz
RF power	1.20 kw
Position for ion extraction	7 mm from load coil
Coolant gas flow	13.0 l/min
Auxiliary gas flow	0.5 l/min
Carrier gas flow	1.1 l/min
Sample uptake rate	0.5 ml/min
Nebulizer	Concentric glass type

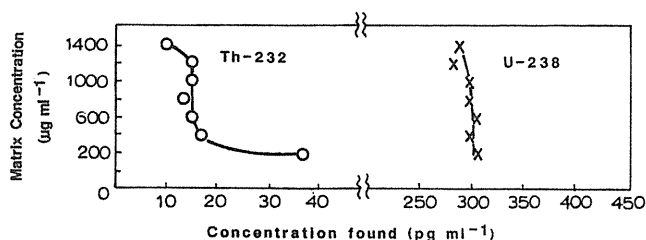


Fig. 2 Effect of the total matrix concentration on the determination of ^{232}Th and ^{238}U in a total diet sample.

Table 3. Analytical results for NIST SRM 1571 Orchard Leaves.

Element	Concentration ($\mu\text{g/g}$ dry wt.)		
	Present result	Certified values	Consensus values*
^{232}Th	$60.2 \pm 0.5^{**}$	64 ± 6	58 (3)
^{238}U	29.9 ± 0.5	29 ± 5	28 ± 3 (7)

*Gladney, E. S. (1987), numbers in parentheses are number of data used to obtain consensus values.

**Mean \pm s.d. for three measurements.

^{232}Th , ^{238}U の定量値は表 3 に示すように保証値と良く一致し精度も良好であった^{R4)}。検出限界は Th 1.3pg/ml, U 2.9pg/ml であった⁴⁾。

4) 標準日本人の特性値

18,000にのぼる行政解剖のデータから、0才から80才にいたる正常日本人男女の主要器官の重量および大きさを求めた⁸⁾。1952年の相見らのデータと比較検討し異なる栄養状態における体格および器官重量の検討を行った。体格および栄養等については、厚生省の国民栄養調査、文部省の学校保健統計調査、農林水産省の食糧統計および国連機関等の統計資料ならびに各種学術刊行物を利用した。

5) 骨中の ^{226}Ra によるアルファ線による年線量当量の算定

骨中の放射線感受性の組織が骨中の ^{226}Ra から受けるアルファ線による年線量当量の推定のため、線量算定モデル

およびアルファ粒子の吸収割合 (AF) は、ICRP Publication 30 によった^{R1)}。線源組織と標的組織の重量として標準日本人の値を用い⁹⁾、ICRP 標準人の値による結果と比較する方法をとった。

6) 食餌からの ^{232}Th および ^{232}U の摂取による預託線量当量の推定

ICRP Publication 30 の代謝・線量算定モデルに基づいて、本郷・山口らにより開発された IDES (日本人の体格を考慮した内部線量評価システム) は、代謝パラメータを入れ換えることによって、摂取量から5年齢群 (1, 5, 10, 15才, 成人) の線量計算が可能である^{R5)}。本研究で得られた日本人の代表的な摂取量を用いて、IDES により線量当量を求めた¹⁰⁾。

3. 結果および討論

1) Pu に関する国際相互比較分析

国立標準技術局 (NIST) と合衆国超ウラン登録制度 (USTR) が主催した人体標準試料中の Pu の国際相互比較分析の結果が正式に報告された¹¹⁾ (図 3 参照)。

日本人における一般人の Pu 等の体内量に関しては、正常人のデータは報告されていないため、少量の試料を用いて $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ の濃度の分布を検討しているが未完である。

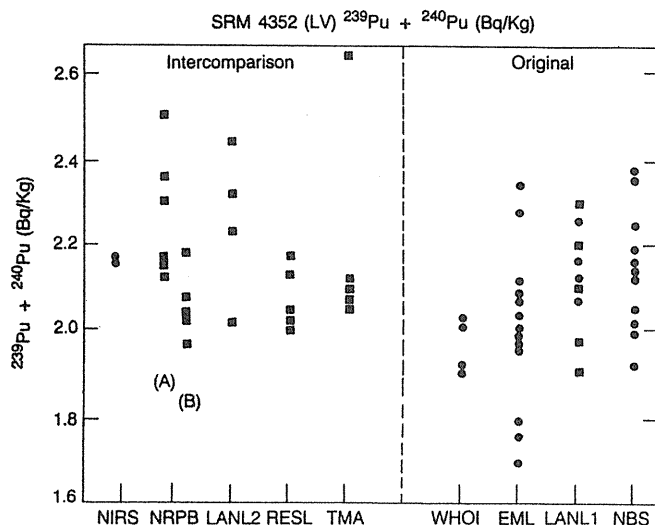


Fig. 3 Results of $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ analyses on SRM 4352 (Liver), squares denote whole bottle analyses, and circles indicate partial bottle analyses. Countings uncertainties are typically 5 percent (1s).

2) 食餌からの ^{232}Th , ^{238}U および ^{226}Ra の摂取量

^{232}Th と ^{238}U の食餌62試料の平均灰分中濃度はそれぞれ $25 \pm 12\text{ng/g}$ および $44 \pm 20\text{ng/g}$ で、成人男子 1 人 1 日当りの摂取量は ^{232}Th で $0.41 \pm 0.21 \mu\text{g}$, ^{238}U で $0.71 \pm 0.31 \mu\text{g}$ であった¹²⁾。

摂取量の地域的な違いをみるため、全国13ヶ所のサンプリング地点を北日本、関東、中部、近畿、中・四国、九州の6地域にまとめた結果を表 4 に示す。算術平均と幾何平均値には大きな差は認められていない。 ^{232}Th の場合、地域的に差が認められたのは北日本と関東、北日本と中部、北日本と中・四国の組み合わせであり、 ^{238}U の場合、

Table 4. Comparison of daily intake of ^{232}Th and ^{238}U for six areas in Japan and two seasons.

Location and season	No. ^b	$^{232}\text{Th}^a$			^{238}U		
		Arithmetic mean	Geometric mean	Relative Ratio ^c	Arithmetic mean	Geometric mean	Relative Ratio ^c
Kita-Nippon	12	0.29±0.11	0.27	93	0.70±0.28	0.64	91
Kanto	8	0.52±0.22	0.48	92	0.96±0.31	0.91	95
Chubu	10	0.39±0.09	0.38	97	0.81±0.28	0.77	95
Kinki	8	0.41±0.19	0.38	93	0.73±0.26	0.69	95
Chu-Shikoku	14	0.52±0.28	0.45	87	0.58±0.33	0.51	88
Kyusyu	10	0.34±0.19	0.29	85	0.60±0.34	0.52	87
Total mean	62	0.41±0.21	0.36	88	0.71±0.31	0.64	90
Summer	25	0.48±0.19	0.44	92	0.81±0.31	0.75	93
Winter	25	0.37±0.19	0.33	89	0.59±0.31	0.53	90

^a Daily intake, μg per person.^b Number of samples.^c Ratio of geometric mean to arithmetic mean.Table 5. A comparison of daily intake in adult males for ^{232}Th and ^{238}U between the present results and published data.

Th & U intake ($\mu\text{g}/\text{person}$)	Location	Time ^a	Literature	
^{232}Th	0.41 ± 0.21	Japan (31 prefectures)	1981	Present result
	0.28 ± 0.36	Mito, Japan	1984-1987	Shiraishi et al. 1990
	0.22 ± 0.09	Los Alamos, U.S.A.	1987-1988	Shiraishi et al. 1990
	1.01	N.Y., U.S.A.	1978	Fisenne et al. 1987
	2.24 / 2.9	India (general / hospital)	1987	Sunta et al. 1987
	3	Western Europe & North America	1975	ICRP 23 1975
^{238}U	0.71 ± 0.31	Japan (31 prefectures)	1981	Present result
	0.66 ± 0.61	Mito, Japan	1984-1987	Shiraishi et al. 1990
	4.8 ± 1.8	Los Alamos, U.S.A.	1987-1988	Shiraishi et al. 1990
	1.5	Kyoto and Sapporo	1967-1969	Nozaki et al. 1970
	1.02, 0.86	Okayama (control, 2 places)	1969-1971	Yamamoto et al. 1974
	4.55, 2.86	Okayama (2 mine areas)	1969-1971	Yamamoto et al. 1974
	1.77	Okayama (control area)	1969-1970	Masuda 1971
	3.9, 5.6, 9.2	Okayama (3 mine areas)	1969-1970	Masuda 1971
	4.4 ± 0.6	Utah, U.S.A.	1990	Singh et al. 1990
	1.3	N.Y., U.S.A.	1978	Fisenne et al. 1987
	1.3 / 1.4 / 1.3	N.Y. / Chicago / San Francisco	1967	Welford et al. 1967
	0.99	U.K.	1972	Hamilton 1972
	0.61 - 2.73	France	1977	UNSCEAR 1977
	0.91	U.S.S.R.	1977	UNSCEAR 1977
	59.2 / 31.4	Gujrat, India (summer / winter)	1980	Somayajula et al. 1980
0.55, 2.2	Bombay, India	1990	Dang et al. 1990	
1.9	Western Europe & North America	1975	ICRP 23 1975	

^a Sampling time or reported time.

関東と中・四国、関東と九州の組み合わせにおいて、統計的に有意差が認められた。両核種とともに、夏・冬の季節的摂取量の差が日本全体、東日本、日本海側において統計的に認められた。これに対して西日本、太平洋側には差は認められなかった（表4参照）。

世界の摂取量の一覧表を表5に示した。 ^{232}Th の摂取量の報告値は少なく、日本人では0.2~0.4 $\mu\text{g}/\text{人}/\text{日}$ の範囲とされる。アメリカ人の1 μg 、インド人の2~3 μg と日本人に比べて摂取量は高く、ICRP標準人では3 μg を見積もっている^{R2)}。他方 ^{238}U については多くの報告があり、日本人ではウラン鉱山近くでは3~9 μg 、それ以外では0.7~2 μg の範囲である。世界のデータではインドの

高い値を除いて、1~3 μg であり、標準人では1.9 μg が報告されている。

一方、 ^{226}Ra の摂取量も同様に求められ、西日本にやや高い値が認められるが全国平均は25±5mBqであり、1960年代後半の札幌および京都での報告値15および37mBqとほぼ一致した^{R3, 10)}。

これまでに報告されている核種分析用の食餌試料は、試料数が少ない、対象範囲が狭い等の短所があったが、本研究では完璧とはいえないまでも日本人の代表値を推定するために充分のものであったと考えられた。

3) 日本人の骨中の ^{226}Ra 含有量

東京地区および一部札幌地区の脊椎骨中濃度につき年令

との関係を含めて検討した(図4)^{6, 13)}。各年齢群における脊椎骨中の²²⁶Ra濃度を表6に示す。胎児群の濃度はやや低い、年齢依存性は明瞭でなかった。また平均値と中央値は胎児群を除く各年齢群ではほぼ一致している。高年齢群の比較によれば、札幌では東京よりも濃度が低い傾向がある。OhnoとWatanabeのデータにもとずいて、地質および生活環境の異なる京都および札幌の、²²⁶Raの肋骨および食餌中の濃度が報告されている^{R3)}。今回の結果は、その骨中濃度の変動範囲と見かけ上ほぼ一致している。

一方、世界各地域で報告されている値との比較では、成人群のメジアン値0.35 Bq/kg 灰分は、ほぼそれらの中程度の水準にある^{R6)}。全骨格中の²²⁶Raの含有量を、成人

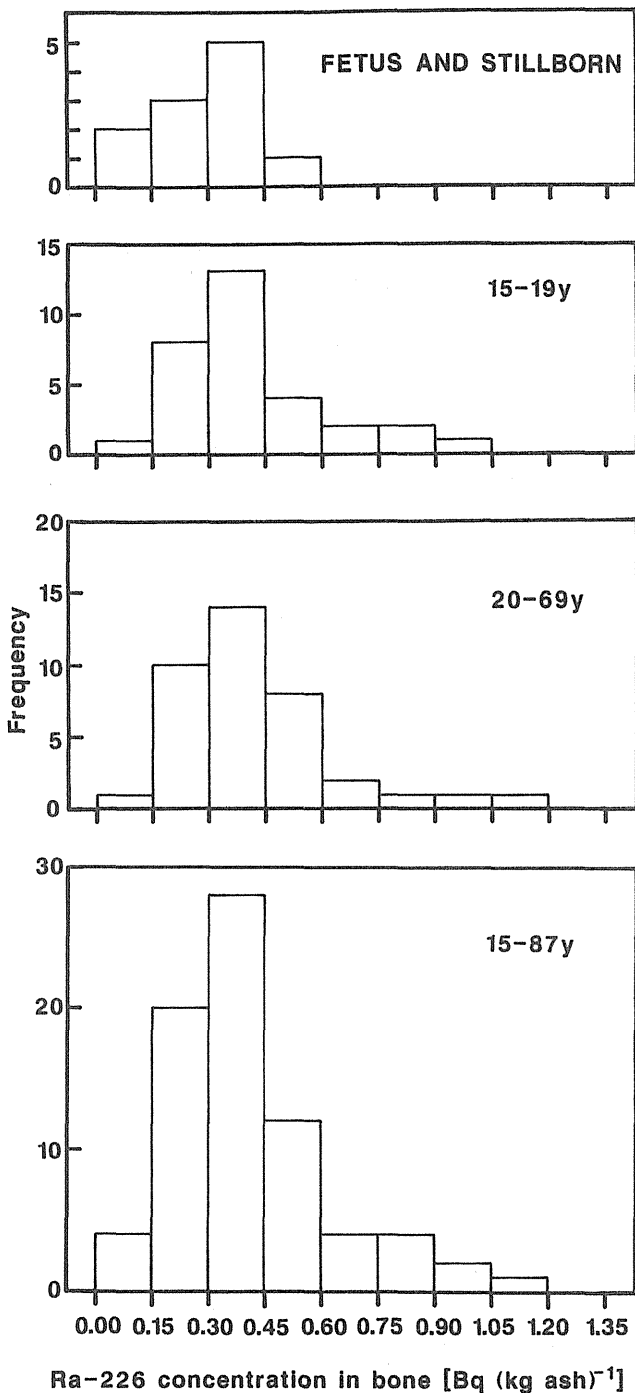


Fig. 4. Frequency distribution of bone ²²⁶Ra concentrations in different age groups.

Table 6. Content of ²²⁶Ra in bone of different age groups.

Age group	Sex	Number analyzed	²²⁶ Ra concentration [Bq(kg ash) ⁻¹]	
			Arithmetic mean ± s.d.	Geometric mean s.d.
Fetus and stillborn	Male and female	11(81 ^a) ^b	0.29 ± 0.13	0.26 1.62
Child (0.4-9y)	Male and female	3(23 ^a)	0.53 ± 0.14	0.51 1.31
Teen (15-19y)	Male	18	0.45 ± 0.24	0.40 1.68
	Female	13	0.37 ± 0.15	0.31 1.51
	Both	31	0.40 ± 0.21	0.36 1.63
Adult (20-69y)	Male	23	0.41 ± 0.17	0.33 1.74
	Female	15	0.45 ± 0.28	0.39 1.83
	Both	38	0.42 ± 0.22	0.35 1.77
All ages above 14y (15-87y)	Male	46	0.41 ± 0.21	0.35 1.72
	Female	29	0.41 ± 0.23	0.36 1.70
	Both	75	0.41 ± 0.22	0.35 1.70

^a Total number in pooled samples.

^b Excluding one outlier.

脊椎骨の平均濃度および標準日本人の骨灰分重量2.43kgから推定し結果は、 $1.0 \pm 0.5\text{Bq}$ または重量単位で $27 \pm 14\text{pg}$ であった。この値は、ICRP 標準人の含有量に近い¹³⁾。

4) ²²⁶Raの食餌から骨への移行係数

また、食餌中の²²⁶Ra摂取量が得られたので¹⁰⁾、別に求めたCa摂取量を用いて食餌-骨間の移行率いわゆるO. R.値を求めると、

$$\text{Ra-Ca O. R.}_{\text{bone-diet}} = 0.021$$

となり、大野らのRa-Ca O. R._{bone-diet}の値0.016-0.019と近かった^{R3)}。

一方、母親の食餌から胎児骨への移行に関するO. R.値は、

$$\text{Ra-Ca O. R.}_{\text{fetal bone-mother's diet}} = 0.017$$

と推定された。以上の結果をSrの移行率すなわちSr-Ca O. R._{bone-diet} 0.12 および Sr-Ca O. R._{fetal bone-mother's diet} 0.055と比較すると興味深い^{R7, 8)}。すなわち、Raのそれぞれの移行率はSrに対して1/5および1/3であり、最近のアルカリ土類の代謝に関する諸モデルとの対応が次の課題である。

3) 標準日本人の生理的特性

ICRP Publication 23では、元素の摂取量は、生理的データのひとつに分類されている^{R2)}。超微量元素の摂取量に関しては、データがほとんど無いといってよく、新しい適切な高感度分析法の応用が待たれていた分野である。ICP-AESおよびICP-MSによるBiなどを含む微量元素の日常食からの摂取量を検討した^{14, 15)}。U, ThおよびRaの日本人における摂取量については前述した。

アジア地域のなかで日常食からの元素摂取量を比較してみると、フィリピンのマニラ地区対日本では全般的に前者の摂取量がやや小さい傾向がみられた¹⁶⁾。重要なミネラル

の代表であるCaに対する各元素の相対摂取量をみると、両者で類似した傾向が認められる。いっぽう、ICRP標準人データを用いて欧米人と比較すると、アジア人の元素摂取パターンの特徴がわかると考えられる。安定元素の摂取量は、ヨウ素の場合のように放射性核種の体内沈着に影響を及ぼす可能性があるばかりでなく、それが食品構成（農産物、酪農製品、水産物等）を反映しており、放射性核種の移行経路の把握のためにも重要である。

4) 標準日本人の全身モデルおよび1、5、10および15歳の器官重量

線量算定の基本と成る人体モデルを確立するため、正常日本人の体格・器官重量等の特性と国民栄養に関する検討が、田中によりICRP標準人改定タスクグループの活動と

関連して、精力的に進められてきた^{8, 9, 17)}。最近の成果として、日本人成人男子の114器官・質量の重要および組成が設定された（表7参照）⁹⁾。また、その基礎となった正常日本人の主要器官の質量と大きさならびにその国民栄養の状態との関連が解析された⁹⁾。1、5、10および15才および成人の器官重量の標準値が検討された^{8, 9)}。

正常日本人の系統的なデータにもとづく標準日本人のデータは、日本人の線量計算のためのファントムにとって不可欠となっている。また、進行中のICRP標準人改定タスクグループの活動に寄与しているばかりでなく、IAEA-RCAアジア人に関する調整研究においても中心的データとなっている。

Table7. Some physical properties of Japanese Reference Man as compared with those of ICRP Reference Man for Caucasians.

Organ, tissue, component	Japanese			Caucasian		
	(g)	Sp. Gr	(g)	Organ, tissue, component	Japanese (g)	Caucasian Sp. Gr (g)
1 Total body	60000	1.06	70000	67 Lung*	1100	1.05 1000
2 Adipose tissue	11000	0.92	15000	73 Lymph nodes (dissectible)*	220	250
3 Subcutaneous (hypodermis)*	5500	0.92	7500	74 Miscellaneous*	2612.1	2953.1
4 Other separable (omentum etc)*	3700	0.92	5000	77 Muscle (skeletal)*	24600	1.04 28000
7 Adrenals (2)*	14	1.02	14	78 Nails (20)*	3	1.30 3
8 Aorta*	90		100	79 Pancreas*	130	1.05 100
9 Contents*	(170)	1.06	(190)	80 Parathyroid (4)*	0.12	1.05 0.12
10 Blood	4800	1.06	5500	81 Pineal*	0.18	1.07 0.18
13 Blood vessels*	180		200	82 Pituitary*	0.6	1.05 0.6
14 Contents* (except aorta and pulmonary)	(2500)	1.06	(3000)	83 Prostate*	14	1.05 16
15 Body fat	10000	0.92	13500	84 Salivary glands (6)*	82	1.05 85
18 Body water	37000	1.00	42000	88 Skeleton*	8300	1.40 10000
21 Cartilage	1000	1.10	1100	89 Bone	4500	2.20 5000
26 Separable connective tissue*	1400	1.20	1600	90 Cortical	3600	1.85 4000
27 Central nervous system*	1500		1430	91 Trabecular	900	1.08 1000
28 Brain	1470	1.03	1400	92 Red marrow	1000	1.03 1500
32 Spinal cord	30	1.03	30	93 Yellow marrow	1000	0.98 1500
33 Contents (cerebrospinal fluid)*	(110)	1.01	(120)	96 Skin*	2400	1.10 2600
34 Eyes (2)*	15		15	100 Spleen*	140	1.06 180
35 Lenses (2)	0.4	1.10	0.4	101 Teeth (32)*	45	2.10 46
36 Gall bladder*	8		10	105 Testes (2)*	37	1.04 35
37 Contents (bile)*	(50)	1.03	(62)	106 Thymus*	33	1.03 20
38 GI tract*	1100	1.04	1200	107 Thyroid*	19	1.05 20
39 Content (food plus digestive fluids)*	(950)		(1005)	108 Tongue*	67	70
61 Hair*	25	1.30	20	109 Tonsils (2 palatine)*	4	4
62 Heart*	360	1.03	330	110 Trachea*	9	1.08 10
63 Contents (av.)*	(400)	1.06	(500)	111 Ureters (2)*	14	16
64 Kidney (2)*	320	1.05	310	112 Urethra*	9	10
65 Larynx*	27	1.08	28	113 Urinary bladder*	40	45
66 Liver*	1600	1.05	1800	114 Contents (urine)*	(102)	1.02 (102)

*) Asterisked quantities make up the total weight; parentheses indicating contents.

5) 食餌からの²³²Thおよび²³⁸Uの摂取による線等当量

日本人成人男子の日摂取量の平均値²³²Th 1.7mBq/p/dと²³⁸U 8.8mBq/p/dを日本人の代表値とし、IDESを用いて全荷重預託線量当量を求めた¹⁰⁾。胃腸管内の元素吸収係数が問題となるが、化学形を水溶性と考え、安全側のf₁値(²³²Th 0.004および²³⁸U 0.05)を用いた。計算結果は表8に示す。例えば²³⁸Uの場合、ICRP標準人では単位Bq当たり全荷重預託線量当量は0.07μSv/Bqと計算されるが、日本人の体格パラメータに対しては0.08μSv/Bq(成

人)となった。1日の摂取量8.8mBqから求めた年摂取量に対する線量当量は0.3μSvと計算された。同様に、²³²Thでは1.7mBq/p/dの摂取量から、0.4μSvが推定された。他の年齢群については摂取量が一定として同様に処理したところ、低年齢ほど線量は高くなった。

6) 骨中の²²⁶Raの赤色骨髄等に対するアルファ線の線量当量

標準日本人のデータに関しては、骨中濃度からの核変換数の計算には骨皮質および骨梁の重量のおおの3,600gお

Table 8. Total weighted committed dose equivalent (WCDE) and annual dose equivalent (ADE) by ingestion for five age groups in Japanese calculated by using IDES.

Age group	²³² Th		²³⁸ U ^a	
	WCDE(Sv/Bq) ^b	ADE(Sv/y) ^c	WCDE(Sv/Bq)	ADE(Sv/y)
1 year ^d	3E-06	2E-06	4E-07	1E-06
5 years ^d	2E-06	1E-06	2E-07	7E-07
10 year ^d	1E-06	7E-07	1E-07	4E-07
15 years ^d	7E-07	4E-07	9E-08	3E-07
Adult ^d	7E-07	4E-07	8E-08	3E-07
Reference Man ^d	5E-07	3E-07	7E-08	2E-07
Reference Man ^e	7.4E-07	4.5E-07	6.3E-08	2.0E-07

- a) The value of gut absorption ($f_1=0.05$) was used.
b) Total of weighted committed dose equivalent in targets per unit intake, Bq.
c) Annual dose equivalent.
d) Obtained by IDES. e) Data from ICRP Publ. 30.

Table 9. Specific effective energies (SEE) for alpha particles emitted from ²²⁶Ra and its daughters for Japanese Reference Man; figures in parentheses being for ICRP Reference Man (MeV g⁻¹ per nuclear transformation).

Nuclide	Alpha energy (MeV)	Σ SEE(BS←T.B.) _i	Σ SEE(BS←C.B.) _i	Σ SEE(RM←T.B.) _i
²²⁶ Ra	4.785 (94.4%)	0.0243	0.00972	0.00486
	4.602 (5.55%)	(0.0203)	(0.00810)	(0.00324)
²²² Rn	5.490	0.0280 (0.0233)	0.0112 (0.0093)	0.00559 (0.00373)
²¹⁸ Po	6.003	0.0306 (0.0255)	0.0122 (0.0102)	0.00611 (0.00408)
²¹⁴ Po	7.687	0.0392 (0.0327)	0.0157 (0.0131)	0.00784 (0.00523)
²¹⁰ Po	5.297	0.0270 (0.0225)	0.0108 (0.00901)	0.0054 (0.0036)

Table 10. Annual dose equivalents from α radiation from ²²⁶Ra and daughters in bone of the adult (20-69 y), μ Sv y⁻¹, as estimated from the median and mean ²²⁶Ra concentrations.

Dosimetric model for bone	²²⁶ Ra		²²⁶ Ra and daughters	
	Cells near bone surfaces	Red marrow	Cells near bone surfaces	Red marrow
ICRP 30 (1979) with Japanese Reference Man	53(64 ^a)	3.9(4.6)	145(173)	10(13)
Harley and Fisenne (1990)	Marrow 10 μ m from trabecular bone surfaces ^b			
	20(24)		84(100)	

- ^a Figures outside and inside parentheses are for the median [0.35 Bq (kg ash)⁻¹] and mean [0.42 Bq (kg ash)⁻¹] ²²⁶Ra concentration, respectively.
^b Original dose conversion factors in μ Gy were multiplied by 20 (QF).

よび 900 g を、また比実効エネルギー (SEE) の算出には赤色骨髄 1,000 g、骨表面の細胞 100 g を用いた⁹⁾。求められた SEE の値を ICRP 標準人について計算した結果と比較して表 9 に示した。成人骨中の ²²⁶Ra 濃度の中央値 0.35Bq/kg 灰分 (または平均値 0.42Bq/kg 灰分) から、Ra およびその娘核種のアルフア線から日本人成人男子の受ける年線量当量の合計は、赤色骨髄および骨表面の細胞に対して、それぞれ 10 (または 13) μ Sv および 145 (または 173) μ Sv となった (表 10 参照)。これらの値を ICRP 標準人の器官重量をそのまま用いた結果と比較すると、赤色骨髄で 35% および骨表面の細胞で 8% 大きい。つまり、ICRP 標準人のデータで器官線量の算定を行うと、過小評価が起きることになる¹³⁾。

一方、Fisenne は、Harley と Pasternack の算定法により ²²⁶Ra の世界 23ヶ国の人口加重メディアン濃度を用いて、骨梁の表面から 10 μ m の距離にある骨髄が一年間に受けるアルファ線吸収線量を 4 μ Gy (線量当量で 80 μ Sv) と報告している¹⁶⁾。同一の方法で求めた日本人の成人の年吸収線量は 4.2 μ Gy (84 μ Sv) であり、世界の平均レベルに近かった (表 10)。

4. 結論

1) 食品-人体系における Th, U, Ra の摂取と Ra の体内量につき、最新の機器分析法 (ICP-MS) および分離濃縮-アルファ-スペクトロメトリーの新しい方法などを駆使して日本人の代表的データを取得した。
2) ²³²Th、²³⁸U および ²²⁶Ra の摂取量について、全国的規模で採取された食餌試料を分析し、日本人の代表的摂取を推定することができた。他にも研究すべき重要な自然放射性核種や人工放射性核種が残っており、また食品群別の核種分析も放射線防護の観点から検

討すべき問題である。

3) ^{226}Ra について、従来データの無かった東京地区の骨中濃度を明らかにし、文献値を含めて日本人の代表値に近づいた。食餌から骨への移行係数(O. R. 値) が求められ、赤色骨髄等に対する骨中 ^{226}Ra からのアルファ線線量当量を標準日本人に対して算定した。

4) 標準日本人の成人男子の全身114器官・組織の質量および体組成の一部の値が設定され、1, 5, 10, 15才の器官質量の標準値が検討された。これらの値は、線量算定モデルの基礎的パラメータとして寄与するものである。

5) 今後の問題として、実際環境における食品から人体へのアクチノイド核種の移行・蓄積の研究をさらに進めて、ICRP等の代謝モデルおよびパラメータの検証を行う必要がある。そのなかで、線量推定の点から、新しいICRPの内容も考慮しながら、日本人についての摂取・吸収時の化学形と f_1 の値の問題を解決する必要がある。

[参考文献]

- R1) International Commission on Radiological Protection: Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Part 1, *Ann. ICRP*, 2, (3/4), 1979 および Part 2, *ibid.*, 4 (3/4) 1980 ほか..
- R2) International Commission on Radiological Protection: Report of the Task Group on Reference Man. *ICRP Publication 23*, Pergamon Press, Oxford, 1975.
- R3) Ohno, S. and Watanabe, H. : Measurement of radium-226 in bone of Japanese people. *Radioactivity Survey Data in Japan*, 15, 12-13, 1967. および、大野茂 : 低レベル放射性核種-環境から人体へ. 放射線科学, 32, 367-372, 1989.
- R4) Gladney, E. S., O'Mally, B. T., Roelandt, I. and Gills, I. E. : Compilation of elemental concentration data for NBS clinical, biological, geological, and environmental standard reference materials. *NBS Special Publication 260-111*, 1577(1)-1577(28), 1987.
- R5) 本郷昭三, 山口寛, 竹下洋 : 乳幼児のための実効線量当量の試算, 第11回放医研環境セミナー報文集 NIRS-M-55, 1985, 33.
- R6) Fisenne, I. M., Keler, H. W. and Harley, N. : Worldwide measurement of ^{226}Ra in human bone : Estimate of skeletal α dose. *Health Phys.*, 40, 163-171, 1981.
- R7) Tanaka, G., Kawamura, H. and Nomura, E. : Reference Japanese Man-II. Distribution of strontium in the skeleton and in the mass of mineralized bone, *Health Phys.*, 40, 601-614, 1991.
- R8) Kawamura, H., Tanaka, G. and Shiraishi, K. : Distribution of strontium in the fetal skeleton. *Health Phys.* 50, 159-162, 1986.
- R9) Tanaka, G. : Reference Japanese Vol. 1, Anatomical Data, *Safety Analysis Report*, NIRS-M-85, 1992.

[研究発表]

- 1) Kawamura, H., Igarashi, Y. and Shiraishi, K. : Determination of Th and U in bone ash by ICP-ion

source mass spectrometry. *J. Radional. Nucl. Chem., Articles*, 138, 103-109, 1990.

- 2) Igarashi, Y., Kawamura, H. and Shiraishi, K. : Determination of thorium and uranium in biological samples by inductively coupled plasma mass spectrometry using internal standardization. *J. Anal. At. Spectrom.*, 4, 571-576, 1989.
- 3) Shiraishi, K., McInroy, J. F. Igarashi, Y. : Simultaneous multielement analysis of diet samples by inductively coupled plasma mass spectrometry and inductively coupled plasma atomic emission spectrometry. *J. Nutr. Sci. Vitaminol.*, 36, 81-86, 1990.
- 4) Shiraishi, K., Takaku, Y., Yoshimizu, K., Igarashi, Y., Masuda, K., McInroy, J. F., and Tanaka, G. : Determination of thorium and uranium in total diet samples by inductively coupled plasma mass spectrometry. *J. Anal. At. Spectrom.*, 6, 335-338, 1991.
- 5) 五十嵐康人, 白石久二雄, 高久雄一 : 環境放射能分野への誘導結合プラズマ物質分析の応用. *Radioisotopes*, 40, 42-52, 1991.
- 6) Yamamoto, M., Kawamura, H., Igarashi, Y., Shiraishi, K. and Ueno, K. : Measurement of low-level ^{226}Ra in human bone by using ^{226}Ra tracer and alpha-spectrometry: approach without use of Ba carrier. *Radiochim. Acta*, 55, 163-166, 1991.
- 7) 山本正儀 : 環境アルファ核種の定量法と存在量について. 環境と公衆の安全のためのアプローチ-放射性核種の生体移行・代謝・線量推定-. 放医研環境セミナーシリーズ No. 20, *NIRS-M-93*, 1993, 106-122.
- 8) Tanaka, G., Nakahara, Y. and Nakajima, Y. : Japanese Reference Man 1988-IV. Studies on the weight and size of internal organs of normal Japanese. *医学放射線学会誌*, 49, 344-364, 1989.
- 9) Tanaka, G. : Japanese Reference Man 1988-III. Masses of Organs and tissues and other physical properties. *日本医学放射線学会誌*, 48, 509-513, 1988.
- 10) Shiraishi, K., Nishimura, Y., Hongo, S., Yamaguchi, H., Yamamoto, M. and Yoshimizu, K. : Internal dose estimated from the intakes of Ra-226, Th-232 and U-238 by Japanese using the internal dose estimation system (IDES), *Proceedings of International Conference of Radiation Effects and Protection*, held in Mito, March 18-20, 1992, 413-416.
- 11) Inn, K. G. W., Liggett, Jr., W. S., Volchok, H. L., Feiner, M. S., McInroy, J. F., Popplewell, D. S., Percival, D. R., Wessman, R. A., Bowen, V. T., Livingston, H. D., Kathren, R. L. and Kawamura, H. : Interlaboratory comparison of actinides in human tissue- ^{239}Pu and ^{240}Pu . *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 138, 219-229, 1990.
- 12) Shiraishi, K., Igarashi, Y., Takaku, Y., Masuda, K., Yoshimizu, K., Yoshimizu, K., Nishimura, Y., Hongo, S., and Yamaguchi, H. : Daily intakes of ^{232}Th and ^{238}U in Japanese Males. *Health Phys.*, 63,

- 187-191, 1992.
- 13) Kawamura, H., Yamamoto, M., Igarashi, Y., Shiraishi, K. and Ueno, K. : Naturally occurring ^{226}Ra concentrations in bone at various ages and α doses in adults. *Health Phys.* 61, 615-622, 1991.
 - 14) Shiraishi, K., Yoshimizu, K., Tanaka, G., and Kawamura, H. : Daily intake of 11 elements in relation to Reference Japanese Man. *Health Phys.*, 57, 551-557, 1989.
 - 15) Shiraishi, K., Yamamoto, M., Yoshimizu, and Igarashi, Y. : Behavior of trace radioactive elements and other stable elements in Japanese diet. *The Proceedings of ISTERN 3rd Inter. Conf. and NTES Nordic Conf. on "Trace Elements in Health and Disease"*, Stockholm, 1992, 39.
 - 16) de Leon, G. C., Shiraishi, K., Kawamura, H., Igarashi, Y., Palattao, Ma. V. and Azanon, E. A. : Elemental composition of Philippine total diet samples. *Philipp. Nucl. J.* 7, 29-39, 1990.
 - 17) 田中義一郎 : 標準日本人、保健物理, 25, 49-60, 1990.

2-2 放射性物質の年齢群別体内代謝

西村 義一、武田 洋、湯川 雅枝 (環境衛生研究部)
稲葉 次郎 (内ばく研究部)、上島 久正 (養成訓練部)
市川 龍資 (特別研究員)

Experimental Study on Biokinetics of Radionuclides in Age Groups.

Yoshikazu NISHIMURA, Hiroshi TAKEDA, Masae YUKAMA, Jiro INABA*,
Hisamasa JOSHIMA** and Ryushi ICHIKAWA***

Division of Environmental Health, *Division of Comparative Radiotoxicology

Training School, *Senior Research Counselor

Abstract

In the aftermath of the Chernobyl accident, it becomes evident that dose coefficients for members of the public are necessary. International Commission on Radiological Protection (ICRP) established a task group of Committee 2 charged with the assessment of dose coefficients as a function of an individual's age. However, little data is available on the biokinetics of radionuclides in juvenile and is a need to develop age-dependent biokinetic models, such as for the gastrointestinal tract. The present paper reviewed an outline on characteristics of biokinetics of radionuclides in juvenile animals focusing on the previous experimental data. The following radionuclides are discussed: ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{75}Se , ^{106}Ru , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{115}Cd , ^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{203}Hg and ^3H . Generally, intestinal absorption and whole-body retention of ra-

dionuclides in juveniles were higher than that of adult. In the case of sucklings, it is very important to study how radionuclides are transferred through the placenta and milk. The transfer rate of radionuclides through the placenta and milk is dependent on the period of gestation at the time of dosing.

The IDES (Internal Dose Estimation System) which is based on the ICRP model was used for dose calculation. We modified the IDES using the biokinetic data which was gained by animal experiment. The IDES is flexible because the absorbed dose can be calculated by substituting arbitrary physical and physiological parameters and also substituting ingested dose coefficients not only for the ICRP Reference Man, but also for Japanese of 1 year old, 5 years old, 10 years old, 15 years old and the adult, respectively.

1. 緒言

ICRPは1979年に「作業者による放射性核種の年摂取限度 (ALI)」を勧告したが¹⁾、これは成人の、しかも職業人を対象としたものであり、一般公衆への適用にあたっては多くの論議があった。職業人と公衆の線量評価で最も異なる点は公衆が乳幼児、広い意味では胎児から老人まできわめて幅広い年齢から構成される。という点である。とくに乳幼児においては生理機能、物質代謝が成人とは異なっているため、線量評価の際に単に体重、臓器の大きさ、呼吸量といった因子のみを縮小した形で適用するわけにはいかず、乳幼児の持つ代謝特性を十分に考慮する必要がある。本研究の目的は幅広い年齢層から構成される一般公衆の被曝線量評価のために、これまでに得られた放射性核種の代謝情報を整理するとともに、とくに代謝情報の少ない幼若年齢期の代謝特性を実験的に明らかにし、それらを考慮した年齢群別の線量係数を設定することである。

2. 年齢群別体内代謝と解析・線量評価

筆者らは乳幼児の線量評価を行なうために最も基本となる代謝パラメータを得るための動物実験を積み重ねている

が、ここでは γ 線放出核種を経口摂取した場合の年齢依存性についてこれまで行なってきた実験のデータをまとめ、乳幼児における放射性核種代謝の特性とその線量評価について述べる。また、乳幼児の線量評価を行う場合、母体胎盤や母乳からの寄与を見逃すことはできないため、母乳移行についての実験結果も示す。

種々の年齢のラットに放射性物質を投与し、ホールボディカウンタで全身残留率を調べると、残留曲線に一定の傾向があることがわかる。そしてほとんどの元素(核種)で幼若齢のラットほど全身残留率が高くなる年齢依存性が観察される。残留曲線から成熟ラットと乳幼児ラットの消化管吸収率を推定し比較すると、

- ①成熟ラットで消化管吸収率は低いが哺乳児でおよそ一桁高い元素
- ②成熟ラットで吸収率は高く哺乳児ではほぼ完全に吸収される元素
- ③哺乳児で消化管内の滞留がうかがわれる元素、の三つに大別される。

①のグループには、Co、Cd、Sb、Hg、②には Mn、Zn、Fe、③には Cr、Ru、Agなどの元素が含まれる。

但し、これは便宜的な分け方で、I、Cs、H、Cのように成人でも完全に吸収される元素や中間的なものもあるが、乳幼児と成人の体内挙動のおおよその傾向を捕まえておくことにより、緊急時には有益な情報を与えるものと考えられる。

図1～7に ^{60}Co (塩化物)、 ^{125}Sb (塩化物)、 ^{75}Se (亜セレン酸ナトリウム)、 ^{65}Zn (塩化物)、 ^{54}Mn (塩化物)、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (硫酸銀)、 ^{141}Ce (塩化物)について成熟ラットと乳幼児ラット(0-5日齢)における経口投与後の体内残留率の時間変化を示した^{2)~7)}。

一方、同じ元素でも化学形の違いによってその代謝が異

なることが知られている。Coに関しては無機Coとその有機体であるシアノコバラミン(ビタミン-B₁₂)ではその吸収率、分布、生物学的半減期が全く異なる。実際に食物連鎖を想定し、 ^{60}Co 塩化物を添加した海水や培養液中等でクロレラ、アオサ、メダカを飼育するとこれらの体内でビタミン-B₁₂類縁物質が合成され、これをラットに経口投与すると体内残留率が著しく高くなることを筆者らは確かめている⁸⁾。また、Ruにおいても化学形の違いによる代謝の違いは顕著で、塩化物よりもニトロシル化合物での吸収率が一桁ほど高い。ICRP Publ. 56 Part 2 (ドラフト)ではCoに関しては化学形を考慮し、成人についての消化

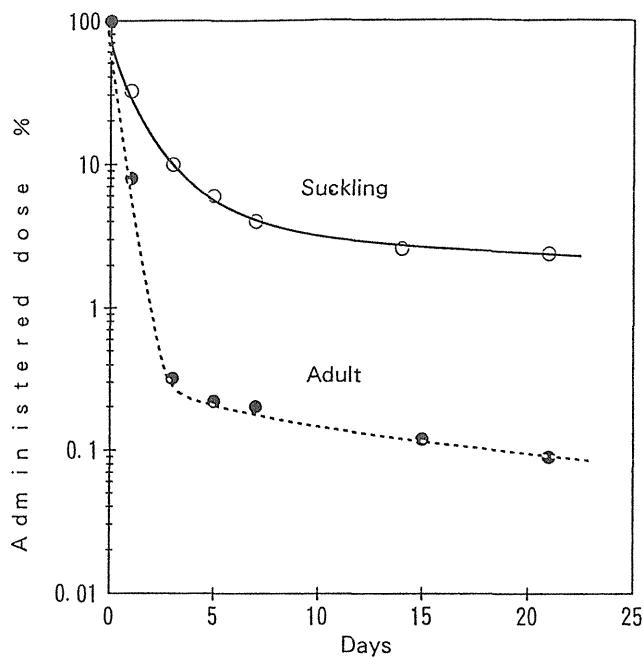


Fig. 1 Whole-body retention of ^{60}Co -chloride in rats after a single oral administration.

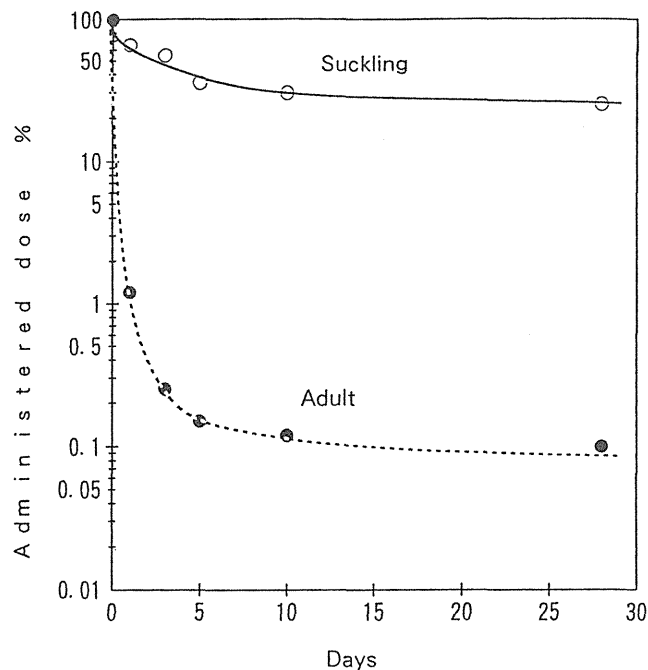


Fig. 2 Whole-body retention of ^{125}Sb -chloride in rats after a single oral administration.

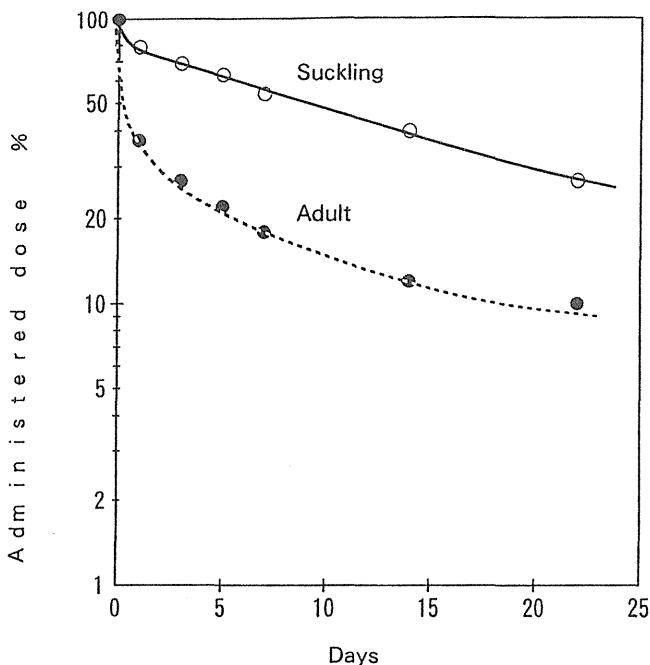


Fig. 3 Whole-body retention of $\text{Na}_2^{75}\text{SeO}_3$ in rats after a single oral administration.

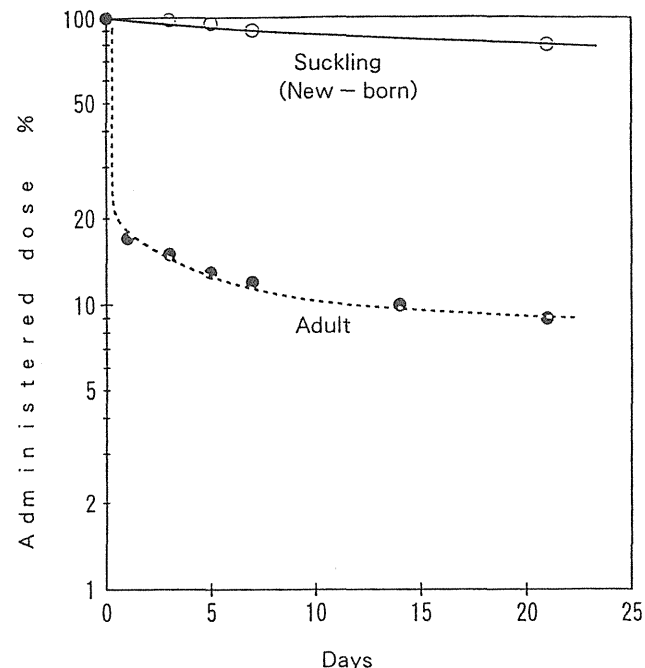


Fig. 4 Whole-body retention of ^{65}Zn -chloride in rats after a single oral administration.

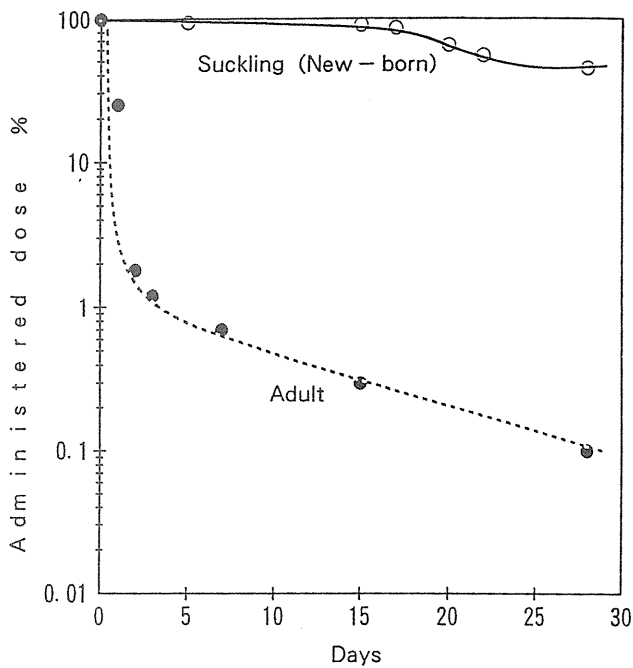


Fig. 5 Whole-body retention of ^{54}Mn -chloride in rats after a single oral administration.

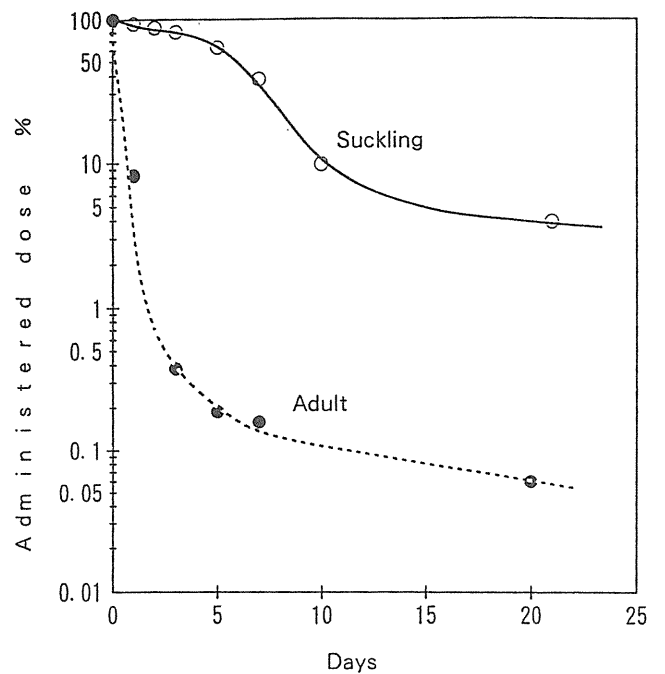


Fig. 6 Whole-body retention of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ -nitrate in rats after a single oral administration.

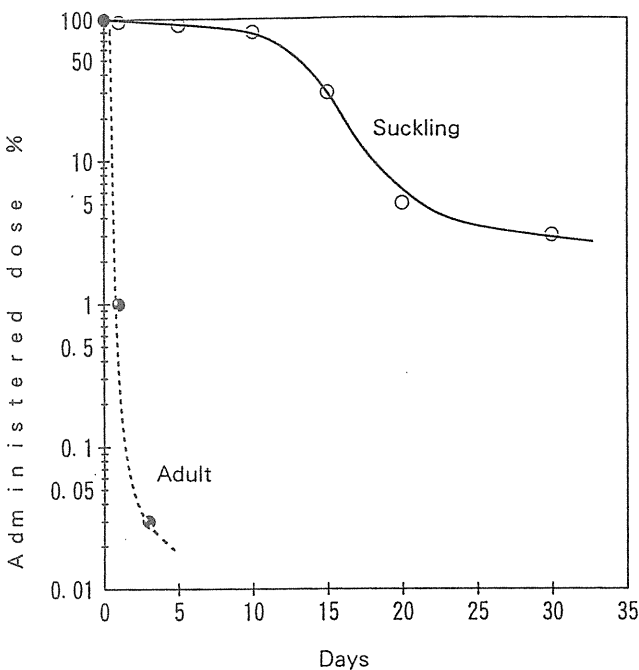


Fig. 7 Whole-body retention of ^{141}Ce -chloride in rats after a single oral administration.

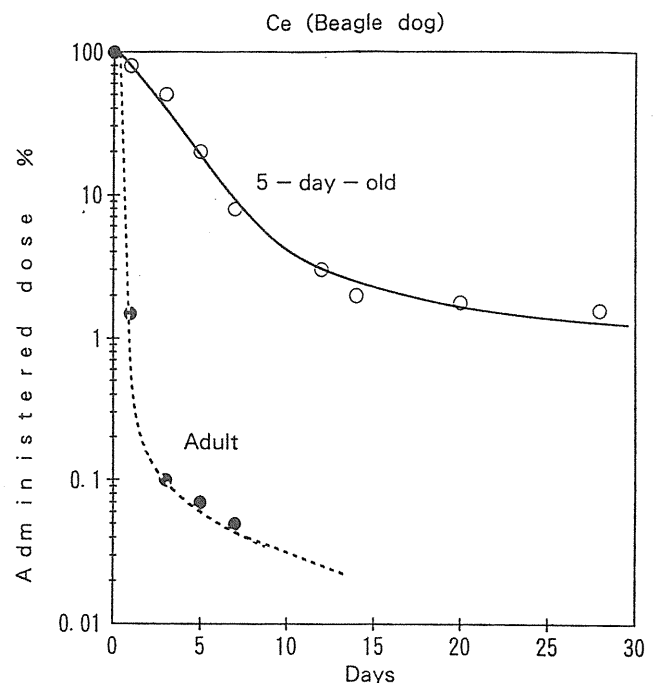


Fig. 8 Whole-body retention of ^{141}Ce -chloride in beagle dog after a single oral administration.

管吸収率 (f_1) を 0.3、乳幼児で 0.6 という値を用いているが、多くの核種において食品中の化学形に関しては不明な点が多く、精度の高い線量評価を行なうためには、この情報を得ることが不可欠である。また、核種によっては動物差、種差も観察される。例えばラットに Ce を経口投与した時観察される上に凸の特徴的な残留曲線は哺乳ビーグル犬を用いた実験では認められていない⁹⁾ (図 8)。これは消化管吸収に大きく係わっている小腸上皮細胞の貧食能の違いが大きく関与しているものと推測されるが、種差、動物差についてはさらに詳細な検討が必要である。

乳幼児は胎盤経由、あるいは分娩後は汚染母乳を摂取す

ることにより体内被曝を引き起こす可能性がある。一般的には妊娠後半期に母体が摂取した場合の方が胎盤および母乳を経由して放射性物質が乳幼児に移行しやすい。母乳からの放射性物質移行を観察するには RI を投与した母親と無投与の母親との間で分娩と同時に子供の半数を交換して哺育させるフォスターマザー法がしばしば用いられる。図 9、10 にチェルノブイリ事故後のフォールアウトでも検出され、代謝情報も少ない $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と、成熟ラットでの消化管吸収率の高い ^{65}Zn について、分娩前日の妊娠ラットに静脈内投与したときの新生児への移行データを示した。一般的に亜鉛、セレンなど吸収率の高い核種では胎盤およ

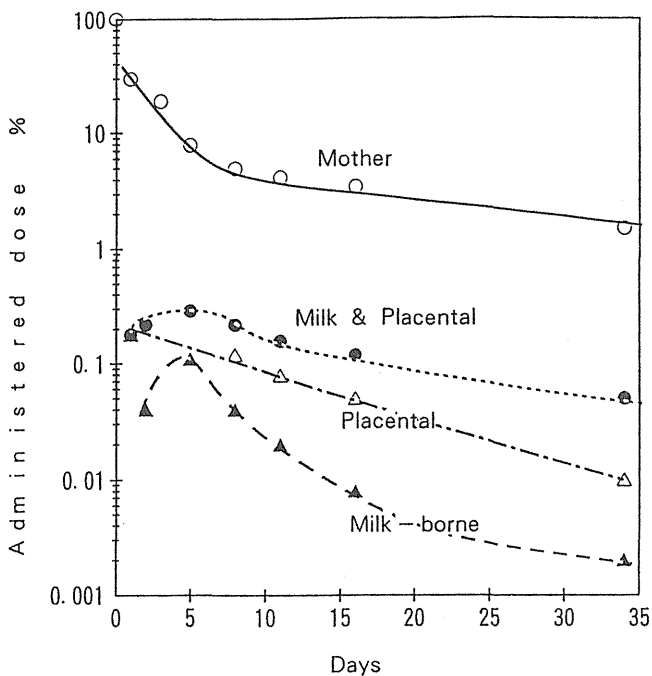


Fig. 9 Whole-body retention of ^{110m}Ag -nitrate in 21-day pregnant rats after a single intravenous administration.

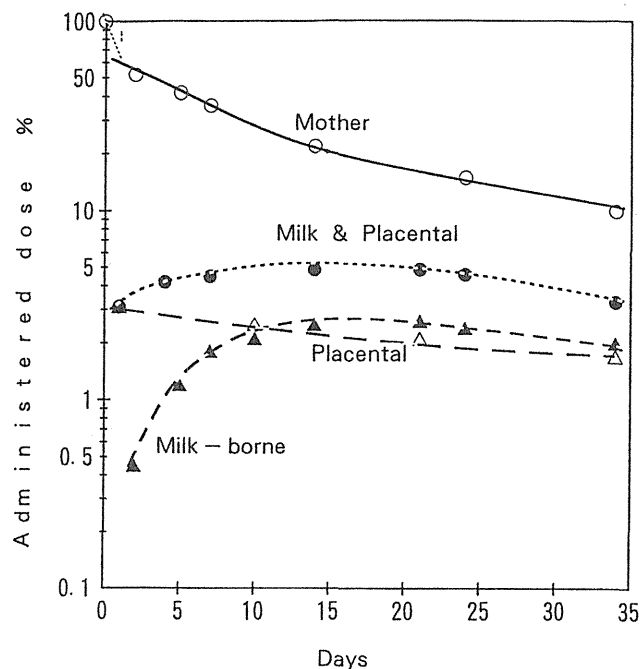


Fig. 10 Whole-body retention of ^{65}Zn -chloride in 21-day pregnant rats after a single intravenous administration.

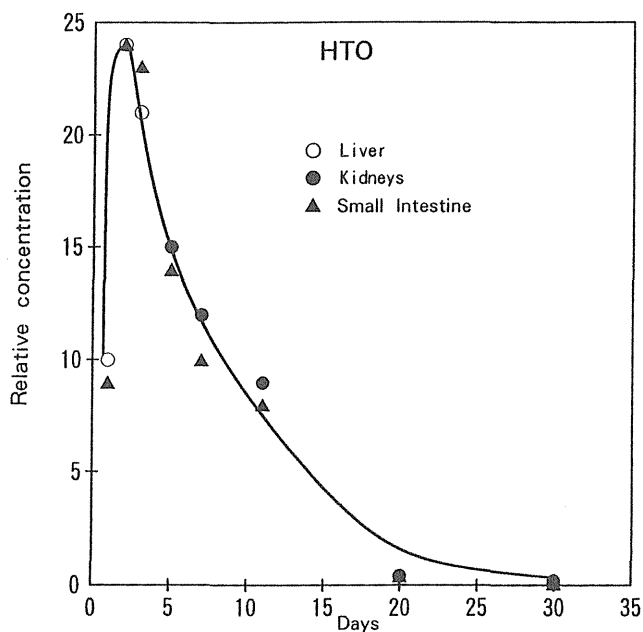


Fig. 11 Relative concentration of ^3H in tissues of sucklings. HTO was administered orally to mother rats after parturition.

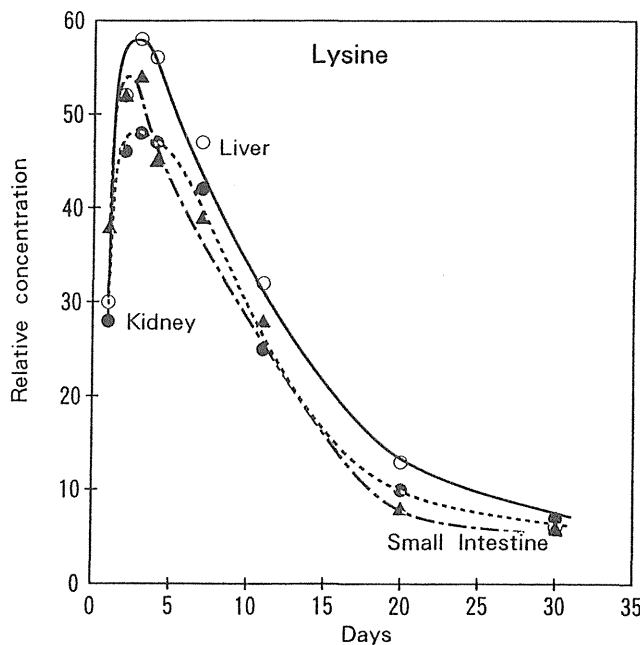


Fig. 12 Relative concentration of ^3H in tissues of sucklings. ^3H -Lysine was administered orally to mother rats after parturition.

び母乳を経由しても新生児へ移行しやすい傾向にあり、亜鉛では胎盤および母乳由来の移行量をあわせると一腹あたりで70%以上に達し、母体の保持量を越えてしまう。

武田らは ^3H -リジンおよびHTOを分娩直後のラットに経口投与し、これらのトリチウム化合物の新生児臓器への移行を観察し、脳や血液を除き、測定に供した各臓器間で両化合物とも相対濃度差がきわめて小さかったことを報告している¹⁰⁾ (図11、12)。そこで、臓器間の相対濃度差が小さいことから、これらのトリチウム化合物が肝臓の相

対濃度の値で全身に均等に分布するものと仮定し、新生児への移行量に換算した。すると、リジンでは授乳期間中に母親の投与量の約2%が母乳を介して新生児一匹あたりに移行するものと推定された。実験に用いたウィスター系ラットの平均産仔数は12匹で、一腹あたりに換算すると投与量の20数%が母乳から新生児に移行することになる。また、リジンは離乳後もほとんど代謝されずに体内に留まることがわかった。これに対してHTOの母乳から新生児への移行量はリジンの約1/4で、成長と共に急激に代謝さ

れる傾向がうかがわれ、化学形の違いにより代謝は異なるものの母乳から新生児への寄与が無視できないものであることが明らかになった(図13)。

実験動物からヒトへの外挿は常に問題となるが、ヒトでのデータが得にくいため動物実験から推定せざるを得ない場合の方が多い。そこで今回の動物実験で得られた結果を本郷らが開発した体内被曝線量計算システム(IDES)に適用し、乳幼児の体内被曝線量を計算した。IDESはICRPのモデルが基本となっているが、ICRP標準人のほか日本人の標準(成人)、15才、10才、5才および1才の体格データが組み込まれており、代謝パラメータをえることによりそれぞれの年齢の日本人の体内被曝線量が計算できるように構成されている。線量の数値は信頼性にも

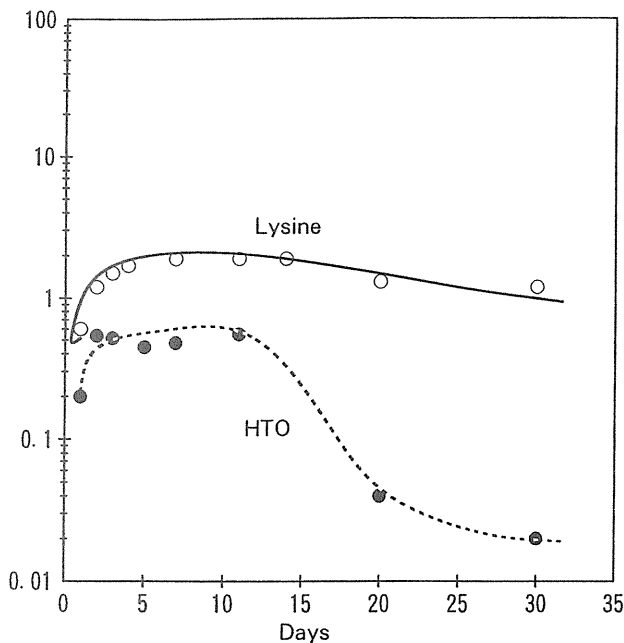


Fig. 13 Milk transfer of HTO and Lysine from mother to new-born rats after a single oral administration.

かかわるため慎重に取り扱わなければならないが、ここでは一例として⁶⁵Znについて線量係数を試算したものを表1に示した。図14は亜鉛の代謝モデルを模式化したもので、亜鉛では[1] 幼若齢のラットほど消化管吸収率が高くなる顕著な年齢依存性が認められること、[2] Publ. 30で与えている f_1 と成熟ラットでの実験結果がよく一致していること、[3] 感度解析の結果、消化管吸収率の感度が最も高かったこと、などの理由により、線量係数の試算にあたっては f_1 のみを変更した。

また、IDESには感度解析、堅固度解析プログラムも含まれており、それぞれのグループの代表的な核種について感度解析を行なうと、消化管吸収率、生物学的半減期、胃腸管の通過時間などが体内被曝線量に影響を及ぼす大きな要因となっていることがわかる。感度解析や堅固度解析を行なうことは被曝防護、被曝低減化の観点からも重要な意味を持つ。すなわち、線量に大きな影響を与える因子を減弱することにより被曝低減化につながる。具体的には消化管吸収率の高い核種に関してはその核種に有効な吸収抑制剤を用いて消化管吸収を抑制する。また、胃腸管の通過時間、停滞時間が大きなファクターとなっている核種に関

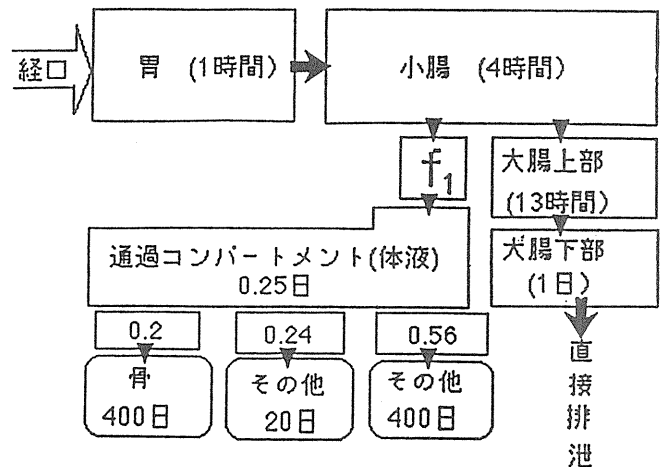


Fig. 14 Biokinetic model of Zn (ICRP Publ. 30)

Table-1 Ingestion Dose Coefficients [Dose Equivalents (Sv/Bq) to age at 50 years] for ⁶⁵Zn.

f_1	0.5	0.5	0.5	0.6	0.8	1
標的器官	ICRP 標準人	日本人成人	15歳	10歳	5歳	1歳
副腎	2.5E-10	3.1E-10	3.3E-10	5.5E-10	1.1E-09	2.0E-09
小腸壁	2.7E-10	3.2E-10	3.3E-10	5.6E-10	1.1E-09	2.0E-09
大腸上部壁	2.7E-10	3.2E-10	3.3E-10	5.6E-10	1.1E-09	2.0E-09
大腸下部壁	3.1E-10	3.8E-10	3.8E-10	6.4E-10	1.2E-09	2.1E-09
肺	3.8E-10	4.6E-10	4.6E-10	8.2E-10	1.6E-09	3.1E-09
生殖腺	9.3E-10	1.1E-09	1.1E-09	2.0E-09	4.0E-09	7.6E-09
甲状腺	9.9E-11	1.2E-10	1.2E-10	2.2E-10	4.3E-10	8.2E-10
子宮	2.9E-10	3.5E-10	3.5E-10	6.2E-10	1.2E-09	2.3E-09
乳房	3.5E-10	4.2E-10	4.2E-10	7.4E-10	1.5E-09	2.9E-09
赤色骨髄	4.6E-10	3.8E-10	3.9E-10	6.6E-10	1.3E-09	2.3E-09
骨表面	1.2E-10	1.4E-10	1.4E-10	2.4E-10	4.6E-10	8.2E-10
預託実効線量当量	3.7E-09	4.3E-09	4.4E-09	7.6E-09	1.5E-08	2.8E-08

(Sv / Bq)

して寫下剤などで胃腸管の通過時間を速めてやることで著しい被曝低減化を図ることができる。

3. 結 論

一般公衆、とくに乳幼児期における放射性核種の代謝、線量評価の研究は世界的にもそれほど多く行われているわけではない。チェルノブイリ原子力発電所事故を契機として一般公衆の被曝線量評価が急務となり、1989年にPubl. 56, Part 1として12元素の体内動態をまとめ、年齢群別の線量係数を公表した¹¹⁾。この作業は現在も続けられており、Part 2、Part 3と1990年勧告に基づいた年齢別の線量係数が公表される予定である。

我が国においては先年 Publ. 26 を取り入れた法改正がなされたばかりで、現行ではこの方式で線量評価を行なう必要があるが、将来は新勧告を取り入れた場合への対応策も必要になってこよう。Publ. 56 Part 1では代謝パラメータのうち、年齢群別に f_1 を変えているのは Sr のみで、あとは成人の f_1 が 0.01 から 0.5 までの元素の場合、3ヶ月齢児で成人の2倍、 f_1 が 0.01 以下の成人の10倍という値をとっている。また、Sr、Cs、I など一部の元素を臓器へ移行割合、生物学的半減期は乳幼児での情報がないために成人と同じ値を用いている。Publ. 56 で取り扱っている元素も乳幼児での代謝情報が限られているために必然的に少なく、体内動態モデルは関連情報がないため Publ.30 のモデルをそのまま用いている。しかし、一般に子供の胃腸管通過時間は短いものと考えられるため、胃腸管の線量を過大評価し、他の臓器の線量を過小評価しているなど、いくつかの問題が残っている^{12)~15)}。

胎児期を含めて乳幼児の線量評価の上で最も基本となる代謝情報が未だ十分に得られていない核種も多く、今後ともこれらのデータ取得のための動物実験を積み重ねていく必要がある。また、年齢群別食品摂取データ、化学形による代謝の違い、動物種差などに関しては未だ不明な点が多いため、動物実験からヒトへの外挿の問題も含めて総合的な研究を押し進めていく必要がある。さらに、組織荷重係数の年齢依存性に関してはほとんど情報が得られていないため、今後の大きな研究課題となつてこよう。

これらのパラメータを得るための研究と胎児被曝線量評価モデル、乳幼児のための体内動態モデルの構築さらには被曝低減化研究などを連動させていくことによって、精度の高い公衆の被曝線量評価、被曝防護が可能となる。

なお、本研究のまとめは第20回放射医研環境セミナーで発表した^{16) 17)}。

文 献

- 1) ICRP Publication 30 : Limits Intakes of Radionuclides by Workers. Pergamon Press, Oxford (1979)
- 2) Nishimura, Y., Inaba, J. and Ichikawa, R. : Whole-body retention of $^{60}\text{CoCl}_2$ and ^{57}Co -cyanocobalamin in young and adult rats. J. Rad. Res., 17 : 240-246

(1976)

- 3) 西村義一、稲葉次郎、松坂尚典、壇原 宏 : 幼若期・胎児期ラットにおけるセレン代謝の特性について、Biomed. Res. on Trace Elements, 2 : 11-19 (1991)
- 4) 西村義一、稲葉次郎 : マンガンの幼若期・胎児期における代謝特性に関する研究、日本衛生学会誌、38 : 764-771 (1983)
- 5) 西村義一、稲葉次郎 : ラットにおける ^{110m}Ag の体内動態に関する研究 (I)、(II) 日本保険物理学会第25回研究発表会 (1990)
- 6) Inaba, J., Nishimura, Y., Takeda, H. and Takahashi, S.: Placental transfer of cerium in the rat with special reference to route of administration. Radiat. Prot. Dosim., 41 : No2-4, 119-122 (1992)
- 7) 西村義一、稲葉次郎、松坂尚典 : 幼若期における放射性核種の代謝の特性、保健物理、26 : 147-153 (1991)
- 8) Inaba, J., Nishimura, Y. and Ichikawa, R. : Comparative metabolism of ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{60}Co and ^{65}Zn incorporated into Chlorella and inorganic Form in Rats. Health Phys., 39 : 611-617 (1980)
- 9) 市川龍資、白石義行、稲葉次郎、西村義一、野田豊 : 哺乳期ビーグル犬における経口投与した ^{141}Ce の消化管残留と臓器分布、幼若期における放射性核種代謝の特性に関する研究 (II)、保健物理、11 : 201-206 (1976)
- 10) 武田 洋、西村義一、稲葉次郎 : トリチウムおよび炭素-14 の母体から新生児への移行、日本保健物理学会第26回研究発表会 (1991)
- 11) ICRP Publication 56 : Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 1. Pergamon Press, Oxford (1989)
- 12) 稲葉次郎 : ICRP第2専門委員会の年齢依存線量に関するタスクグループの千葉会合について、放射線科学、32 : 273-277 (1989)
- 13) 稲葉次郎 : ICRP Publication 56 「放射性核種の摂取による公衆の構成員の年齢依存性、保健物理、25 : 247-255 (1990)
- 14) 稲葉次郎 : ICRP 第2専門委員会「年齢依存線量に関するタスクグループ」のハンフォード会合報告、放射線科学、34 : 329-332 (1991)
- 15) 稲葉次郎 : 公衆の線量評価に用いる環境パラメータ : VI. 公衆のための体内被曝線量係数、日本原子力学会誌、4 : 401-404 (1992)
- 16) 西村義一 : 環境と公衆の安全のためのアプローチ、放射性核種の生態系移行・代謝・線量推定、IV-1、乳幼児における放射性物質の代謝特性とその線量評価、岩倉哲男、中島敏行編、NIRS-M-93, 144-152 (1993)
- 17) 松坂尚典 : 同、IV-2 主要な放射性物質の胎児移行、NIRS-M-93, 153-159 (1993)

3. 誘導限度設定のための被曝線量評価モデルの開発 概況

標記の中課題の下で次の3小課題が実施された。

3-1 体内被曝線量算定モデルの開発とデータベースの整備、本郷昭三、竹下 洋（環境衛生研究部）、山口 寛（物理研究部）

3-2 公衆の実効線量当量算定法の確立、丸山隆司（特別研究官）、白貝彰宏、隅元芳一、野田 豊（物理研究部）、内山正史、中村裕二（総括安全解析研究官付）

3-3 体外被曝に影響を与える環境パラメータ、藤高和信、古川雅英、松本雅紀、阿部道子（環境衛生研究部）

3-1では線源器官で発生した放射線のエネルギーが標的器官で吸収される比率を、モンテカルロ計算で求めることができるように前回まで2次にわたる環境特別研究で開発した日本人の被曝線量を計算するシステム IDES を改良した。この計算のためには数学的なファントムが必要であり、日本人の体格、臓器重量などの文献値を用いて、シンボルファントムと数式ファントムを作成した。

ORNL の Cristy ファントムを基礎として ICRP モデルを参照して性別に 1, 5, 10, 15 才及び成人の数式ファントムを試作した。体格と臓器との関係が必ずしも整合していない。しかし内部被曝の場合は自己吸収の比率が最も大きいので、適切な臓器質量を使用することで体格変換法により十分な精度で線量評価が行えるものと考えられる。代謝の問題が残るが、ICRP の代謝パラメータを適用することで生ずる誤差を無視するならば、日本人の体格に相当する線量を計算できるシステムが開発できたと考えよう。

3-2では環境からの被曝線量モデルが確立され、実効線量算定法が確定した場合に線量の妥当性を実証する目的で、全身放射能計測装置による放射性セシウム及びカリウム40の全身量の校正について、物理的ファントムを作成して実験的研究が実施された。セシウム137については、6カ月児から成人男子までの人体形結合型ファントム系で適切な校正が可能であることが示された。モデルで確定された実効線量当量の妥当性の評価の基礎が得られたと考え

られる。ただし、精巧な人体計測学的ファントムに関しては3歳児が特異な計数効率を示し、必ずしも人体形結合型ファントムで得られた体格/計数効率関係が成立しないこと、セシウム134やカリウム40では体格/計数効率関係を実用に供するにはさらに検討が必要であることが明らかになった。

3-2では既存のデータを用いて日本人の集団実効線量当量についても検討した。外部被曝については国民生活時間調査、生活環境における線量分布等を考慮して評価した。内部被曝については人工放射性核種、自然放射性核種を合わせた線量当量を推定した。カリウム40と鉛210-ポロニウム210の線量寄与の大きいことが示唆された。医療被曝による実効線量当量ははるかに大きく年間約2.3mSvで、ラドン被曝を含めた自然放射線から世界の平均的な人が受ける年間線量に匹敵した。

3-3では地中からのラドンの発生を抑制し、結果として体外被曝に影響する降雨を環境パラメータとして取り上げた。雨毎に降り始めにラドン娘核種の湿式沈降が生じて外部被曝線量が増加し、長期間無降雨が続いた後の降雨で増加の大きいことが明らかにされた。3時間の無降雨時間で外部被曝線量の増加は検出できた。降雨で減少した大気中のラドン濃度の回復時間を定量的に推定した。大気の動きを大気中のベリウム7の長期観測で把握しそのサイズ分布のデータが得られた。これらの情報が呼吸器被曝の算定の直接的利用に至るには、さらに調査研究を必要とする。

誘導限度設定のための被曝線量評価モデルの開発の中課題に対して、環境モデルの開発が最初に必要であるが、適切なパラメータの収集を行うためのマン・パワーが不足していた。さらに放出源情報、評価を実施するサイトについて合意が得られていなかったことが、被曝線量評価モデルの開発に十分な成果をあげ得なかった遠因であると考え

内山正史

3-1 体内被曝線量算定モデルの開発とデータベースの整備

① 実効線量当量の計算コード IDES の整備

本郷 昭三 (環境衛生研究部)、山口 寛 (物理研究部)、竹下 洋 (環境衛生研究部)
 岩井 敏 (三菱原子力工業株式会社)

Development of Internal Dose Calculation Model and the Data Base Updated IDES (Internal Dose Estimation System)

Shozo Hongo*, Hiroshi Yamaguchi**, Hiroshi Takeshita* and Satoshi Iwai***

*Division of Environmental Health, **Division of physics, ***Mitsubishi Atomic Power INC.,

ABSTRACT

A computer program named IDES is developed by BASIC language for a personal computer and translated to C language of engineering work station. The IDES carries out internal dose calculations described in ICRP Publication 30 and it installs the program of transformation method which is an empirical method to estimate absorbed fractions of different physiques from ICRP

Referenceman. The program consists of three tasks : productions of SAF for Japanese including children, productions of SEE, Specific Effective Energy, and calculation of effective dose equivalents. Each task and corresponding data file appear as a module so as to meet future requirement for revisions of the related data. Usefulness of IDES is discussed by exemplifying the case that 5 age groups of Japanese intake orally Co-60 or Mn-54.

1 はじめに

体格変換法を用いて日本人公衆の体内被曝による実効線量当量を計算するコードを開発した。この計算システム (Internal Dose Estimation System, 以後 IDES という) では、体格、代謝、荷重係数などのパラメータを自在に変化させて吸収線量を求められる。IDES は当初 8 ビットパーソナルコンピュータ (PC) で開発され、16 ビット PC、UNIX ワークステーションに移植されている。IDES のシステム全体像を図 1 に示した。ここでは、実験で示した変換法を用いた IDES について述べ、ファントムを用いた光子シミュレーションによる計算については別記する。

2 計算原理 [4, 5]

ある線源器官で発生した放射線の全エネルギーの内、ある標的器官に吸収される割合を吸収割合 (Absorbed Fraction : AF)、標的器官 1 g 当たり吸収されるエネルギーの割合は比吸収割合 (Specific Absorbed Fraction : SAF) と呼ばれる。透過性の放射線の SAF は、コンピュータシミュレーションによる結果が、ICRP Publ. 23 に記されている。非透過性の放射線については、線源器官内ですべてのエネルギーを失う、すなわち、線源器官と標的器官が一致した時のみ、SAF を 1/ 器官質量とし、他の場合は SAF を原則的に 0 とする。

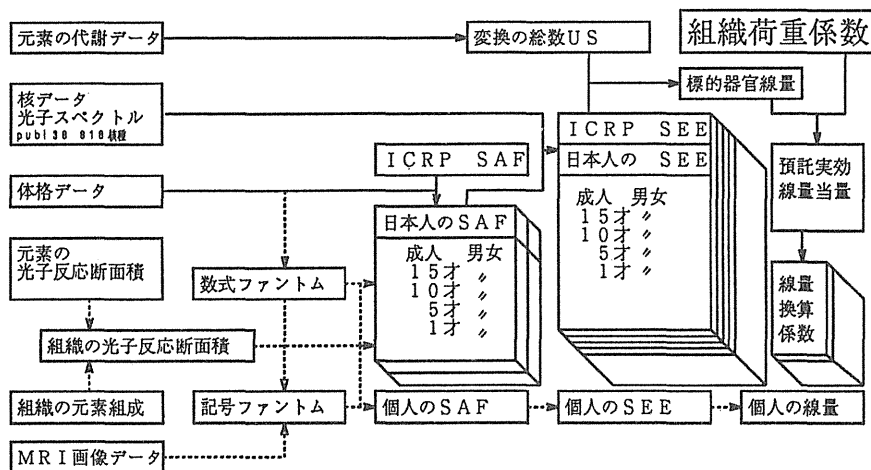


図 1 : IDES システム概念図

$$AF(T=S) = 1 : AF(T \neq S) = 0 \quad (1)$$

表1にICRP標準人の線源器官と標的器官を示した。表内で同左とあるものは、式(1)が適用できるが、内容物(C)と壁(W)の関係にあるものは片方から照射されるので、

$$SAF(W \leftarrow C) = \frac{1}{2} SAF(C=C) * \text{非透過率} \quad (2)$$

の関係が成り立つものと考えられる。骨については線源器官と標的器官が微細に入り組んでいるため種々の考察の結果、割り切りを導入して、表2の値をICRPは採用しており、IDESでも基準値としている。

表1：ICRP標準人の線源器官と標的器官

線源器官	質量(g)	標的器官	質量(g)
卵巣	11	同左	
精巣	35	同左	
筋肉	28,000	同左	
肺	1000	同左	
甲状腺	20	同左	
腎臓	310	同左	
肝臓	18,00	同左	
すい臓	100	同左	
皮膚	2,600	同左	
ひ臓	180	同左	
副腎	14	同左	
赤色骨髄	1,500	同左	
胃内容物	250	胃壁	
小腸内容物	400	小腸壁	
大腸上部内容物	220	大腸上部壁	210
大腸下部内容物	135	大腸下部壁	160
膀胱内容物	200	膀胱壁	45
皮質骨	4,000	骨表面	120
梁骨	1,000	胸腺	20
全身	70,000	子宮	80

表2：骨にある放射性核種の線量算定に用いられるAF

線源	標的	均等分布		骨表面	
		α	β	$\alpha, \beta < 0.2$	$0.2 < \beta$
梁骨	骨表面	0.025	0.025	0.25	0.025
	赤色骨髄	0.05	0.35	0.5	0.5
皮質骨	骨表面	0.01	0.015	0.25	0.015
	赤色骨髄	0	0	0	0

ここで、対象核種がきまれば、1変換当たりの透過性、非透過性成分のエネルギーと放出割合にSAFを乗じてそれらの和をとることにより、ある核種がある線源器官で1変換したときの、標的器官の1gあたりに吸収されるエネルギーを求めることができる。この値を線質係数で補正したものは、比実効エネルギー (Specific Effective Energy : SEE) と呼ばれる。

$$SEE(T \leftarrow S) = \sum_i Y_i \cdot E_i \cdot SAF(T \leftarrow S)_i \cdot Q_i \quad (3)$$

ここで、

Y_i : 変換当たりの種類*i*の放射線の放出割合

E_i : 放射線*i*の平均あるいは単一エネルギー

Q_i : 放射線*i*の線質係数

一方、図2に示す代謝モデルを解くことにより、各々線源器官における変換の総数を求め、これにSEEを乗じ、各々の線源器官からの線量を標的器官で総和をとることにより、預託線量当量を求めることができる。

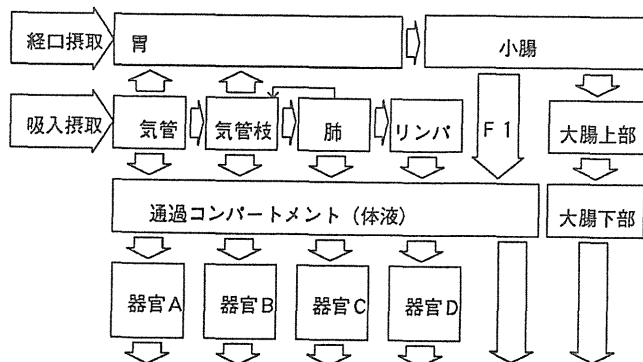


図2：代謝モデル

$$H_{50,T} = 1.6 \times 10^{-10} \sum_s U_s \cdot SEE(T \leftarrow S) \quad (4)$$

ここで、

$H_{50,T}$: 標的器官Tにおける預託線量当量

U_s : 線源器官S中の50年間にわたる変換の総数

なお、ICRP Publ. 23に記されているSAFは、標準人についてのみ与えられており、標準人以外の体格モデルには使用できない[7]。IDESでは、器官の縮小による変換法[8]を用いて、異なる体格に対しても対応できるようにしている。線源器官と標的器官が一致する場合は質量縮小率の-1乗に近似的に比例すると考えられるが、この考えを一歩進めて臓器を楕円形と仮定してモンテカルロ法でエネルギーごとに求めたAFと質量縮小率の巾乗の関係を変換係数として表し、ICRPのSAFを変換した。線源器官と標的器官が異なる場合は、PISAF (Point Isotropic Specific Absorbed Fraction) [9]を用い、まず標準人の実効臓器間距離を求め、これに縮小率を乗じ、再びPISAFを用いて体格の異なる場合のSAFの推定値を求めるものである。IDESでは、体格に対するパラメータを日本人の平均的な値として年齢で表わし、1才、5才、10才、15才、20才の5群とICRPの標準人の合計6群に分けた。

3 システムの概要

システムは大別して

1. プログラム、データ管理系
2. 計算処理系
3. データ系

の3つのファイル系から成っている。

1. プログラム、データ管理系はプログラムおよび多量のデータを管理すると共に、必要に応じてデータの追加や修正を行なうためのプログラムである[6]。

2. 計算処理系の概念図を図3に示した。

計算処理系の第一段階は、日本人の年齢別SAFの作表プログラム (IDES-SAF) である。IDES-SAFは透過性の放射線に対して、年齢別に、エネルギー別に、すべての

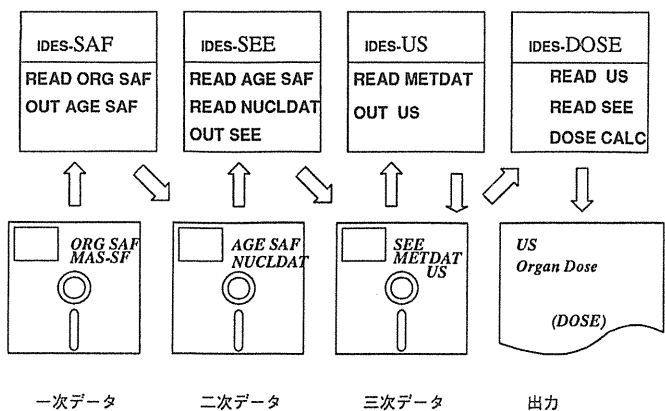


図3：計算概念図

線源器官と標的器官の組に対して SAF の体格に対する変換を行い、二次データファイルに収める。このデータをうけて、IDES-SEE は、指定された核種に対する透過成分、非透過成分のエネルギー情報 (Y_i, E_i, Q_i) を核種別放射線データファイル (NUCLDAT) から読みとり、ICRP 標準人および日本人の年齢別の線源器官に対する標的臓器の比実効エネルギー (SEE) 表を作成し、データファイルに収める。なお、SAF 表は離散的なエネルギーに対して与えているので、中間のエネルギーに対しては中間数補間を行っている。

線源器官における変換の総数を求めるプログラムは ICRP のモデルに従って吸入摂取、経口摂取の双方に対応している。なお、通過コンパートメント以後のコンパートメント数は必要に応じて自由に増減できる。また、一つの器官が二つ以上の半減期成分を持っている時は、コンパートメント自身の数を二つ以上として処理し、最後にこれらを集計して U_s を求めている。開発当時はプログラムをできるだけ小さくする必要があったため、吸入摂取時の代謝モデルに従って線源器官の変換の総数 (U_s) を求めるプログラムと経口摂取の場合に対するものが別々に制作されたが、現在は一つになり IDEs-US となっている。IDES-DOSE はデータファイルから線源器官の変換の総数と標的臓器の比実効エネルギーを読みとり、預託実効線量当量または実効線量当量を算出する。

3. データ系は一次データ、二次データ、三次データと三段階になっている。一次データには ICRP Publ. 23 の SAF 表、実効臓器間距離 (8 種類の光子エネルギーそれぞれに対し 17 種の線源器官および 23 種の標的器官に対する値) および PISAF (8 種類の光子エネルギーそれぞれに対して 9 次までの巾級数の係数)、器官の縮小率 (6 群の年齢に対する 17 種の線源器官の値) などが収められている。なお、一次データの SAF 表作成にあたっては、ICRP Publ. 26 にある“リスクを考えるべき臓器”に従って、ICRP のように筋肉で代用するかわりに、PISAF を用いて、乳房の値が計算されて表に加えられている [8]。

二次データは IDEs-SAF の出力である。年齢別 SAF (年齢 $6 \times$ 光子エネルギー $8 \times$ 線源器官 $17 \times$ 標的器官 23)、核種別放射線データ (NUCLDAT) が格納されている。

三次データは IDEs-SEE の出力であり、核種別の SEE 表 (年齢 $6 \times$ 光子エネルギー $8 \times$ 線源器官 $17 \times$ 標的器官 23) および、核種の代謝データを格納する。表 3 にコード、データファイルの一覧を記した。現在は IDEs-US と IDEs-DOSE を一体にした DOSE3, dose3 が使用されている。DOSE3 の計算フローを図 4 に示した。DOSE3 では変換の総数と線量を計算できるため、娘

表 3：IDES のコード、データファイル

コード名又はファイル名	分類	機能	開発者(改訂者)と関連文献
HYNT	C	データ入出力管理コード群	* (5)
COMDAT	F	基本的な計算条件を記述したデータ	*
ORG-SAF	F	ICRP Publ. 23 の SAF	* (6)
MAS-SF	F	体格変換のための体格記述データ	* (7)
IDES-SAF	C	MAS-SF に記述された体格の SAF を作成	*
AGE-SAF	F	IDES-SAF により作成した SAF 群	*
NUCLDAT	F	崩壊に伴って放出される放射線の種類を記述	*
ATOMS	F	核種の一覧と同上マップ	*
IDES-SEE	C	体格ごとの SEE を作成	*
see3	C	同上 C のコード	*
see_all	C	818 核種の SEE を作成するシェルスクリプト	*
SEE	F	核種別体格別 SEE 群	*
atoms	C	同上 C のコード	*
FIDB	F	消化管吸収係数のデータベース	*
METDAT	F	代謝を記述するパラメータファイル	*
DRALIST	F	娘核種を記述したファイル	*
IDES-US	C	代謝モデルを解き変換の総数を求める	*
US	F	計算された変換の総数をおさめる	*
IDES-DOSE	C	臓器線量、預託実効線量を計算	*
DOSE3	C	IDES-US, IDEs-DOSE をまとめたコード	*
dose3	C	同上 C のコード	*

C: コード, F: ファイル, (): 文献番号, *: 著者ら開発, o: 公開可

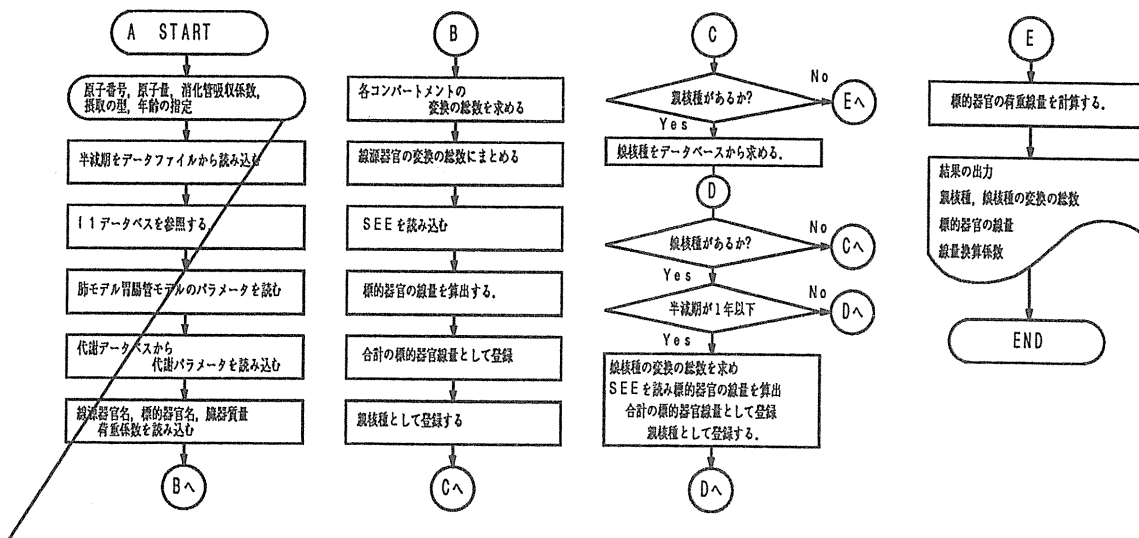


図4：dose 3 計算流れ図

核種を伴う場合の計算が容易に実行できる。

4 システムの特徴

IDES-SAF、IDES-SEE はパーソナル・コンピュータでは多少時間がかかるが、これらは一度計算しておけば繰り返し計算する必要がないため、対象核種を限れば PC でも十分実用になる。

中間データファイルを使用しているの、前もって必要とする中間データファイルさえ作っておけば、最小限の手続き（例えば、 U_s が他の方法で求められている場合は IDES-DOSE のみ）で必要とする結果が得られる。これによりパーソナル・コンピュータで十分対応可能である。医療被曝などの特殊な体内被曝の計算に対してもこの中間データファイルを用いることにより、わずかのプログラミングで対処できる。

このような理由から、原子力開発に伴う日本人公衆の体内被曝線量の試算の他、医療被曝の線量計算、線量計算時のパラメータの感度解析やモデルの堅固度解析にも用いられている。

BASIC 言語で書かれたものは対話形式となっているので、コンピュータの初心者も CRT 画面上の指示に従ってオペレーション可能である。C 言語に翻訳されたものは UNIX ワークステーションで高速に実行できるのでバッチ処理に向いている。現在、818 核種 × 6 年齢の SEE ファイルは上の see-all で一括して作られている。

5 試算例について

器官の質量縮小率、臓器間距離の縮小率としては田中らの器官の重さと座高比 [10] を用いて日本人の SAF を求めた。これらの値を表 4 に示す。

なお、値が得られていない器官については、体重と同じ縮小率であると仮定した。

^{60}Co と ^{54}Mn について、以下の仮定の上で経口摂取の場合について試算を行った。

1. 年齢が異っても、変化させなかったパラメータは標準人と等しいものとする。
2. 体格は成長しないものとする。

図 5 に、 ^{60}Co について消化管吸収率 (f_1) を変化させた場合の実効線量当量の試算値を示した。図中の・印は ICRP の計算値を示し、 f_1 が 0.05 および 0.3 である。 f_1 を

表 4 : 計算に使用した日本人の体格パラメータ (ICRP 比)

	ICRP	成人	15才	10才	5才	1才
座高比	94cm	0.928	0.923	0.790	0.659	0.519
ADRENAL	15.5g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
BLAD-CONT	200g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
STM-CONT	246.9g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
SI-CONT	400g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
ULI-CONT	200g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
LLI-CONT	136.9g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
KIDNEY	284.2g	0.937	0.904	0.580	0.408	0.223
LIVER	1809 g	0.836	0.652	0.424	0.311	0.210
LUNG	999.2g	0.918	0.879	0.347	0.292	0.208
OVARY	8.268g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
PANCREAS	60.27g	2.03	1.52	0.818	0.730	0.467
SPLEEN	173.6g	0.752	0.597	0.443	0.339	0.215
TESTES	37.08g	0.974	0.795	0.0974	0.0684	0.0789
THYROID	19.63g	0.930	0.804	0.693	0.477	0.327
SKELETON	10470g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
BRAIN	1470g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152
T-BODY	69880g	0.770	0.757	0.451	0.264	0.152

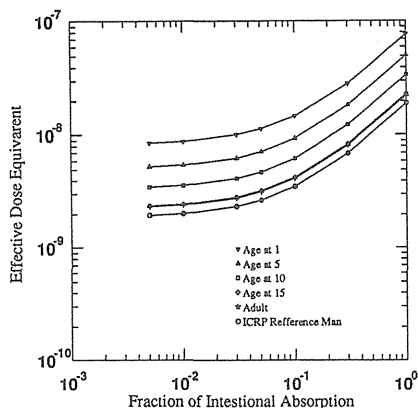


図 5 : ^{60}Co における試算

変化させた場合の実効線量当量の変化は、 f_1 が 1 に近づくに従って、 f_1 にほぼ比例して増加する。 f_1 が 0.05 以下になると、実効線量当量はほとんど変化しなくなってくる。この傾向は体格が変わっても変わらない。

一方、体格による線量の変化をその線量の比率で見ると、 f_1 がいかなる値をとった場合もおおよそ一定であり、ICRP の標準人を 100% とすると、日本人成人、15才、10才、5才、1才はそれぞれ 120%、120%、180%、270%、420% となった。

図 6 に示すように、 ^{54}Mn についても、この傾向はほとんど同じであるが、線量の比率は多少異なり、日本人成人、15才、10才、5才、1才はそれぞれ 115%、120%、170%、240%、380% となった。

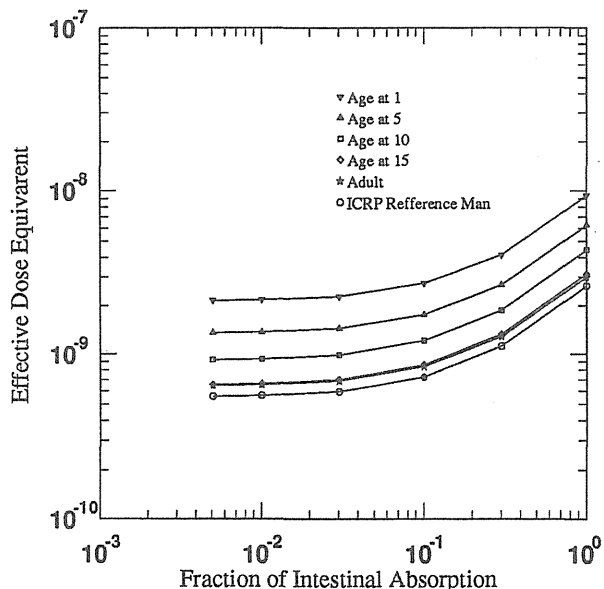


図 6 : ^{54}Mn における試算

^{60}Co に比べ ^{54}Mn の方が体格差が小さい理由は、 ^{54}Mn の非透過成分が少ないことによるものと思われる。また、 f_1 が小さくなると線量の変化が小さくなっている。この理由は、消化管吸収が小さい場合には、胃腸管を通過する際に線量評価の対象となる標的器官に与える線量が消化管からの吸収に帰因する線量よりも大きくなるためであると思われる。これはいわば外部被曝に近い被曝であり、大半の線量は胃腸管の滞在時間(数日)の内に受けることになる。

この試算例では f_1 がどのように変わろうとも線量の変

化はほぼ一ケタの範囲であった。

^{60}Co と ^{54}Mn の試算結果を実効線量当量の推定という点からまとめてみると、体格による実効線量当量の変化は第一次近似として、体重に逆比例すると考えてもよさそうである。また、消化管吸収率 f_1 による変化は f_1 が大きいと f_1 にほぼ比例して、実効線量当量に変化を与えるが、 f_1 が 0.1 以下になると実効線量当量の変化は微小である。この計算では、体格は成長しないものとして試算したもので、体格による効果と言う限定された範囲では、成長の早い若年層の実効線量当量は過大評価となっている。

6 おわりに

現在、危険度を推定するに最も適切な単位が実効線量当量であるという観点から、この概念を使用し、日本人の線量を試算したが、乳幼児を始めとする実効線量当量を計算するには、未解決の問題は多い。大人に比較すれば、代謝がかなり異なると考えられ、また、臓器のリスク荷重係数も大人と異なるであろう。このような情報が総合的に得られてはじめて、若年層の預託実効線量当量が計算できる。本システムは、将来このような計算を可能とするように種々のパラメータを変えて試算できるように、設計されているので、パラメータの感度解析、堅固度解析など、この方面の研究に役立っている。また、現在当所で作成される健康安全評価システム (HESANS) で日本人の線量計算に IDES の計算結果が組み込まれつつある。開発当時 IDES はメモリが十数kバイト、外部記憶装置の容量が百数 k バイトと小さく、コンパクトかつ簡潔なものであった。当時から比べるとコンピュータの発展は目覚ましく、IDES も少しずつ改良が加えられ、現在では放射線医学総合研究所のコンピュータ・ネットワーク上で稼働している。IDES の計算対象核種は ICRP が計算した、818 核種に広がっている。一般的にもシステムが大きくなると、必ず、どこかに入力ミスが潜んでいる。入力ミスがあればどこかで誤った計算結果となってしまう。IDES も人体模型関係を含めると 100 メガバイトをこえるシステムとなっており、将来モデルの変更への対応まで含めると、データ、プログラムの保守作業は終りが無い。IDES の原則的なと

ころは現在もかわっていない。核種を限定すればフロッピーディスクで稼働させるも可能である。また、ネットワークを利用して、所外から IDES を使用することも可能である。今後の課題としては、日本人の人体模型から得られる SAF と変換法により得られる SAF の相互比較評価、現在、用意されつつある新たなモデルへの対応、環境モデルとの連携等があげられる。

参考文献

- 1) ICRP Publication 38: Radionuclide Transformation; energy and Intensity of Emissions (1983), Pergamon Press, Oxford.
- 2) ICRP Publication 30: Limits for intake of Radionuclide by workers (1979), Pergamon Press, Oxford.
- 3) 藤田 稔: ICRP Publication 30 「作業員による放射性核種の摂取の限度」, 保健物理, 15, 173 (1980).
- 4) 安齋育郎: ICRP Publication 30 で用いられている MIRD 法について, 保健物理, 15, 185 (1980).
- 5) 矢部 明: ICRP の新しい体内被曝線量算定法, 保健物理, 15, 195 (1980).
- 6) 山田 武, 本郷昭三, 竹下 洋, 長塚伸一郎: 研究情報処理のためのパーソナルコンピュータ, ソフトサイエンス社, 1983.
- 7) ICRP Publication 23: Report of the Task Group on Reference Man (1975), Pergamon Press, Oxford.
- 8) 山口 寛他: 日本人の MIRD 表の作表プログラム, 保健物理, 18, 43 (1983).
- 9) Berger. M. J.: Energy Deposition in Water by Photons from Point Isotropic Sources, MIRD Pamphlet No.2.
- 10) 田中義一郎他: 規格日本人 (Reference Japanese) の設定, 日本原子力学会誌, 19, 674 (1977).
- 11) 本郷昭三他: 日本人の体内被曝による実効線量当量の計算コード IDES の開発について, 保健物理学会体内被曝線量評価専門研究会報告書 (1992).

② 臓器吸収線量評価のためのファントムについて

竹下 洋、山口 寛、本郷 昭三 (放医研)、岩井 敏 (三菱原子力)
岩井 一男 (日本大学)

Phantoms for Calculations of Absorbed Organ Dose

H. Takashita, H. Yamaguchi, S. Hongo, S. Iwai and K. Iwai

Abstract

We have developed a computer code IDES (Internal Dose Estimation System). In this code, MIRD Transformation Method is used and photon simulation by Monte Carlo method is also possible. We have studied Japanese phantoms in two procedures, mathematical phantom and "symbol phantoms". Our mathematical phantoms realize their height and body weights but does not hold some of

organ weights, which were measured by TANAKA and KAWAMURA. The symbol phantom can solve this discrepancy and realize a realistic phantom, although it remains problems of authorization and normalization. Errors were estimated for internal dose calculations and it was pointed out that to use realistic organ weights and parameters of kinetics was important competitively to reduce uncertainty of the results.

1 はじめに

放射線被曝による、臓器線量を計算するためには、ある線源器官から発生した放射線のエネルギーがどの程度対象とする標的器官に吸収されたかを知る必要がある。この吸収割合：AF (Absorbed Fraction) を求める方法には実験による方法、コンピュータ・シミュレーションによる方法の二通りがある。ICRP ではコンピュータ・シミュレーションで求められた AF をもちいて年摂取限度 (ALI) 等を算出している。筆者らは日本人の線量を計算するシステム IDES^{2, 11)} を開発した。このシステムの中では幾つかの『標的器官 1g 当たり吸収されるエネルギーの割合』比吸収割合 (Specific Absorbed Fraction : SAF) を算出するプログラムを持っている。図 1 にその概要を示した。

一旦 SAF が求められていれば 1975 年に開発された、変換法^{4, 5, 6)} をもちいて異なる体格の SAF をもとめることができる。IDES ではこの変換法を基本としているがその他にモンテカルロ計算により、AF を求めることも出来る。

コンピュータ・シミュレーションによる方法ではコンピュータ上に人体模型を作り、元素の光子反応断面積を組織の元素組成に従って合成し組織の光子反応断面積を作る。次に、線源器官から光子を発生させ、光子のシミュレーションを行って標的器官に吸収されるエネルギーを求める。この標的器官に吸収されるエネルギーを発生させた光子エネルギーで除することにより AF を求めることができる。

2 シミュレーション用人体模型 (ファントム)¹⁶⁾

2-1. 数学ファントム・数式ファントム

1969年に米国のオークリッジ国立研究所 (ORNL) でコーカシアン成人のファントム^{1, 10)} が作られ、これを用いて ICRP 勧告の年摂取限度 (ALI)⁹⁾ が計算された。1987年に、一般公衆用としてコーカシアンの公衆 (N.B., 1才、5才、10才、15才=ADULT FEMALE, ADULT) に対する数学ファントムが作られ、これらファントム上で内部被曝に伴う臓器吸収線量が ORNL の M. Cristy 氏⁹⁾ により計算で求められた。図 2 に MIRD ファントムを直接画像化したものを示した。

2-2. シンボルフアントム

筆者らが開発したシンボル・ファントム^{7, 13)} は画像化の手法を取り入れ、人体を単位立方体 (現在は 1 cm 立方) の積みかさねで表し、その立方体の一つ一つに臓器名を示す文字コードを割り当てて人体を表現するものである。この方法の特徴は表現の自由度が大きく、臓器の大きさ、形、位置を容易に変更することができる。この特徴はひるがえって、日本人の平均的体格を表現するなどの、標準化の場合、修正の終点が決め難いという難点をもつことになる。このファントムの特徴を最もいかしたのものとして、ある特定の個人の線量評価用のファントムを作り上げることができる。

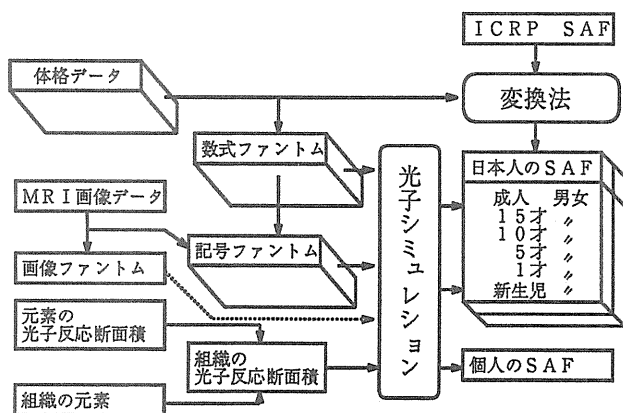


図 1 SAF の作成

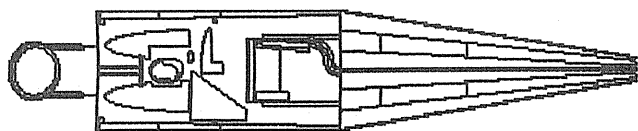


図2 数式ファントム

2-3. CT (MRI) ファントム・トモグラフィックファントム^{12, 14)}

NMR-CT, X線-CTの最近の医療画像技術の進歩は目ざましく、簡単に *in vivo* 横断面、縦断面を観察することができる。線量計算用のファントムにもこれらの技術を導入することにより解剖学的には、入手困難な年齢層の体格などの特殊な体格についても線量計算が可能となる。このような観点からNMR-CT画像から線量計算用の人体ファントムの制作を試みた。当研究所のNMR-CTを用いて上半身1cmごとの下半身2cm毎の断面を撮影し、そのデータを変換して筆者らの使用しているパーソナル・コンピュータにとりこんだ。このNMR-CT画像から自動的に線量評価に必要な臓器をすべて区別することは難しく、実際上の画像処理の大部分は手作業が必要となった。この作業の過程で別種類の二つのファントムをつくることとなった。一つはICRP等で用いているファントムを画素化しNMR-CT画像に近づける過程で作られたものと、もう一方はNMR-CT画像から忠実にファントム化を行う過程で生じたものである。前者のファントムでは細部の表現が難しく臓器の形状はある程度近似し臓器の体積をあわせることとした。後者のファントムでは1cm立方ではなく5mm立方程度にしなくては表現出来ないことが判った。図3にイメージファントムを直接画像化したものを示した。

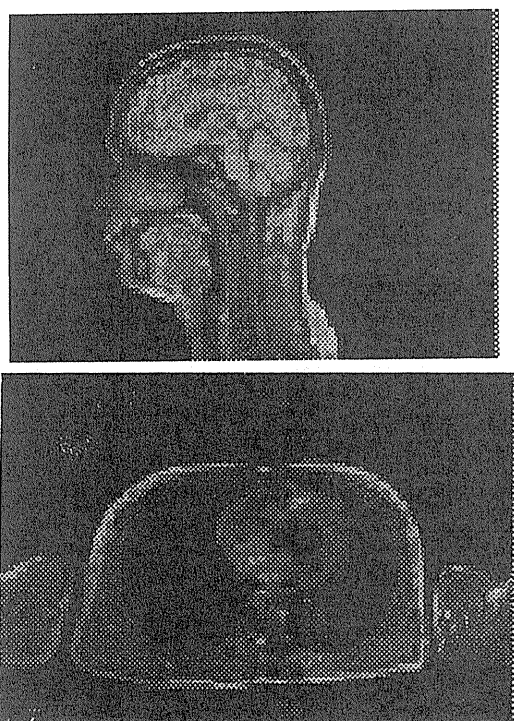


図3 イメージファントム

2-4. 放医研の数学ファントム

コーカシアン公衆数学ファントムと同様に幾何学的な配置も含めて、ファントムをつくることを目標にしたが、日本人の体格のデータは臓器質量が中心で、臓器を幾何学的に配置するには十分ではなく、その状況は当分は続くものと思われること、日本人の体格そのものがこのところ変化してきていることなどを考えて、数学ファントムを一つ固定したものとして作るだけでなく、それらを作るアルゴリズムを確立することも目標として、第一次、第二次、第三次ファントムを作成した。

第一次ファントムはまず、外形を日本人にあわせることを第一目標とし、その作成アルゴリズムは、田中⁸⁾と厚生省データから日本人の体重、身長、座高を求め、足長を決定する。次に、頭部(頭長、重さ)をBARAINの質量から推定し、座高から頭長を差し引いて胴長(CT)を、体重から頭重を差し引いて足部と胴体の重さを決定する。その後

1. 足部と胴体の重さを一定とし、
2. 胸厚(BT)は胸幅(AT)を越えない。
3. 足部の質量は胴体のそれを越えない。
4. 胸幅、胸厚はORNLを越えない。

の条件のもとで体格パラメータの範囲を計算するプログラム『MASFUN』を作成し1. 2. 3. 4を満たすAT, BT, CTを求めた。求められたAT, BT, CTをORNLのファントムと比較してX軸、Y軸、Z軸の縮小率を求め胴体内の臓器に適用した。

第一次ファントム(男女)の臓器の質量を日本人の臓器質量で除したものを、図4に示した。第一次ファントムの

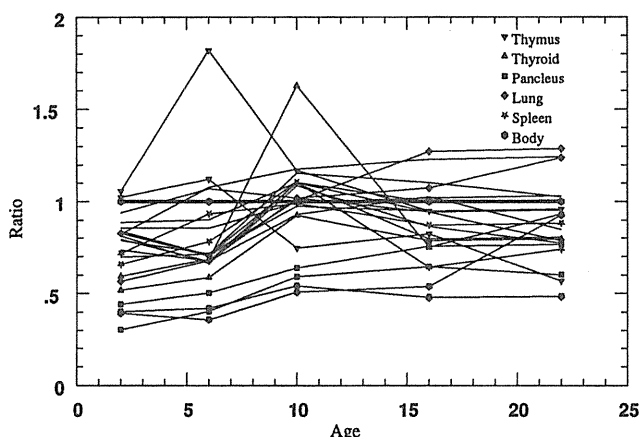


図4 第一次ファントムの臓器の質量比

身長や体重等は図中の太い線で示されるように、目標値と一致しているが、大半の臓器質量は目標とする日本人の臓器質量より小さくなっている。この原因は、日本人の臓器質量は体重、身長に比して大きめであることに由来する。また、上に凸になっている胸線と甲状腺については目標値を再検討する必要があるが残された。

第一次近似ファントムの臓器の幾何学形状を記述するパラメータを変化させても、臓器の重なり等により、臓器の質量を目標値に近づけることは不可能であった。第二次ファントムを制作するにあたっては、さらに日本人のデータに近づけるべく、目標値の再計算と、ファントム作成アルゴリズムの変更が必要であった。身長、体重、座高、胸

囲は厚生省の国民栄養調査90のデータを平成2年国勢調査報告(第2巻総務庁統計局)人口統計で重み付け平均しORNL年齢区分に変換し、臓器質量についても、放医研から新たに発表された日本人の体格データを中心に、人口重み付け平均等により再計算した。これらの値を表1に示す。臓器質量を統計データに近づけるためには、胴部の質量を大きくする、即ち他の部分の質量を小さくする必要があるので、頭部の重さについては、ORNLを越えないとの条件をつけ、かつ、首の部分にくびれを作り、胴体に加えるなどの胴体の体重を増やし、臓器質量をできる限り大きくするようにした。これらのアルゴリズムを援助するために、プログラム『MASFUN』を改良し『MASFUN92』を作成した。図5に『MASFUN92』の表示を示した。上から双曲線上に下ってくる曲線は、体重と頭重を補償し、原点から直線で描かれている線は、『胸幅(AT)は胸厚(BT)を越えない』、『足部の質量は胴体のそれを越えない』を制限する。二つの直線の間の曲線はORNLの各年齢のATとBTを結んだ線である。四角形の部分は『胸幅、胸厚はORNLの成人を越えない』範囲を示している。図では、日本人成人の場合を計算しているため、選ぶことができるAT、BTの範囲は非常に小さい、プログラムでは、アルゴリズムの中で最適値と思われる値の一つを選んでくるが、その後も種々のケースについて再計算することができる。

種々の計算試行の結果、制作したファントムは一見矛盾

表1 人体ファントム作成に用いた日本人の臓器質量

Organ	N.B	日本人男子				
		1	5	10	15	Adult
ADRENAL	4.3 ()	4.4 (40)	5.9 (54)	9.0 (51)	11.8 (30)	14.5 (43)
BRAIN	717.1 ()	1187.1 (15)	1388.5 (13)	1480.2 (12)	1465.4 (09)	1424.9 (08)
HEART	39.2 ()	61.8 (23)	105.2 (28)	174.1 (31)	276.7 (10)	364.1 (21)
KIDNY	47.9 ()	75.3 (45)	123.5 (55)	180.0 (32)	258.2 (24)	313.6 (34)
LIVER	262.1 ()	414.1 (30)	593.7 (29)	869.8 (22)	1235.0 (17)	1497.4 (23)
LUNG	127.1 ()	215.1 (43)	292.0 (41)	504.8 (14)	1022.6 (21)	1145.3 (45)
TESTS	2.8 ()	3.0 (160)	3.3 (40)	6.8 (86)	28.9 (45)	35.7 (42)
PANCREAS	12.1 ()	33.6 (74)	40.6 (35)	64.5 (35)	101.7 (26)	129.4 (28)
SPLEEN	22.4 ()	44.6 (70)	56.0 (58)	80.1 (29)	120.4 (30)	118.6 (43)
THYMUS	23.7 ()	22.1 (74)	25.3 (38)	41.5 (43)	34.9 (33)	28.8 (55)
THYROID	2.2 ()	3.0 (55)	4.2 (35)	6.4 (33)	15.8 (28)	18.8 (33)
HIGHT	67.2 ()	84.7 (05)	110.3 (04)	138.9 (05)	165.7 (04)	168.1 (04)
SHTIGHT	43.8 ()	50.9 (06)	62.1 (04)	75.4 (05)	88.7 (04)	88.0 (04)
BODY	8.1 ()	12.0 (13)	19.2 (14)	34.6 (22)	55.8 (16)	62.5 (14)

Organ	N.B	日本人女子				
		1	5	10	15	Adult
ADRENAL	4.5 ()	4.2 (37)	6.2 (50)	7.4 (43)	11.0 (34)	12.8 (41)
BRAIN	636.4 ()	1002.5 (28)	1226.8 (18)	1300.7 (14)	1320.7 (06)	1288.4 (08)
HEART	29.9 ()	59.4 (26)	95.7 (33)	162.4 (18)	219.0 (26)	296.2 (22)
KIDNY	47.6 ()	67.4 (43)	96.7 (34)	182.9 (16)	249.9 (27)	264.3 (37)
LIVER	234.3 ()	356.8 (34)	499.7 (30)	868.3 (20)	1082.2 (26)	1280.7 (26)
LUNG	112.8 ()	200.7 (36)	287.2 (46)	435.3 (39)	675.8 (26)	854.8 (43)
PANCREAS	17.3 ()	23.4 (28)	37.4 (22)	58.8 (23)	86.1 (21)	108.6 (27)
SPLEEN	19.0 ()	31.0 (34)	57.0 (38)	76.8 (31)	92.7 (45)	106.5 (44)
THYMUS	21.0 ()	21.8 (47)	16.1 (61)	26.8 (25)	27.7 (72)	23.4 (44)
THYROID	2.4 ()	3.5 (106)	5.1 (24)	8.9 (36)	13.5 (20)	16.4 (36)
HIGHT	65.9 ()	83.8 (06)	109.4 (05)	139.5 (05)	156.4 (03)	152.5 (04)
SHTIGHT	43.0 ()	50.2 (08)	61.8 (04)	75.4 (05)	88.7 (04)	82.2 (04)
BODY	7.8 ()	11.3 (13)	18.8 (15)	34.3 (20)	49.5 (13)	51.8 (15)

()内は標準偏差

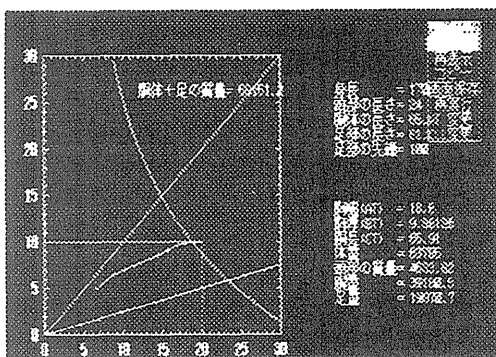


図5 第二次ファントムアルゴリズム

なく定義されている様に見えた¹⁵⁾が、細部を調べて行くうちに、肋骨が胴体から幾分はみでていたり胃と他の臓器がかすかに重なっていたりする等、不都合が発見され、第三次ファントムを作る必要が生じた。第三次ファントムでは臓器を表す数式のうち、円(鎖骨等)で表されるものを楕円に変更し、回転の入った式については座標変換マトリクスに縮小率を作用させることにより、あたかもゴムに描かれているファントムを変形させるように、相対関係を維持しつつ変換する手法をとり入れた。最終的に作成された日本人成人男子のファントムの上半身を図6に、ファントムの臓器質量を表2に示す。

()内には先に示した目標値との割合を示した。この値が1.00以下の臓器は目標値より小さくなっていることを示している。第一次近似ファントムするとき、作成したファントム臓器質量が統計データより小さめになった。それを踏まえた首の部分を変更し胴体に加えるなどの工夫をおこなったが、改善はあったもののやはりファントムの臓器質量が統計データより小さめになっているものがある。

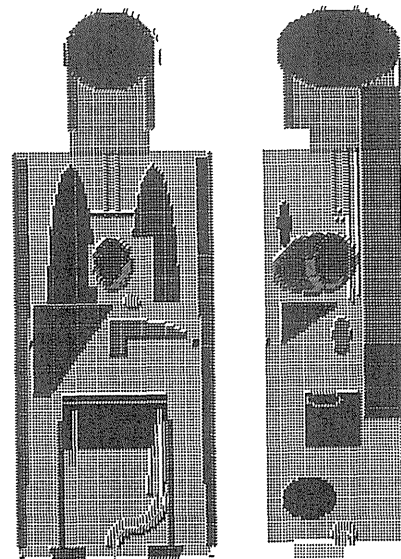


図6 日本人成人男子のファントムの上半身

表2 作成したファントムの臓器質量

Organ	日本人男子				
	1	5	10	15	Adult
ADRENAL	2.8(0.65)	4.4(0.75)	7.6(0.84)	12.6(1.07)	16.5(1.13)
BRAIN	884.0(0.74)	1260.0(0.91)	1360.0(0.92)	1410.0(0.96)	1420.0(1.00)
HEART	55.2(0.90)	85.7(0.81)	147.2(0.85)	245.0(0.89)	319.0(0.90)
KIDNY	52.2(0.67)	81.1(0.66)	139.3(0.77)	231.8(0.90)	301.9(0.96)
LIVER	333.6(0.81)	518.2(0.87)	889.9(1.02)	1480.9(1.20)	1928.3(1.29)
LUNG	174.7(0.81)	271.3(0.93)	465.9(0.92)	773.0(0.72)	1009.6(0.88)
PANCREAS	16.5(0.49)	25.6(0.65)	43.0(0.68)	73.3(0.72)	95.2(0.74)
SPLEEN	32.0(0.72)	49.7(0.89)	85.3(1.06)	141.9(1.18)	184.7(1.56)
TESTS	6.8(2.28)	10.6(3.21)	18.2(2.68)	30.3(1.05)	39.5(1.11)
THYMUS	3.7(0.17)	5.7(0.22)	9.7(0.23)	16.2(0.46)	21.1(0.73)
THYROID	3.6(1.21)	5.6(1.34)	9.6(1.51)	16.0(1.02)	20.9(1.11)
HIGHT	84.7(1.00)	110.3(1.00)	138.9(1.00)	165.7(1.00)	168.1(1.00)
SHTIGHT	50.9(1.00)	62.1(1.00)	75.4(1.00)	88.7(1.00)	88.0(1.00)
BODY	12.0(1.00)	19.2(1.00)	34.6(1.00)	55.8(1.00)	62.5(1.00)

Organ	日本人女子				
	1	5	10	15	Adult
ADRENAL	2.6(0.62)	4.2(0.68)	7.5(1.02)	12.5(1.14)	12.7(0.99)
BRAIN	884.0(0.88)	1260.0(1.03)	1360.0(1.05)	1410.0(1.07)	1420.0(1.10)
HEART	50.6(0.85)	81.3(0.85)	146.0(0.90)	242.2(1.11)	245.7(0.83)
KIDNY	47.8(0.71)	76.9(0.80)	138.1(0.76)	229.2(0.92)	233.5(0.88)
LIVER	305.6(0.86)	491.2(0.98)	882.3(1.02)	1463.8(1.35)	1485.1(1.16)
LUNG	160.0(0.80)	257.2(0.90)	461.9(1.06)	766.4(1.13)	777.5(0.91)
PANCREAS	15.1(0.64)	24.3(0.65)	43.6(0.74)	72.3(0.84)	73.3(0.68)
SPLLEE	29.3(0.94)	47.1(0.83)	84.5(1.10)	140.3(1.51)	142.3(1.34)
THYMUS	3.3(0.15)	5.4(0.33)	9.7(0.36)	16.0(0.58)	16.3(0.69)
THYROID	3.3(0.95)	5.3(1.04)	9.6(1.07)	15.9(1.18)	16.1(0.98)
HIGHT	83.8(1.00)	109.4(1.00)	139.5(1.00)	156.4(1.00)	152.5(1.00)
SHTIGHT	50.2(1.00)	61.8(1.00)	75.4(1.00)	88.7(1.00)	82.2(1.00)
BODY	11.3(1.00)	18.8(1.00)	34.3(1.00)	49.5(1.00)	51.8(1.00)

()内は目標値との割合

3 臓器線量計算の推定誤差

比実効エネルギー (Specific Effective Energy : SEE) は次式で求められる。

$$SEE(T \leftarrow S) = \sum_i Y_i \cdot E_i \cdot SAF(T \leftarrow S)_i \cdot Q_i \quad (1)$$

ここで Y_i : 変換当たりの種類 i の放射線の放出割合
 E_i : 放射線 i の平均あるいは単一エネルギー
 Q_i : 放射線 i の線質係数

預託線量当量は次式で求められる。

$$H_{50,T} = 1.6 \times 10^{-10} \sum_s U_s \cdot SEE(T \leftarrow S) \quad (2)$$

ここで $H_{50,T}$: 標的器官 T における預託線量当量
 U_s : 線源器官 S 中の50年間にわたる変換の総数
 臓器線量計算の推定誤差の二乗は

$$\begin{aligned} \delta HT^2 = & Hnp \quad [\delta^2 Us + \delta^2 np + \delta^2 Us' + \delta^2 MT] \quad (3) \\ & + Hp(T=S)^2 \quad [\delta^2 Us + \delta^2 p + \delta^2 \phi T + \delta^2 Us' \\ & \quad + \delta^2 \phi T + \delta^2 MT] \\ & + Hp(T \neq S)^2 \quad [\delta^2 Us + \delta^2 p + \delta^2 \phi s + \delta^2 Us' \\ & \quad + \delta^2 \phi + \delta^2 MT] \end{aligned}$$

ここで

$$\delta^2 Us = (\delta Us / Us)^2 \quad (4)$$

$$\delta^2 Us' = (\delta Us' / Us')^2 \quad (5)$$

$$\delta^2 MT = (\delta MT / MT)^2 \quad (6)$$

$$\delta^2 np = (\delta Nnp / Nnp)^2 \quad (7)$$

$$\delta^2 \phi T = (\delta AF(T=S)p / AF(T=S)p)^2 \quad (8)$$

$$\delta^2 \phi T = (\delta AF(T=S)p / AF(T=S)p)^2 \quad (9)$$

$$\delta^2 \phi s = (\delta AF(T \neq S)p / AF(T \neq S)p)^2 \quad (10)$$

$$\delta^2 \phi s = (\delta AF(T \neq S)p / AF(T \neq S)p)^2 \quad (11)$$

となる。内部被曝では誤差要因として、生体内代謝の個人変動 (式 4)、体内代謝異常による変動 (式 5)、放射線データの誤差 (式 7)、モンテカルロ計算に由来する変動 (式 8,10)、体格の違いによる線量値の変動 (式 9,11)、臓器質量の固体差 (式 8) が関与する。式 9、11 に対する変動は体格変換法から導くことができ

$$\delta^2 \phi T = q (\delta m / m)^2 \quad (12)$$

$$\delta^2 \phi s \approx (\delta Xg / Xg)^2 \quad (13)$$

ここで q : 体格変換法における変換係数 ≈ 0.3

m : 標的器官の質量

Xg : 体格変換法における実効臓器間距離

核医学診断での医薬品である Se-75 セレノメチオニンを例にとり、患者個人に対する線量を、MIRD のファントム上での計算値であるとしたら、どれほどの誤差になるかを推定した。式 7 は利用できるデータが見当らず評価対象外とした。他の式の値は文献値から求めた。数値計算の結果は以下の通りである。甲状腺については、全体の誤差に対して、各誤差が占める割合は体内代謝の個人変動が 29%、臓器質量による線量値の変動が 56.9% となった。また、(イ) 大きい臓器で、しかも放射能が高い場合には、肝臓への線量の確からしさは肝臓の質量の推定精度が大きく効く (66.5%)、(ロ) 中程度の大きさの臓器では、生体内代謝の個人変動による誤差と臓器質量の誤差が競合するように効いてくる、(ハ) 卵巣、こう丸のような小さな臓器では (ロ) の要因に加えてモンテカルロ計算に由来する変動要因が効いてくる。以上の結果から臓器質量の精度の重要性が示された。

4 おわりに

数式表現では胴体にぎっしり臓器を詰め込むことができず、今回の近似が限度であろうと思われる。内部被曝の線量評価に関する限りでは自己吸収の影響が最も大きいため体格変換法で十分な精度が得られよう。その他なんらかの意味で正確な人体ファントムが必要とされる場合はシンボル・ファントム等画像化手法を取入れた人体ファントムが有効であろう。これらのファントムの組織の元素組成は必要ならば、最近のデータで更新することができる。光子シミュレーションプログラムでは、まず組織の元素組成、元素の光子反応断面積のファイルを読み、組織の光子反応断面積を計算する。次に、コンピュータの疑似乱数を用いて、組織の反応断面積を参照しつつ、ファントム内で光子を走らせ光子反応が生じることにより、その組織に付与するエネルギーを求めて、最終的に AF を出力する。光子のシミュレーション・コードは既に開発済みで、ICRP の用いた数学ファントム (MIRD ファントム) を画素化 (1 cm 立方) したシンボルファントムに適用した結果、体積の大きな組織では良い一致をみたものの、体積の小さな組織では若干の違いがみられた。現在のところ、この相違は画素化によるものか、光子のシミュレーション・コードによるものか、シミュレーション全体の統計が不十分なため、または、コンピュータの疑似乱数の精度の相違によるものか、定かではなく、5 mm 立方のファントムと異なる疑似乱数を用いて検討を続けている。また、NMR-CT 画像から個人のファントムを作りあげるには、まだ解決すべき問題が幾つかある。その一つは現在の編集方法ではあまりにも時間がかかり過ぎる事である。しかしながら、医療画像、コンピュータの輪郭抽出技術も急速な進歩をしており、近い将来医療画像から即座に線量計算用のファントムをつくりあげることも可能になるものと思われる。この様なある特定の個人の線量評価用のファントムを上げることは医療被曝における患者個人の線量評価、放射線治療における線量評価、また、線量計算の為に標準的な体格を決定する過程で、体格による線量の変化を研究する等に有意義であると考え

参考文献

- 1) Snyder, W. S., Ford, M. R., Warner, G. G. and Fisher, Jr. H. L.: Estimation of Absorbed Fraction for Monoenergetic Photon Source Uniformly Distributed in Various Organs of a Heterogeneous Phantom. MIRD Pamphlet No. 5. Society of Nuclear Medicine, New York (1969).
- 2) Hongo, S., Yamaguchi, H. and Takeshita, H. An Estimation of Effective Dose Equivalent for Japanese Children -Internal Dose Estimation System for a personal computer and its application-, Proc. of the 11-th NIRS Seminar on "Exposure from radioactive substances and its control", NIRS-M-55, 33-42, 1983.
- 3) International Commission on Radiological Protection: Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. ICRP Publication 30, Pergamon Press, Oxford (1979).
- 4) Yamaguchi, H., Kato, Y. and Shiragai, A. The Transformation Method for the MIRD Absorbed Fractions as Applied to Various Physiques., Phys. Med. Biol. 20, 593-601, 1975.
- 5) Yamaguchi, H. Estimation of Internal Radiation Dose for Various Physiques Using MIRD Adult Absorbed Fractions., Acta Radiol., 17, 429-439, 1978.
- 6) Yamaguchi, H., Nishizawa, K., Maruyama, T., Chiba, M., Fukuhisa, K. and Hashizume, T. A Computer Program to Calculate MIRD tables for Japanese Physiques. Hoken Butsuri, 18, 43-48, 1983.
- 7) Yamaguchi, H., Hongo, S., Takeshita, H., Maruyama, T. and Chiba, M.: Three dimensional digital representation of human phantom for organ dose calculation. (1) Hoken Butsuri, Vol. 19, pp. 215-218 (1984), (2) Proc. of the XIV International Conference on Medical and Biological Engineering and VII International Conference on Medical Physics, pp. 528-529, ESPOO, Finland (1985).
- 8) 田中義一郎: Reference Japanese Vol. 1 Anatomical Data, Sefty Analysis Report, NIRS-M-85, 1992.
- 9) Crity, M. and Eckerman, K. F.: Specific Absorbed Fractions of Energy at various Ages from Internal Photon Sources. Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge (1987).
- 10) International Commission on Radiological Protection of Group of Reference Man. ICRP Publication 23, Pergamon Press, London (1974).
- 11) 本郷昭三、山口 寛、竹下 洋: 体内被曝線量評価コードの開発の現状、日本保健物理学会体内被曝線量評価コード専門委員会 (1992) .
- 12) 丸山 他: 放医研刊行物 NIRS-R-17, 125-132 (1993).
- 13) 山口 寛、本郷昭三、竹下 洋: 画像ファントム、放医研環境セミナーシリーズNo. 16, 147-158 (1989), 実業公報社
- 14) 本郷昭三、竹下 洋、山口 寛: NMR-CTと画像ファントム、放医研環境セミナーシリーズ No. 16, 147-158 (1989), 実業公報社
- 15) 本郷昭三、山口 寛、竹下 洋: 日本人の線量評価のための人体ファントム、放医研環境セミナーシリーズNo. 20, 160-168 (1993).
- 16) Yamaguchi, H., Hongo, S., Takeshita, H., Iwai, K. and Iwai, S.: Computational Models for Organ Doses in Diagnostic Nuclear Medicine. Radiation Dosimetry Vol. 49, Nos 1/3, pp333-337 (1993).

3-2 公衆の実効線量当量算定法の確立

① 環境放射線による集団実効線量の推定

丸山 隆司、野田 豊、竹下 美津恵 (物理研究部)、岩井 一男 (日大歯放) *

Estimation of Collective Effective Dose Equivalent from Environmental Radiation and Radioactive Materials in Japan – a Preliminary Study –

Takashi Maruyama, Yutaka Noda, Mitsue Takeshita and Kazuo Iwai*
Division of Physics, National Institute of Radiological Sciences *Nihon University

ABSTRACT

The peaceful uses of nuclear power and radiations have been developed into a stage of practical applications for human life. Radiation causes harmful effects to human beings, although human beings receives a number of invaluable benefits from the nuclear energy and the uses of radiation. In order to examine the optimisation of radiation protection in these practices, collective effective

dose equivalent from environmental exposures due to natural and artificial radiations have been preliminarily evaluated using most recent data. The resultant collective doses were compared with those from medical and occupational exposures. It is noted that, in Japan, the collective effective dose from environmental radiation sources can be approximately same to that from medical exposure.

1. はじめに

X線および放射線が発見されてから、100年が経過しようとしている。この100年の間に、人類はX線以外に種々の放射線を発見し、それらを医療や産業の分野で役立ててきた。また、1942年にフェルミが原子炉を試作した。このときから、原子力という新しいエネルギーの利用が始まった。原子炉の利用により、比放射能の高い、多くの種類の放射性物質がつくられるようになった。第2次大戦後は、原子力、放射線および放射性物質の利用が盛んになり、一般公衆は、自然放射線及び自然放射性物質からの被曝に加えて、あらたに人工放射線源や人工放射性物質からの被曝の可能性をもつことになった。

医療上の必要性から受ける患者らの被曝は医療被曝であり、職業上やむなく受ける被曝は職業被曝である。原子力や放射線の利用に関連して、それらの利用施設周辺の一般住民は、施設からの漏洩放射線あるいは放射性物質に被曝することがある。さらに、科学・技術の進歩に伴い、人類の生活様式が様々に変遷し、ジェット機による海外旅行、地殻からの鉱物などをを用いた建材や肥料の使用等、自然放射線や自然放射性物質の濃縮した形での被曝が増加している。このほか一般公衆の被曝の線源としては、1960年代の初頭まで続いた大気圏核実験からのフォールアウトによる被曝、放射性廃棄物などからの被曝あるいは夜光時計など消費財による被曝等がある。ここでは、医療被曝と職業被曝を除くすべての線源からの被曝を環境被曝と定義し、その被曝による一般公衆の集団線量当量を考える。

2. 集団線量

2-1. 集団線量の定義

一般に、英語の Collective dose equivalent を集団線量当量とっているようである。類似の用語に国民線量があるが、これは Population dose の訳語であろう。国民全体にわたる線量という意味でも、国民線量という用語を用いることがある。医療被曝では、遺伝有意線量や白血病有意線量などを含めて国民線量とっているが、有意線量は国民1人あたりの線量で与えられるので、集団線量とは異なる。国民線量の定義は明確ではないようである。ここでは、集団線量または集団線量当量を採用する。

ICRP-26 (1977年)¹⁾ では、集団線量 S は次式で定義された。

$$S = \sum_i H_i P_i \quad (1)$$

ここで、 H_i は被曝した集団内の小グループ i の構成員 P_i 人の、全身あるいは特定の臓器・組織の1人あたりの線量当量である。

しかし、ICRP-60 (1990年)¹⁾ では、特定の臓器・組織 T における集団等価線量 S_T を次式で定義した。

$$S_T = \int_0^{\infty} H_T \cdot (dN / dH_T) dH_T \quad (2)$$

ここで、 $(dN / dH_T) dH_T$ は H_T と $H_T + dH_T$ の間の等価線量を受ける個人の数である。

等価線量 S_T は次式でも定義される。

$$S_T = \sum_i H_{T,i} \cdot N_i \quad (3)$$

ここで、 N_T は集団の中の平均臓器・組織等価線量 $H_{T,i}$ を受けるサブグループ i の個人の数である。

また、集団実効線量、 S は次式で定義されている。

$$S = \int_0^{\infty} E \cdot (dN/dE) dE \quad \text{または} \quad \sum_i E_i \cdot N_i \quad (4)$$

ここで、 E_i は集団のサブグループ i の平均実効線量である。

ICRP-26 では実効線量当量 H_E を用い、ICRP-60 では実効線量 E を用いている。両者の定義で多少の相違はあるが、概念的にはほぼ同じである。実効線量、 E は次式で定義されいいる。

$$E = \sum_T W_T \cdot H_T \quad (5)$$

ここで、 H_T は臓器・組織 T の等価線量、 W_T は臓器・組織 T の組織荷重係数である。

Table 1 Tissue weighting factors recommended by ICRP

Organ	Weighting factors	
	ICRP 60 (1990)	ICRP 26 (1977)
Gonads	0.20	0.25
Bone marrow (red)	0.12	0.12
Colon	0.12	—
Lung	0.12	0.12
Stomach	0.12	—
Bladder	0.05	—
Breast	0.05	0.15
Esophagus	0.05	—
Liver	0.05	—
Thyroid	0.05	0.03
Skin	0.01	—
Bone surface	0.01	0.03
Remainder	0.05	0.30

組織荷重係数は表1のように勧告されている。

実効線量当量及び実効線量は、いずれも直接測定できる線量ではなく、上に示した数式によって間接的に算出される線量である。われわれは、前回³⁾ ファントム実験により、種々の実効エネルギーの光子ビームについて、臓器・組織線量を測定し、ICRPの勧告に従って実効線量当量を決定した。Petoussiら⁴⁾ は、環境ガンマ線による臓器・組織線量を胎児、乳幼児、小児および成人について、モンテカルロ法を用いて計算している。原研の山口⁵⁾ は、やはりモンテカルロ法を用いて種々のエネルギーの光子について

実効線量当量と実効線量を求め、両者の比較を行っている。Zanklら⁶⁾ は、ICRPが勧告している標準人の体格に一致した数学的ファントムを用いて、モンテカルロ法により実効線量当量と実効線量を計算している。環境放射線被曝に利用するため、空気中に存在する半無限の均質容積線源、地上の深さ 0.5gcm^{-2} までに存在する半無限平面線源

などによる地上1mにおける実効線量当量および実効線量を自由空気中の空気カーマの比として表した。このように、環境放射線の外部被曝による実効線量当量および実効線量については、実験や計算データが利用できる。

放射性物質の摂取による内部被曝線量の推定については、チェルノブイリの事故に関する解析が進むにつれて、かなり良質のデータが使用できるようになると期待される。

3. 環境放射線のソースターム

原子放射線の影響に関する国連科学委員会（国連科学委員会あるいは UNSCEAR という）は、ほぼ4-5年ごとに世界の人々が受ける放射線の線量とそれによる影響に関する報告書⁷⁻¹⁰⁾ を出版している。世界の人々の平均的線量や影響について、それらの報告書から概観的な知識を得ることができよう。

3.1. 外部被曝

環境放射線の外部被曝に関係する線源として、宇宙からの放射線、大地・大気からの放射線（核実験に伴うフォールアウトからの放射線人体からの放射線を含む）、家屋など建造物からの放射線、消費財や温泉など雑線源からの放射線が考えられる。

3-1-1. 自然放射線源

a. 宇宙線

1次宇宙線と2次宇宙線からなる。宇宙線による線量は、電離成分と中性子成分について別々に考える。ジェット機で測定した0-12kmの範囲の空気中の吸収線量率は、緯度による変化は小さいが、高度による変化が大きいことを示している電離成分と中性子成分からの年間実効線量当量の高度による変化は図1に与えられている⁷⁾。宇宙線に対する住居等の遮蔽についてオランダや旧ソ連の測定データがあるが、国連科学委員会は、電離成分に対する家屋の平均的遮蔽係数として0.8を用いている。海面レベルに住む世界の人々が電離成分から1年間に受ける平均の実

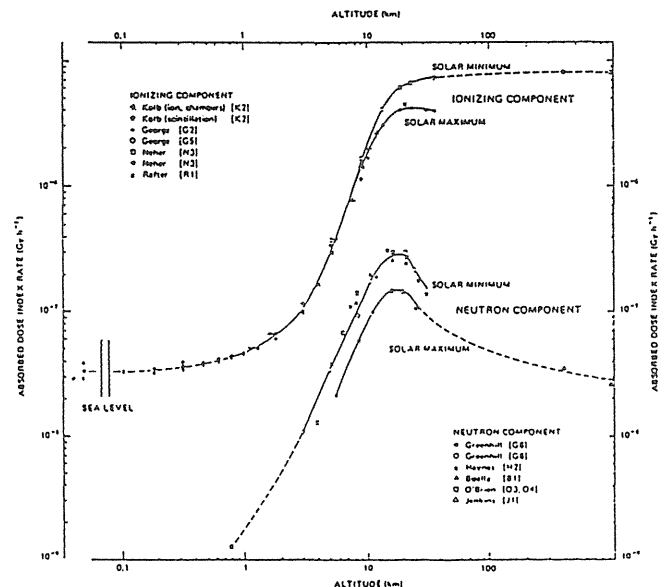


Fig. 1 Absorbed dose index rates at high geomagnetic latitudes from the ionizing and neutron components of cosmic rays at different altitude for 1969 and 1965.

効線量当量を一人あたり約 240 μSv と推定している。中性子については、線質係数を従来値の2倍とし、家屋の遮蔽係数を無視すれば、海面レベルで一人あたり年あたり約 40 μSv になるとしている。

b. 大地からの放射線

原始放射性核種とそれらの壊変生成物は、環境中や人体中にいたるところに存在し、外部、内部被曝の両面より人類に線量を与えている。外部被曝による線量は、屋外と屋内では異なるので、二つにわけて考えられている。

(i) 屋外被曝：土壌中の放射能、特にその基となる岩石の放射能濃度に直接関係すると考えられる。土壌中の ^{40}K 、 ^{238}U 及び ^{232}Th 放射能濃度とそれに対応する地上 1 m での空気吸収線量率を表 2 に示す。世界の多くの国で自然放射線による屋外での線量率の測定が行われている。それらのデータに基づいて推定された世界の平均値は、約

Table 2 Average activity concentration of ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th in soil and absorbed dose rate in air 1m above the ground surface.

Radionuclide or decay series	Dose rate per unit activity concentration in soil ($10^{-10}\text{ Gy h}^{-1}$ per Bq kg^{-1})	Average concentration in soil \underline{a} / (Bq kg^{-1})	Absorbed dose rate in air \underline{a} / (10^{-8} Gy h^{-1})
^{40}K	0.43	370(100–700)	1.6(0.4–3.0)
^{238}U	4.27	25(10–50)	1.1(0.4–2.1)
^{232}Th	6.62	25(7–50)	1.7(0.5–3.3)

a/ The typical range is given within brackets.

50nGyh⁻¹である。

(ii) 屋内被曝：世界のどこの国でも、大抵の人は屋内で大半の時間を過ごしている。国連科学委員会の報告書では、中国を除く世界の平均値として約 72nGyh⁻¹ という屋内での線量率を提示している。屋内では、建材中に自然起源の放射性核種を含んだコンクリートや石膏などが使われているため、屋外より高い線量を示している。空気吸収線量に対する実効線量当量の換算係数を 0.7 とし、屋外、屋内の居住係数を男女とも、それぞれ 0.2 及び 0.8 とし、大地からの放射線による世界の平均的年間実効線量当量が次のように推定されている。

$$55(\text{nGy / h}) \times 0.7 (\text{Sv / Gy}) \times 365 (\text{d / y}) \times 24(\text{h / d}) \times 0.2 = 70 \mu\text{Sv} \quad \text{屋外被曝}$$

$$72 (\text{nGy / h}) \times 0.7(\text{Sv / Gy}) \times 365(\text{d / y}) \times 24(\text{h / d}) \times 0.8 = 350 \mu\text{Sv} \quad \text{屋内被曝}$$

3-1-2. フォールアウトからの放射線

大気圏における核実験の大部分は、1963年以前に行われた。破壊力をそれと等価の TNT 火薬量で表すと、総計約 511メガトンとなる。核実験で生成された核分裂生成物は、大気中に拡散し、その一部は地表に沈着している。拡散・沈着した放射性物質による外部被曝線量を計算して、国連科学委員会は、将来の世界人口を100億人と仮定して、フォールアウトによる集団実効線量当量預託を表 3 のように推定している。炭素14については、2600万人・Sv

Table 3 Effective dose equivalent commitment to the world population from nuclear tests

Radionuclide	Effective dose equivalent commitment (μSv)
^{14}C a/	2600
^{137}Cs	540
^{95}Zr	200
^{90}Sr	120
^{106}Ru	83
^{144}Ce	54
^3H	47
^{131}I	33
^{239}Pu	27
^{140}Ba	25
^{103}Ru	17
^{240}Pu	17
^{241}Pu	9
^{55}Fe	9
^{241}Am	4
^{89}Sr	3
^{141}Ce	1
^{238}Pu	1
^{136}Cs	0.06
^{54}Mn	0.04
^{85}Kr	0.005
Total (rounded)	3800

a/ The dose commitment from ^{14}C will be delivered over thousands of years. That part delivered up to the year 2000 is 7.7% of the value listed.

を上回るとしている。

3-1-3. 原子力・放射線源の利用からの放射線

原子炉、加速器、放射性物質取扱施設など、種々の放射線源が、使用されており、原理的にはこれらの施設からの漏洩放射線が環境放射線の一部となる。実際には、漏洩放射線はほとんどないが、微量な放射線の分布状況を知ることには一般公衆の集団線量を評価する上からも重要である。これらの線源の利用にともなう放射性廃棄物についても、気体廃棄物では地表への沈着及び大気中への拡散、液体廃棄物では地表水等への流入及び沿岸への沈着、固体廃棄物では保管や輸送時の漏洩などによる外部被曝が問題となる。

3-1-4. 雑線源からの放射線

われわれのまわりには、原理的にはX線を発生するテレビ装置、通常は全く問題はないが微量の放射性物質が使われた煙探知機などいろいろ製品が使われている。われわれ人間自体も放射線源である。集団線量を考える場合、ときにはこれらを雑線源として取り扱うことが必要となろう。

3-2. 内部被曝

3-2-1. 自然放射性物質

自然界に存在する放射性物質の吸入、経口摂取などにより体内被曝が生ずる。自然界の放射線核種としては、地球起源と宇宙線起源のものがある。地球起源の核種の代表は、 ^{238}U 及び ^{232}Th とそれらの娘核種である ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 、 ^{210}Pb 、 ^{210}Bi 、 ^{210}Po 、 ^{226}Ra 及び ^{40}K であり、宇宙線起源の核種では、 ^{14}C 、 ^3H 、 ^{22}Na などである。

a. ^{40}K ：成年男子の体重 1 kg あたり約 2 g のカリウムが含まれている。 ^{40}K の同位体比は 1.18×10^{-4} であり、平均放射能濃度は約 60Bqkg⁻¹ である。国連科学委員会は、

^{40}K による年間実効線量当量を一人あたり平均で $180 \mu\text{Sv}$ と推定している。

b. ^{87}Rb : 人体内の ^{87}Rb の平均放射能濃度は 8.5Bqkg^{-1} と計算されている。年間の実効線量当量は約 $6 \mu\text{Sv}$ と推定されている。

c. ^{238}U 系列 : この系列では、 ^{222}Rn とその短寿命壊変生成物が重要となる。

d. ^{232}Th : ^{220}Rn (トロン) とその短寿命壊変物が重要である。

3-2-2. 石炭によるエネルギー生産

石炭には ^{40}K 、 ^{238}U 、 ^{232}Th およびそれらの壊変生成物を含んでいるので、石炭を燃焼することによりこれらの放射性核種が大気中に拡散し、吸入による内部被曝を生ずる。石炭の ^{40}K 、 ^{238}U 及び ^{232}Th の平均放射能濃度は、それぞれ 50 、 20 及び 20Bqkg^{-1} と考えられている。

3-2-3. その他のエネルギー生産

石油や天然ガスも燃焼により放射性核種を空气中に放出し、内部被曝の線源となる。

3-2-4. リン鉱の利用

3-3. フォールアウト

^3T 、 ^{14}C 、 ^{54}Mn 、 ^{55}Fe 、 ^{85}Kr 、 ^{90}Sr 、 ^{89}Sr 、 ^{106}Ru 、 ^{131}I 、 ^{137}Cs 、 ^{136}Cs 、 ^{140}Ba 、 ^{144}Ce 、 ^{239}Pu などが内部被曝をもたらすフォールアウトからの核種とされている。

3-4. 原子力・放射線源利用施設からの放射性物質

原子力・放射線利用施設から漏洩した放射性物質、放射性廃棄物などからの内部被曝が考えられる。

3-5. 国連科学委員会報告

最近の国連科学委員会報告書¹⁰⁾では、世界の人々、一人一人が一年間に受ける平均の実効線量当量を表4及び表5のようにまとめている。自然放射線源からの実効線量当量は、外部被曝で 0.8mSv 、内部被曝で 1.6mSv の計 2.4mSv である。自然放射線源以外では、医療被曝による線量への寄与が高いことを示している。これらの線量は、各国の実績に応じて各国間でかなりのバラツキを有するものと考えられる。

4. 集団実効線量当量の推定

われわれの回りには多くの放射線源が存在し、微量とはいっても日夜、身体の外と内から被曝の洗礼を受けているのである。これらの放射線源からの被曝を、個人個人について測定・評価することはある程度は可能かも知れない。

Table 4 per Caput annual effective dose equivalent from natural sources in areas of normal background in the world.

Source of irradiation	Annual effective dose equivalent (μSv)		
	External irradiation	Internal irradiation	Total
Cosmic rays			
Ionizing component	300		300
Neutron component	55		55
Cosmogenic radionuclides		15	15
Primordial radionuclides			
K-40	150	180	330
Rb-87		6	6
U-238 series:			
U-238→U-234		5	
Th-230		7	
Ra-226	100	7	1300
Rn-222→Po-214		1100	
Pb-210→Po-210		120	
Th-232 series:			
Th-232		3	
Ra-228→Ra-224	160	13	340
Rn-220→Tl-208		160	
Total (rounded)	800	1600	2400

Table 5 per Caput annual effective dose equivalent and collective effective dose equivalent from various sources in the world.

Source of practice	Present annual individual dose (mSv)	Collective dose commitments
	per caput (World population)	Million man Sv
ANNUAL		per year of practice
Natural background	2.4	11
Medical exposures (diagnostic)	0.4-1	2-5
Occupational exposure	0.002	0.01
Nuclear power production	0.0002	0.001
		(0.03) a/
SINGLE		per total practice
All test explosions together	0.01	5
		(26) a/

a/ The additional long-term collective dose commitments from radon and carbon-14 for nuclear power production and carbon-14 for test explosions are given in parentheses.

外部被曝については、身体の外に装着した特殊な個人線量計により被曝線量を測定し、なんらかの換算係数を乗ずれば原理的には実効線量当量が算定できるであろう。飲食物や大気などから個人が摂取した放射能をすべて測定・評価できるならば、内部被曝による実効線量当量の算定は可能のように思われる。しかし、このような線量評価をすべての個人について実行することは不可能である。そこで、食・住などの生活環境や職業・趣味などが類似したグループを対象に集団実効線量当量などを推定し、それらを環境被曝のメルクマールにする方法が用いられることになる。

すでに述べたように、環境被曝を引き起こす線源は種々雑多である。外部被曝の場合、同一種類の線源であっても、場所と時間、遮蔽などの付加的条件等いろいろな因子によって、自由空間中の被曝線量でさえも異なる。内部被曝にいたっては、同一食事をとったとしても、個人の消化吸

収能力など生物学的特性によって、摂取する放射能には相違が生じる。環境被曝から集団実効線量当量などは(1)–(4)式によって求められるとする。

放射線影響協会が環境放射線の専門家委員会を組織して、1985年から国民線量推定のための基礎調査を行い、毎年、その委員会から報告書を出版している。その報告書¹¹⁾では、ある臓器・組織 m に関する集団線量当量 S_m 、は次式で求められるとしている。

$$S_m = \sum_i \int_0^T dt \int_0^\infty \{iH_{m,ex}(t) f_i + iH_{m,in}(t)\} P_i(t) dH \quad (6)$$

ここで、

$iH_{m,ex}(t)$: 状態 i の外部被曝による時間 t における線量当量率 (10^{-6} Sv h^{-1})

$f_i(t)$: 状態 i の遮蔽係数、時刻 t における遮蔽状況による

$iH_{m,in}(t)$: 状態 i の内部被曝による時間 t における線量当量率 (10^{-6} Sv h^{-1})

$P_i(t)$: 時刻 t において状態 i に Δt 時間生活する線量別人口 (人口分布関数)、 $\{人 / (10^{-6} Sv\mathit{h})\}$

4-1. 外部被曝

宇宙線 C 、大地からの放射線 E 、大気からの放射線 A 、フォールアウトからの放射線 F 、放射線利用施設などからの漏洩放射線 R 及びその他の線源からの放射線 M について線量を評価する。家屋などの遮蔽係数 f_i は、次式で計算するものとする。

$$f_i(t) = B_i \exp(-d / \lambda_i) \quad (\text{屋内の滞在時間について}) \quad (7)$$

遮蔽がない場合には、 $f_i(t) = 1$ (屋外の滞在時間について) とする。

ここで

d : 家屋などの遮蔽の厚さ (m)

λ_i : 建材など家屋の遮蔽材の状態 i の放射線に対する減弱距離 (m)

B_i : 建材など家屋の遮蔽材の状態 i の放射線に対するビルドアップ係数

大地からの放射線 E では、その時間的变化は無視してよいが、地域別、地上地下などで線量当量率が分布関数を与えるので、 $P_i(t)$ として、地域別、地形別人口分布、地上あるいは地下生活者などの人数と地上あるいは地下で生活している時間などのデータが必要である。 C や A などの線源についても、それぞれの項目について生活時間などの細かなデータが要求される。

4-2. 内部被曝

内部被曝は外部被曝に比べてもっと多くの因子が関係してくるので、線量推定が複雑になる。自然及び人工放射線のそれぞれの線源 i に対して、空間的・時間的放射能濃度分布、 $iC_n(t)$ を、該当する核種 n について求めることができれば、その核種が大気中 K 、水系中 M 、大地中 T 及び人体中 N のどの移行過程を経るかによって分けて考えることができる。吸入及び経口摂取による内部被曝の場合、摂取量が年齢によって異なるため、内部被曝線量当量、 $iH_{m,in}(t)$ は年齢 j について分けて考える必要がある。

大気中 (吸入摂取の場合) :

$$K:D_{ii}^{mj}(t) = \sum_n C_i^n(t) Q_j (DF)_{ij}^{n,m} \quad (8)$$

大気中 (経口摂取の場合) :

$$K:D_{ii}^{mj}(t) = \sum_n C_i^n(t) (DF)_{ij}^{n,m} \sum_l f_{ij}^l Q_j^l \quad (9)$$

水系中 (飲料水として経口摂取の場合) :

$$M:D_{ii}^{mj}(t) = \sum_n C_i^n(t) Q_j (DF)_{ij}^{n,m} \quad (10)$$

水系中 (食料品として経口摂取の場合) :

$$M:D_{ii}^{mj}(t) = \sum_n C_i^n(t) (DF)_{ij}^{n,m} \sum_l f_{ij}^l Q_j^l \quad (11)$$

大気中 (食料品としての経口摂取の場合) :

$$T:D_{ii}^{mj}(t) = \sum_n C_i^n(t) (DF)_{ij}^{n,m} \sum_l Q_j^l \quad (12)$$

人体中 :

$$N:D_{ii}^{mj}(t) = \sum_n C_i^n(t) Q_j (DF)_{ij}^{n,m} \quad (13)$$

ここで、 Q は摂取量、 l は食料品、 m は臓器・組織、 I_i は状態 i の内部線源別を意味している。 DF は線量算出係数で、次式で表される。

$$(DF)_{ij}^{n,m} = K E_i^n W_j^{n,m} \quad (14)$$

ここで、 $W_{n,m,j}$ は年齢 j の臓器・組織 m 中の核種 n の濃度、 $E_{n,j}$ は線源 i の中で核種 n から放出される放射線の組織吸収エネルギー、 K は線量換算係数である。内部被曝線量を算出する場合、(6) 式を修正した次式で計算できる。

$$S_m = \sum_i \int_0^T dt \int_0^\infty \sum_j D_{ii}^{mj}(t) P_j(t) dD \quad (15)$$

4-3. 線量推定に関連する因子

外部被曝と内部被曝とでソースタームは異なるが、環境被曝による線量推定には、いずれの場合にも国民の生活に関する細かな情報、体格などの生物学的データ等さまざまな情報が必要になろう。

4-3-1. 外部被曝

a. 国民生活時間調査結果

外部被曝に関係する大地や大気からの線量などは、場所や時間、屋外か屋内などいろいろな因子に依存して変化する。個人の受ける線量を推定するには、その個人の日常生活を場所、時間及び状態の関数として把握する必要がある。毎日、どのような場所に、どの程度の時間、どのような状態ですごしたかを、国民一人一人について詳しく知ることは、大変難しいことである。このような情報を得るには、国勢調査規模での全国調査が必要であろう。国民の生活時間調査としては、NHK の国民生活時間調査¹²⁾、経済企画庁の国民生活時間調査などがある。それらの中で、サンプル数、調査地域、調査頻度数等を勘案して、NHK の国民生活時間調査結果が線量推定に適していると考えられ

る。NHK の場合、1 都道府県あたり1,920人（総計90,240 人）を対象に、調査対象日の時刻別（15分きざみ）の生活行動と住宅状況を中心に調査されており、それらの結果は、県別、時間別に集計されている。在宅時間は職業などによって異なるが、1990年調査の結果では、表のように国民全体では、平日で15.26時間（63.6%）、土曜日16.16時間（67.3%）及び日曜日で17.46時間（72.8%）である。平均すると一日のうち約65.5%は自宅にいるが、残りの34.5%は自宅以外にいる。自宅の中での環境放射線による被曝線量は、家屋の構造などの条件がわかれば推定可能である。自宅以外での被曝線量は、通勤・通学の交通機関、通勤・通学先の建物の構造、農林漁業であれば働く場所の地形など諸々の条件に関係する。それらの条件についても、ある程度は生活時間調査結果から知ることができる。乗り物の中での線量、建物の種類別の屋内線量などについて、別個の調査が必要になろう。

b. 生活環境における線量分布

日本全国を対象とした屋外環境中の空気線量分布については、阿部ら¹³⁾の実測データが使用できる。長岡と森内¹⁴⁾は、生活環境中のガンマ線および宇宙線の線量分布を測定している。特に、人口の密集している東京都区内では、地下鉄や地上の電車内、地下街や地上の商店街など場所や状況によって、被曝線量がかかなり異なることを示している。

松田ら¹⁵⁾は、構造や建築工法の異なる94戸のモデルハウス内外の空気線量分布を測定し、鉄筋コンクリート家屋では、屋内と屋外とでガンマ線量に大きな差異はないが、防火木造家屋や軽量鉄骨家屋では、ガンマ線量は屋内の方が屋外より少ないことを示している。また、3階建の場合、鉄筋コンクリート家屋の屋内線量は各階ともほぼ同じであるが、木造や軽量鉄骨家屋では屋内線量は1階が最も高いことを示している。

c. 体格による実効線量当量及び実効線量の相違

実効線量当量及び実効線量は、多くの臓器・組織線量に関係する。放射線場が同じであっても、臓器・組織線量は体格など個人の生物学的条件によって異なる。Petoussiら⁴⁾は、胎児、乳幼児（生後8カ月）、小人（7才）、成人男女について、10keV から10MeV までのエネルギーの光子による臓器・組織線量を計算し、環境放射線による実効線量当量と実効線量を算出している。計算結果は、自由空間中の空気カーマに対する実効線量当量及び実効線量の比率として与えられている。これらのデータは、日本人に対しても使用できる。

4-3-2. 内部被曝

環境中に存在する放射性物質が人体内に摂取される道筋は、吸入、飲食、皮膚表面などが考えられる。環境放射性物質からの内部被曝を取り扱う場合、空気中あるいは食物中の放射能濃度に関する情報、呼吸量や摂取量などに関する情報、摂取された放射性核種の体内での挙動に関する情報、さらには、臓器・組織の線量を算定する方法などが必要である。食肉類、魚菜類、調味料などの食料品類に含まれる放射能濃度については、フォールアウトの代表である¹³⁷Cs、⁹⁰Sr 及び ²³⁹Pu などを対象に測定・調査されている。しかし、それらの食料品の放射能分布が一様でなく、調理・加工の仕方などによって放射能の摂取が異なることから、環境放射能の人体への摂取と内部被曝線量との関係については今後なお研究すべき多くの問題がある。食品か

らの摂取に関しては、「国民栄養の現状」など厚生省の調査研究等により国民ひとりあたりの食品摂取量などの資料は入手できるが、魚肉類など多くの食品の生産地が全世界に分布していることなどから、食品中の放射能濃度を知ることが困難である。国連科学委員会の報告書などを利用して、地球規模での食物連鎖を研究することが必要になろう。

放医研の委託業務である「国民線量推定のための基礎調査」¹⁶⁾で、自然放射性核種である⁴⁰K 及び⁸⁷Rb からの内部被曝線量を推定している。特に、1986年4月のチェルノブイリ事故に関係して、我が国をはじめ多くの国で¹³⁷Cs などの内部被曝による集団実効線量当量が算定された。環境放射性物質による内部被曝からの集団実効線量当量あるいは集団実効線量を推定するには、細部にわたって今後解明しなければならない問題が多い。

5. 集団実効線量当量の今日的結果

5-1. 環境被曝からの集団実効線量当量

環境放射線及び環境放射性物質から日本人が受ける集団実効線量当量については、基礎研究を含め、多くの研究が行われている。しかし、線量推定には衣食住はもとより時間と場所での動きを含めた毎日の生活などの情報が必要である。ここでは、現在までに明らかにされたデータを用いて、予備的に集団実効当量を推定した。

5-1-1. 外部被曝

環境放射線の外部被曝源は、屋外では、大地、大気および宇宙からの放射線であるが、屋内では、それらの放射線の建物による遮蔽、建築材料に含まれる放射線物質からの放射線などにより屋外とは異なる。日常生活の中で、屋外・屋内の滞在時間は職業などによって異なるが、NHK の調査などから、滞在時間の割合は屋外0.2、屋内0.8である。

屋外におけるラドンの影響を除く環境放射線からの各県別の集団実効線量当量を算定した結果を表6に示す。集団実効線量当量は、大地と大気から45,700人・Sv/年、宇宙線から32,900人・Sv/年と推定された。両者の和は78,600人・Sv/年であり、人口を1億2千4百万人（1911年）とすれば、国民一人あたりの実効線量当量は0.6mSv/年となる。松田らのデータや放医研における実測データなどから、家屋による遮蔽効果と建築材からのガンマ線の影響とが拮抗するためか、屋内および屋外のガンマ線量はほぼ同じとしても集団線量には大きな差異を生じないと思われる。

フォールアウトの¹³⁷Cs による集団実効線量当量は、家屋の遮蔽係数を0.3とし、上記の屋内・外滞在比を用いたとき、1985年では、300人・Sv、1988年では430人・Svと推定された。

5-1-2. 内部被曝

原子力安全研究協会は、日本国民が日常生活の中で被曝している放射線源（自然放射線やフォールアウトなど環境放射線、医療放射線など）からの実効線量当量の評価・推定値をまとめて報告している¹⁷⁾。そこでは、主な自然放射性核種について種々の食品中の放射能濃度が記載されている。チェルノブイリ事故の影響を避けるため、核実験フォールアウトについては1985年までのデータが纏められている。ラドンの吸入による被曝を除く主な環境放射性核種の内部被曝による実効線量当量を表7に示す。自然放射性物

Table 6 Preliminary results of collective effective dose equivalents from environmental radiations (external exposures) in Japan.

Prefecture	Population 10 ³	Annual collective effective dose equivalent	
		Terrestrial origin	Cosmic rays
Hokkaido	5,639	1,692	1,498
Aomori	1,474	295	488
Iwate	1,413	410	385
Miyagi	2,258	813	593
Akita	1,221	452	324
Yamagata	1,225	427	345
Fukushima	2,104	884	589
Ibaragi	2,859	1,144	752
Tochigi	1,938	814	535
Gunma	1,963	550	548
Saitama	6,452	1,678	1,704
Chiba	5,586	1,173	1,468
Tokyo	11,683	3,739	3,084
Kanagawa	7,985	1,118	2,113
Niigata	2,470	1,112	655
Toyama	1,118	470	295
Ishikawa	1,163	488	307
Fukui	818	515	217
Yamanashi	855	222	262
Nagano	2,151	814	718
Gifu	2,061	1,237	569
Shizuoka	3,665	1,283	974
Aichi	6,658	3,262	1,735
Mie	1,792	789	475
Shiga	1,225	686	330
Kyoto	2,558	1,023	673
Osaka	8,559	3,937	2,251
Hyogo	5,358	2,465	1,414
Nara	1,382	553	371
Wakayama	1,071	493	284
Tottori	614	270	163
Shimane	776	248	207
Okayama	1,920	864	528
Hiroshima	2,839	1,278	759
Yamaguchi	1,555	606	414
Tokushima	830	315	220
Kagawa	1,022	572	269
Ehime	1,511	771	400
Kochi	820	412	218
Fukuoka	4,803	2,257	1,263
Saga	876	403	231
Nagasaki	1,552	590	408
Kumamoto	1,839	644	493
Oita	1,232	505	330
Miyazaki	1,165	489	314
Kagoshima	1,789	519	474
Okinawa	1,224	416	323
Total	123,102	45,700	32,900

Table 7 Preliminary results of effective dose equivalents from environmental radioactive materials (internal exposures)

Radionuclide	Effective dose equivalent (mSv/year)
³ T (natural, fallout etc.)	2.910 ⁻⁵
¹⁴ C	1.4 × 10 ⁻²
⁴⁰ K	20 × 10 ⁻²
⁸⁷ Rb	0.3 × 10 ⁻²
²¹⁰ Pb- ²¹⁰ Po	16 × 10 ⁻²
¹³⁷ Cs (Fallout only)	0.088 × 10 ⁻²
⁹⁰ Sr	0.12 × 10 ⁻²
²³⁹ Pu ²⁴⁰ Pu	0.28 × 10 ⁻²
²⁴¹ Am	0.10 × 10 ⁻²

質とフォールアウトによる実効線量当量では、 ^{40}K の寄与が大きいことがわかる。同一食品でも料理の仕方や個人の嗜好などによって、放射性物質の摂取量は相違し、同一摂取量であっても代謝など個人の生物学的条件等によって体内沈着量は異なる。環境放射性物質の内部被曝については、今後、解明すべき問題が山積している。

5-2. 医療被曝や職業被曝などとの比較

一般公衆は、日常生活の中で環境放射線や環境放射能のほかに、医療放射線を受けている。また、原子力や放射線の利用を職業にしている人々は、環境や医療放射線に加えて、職業上の被曝を受けている。環境被曝における集団実効線量当量は、その推定・評価において十分な資料データが得られていないこと、その方法においても検討すべき事

項が多いことなどから近似値というよりオーダーをみただけの数値でしか得られなかった。

医療被曝や職業被曝による集団実効線量当量は、放医研のグループ等が調査・研究しており、最近のデータとして表8および9のような値が報告されている¹⁸⁻¹⁹⁾。我が国の医療被曝による国民一人あたりの実効線量当量は、残りの臓器・組織に食道、肝臓、胃、大腸上部および直腸を用いた場合、年間約2.3mSvとなる。この値は、世界の平均的な人々、一人一人がラドンを含めた自然放射線源から受ける年間の実効線量当量、2.4mSvに匹敵する。国際的には、医療被曝による実効線量当量は工業国でも年に一人あたり1.0mSvとされているのに比べると、我が国の医療被曝がかなり高いことがわかる。

Table 8 Collective effective dose equivalent from medical exposure in Japan.

Diagnostic examination	Collective effective dose equivalent (person·Sv/year)
X-ray diagnostic	184,000
Mass screening (stomach)	16,100
Mass screening (chest)	6,900
X-ray computed tomography	56,000
Diagnostic nuclear medicine	4,200
Dental radiography	2,900
Total	270,100

Table 9 Collective effective dose equivalent from occupational exposure in Japan.

Occupation	Collective effective dose equivalent (person·Sv/year)
Medicine: Doctor	8.5
Nurse	2.0
Technician	7.6
Others	3.9
Industry: Non-destructive inspection)	2.8
General	5.5
Research and Education	0.7
Atomic industry	2.5
Nuclear power station	8.4
Total	118

職業被曝による集団実効線量当量は、全体で一年間にほぼ120人・Svであり、診断による医療被曝の1/2500でしかない。

参考文献

- 1) ICRP-26: 国際放射線防護委員会勧告 (日本アイソトープ協会翻訳)、1977.
- 2) ICRP-60: 国際放射線防護委員会の1990年勧告 (日本アイソトープ協会翻訳)、1991.
- 3) 丸山ほか: 放医研刊行物 (NIRS-R-17)、1989.
- 4) Petoussi, N et al.: Radiat. Prot. Dosim., 31, 37, 1991.
- 5) 山口恭弘: Radioisotopes, 40, 459, 1991.
- 6) Zankl, M, et al.: Health Phys., 62, 395, 1992.
- 7) UNSCEAR-REPORT: Levels and Effects, United Nations, New York, 1972.
- 8) UNSCEAR-REPORT: Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York, 1977.
- 9) UNSCEAR-REPORT: Ionizing Radiation; Sources and Biological Effects, United Nations, New York, 1982.
- 10) UNSCEAR-REPORT: Sources, Effects and Risks, United Nations, New York, 1988.
- 11) 放射線影響協会: 国民線量推定のための基礎調査、昭和53年3月、1978 (以後 現在まで毎年、報告書が出版されている)
- 12) NHK 放送文化研究所: 国民生活時間調査 (時間量・時刻編、県別)、日本放送出版協会、東京、1991.
- 13) 阿部史郎: 放射線科学、32、109、1989.
- 14) 長岡 鋭、森内 茂: 保健物理、26、1299、1991.
- 15) 松田秀晴ほか: 保健物理、25、385、1990.
- 16) 放射線影響協会: 国民線量推定のための基礎調査 V、昭和56年12月、1981.
- 17) 原子力安全協会: 生活環境放射線 (国民線量の算定)、1992.
- 18) Maruyama, T., et al.: Radiat. Prot. Dosim., 43, 213, 1992.
- 19) 丸山ほか: Radioisotopes, (inpress), 1993.

② 放射性セシウムによる内部被曝線量推定ファントム

内山正史、中村裕二（総括安全解析研究官付）

Estimation of Internal Dose from Radiocesium and Phantom

Masafumi Uchiyama and Yuji Nakamura
Safety Analysis Unit

A complicated model describing the movement of a radionuclide in both the natural environment and socio-economical systems is usually used to estimate the internal dose to the public in terms of collective dose, taking demographic data into account. The result can be certified for reliability in some compartments of the model. One of the compartments is the body content. In the case of radiocesium, the individual body burden can be measured using a whole-body counter. The measurement must be calibrated with a phantom. The public is composed of individuals of various ages. Accordingly, the whole-body counter should be calibrated with a set of phantoms approximating individuals of different body sizes.

Relationships between counting efficiency and body size were analyzed on ^{137}Cs ^{134}Cs or ^{40}K incorporated into the whole-body using a set of phantoms. Four sizes covering average Japanese physiques from infant to adult male, were chosen to prepare an anthropomorphic phantom system. Some hollow containers which simulated body segments were made from polyvinyl chloride and

assembled to use as the phantom. The distribution of ^{137}Cs in aquatic solution was homogeneous through the phantom. A whole-body counter at the National Institute of Radiological Sciences, which had two 8×4 inch NaI (Tl) detectors sandwiching the subject, were used at a rate of 5 cm per minute in a scanning mode. The measurements were carried out in an iron room. Relations were analyzed between counting efficiency and some anthropometric parameters. The best fit was given by a linear equation of both reciprocals of height in cm and weight in kg, with a correlation coefficient of 1.00 for ^{137}Cs . The result indicates that radioactivity of ^{137}Cs can be determined for individuals with different anthropometric parameters using the whole-body counter system when a set of phantoms is appropriately prepared. This means that effective equivalent doses for individuals can be computed accurately from the measurements. Further, an estimate on the body content from an dose estimation model using measurements of radioactivity in environmental substances can be evaluated by comparing the body burden measured.

1. 諸言

環境に放出された放射性核種による公衆の集団内部被曝を推定する場合には、環境中での放射性核種の挙動と共に、線源の社会経済学的移動及び人口動態から構成される複雑な線量算定モデルが一般に使用される。この計算結果の妥当性は検証されるべきものである。放射性核種の人体中の放射能を知る方法は、人体の直接測定（直接法）と組織中の濃度、排泄量ないし摂取量あるいは環境物質中の濃度の測定値から推定する間接的な方法（間接法）に大別される。数値の正確さ、適用できる対象人数、経費その他の要因を考慮すると、この2つの方法を場合により使い分け、あるいは併用して、内部被曝線量の推定を行うべきであろう。しかしある集団について間接法を用いて放射性核種による人体の放射能を推定した場合には、その構成員の一部を直接法で測定することにより推定値の妥当性を実証しなければならない。放射性核種の体内量の段階での評価は内部被曝を推定する場合、線量推定過程に最も近い段階で線量推定モデルの妥当性を検証することになる。線量推定モデルにおいて検証する位置が放出源に近いほど、その

位置で推定された被曝線量値の妥当性は低くなる。直接法による体内量評価の確立が重要で、緊要である由縁である。

さらに、公衆は年齢や体格、性、居住地域、食習慣などに大変に違いのある人達により構成されている。この集団について内部被曝線量を適切に推定するには、構成員の体内の放射性核種の放射能（体内量）を正しく測定ないし、推定しなければならない。この測定値から相対的に確実な当量線量を計算することができる。

モデルによる推定値の妥当性を実測値により検証することの必然性は、従来から指摘されてきたところであるが、モデルが未成熟であり、また体内量の検証に必要な人体の形状を模した放射能の標準線源（ファントム）について統一された見解がなく、さらにこれを作成する技術が確立していなかった。一方で、体内放射能を正確に測定できるwhole-body counterが十分に普及していなかった。このような背景で、モデルによる推定値の妥当性の検討は進んでいなかった。わが国においても、この問題は組織的に検討されることはなかった。

このような時期にソ連邦のチェルノブイリ原子力発電所事故が発生した。この事故の健康影響を評価するために、ソ連邦を始め欧米諸国で被曝線量推定モデルが開発され線量推定が行われる¹⁾とともに、whole-body countingによる体内量の測定も系統的に実施されてきた。わが国においても、日本原子力研究所で被曝線量推定計算コードが開発され、実用段階に到っているが、人体中の放射線推定値の妥当性についての検証は行われていない。放射線医学総合研究所においては、モデルおよび線量推定コードの必要性は指摘されていたものの実用段階の開発には成功していない。

上述の歴史的経緯から、実用段階の線量推定コードの開発を期待しつつ、近い将来においてその妥当性を体内量で検証する場合に備えて、本研究「放射性セシウムによる内部被曝線量推定とファントム」を実施した。妥当性を検証するのに適切な放射性核種の簡矢として、放射性セシウムとカリウム40を取り上げた。

放射性セシウムについては大気圏内核実験やチェルノブイリ事故に見るように実際に公衆の人体汚染の経験例がある。放射性セシウムについては体内にある放射能を無侵襲な方法で測定することができる。さらに無侵襲な方法であるので反復して測定することにより放射能の時間積分値の実測ができる。この時間積分値に線量換算係数をかけて、体内にある放射性セシウムから観察期間中に受けた被曝線量を推定することができる。カリウム40は天然放射性核種として人体に常在し、放射性セシウムと同様に無侵襲な方法で測定することができる。

放射性セシウムおよびカリウム40は壊変して、 β 線と γ 線とを放出する。この γ 線は被検者の体外においた放射線検出器で検出できる。被検者の体内にある放射能は、その計測値を適切に作成された標準線源から放出される γ 線の測定値と比較して、校正することにより評価される。人体の立体構造は単純ではないので、 γ 線の放出方向もきわめて複雑である。的確な校正値を得るためには人体の形状を十分に近似した標準線源であるファントム（人体模型）を使用することが肝要である。Fig. 1に示したように身体各部位の比率は成長の過程により変化する²⁾。これらの比率は個人差を伴うものであるが、本研究では、平均的体格を持った日本人の体内量の校正に目標を限定した。5ヶ月齢児から成人までを近似する4種類のサイズの放射性セシ

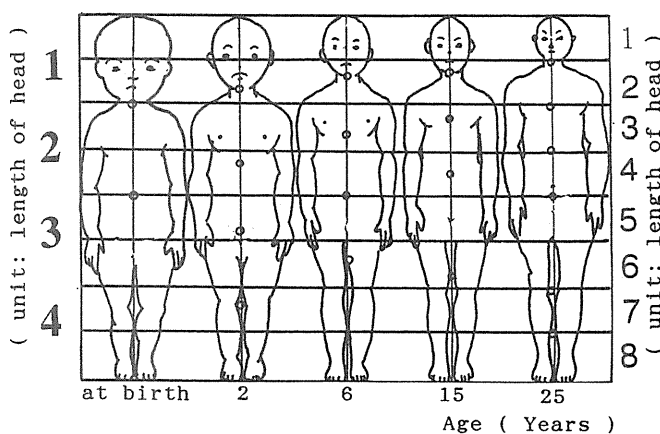


Fig. 1 Balance of body segments in various ages.
(Redrawn from Matsuo and Morita, (1974).

ウム及びカリウムのファントムが作成された。放射線医学総合研究所（放医研）のホールディカウンタ（WBC）でこれらのファントムの計数効率を体系的に決定し、ファントムの体格、とくに容易に測定できるパラメータとの関係が解析された。

2. 方法

臓器規模で巨視的に比較すると、放射性セシウムの濃度は全身を構成するどの臓器についてもほぼ均一である。WBCで人体内の放射性セシウムの測定を行う場合にも、 γ 線検出器の視野に入る部位の放射性セシウムの分布はやはり巨視的には均一と考えてよい。したがって校正に用いるファントム中の放射性セシウムは、均一濃度で全身に分布していなければならない。カリウム40についても骨髄で他の組織の2倍の濃度であることが明らかにされているが、WBCで測定する場合にはその測定法の特殊性により、その全身分布の近似としては、放射性セシウムと同様に均一なモデルを用いて差し支えない。このような条件を満たし、取扱の簡便性、安全性さらには経済性等を考慮するために、作成されるファントムの材質、使用する線源の形状は多岐にわたっている。

塩化ビニールを熱整形して身体各部位を近似した中空の容器に、放射性セシウム水溶液あるいは塩化カリウムを充填したファントムである人体形結合型ファントム（ABファントム）を作成した。ファントムの体格は、成人男子用以外は1973/74年に既成服（ユニホーム）作成のために行われた調査報告³⁾を参考に決定した。この報告書に明記されていないがファントムの作成に不可欠の数値、例えば横幅と矢状径との比については文献¹⁾を参照して数値を推定した。ファントムの形状が人体に近いほど、適切な校正を行うことができる。しかし、塩化ビニールの加工上の難点から、各部位の形状は直方体と半円柱の組合せ、円錐台あるいは円柱に限らなければならなかった。このため組み上げたときの総重量もモデルにした年齢の記載値といくらか異なっていた。長さ方向についての加工の難点はなかったため、身長に関してはモデルに合わせる事ができた。5ヶ月齢児と成人男子ファントムについて各部位の重量構成をTable 1に示した。

また作成した4種類のファントムの身長、重量と封入した放射能をセシウム137を例にTable 2に示した。なお、塩化ビニールの比重とファントムに使用されている重量および容器に充填したセシウム137水溶液重量から算出したファントムの比重は1.08で、ICRPのReference Manの1.07⁴⁾との差は計数効率に影響しない程度であった。アクリル樹脂は相対的に加工が容易であり、人体計測学的に正しく再現されたファントムを作成することができる。このようなファントムを人体計測学的ファントム（AMファントム）と言う。このファントムを使用することで被検者の体内量の校正をさらに正確に行えるものと期待される。本特別研究期間に、1体のみ作成する予算措置があり、11歳児のAMファントムを作成できた。

放医研にあるWBCの一つは8インチ径×4インチ厚の対向する1対のNaI(Tl)検出器を備え、走査法で体内の放射能を計数する。以下このホールボディカウンタをWBC-Aと称する。仰臥位のジオメトリで放射性核種を充填したファントムを頭頂から足まで、5cm/分の定速

Table 1 Weight composition of phantom for two different ages.

5-month Phantom (kg)		
Segments	Weight of Container	Weight of Segment
Head	0.56	2.40
Trunk	1.07	6.03
Right Thigh	0.23	0.55
Left Thigh	0.23	0.55
Right Lower Leg	0.14	0.23
Left Lower Leg	0.14	0.23
Right Arm	0.22	0.44
Left Arm	0.22	0.44
Height	66.5 cm	
Total Weight	10.9 kg	

Adult Male Phantom (kg)		
Segments	Weight of Container	Weight of Segment
Head	1.63	6.82
Chest	2.07	12.41
Upper Abdomen	1.71	9.87
Lower Abdomen	2.21	13.57
Right Thigh	1.25	4.96
Left Thigh	1.25	4.72
Right Lower Leg	0.94	2.45
Left Lower Leg	0.89	2.42
Right Arm	1.30	3.59
Left Arm	1.31	3.55
Height	162 cm	
Total Weight	67.25 kg	

Table 2 Physique and radioactivity of ¹³⁷Cs of phantoms.

Phantoms	Height (cm)	Weight (kg)	Radioactivity (Bq)
5-month Child	66.5	10.9	1151*1
6-year Child	119	25.8	2818*1
11-year Child	146	42.6	4857*1
Adult Male	162	67	1216*2

*1 As of 9 Aughst 1990

*2 As of 4 August 1990

Specific gravity of Phantom: 1.08

で走査する条件で放出されるγ線を計測して、計数効率を求めた。水を充填したファントムを同一条件で測定して、バックグラウンド (BG) を評価した。WBC-A について BG の変動の 2 倍で定義したセシウム137 の検出限界は、20Bq であり、カリウム40 については 160Bq (カリウム換算量、5 g) である。

3. 結果と解析

実際の定量に簡便に適用するには、WBC による測定前に被検者について測定する身長あるいは体重と、計数効率の定量的関係を確立しておくことが適切と考えられる。Fig. 2 にセシウム137 について計数効率と体重あるいは身長との関係を示した。それぞれの体格パラメータの逆数、あるいは対数への計数効率の回帰を Figs. 3, 4 に示した。また体重と身長との比の平方根への計数効率の回帰を Fig. 5 に示した。被検者についてこの2つの体格パラメータの組合せに個人差が大きいことを考慮に入れると、対応できるパラメータの組合せと計数効率への回帰を解析する必要がある。cm 表示の身長を H、kg 表示の体重を W、cps / Bq 表示の計数効率を Y で表すと、H 及び W それぞれの逆数への Y の多変数直線回帰は次式で表された。

$$Y = -1.52 \times 10^{-3} + 1.033H^{-1} + 6.64 \times 10^{-2}W^{-1} \quad (1)$$

セシウム-137 の計数効率の体格パラメータへの回帰の

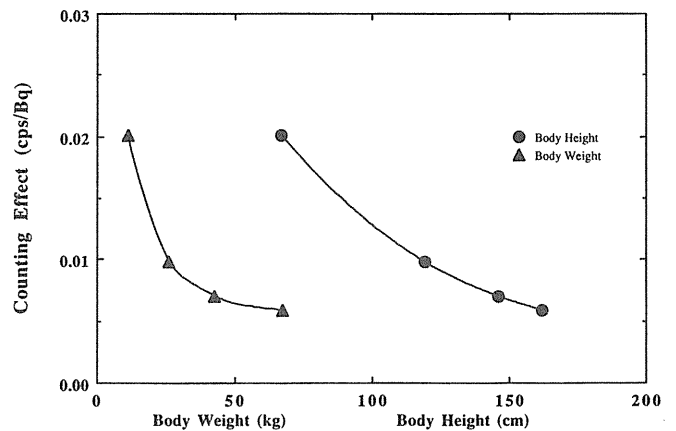


Fig. 2 Relationship between counting efficiency and height or weight.

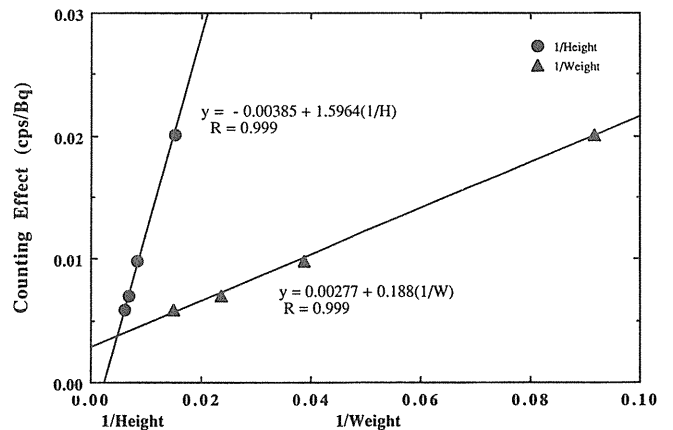


Fig. 3 Relationship between counting efficiency and reciprocal of height or weight.

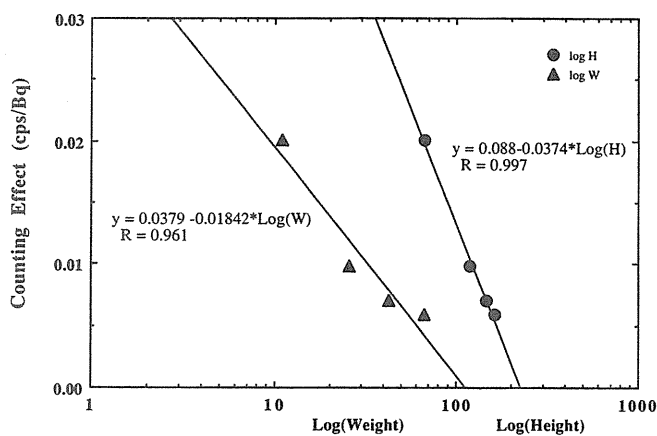


Fig. 4 Relationship between counting efficiency and logarithm of height or weight.

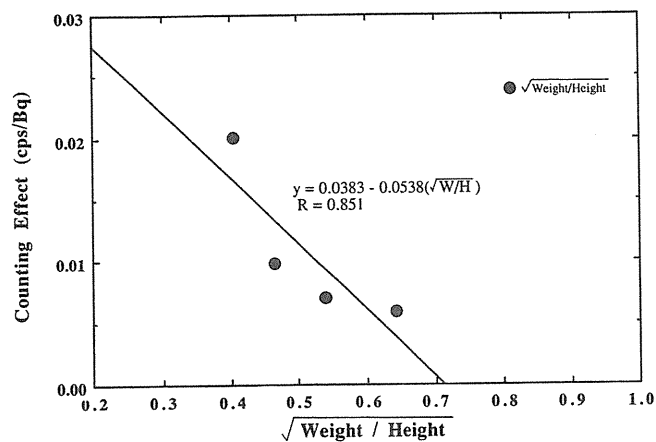


Fig. 5 Relationship between counting efficiency and square root of weight by height.

Table. 3 Summary of relationships between counting efficiency and body parameters.

Coefficients	Parameters					
	log H *1	log W *1	H ⁻¹ *1	W ⁻¹ *1	√WH ⁻¹ *1	(H ⁻¹ , W ⁻¹) *2
a	8.8 × 10 ⁻²	3.79 × 10 ⁻²	-3.85 × 10 ⁻³	2.77 × 10 ⁻³	3.836 × 10 ⁻²	-9.718 × 10 ⁻⁴
b	-3.74 × 10 ⁻²	-1.84 × 10 ⁻²	1.596	1.879 × 10 ⁻¹	-5.386 × 10 ⁻²	0.899
c	-	-	-	-	-	8.189 × 10 ⁻²
r	-0.997	-0.961	0.999	0.999	-0.851	1

*1 Linear Regression Analysis $y = a + bx$

y: Counting Efficiency in cps / Bq
 x: log H, log W, H⁻¹, W⁻¹, WH⁻¹
 r: Correlation Coefficient

*2 Multilinear Regression Analysis $y = a + bH^{-1} + cW^{-1}$

z: Counting Efficiency in cps / Bq
 r: Multiple Correlation Coefficient

結果を Table 3 に示した。計数効率の体重／身長あるいはその平方根への回帰が相対的に劣っていた。その他のパラメータへの回帰には大きな違いはないものの、体格に対応する計数効率の推定は(1)式を用いるのがより適切であると結論する。

同様にして、セシウム134 とカリウム40 について、体格と計数効率との間に (2)、(3) で表される相関関係が示された。

セシウム134 について

$$Y = 5.04 \times 10^{-2} - 10.41H^{-1} + 1.1997 \times W^{-1} \quad (2)$$

カリウム40について

$$Y = 8.702 \times 10^{-4} - 1.103 \times 10^{-1}H^{-1} + 2.109 \times 10^{-2}W^{-1} \quad (3)$$

なお、セシウム137 について AM ファントム (3、11 歳児、成人男子) の計数効率を (1) 式からの推定値と比較して Table 4 に示した。3 歳児の推定値より約20%多いことが注目される。

AB ファントムについてはセシウム137 と比較すると、他の2核種の計数効率の体格への回帰は良くない。セシウ

ム134 では5カ月齢と成人男子で推定値は実測値のそれぞれ70%と90%であり、カリウム40 では5カ月齢の推定値は実測値の2.3倍に達した。

検出系が異なれば、計数効率の体格パラメータへの回帰は異なることが多い。放医研には8 × 4 inch NaI (Tl) 検出器を被検者から等距離に上下に4個ずつ取り付けて、検出器を固定したままで測定する WBC (WBC-B) がある。この検出系は成人男子の全身を部位毎に同時にその視野に入れることができる。WBC-B で前出の4ファントムを測定して得た計数効率に対する WBC-A の計数効率は、セシウム137 について5カ月齢の45%から成人男子の23.1%であった。検出器の総合した視野の大きい WBC-B の計数効率の優れている点が体格差により鮮明にされた結果が得られた。

4. 考察

WBC の測定で適用するジオメトリは多様である。したがって、本研究でえられた結論は必ずしも一般性のあるものではない。現実には多様な WBC が公衆の体内測定に使用されている。WBC ごと的確な校正が必要であると共に、WBC とファントムの最も適切な組合せを作り、これを体内定量の標準系として他の測定系で得られた数値を校

Table. 4 Evaluation of counting efficiency of Cs-137 estimated for anthropometric phantoms using an experimental equation on a set of anthropomorphic phantoms.

Phantoms	Height (cm)	Weight (kg)	Date of Measurement	Counting Efficiency (cps / Bq)		Ratio of Estimate to measured
				Measured	Estimated	
3-year Child	96	16.0	2 July 1992	1.087×10^{-2}	1.350×10^{-2}	1.24
			4 August 1993	1.124×10^{-2}	1.351×10^{-2}	1.20
11-year Child	139	34.7	22 July 1993	7.506×10^{-3}	7.856×10^{-3}	1.05
			4 August 1993	7.614×10^{-3}	7.856×10^{-3}	1.03
Adult Male	173	64.4	2 July 1992	5.506×10^{-3}	5.557×10^{-3}	0.99
			22 July 1993	5.823×10^{-3}	5.557×10^{-3}	0.95
			4 August 1993	5.859×10^{-3}	5.557×10^{-3}	0.94

正していく必要がある。このようにして確立された体内量と比較することで線量推定モデルの修正及びコンピューターコードの変更を行うことが、集団線量の推定および被曝による健康影響リスクの算定にとって、必須であると考える。特定サイトを想定して設計した線量算定コンピューターコードを作成して、実データを採り、これを用いてモデルの妥当性、算定された線量の信頼性について、検討を進めることが次期特別研究でなすべき中心的な課題と考える。

WBCの校正に関しては、カリウム40の成績が良くなかった。カリウム40は人体内に常在するため放射性セシウムの計測への寄与が大きいため原因を早急に解明することが必要である。不整合の程度がガンマ線エネルギーと関連するような結果であったので、この点からの実験的あるいは理論的解析も必要である。そのみならず集団被曝線量に一定の寄与をしているカリウム40自身からの内部被曝線量の正確な把握や、体脂肪量と年齢との関連の把握を通して健康影響の観点からも、この原因の解明が望まれる。

[参考文献]

- 1) 原子放射線影響についての国連科学委員会報告書 (1988)
- 2) 松尾保、守田哲朗共著 乳児栄養学 医歯薬出版 (昭和49年)
- 3) 日本人の体格調査報告書—既製衣料の基準作成のための— (1978年~1981年) 通商産業省工業技術院 日本規格協会 JIS衣料サイズ推進協議会 (1984)
- 4) ICRP Pub. 23, Pergamon press, Oxford (1975).

[研究発表]

- 1) 内山正史、中村裕二他：第34回日本放射線影響学会、口頭発表、1991. 11 (東京)
- 2) 内山正史：放射性セシウムによる内部被曝線量推定とファントム、放医研環境セミナーシリーズ No.20 169-175, 1992.

3-3 体外、呼吸器被曝に影響を与える環境パラメータの検討

藤 高 和 信、古 川 雅 英、松 本 雅 紀、阿 部 道 子、
阿 部 史 朗 (環境衛生研究部)

A Study on Environmental Parameters Which Affect External and Respiratory Dose

Kazunobu Fujitaka, Masahide Furukawa, Masaki Matsumoto, Michiko Abe and Siro Abe
Division of Environmental Health

Environmental parameters which affect external and respiratory dose of the public were studied. As radon is the largest source of the public exposure, focus was put on the meteorological parameters such as air motion and rain which directly affect radon concentration in the air. The air motion was monitored through long-period observations of atmospheric ^7Be activity, and the size distribution of airborne radioactivities, which affects the magnitude of actual dose, was also monitored through ^7Be measurements by the use of low-pressure type impactors. The rain was studied mainly from a viewpoint of

its scavenging effect on atmospheric radon daughters. Analyses of data obtained by a high-sensitive rainmeter along with a NaI (TI) scintillation dosimeter showed that a large enhancement of the external radiation level is caused by wet deposition of radon daughters in the initial stage of each rain, and the increment is large when there is sufficiently a long dry period preceding the onset of the rain. Such enhancement is easily detected in case the dry period is longer than three hours. It implies that the concentration of radon daughters would recover in three hours after it is decreased by the rain scavenging.

1. 緒 論

環境中の公衆被曝の中で最も線量が大きいのはラドンによる呼吸器被曝である。ラドンは自然放射性核種であるために日本では規制対象外であるが、欧米の一部では生活環境中のラドン濃度限度に関する勧告が出されており、自然放射線といえどもコントロール可能なものは制限するという流れが世界的に認められる。これを考える時、ラドンの分布と時間変化に影響を与える環境因子を調べることは、実際に受ける被曝線量を算定する上で重要な課題である。

ラドンはローカルな地面から出るものと、遠くから運ばれるものに大別できるがローカルな成分は大気安定度の影響を受けながら乱流拡散で大気に広がり、また降水の影響を受けて濃度が増減する (Fig. 1)。一方遠方起源のものは風で運ばれるが、夏は太平洋から薄いラドンが、冬はアジア大陸から濃いラドンが運ばれる。Fig. 2 は鉛直方向の輸送の概念図である。ラドン (^{222}Rn) は気体で半減期が約 3.8 日と長いので、かなり長距離を移動できただけでなく、肺に吸入後そのまま排出される可能性がある。しかしラドンが大気中で壊変してできる ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 等の娘核種は固体粒子である。それらの半減期は30分以下と短く、また大気中エアロゾルに付着して呼吸器表面に沈着し易いため、親核種の ^{222}Rn より有効な呼吸器被曝の原因になる。従って被曝の定量のためには大気中放射性物質のサイズ分布の情報も極めて重要である。

広域移流に関する情報はラドン以外の大気中放射性核種 (^7Be 等) の挙動解析からも得られるが、直接的に気象情報を得るため平成3年から気象衛星のデータ受信を開始した。しかしデータ蓄積に時間を要するため、本研究では主としてローカルなラドン収支について検討してきた。一方ローカルなラドン挙動に対しては降雨の影響が大きい。降雨があると大気中に浮遊するラドン娘核種およびその付着したエアロゾルが掃去されて大気中放射性物質濃度が低下すると共に、地面に沈着した核種によって空間放射線レベルが一時的に上昇する。

当研究の目標はこれらの自然変動の規則性を見つけて線量算定に役立つ基礎情報を得ること、ひいてはモニタリング手法の改善にも役立てることである。自然観測のアナログデータの観察から法則を帰納する方法をとったので能率は低いが、直接的な核種分析なしでも推論できる長所がある。最初期の1970年代に空間放射線レベル、大気放射能、気象を中心とする9つのパラメータの時間変動の形態解析、相関解析(偏相関計数や重相関計数を含む)を行ない、2年以上の連続データの解析を十数回繰り返したことが。当研究のベースになった。当時の雨量計は最もポピュラーな転倒マス型のもので、0.5mm 刻みの雨量しか記録できなかった。色々な気象条件下における雨量と空間放射線の相関を調べるうち、一貫しない事例が見つかった。Fig. 3 左は転倒マス型雨量計で多く見られる例で、降雨開始時に

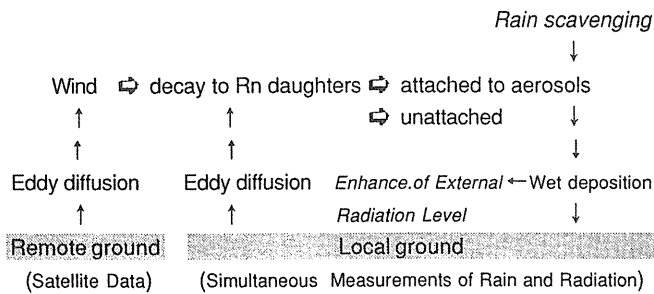


Fig. 1 A schematic model of transport of radon in the environment.

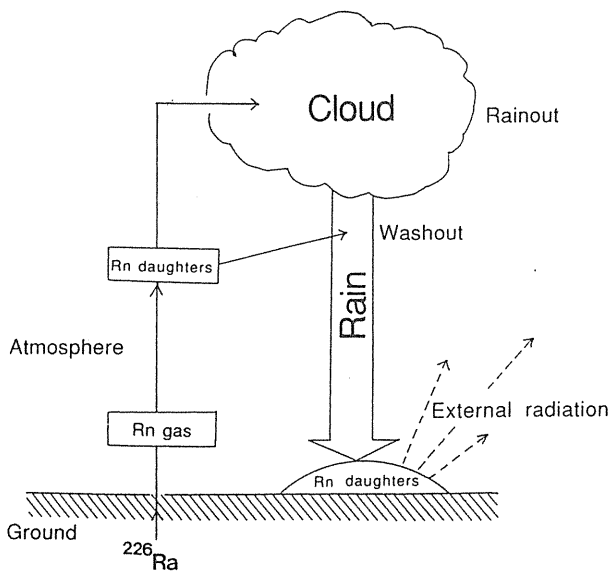


Fig. 2 A schematic model of rain scavenging of atmospheric radon.

空間放射線レベルが急激に上昇する。同図右は例外的な場合で、降雨開始前から空間放射線レベルの上昇が認められる。それは転倒マス型の雨量計では微量の雨を検知できなかったためと考えられる。その詳細を調べるため1985年以降は解析対象を雨量とガンマ線レベルに絞ることにして約100倍も高感度の雨量計と直径2インチのNaIガンマ線モニタを放医研内に並べて設置した。同時に、放医研第1研究棟屋上において大気中 ${}^7\text{Be}$ の日変動とエアロゾルのサイズ分布の連続観測を行なった。大気中 ${}^7\text{Be}$ の日変動については8気象要素(降水量、気温、蒸気圧、相対湿度、海面気圧、風向、風速、天気図)との関係を調べた(Fig. 4)。その結果、 ${}^7\text{Be}$ 濃度変化に大きく関係する気象的表現は気圧配置であることが判明した。

2. 観測システム

Fig. 5 から従来の転倒マス型雨量計と当解析で用いた高感度の光学式雨量計の原理を模式的に示す。光学式雨量計は無雨時には1時間毎に時刻を黒字で印刷するのだが、雨が降ると1分毎の積算降雨量を赤字で印刷する。空間放射線モニタはエネルギー補償付きの直径2インチのNaIシンチレーション型である。この出力はアナログ・チャートで、目視で読み取っている。両者は約3m離れて設置しており、雨量計は地表に、放射線モニタは地上約1.5mに設置してある。周囲は開放的な草地である。加速器運転時等のデータを解析から除く必要があるため、あえてオフラインで処理してきた。

この雨量計は高感度なため漏斗に付着した雨粒の落下まで雨のごとく記録する。そのようなことは検出下限(約 0.00426mm 、または 0.2556mm h^{-1})に一致した雨量記録の場合に限られたため、検出下限の記録値は雨の「降り終わり」として用いず、検出下限の2倍以上の記録値のみを採用することにした。しかし雨の「降り始め」としては、たとえ検出下限値でも採用した。研究初期には空間放射線

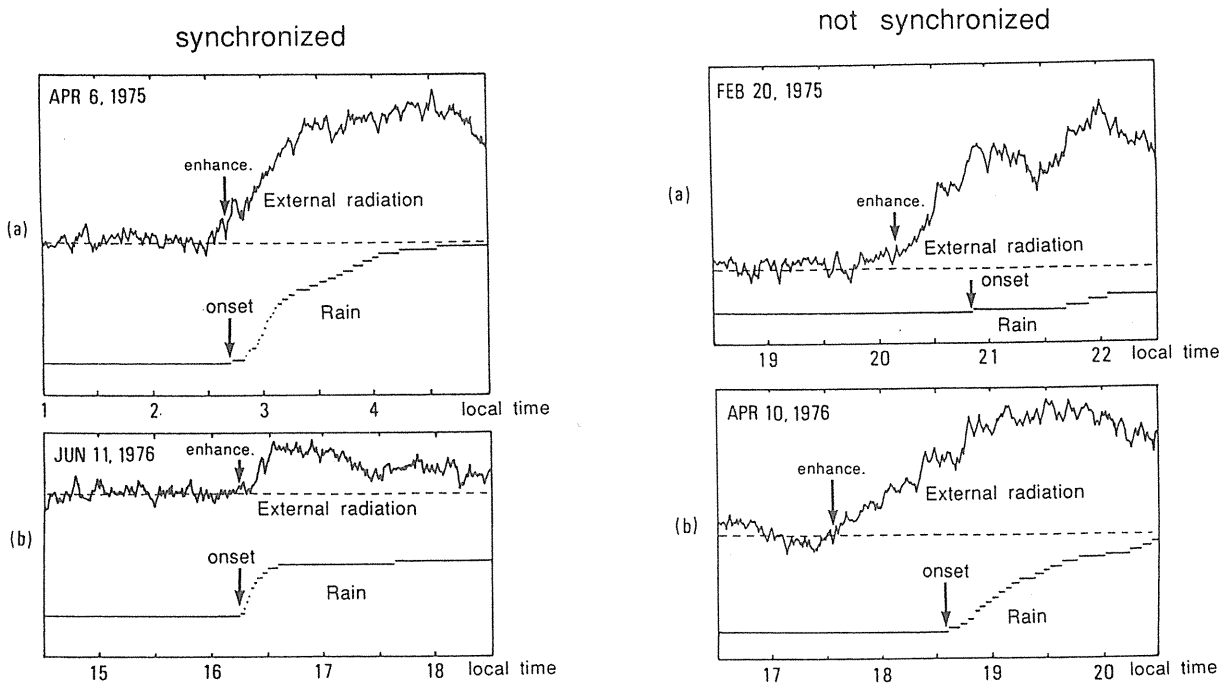


Fig. 3 Comparison of synchronized (left) and unsynchronized (right) enhancements of the external radiation level with the onset of rain. The rain data were obtained at KUR by a conventional "Seesaw-type" rainmeter.

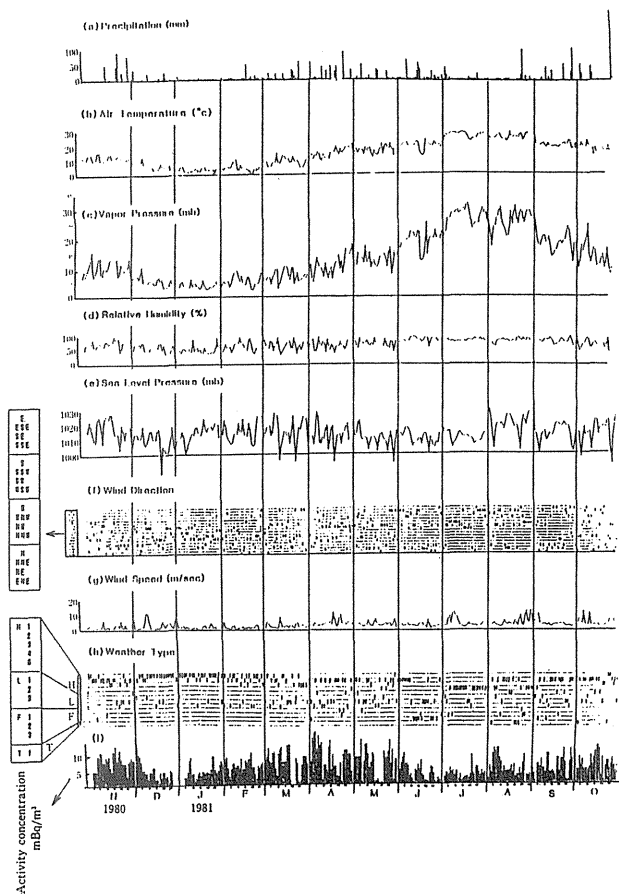


Fig. 4 Daily change of ^7Be concentration in the air at Chiba accompanied with several meteorological elements.

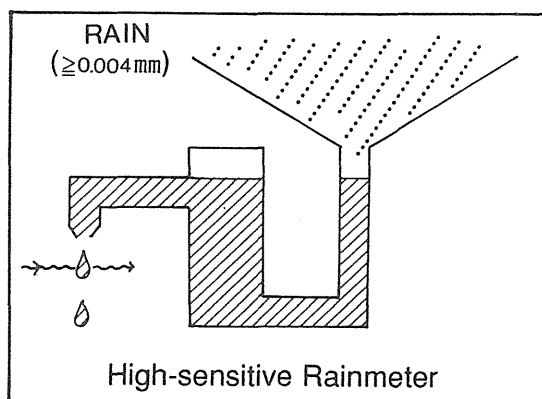
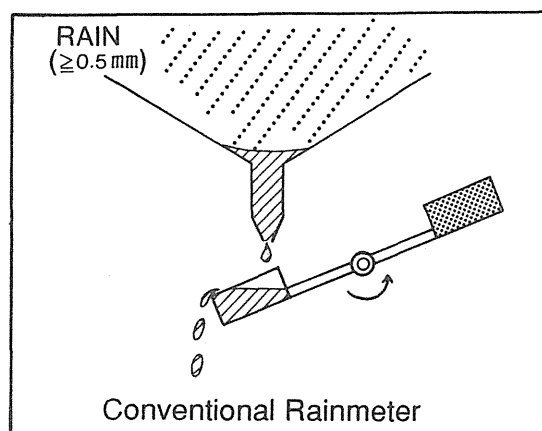


Fig. 5 Schematic models of the conventional "Seesaw-type" rainmeter and the high-sensitive "Optical" rainmeter.

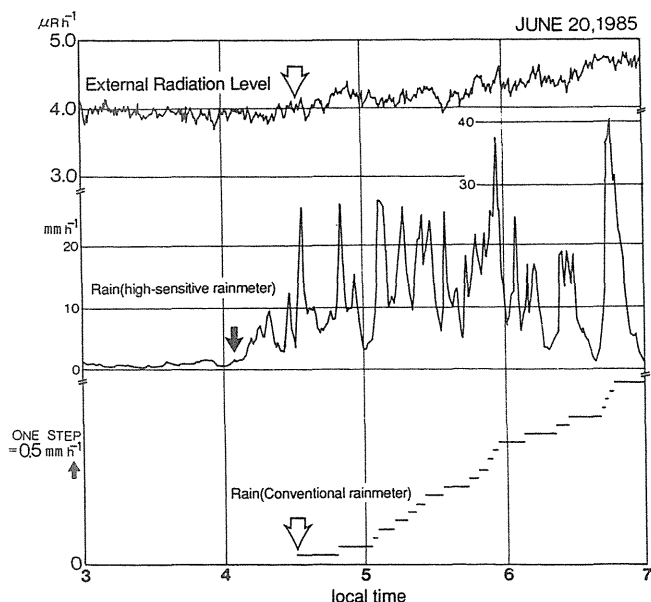


Fig. 6 Observed time variations of the external radiation level and rain. The rain data were obtained at NIRS by both the high-sensitive "Optical" rainmeter and the conventional "Seesaw-type" rainmeter.

レベルが「上昇したか否か」を調べるにとどめ、上昇幅の大きさは区別しなかった。また現在に至るまで降雨率 (mm h^{-1}) の変動のみに注目しており、雨一回あたりの総降雨量 (mm) は不問にしている。

Fig. 6は放医研で測った空間放射線レベルの時系列データを、転倒マス型雨量計および光学式の高感度雨量計による降雨データと並べたものである。放射線レベルは $4 \mu\text{R h}^{-1}$ 付近を中心に揺れていて、どこから上昇したか判断しにくい。転倒マス型では4時半から降雨が開始したように見えるが、光学式雨量計では3時前から既に降雨があったことが分かる。このように、光学式雨量計はメンテナンスが煩雑でルーチンには向かないが情報量が多い。逆に転倒マス型の雨量計はルーチン・モニタリングに適するが情報量は相対的に少ない。

一方、大気中放射性核種の放射能測定には大容量エアサンプラー (流量率は約 $1,000 \text{ l min}^{-1}$) を用いて一週間毎の連続サンプリングを行ない、サイズ分布測定には従来使用していたアンダーセン・サンプラ (5段分級、 $1.1 \sim 7.0 \mu\text{m}$) に代り、自然環境において微細粒子の粒度分布をも測定できるよう開発した低圧型インパクター LP-40 (8段分級、 $0.06 \sim 6.2 \mu\text{m}$ 、流量率 40 l min^{-1}) 2台を用いて1週間毎のサンプリングを行ない、1カ月分の試料をまとめてゲルマニウム半導体検出器により放射能測定を行なってきた (Fig. 7、Fig. 8)。後者で一週間毎に分けて採取するのは目詰まりを避けるためである。本採取条件における各ステージ毎の放射能測定では、放射能濃度の最も低いス

既製, 大流量率型	既製, 多段分級型	新開発型
流量率 566l/min	20l/min	40l/min
名称, 型 Andersen	LP-20	LP-40
	0段 12.1 μm	
	1 8.5	
	2 5.7	1段 6.2 μm
	3 3.9	2 2.9
	4 2.5	3 0.9
	5 1.25	
	6 0.76	
	7 0.52	
	L 1 0.33	L 1 0.33
	L 2 0.22	L 2 0.22
	L 3 0.13	L 3 0.13
	L 4 0.06	L 4 0.06
	0.06以下	0.06以下

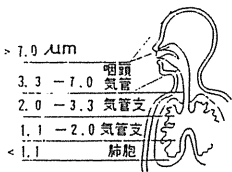


Fig. 7 Summary of aerosol particle collection samplers.

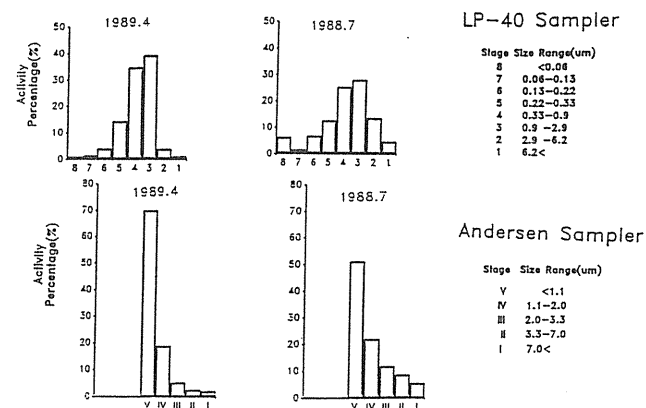


Fig. 8 A typical example of the particle size distribution of atmospheric ^7Be at Chiba with a LP-40 type sampler and an Andersen sampler.

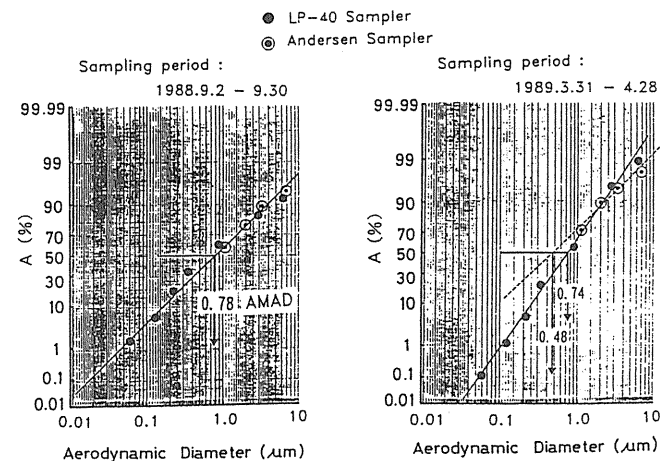


Fig. 9 Log-normal plots of the particle size distribution of atmospheric ^7Be at Chiba.

ページでの測定時間に3日から7日費やしても、定量可能な核種は ^7Be のみであった。本低圧型インパクターの使用により精度高い平均粒径が求められるようになった (Fig. 9)。対象核種は宇宙線によって大気中に生成される ^7Be としたが、その変動には大気圏内の大規模な流れの情報が含まれると考えられる。また ^7Be は大気圏のど

こにでもあり、そのサイズ分布はラドン娘核種 (原子状およびエアロソルに付着したもの) を含めた一般的な大気中放射性物質のサイズ分布の基礎情報を与える。

3. 降雨洗浄効果の形態

Fig. 10は降雨が8時間以上続いた場合のデータである。最初のA群の雨の降り始めに空間放射線レベルは大きく上昇し、2度目のB群に対してはやや小さく立ち上がる。C群に対するものはさらに小さい。このように空間放射線上昇は、突然降り始めた雨に対して最も顕著で、たて続けに降る雨に対しては不明瞭であることが分かる。従って当然、Fig. 11のように連続的に降る場合は放射線変動を判明しにくい。このような特徴を298個の降雨例の観察で確認した。データ観察結果をまとめると、降雨に従って空間放射線レベルが顕著に上昇するイベントが発生するのは以下の場合であった。

1. 降雨率がある程度大きい。
2. 雨が時系列の中である程度まとまった塊になっている。
3. 雨の間にある程度の空白 (無雨) 時間がある。

これらの条件を満たす雨なら1時間に2~3度も空間放射線上昇が起きることもあるが、その検知には光学式雨量計のように時間分解能が高い機器を要す。

Fig. 12とFig. 13は降雨が8時間以上続いた場合の例である。Fig. 8のD群、E群、F群の降雨塊の降雨率はFig. 9のものより大きい、前者に対しては空間放射線上昇が認められるのに後者に対しては認められない。またFig. 8には上記の降雨塊以外にも1~2時間の間に小さな降雨塊があるが、それは空間放射線上昇を伴っていない。従って、連続降雨の際に顕著な空間放射線上昇が起きるかを分別する降雨規模の境界がFig. 8やFig. 9に含まれた各降雨規模の中間にあると推論される。

降雨洗浄に伴う空間放射線レベルの上昇は、今までに多くの研究者が取り組んだテーマ¹⁾だが、1分間隔程度の細かい時間変化を扱ったものは限られる²⁻⁷⁾。多くの場合の降雨データは1時間毎の降雨量⁸⁾か、年間降雨量⁹⁾か、降雨開始から終了までの総雨量¹⁰⁾である。空間放射線は連続観測が容易だが、それでもルーチン・モニタリングで実行しやすい一定のサンプリング間隔の計測¹¹⁾や降雨停止後の一定時間後の計測¹¹⁾の例が多い。また空間放射線レベルの代わりに雨水中のラドン娘核種濃度を計測したものもある¹²⁻¹⁴⁾。

4. 大気放射能濃度の回復時間

上記のようなデータ観察により、(1)降雨の洗浄効果によって大気中ラドン娘核種濃度は減少し、それだけ地面に沈着すること、(2)ラドン娘核種が再び大気中補給されるのに時間がかかること、が推論できる。前節の「雨の空白時間」はラドン娘核種濃度の回復時間に当たると考えられる。この空白時間について、上述298個の降雨イベントを解析した。データ数が季節によって偏ることはない。

ここで空白時間とは、ある雨が降り終わった時点 (検出下限の2倍の降雨記録のある時点) から、空間放射線上昇を伴った次の雨が降り始める (検出下限以上の降雨記録が現われ始めた時点。前回の雨の停止から2分以上経過していることを条件とする) までの時間と定義する。光学式雨

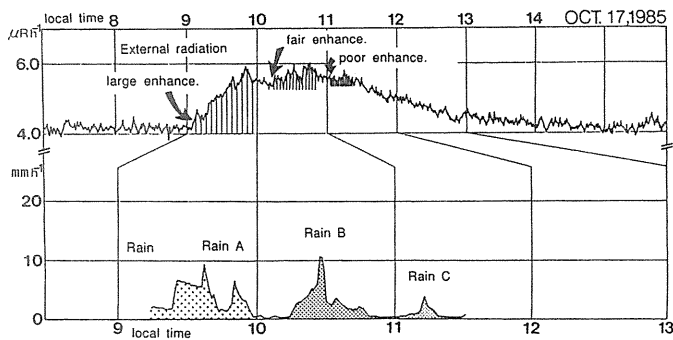


Fig. 10 Observed time variations of the external radiation level and rain. Three quasi-discrete rains are included.

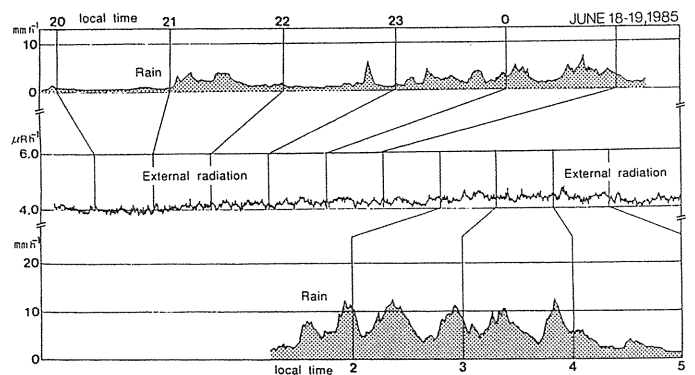


Fig. 11 Observed time variations of the external radiation level and rain. The rain is continuous, and there is no obvious enhancement of the external radiation level.

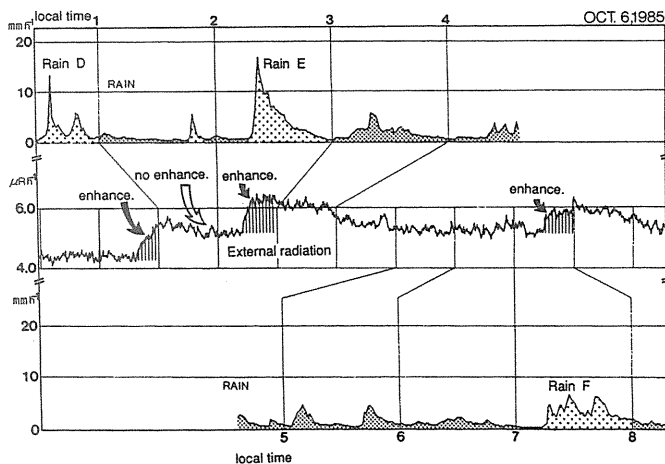


Fig. 12 Observed time variations of the external radiation level and rain. The rain is continuous, but there are enhancements of the external radiation level.

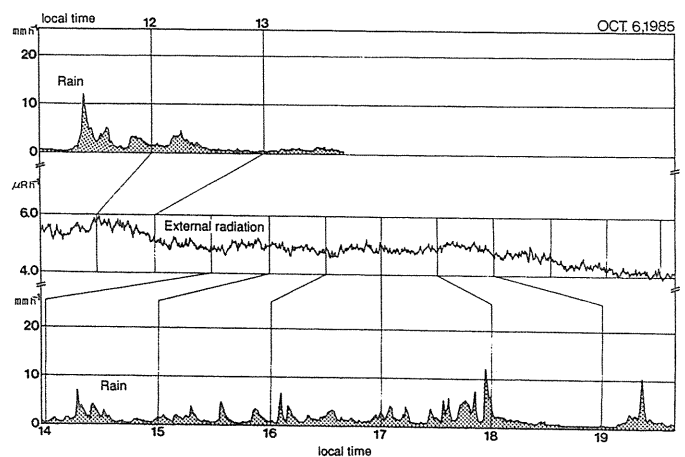


Fig. 13 Observed time variations of the external radiation level and rain. The rain is continuous, involving several sharp peaks, and there is no obvious enhancement of the external radiation level.

量計は1分毎の積算値を出力するため、降雨の停止から開始までに2分以上隙間がないと連続降雨のように見なされる。

Fig. 14 は空白時間に対する放射線上昇イベントの発生頻度分布（降雨総数に占めるイベント発生数の百分率分布）である。このように頻度分布は空白時間 (t) に対して指数関数型になる。その形は月毎に分類しても、季節毎に分類しても、又年毎に分類しても同様であった。これを $\exp(-kt)$ でカーブフィッティングして定数 k を決め、さらに $T=0.693/k$ を計算すると、T はこの分布全体を特徴づける時定数と見做せる。この T を季節毎に求めてプロットしたのが Fig. 15 である。ただし同図は1985~89年の $1 \mu R/h$ 以上の放射線上昇があったイベントのみに基づく。T は明瞭な季節変化を見せ、冬で約2日、夏で約1日である。T の季節変化は観測地のラドン発生力の強さ、鉛直方向の拡散、風による水平方向の輸送を反映していると考えられるが、詳細はまだ解明できていない。

この雨の洗浄効果で減った大気中ラドン娘核種の回復時間をもっと直接的に求めるため、解析済みの全データを用いて、空間放射線レベルのベースラインに対する相対上昇率 (%) と絶対上昇幅 (μR^{-1}) を、それぞれ空白時間

(降雨間隔) に対してプロットしてみた。Fig. 16 に実測データを用いて相対上昇率と絶対上昇幅の計り方を示す。ここでベースラインと呼ぶのは降雨開始直前のレベルであって、雨が繰り返される場合は毎回レベルが異なる。Fig. 17 には空白時間と相対上昇率の関係を示す。空白時間が3時間を越えるとほとんどの場合に相対上昇率が10%を越え、確実にデータチャート上で判別できる。空白時間 (t) が1.5時間以上に限った場合の相対上昇率 (y) を敢えて実験式で表すと次のようになる。

$$\log y = \log 28.5 (1 - \exp(-2.21 \log t))$$

Fig. 18 には絶対上昇幅との関係を示す。空白時間が3時間を越えると上昇幅が $1 \mu R/h$ を越え始め、上昇が目立つようになる。即ち、相対上昇率、絶対上昇幅いずれから判断しても、顕著な空間放射線上昇（即ち顕著な降雨沈着）を起こすには降雨間隔が約3時間以上であれば十分と推定できる。即ち、降雨洗浄効果で減少した大気中ラドン娘核種濃度が十分回復するには約3時間を要すると推論される。その季節変化については未だ不明である。

Fig. 19 は、降雨沈着を起こす雨のもう一つ前の雨の強

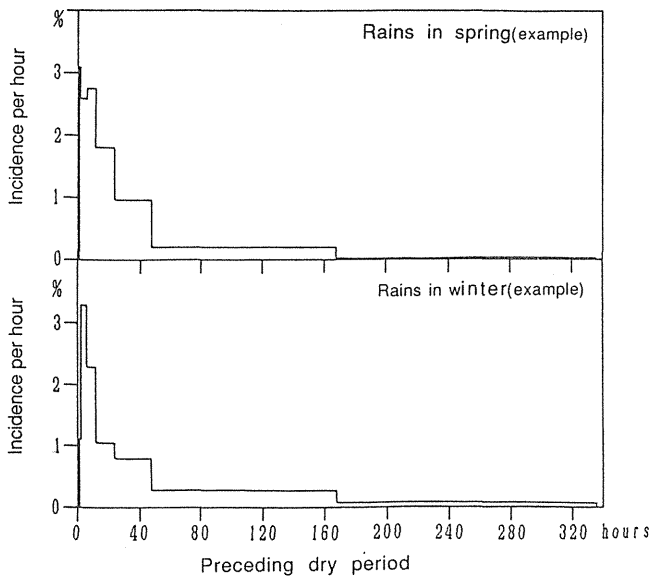


Fig. 14 The incidence of the radiation enhancement associated with the onset of rain. The incidence is plotted against the preceding dry period. Data in spring and winter are compared.

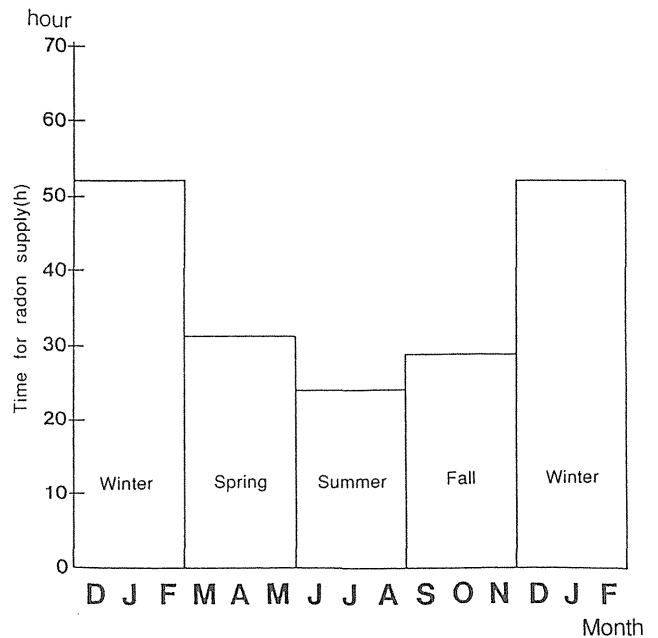


Fig. 15 The characteristic timelength for the recovery of atmospheric radon after a large rain scavenging. The seasonal variation is shown.

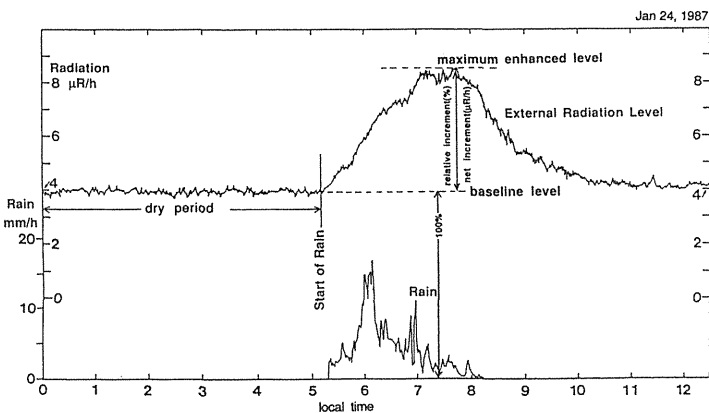


Fig. 16 The definitions of the relative (percent of the baseline level) and the absolute (μRH^{-1}) increments of the external radiation level associated with the onset of a rain are shown.

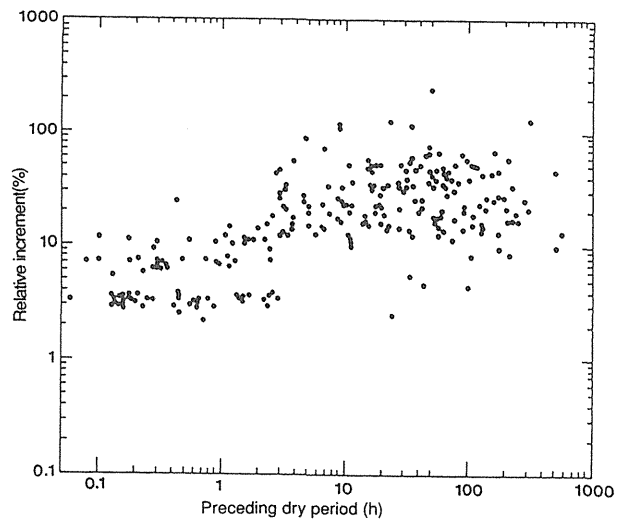


Fig. 17 The relative increment of the external radiation level against the preceding dry period.

さの影響を推定する材料である。前の雨の規模は、それが停止したと見なす降水率の敷居値（それ以下になったら雨は停止したと見做す）で代表させることにした。先行する降雨率は少なくとも敷居値以上あるはずだからである。横軸はそのような敷居値、縦軸は一定時間内に次の雨が降って放射線レベルが上昇した頻度である。その一定時間として色々な場合を採用し、各グラフがプロットしてある。全体としてみると、前の雨が強いほど長い空白時間を置かないと「降雨開始に伴う放射線上昇」の発生率が高くない（つまり長い待ち時間を要する）が、最長でも1カ月である。逆に前の雨が弱ければ空白時間が短くても上昇し易い。このような性質は大気中放射性物質の降雨洗浄／沈着モデルで説明でき、またこの空白時間をラドン娘核種の再補給時間を考えることと矛盾しない。

5. 他の研究報告との比較

当報告で述べたような降雨洗浄効果による空間放射線上昇が空白時間（降雨間隔）に依存するという点は、必ずしも他の研究者達の解析で得られていない。むしろ否定的な結果の報告もある¹³⁾。しかし当研究で用いた雨量計と他者の雨量計では検出下限が約100倍も異なるため、雨の開始／停止の定義に大きな差があることに留意を要す。即ち当研究では2分以上の無雨時間を挟めば別個の独立した雨として扱うが、他者の多くではまとまった降雨量の記載のみを扱うため本研究で複数の雨と判定するケースをも一回の雨として扱うことが起きる。実際には、降り始めや降り終わり付近の降雨は断続的になっているはずだが、それを個々に区別するか区別するか区別しないかという差がある

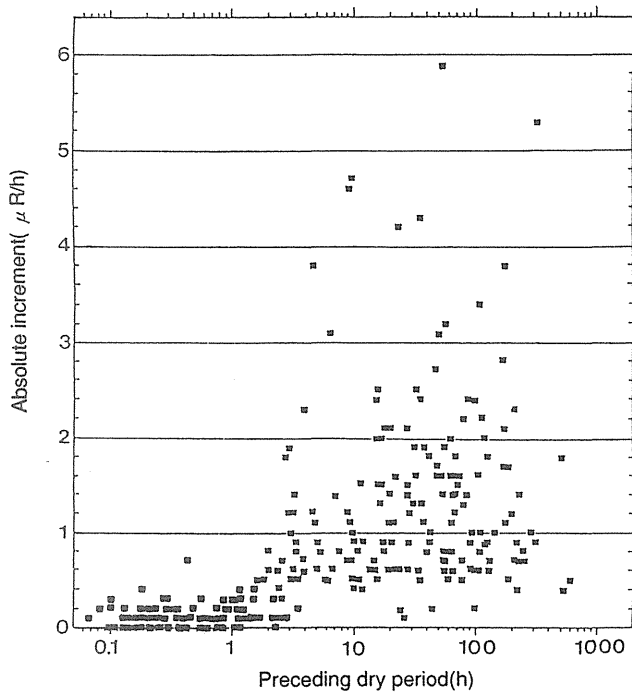


Fig. 18 The absolute increment of the external radiation level against the preceding dry period.

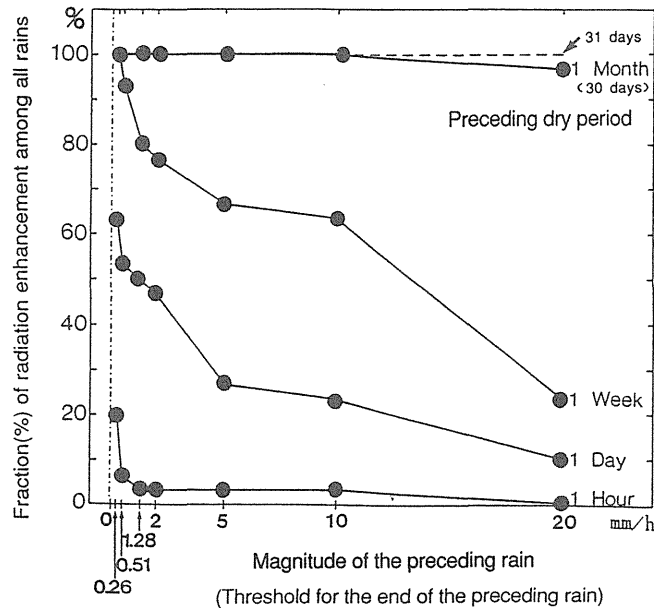


Fig. 19 The incidence of the radiation enhancement associated with the onset of rain. The incidence is plotted against the magnitude of the preceding rain, and values are given for four fixed preceding dry periods.

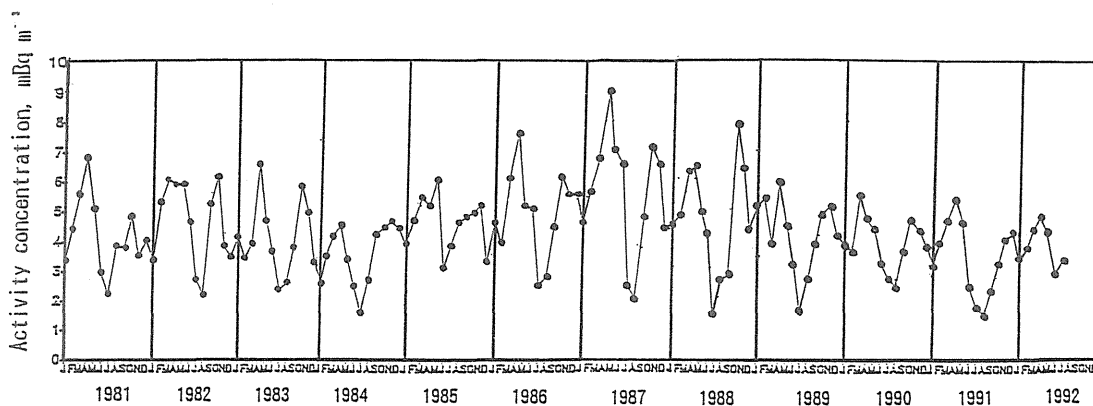


Fig. 20 Yearly cycles of ^7Be concentration the in the air at Chiba ; on the monthly basis.

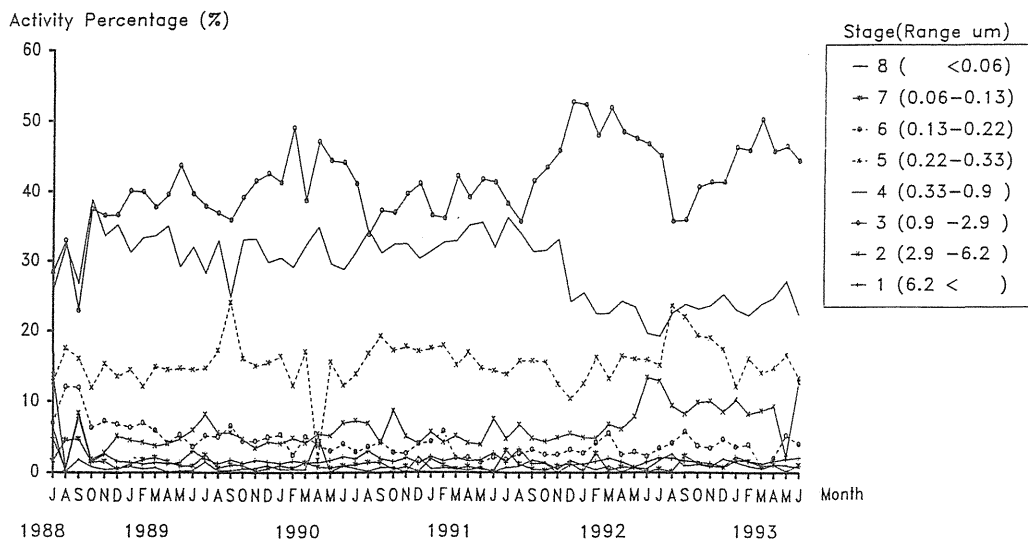


Fig. 21 Trends of the size distribution of atmospheric ^7Be at Chiba.

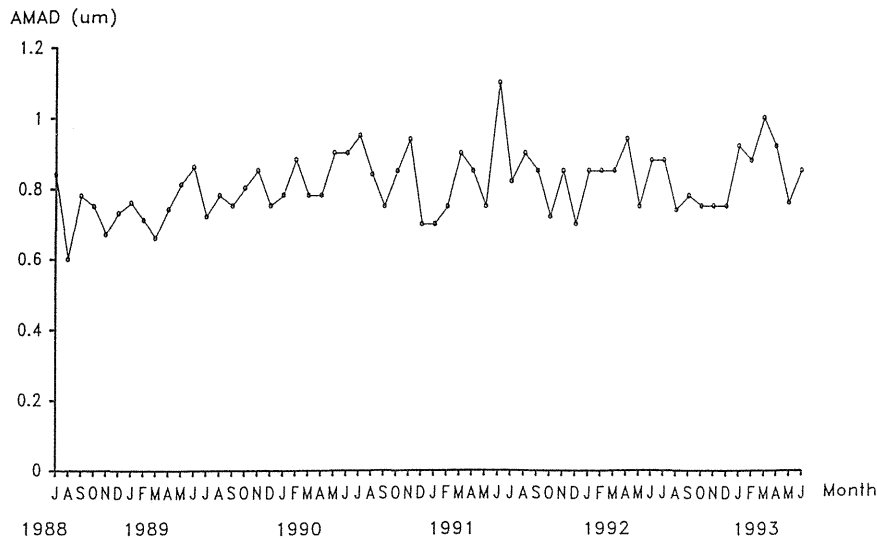


Fig. 22 Trends of the average particle size (AMAD : Activity Median Aerodynamic Diameter) at Chiba.

わけである。当研究では1分毎のデータになっているが、これから1時間毎の積算値を求めて他者並みの分解能にした上であらためて空白時間依存性を解析し、他者の結果と比較してみる必要があるだろう（逆に他者のデータを当研究並みの時間分解能に変換することは不可能である）。ラドン娘核種の降雨沈着が降雨開始時に最も顕著なことは当研究のデータで常に認められたが、その点でさえ1時間値に基づく解析では明瞭でないことがある¹⁴⁾。

ここでは降雨によるラドン濃度変動と地面に沈着したラドン娘核種による空間放射線変動を重点的に扱ったが、大気中にあるままのラドンとその娘核種に起因した空間放射線変動も起きる。その点については他者の研究例がある¹¹⁾。

大規模な大気運動に関連しては大気中の⁷Be濃度が春と秋にピークを示すことが1980年より約10年の観測データから分かった (Fig. 20)。そのサイズ分布は5年の観測期間 (1988.7~1993.6) の平均では粒径が0.9~2.9 μmに40%と最も多く、ついで0.33~0.9 μmに30%、0.22~0.33 μmに15%である (Fig. 21)。また平均粒径 (AMAD、μm) は0.60~1.10であり平均は0.81である (Fig. 22)。しかし得られた情報が大気中輸送メカニズム解明や呼吸器被曝の算定に直接的に利用できるようになるには、なお多くのデータ解析を要する。降雨洗浄効果と直接結びつく鉛直方向のラドン娘核種輸送については、雲物理の観点から詳しく考察した報告がある¹⁵⁾。

6. 結論

高感度雨量計で得たデータ解析により、降雨洗浄による大気中ラドン娘核種濃度の減少とその後の回復に関して以下の知見が得られた。

1. 降雨に伴う空間放射線上昇は、大気中ラドン娘核種の洗浄/沈着によると考えられる。
2. 上記が顕著に起きるのは、降雨率がある程度大きく、かつ独立してまとまっている場合である。
3. 降雨の洗浄によって大気中ラドン娘核種濃度が低下するが、それが補給されて回復するのに時間を要し、その代表的補給時間は夏で約1日、冬で約2日と推定される。

4. 洗浄/沈着効果が検知し易くなる最小時間は3時間程度が目安と推定される。強い降雨のあとは長い補給時間を要するが、それでも1カ月程度以下と推定される。

ここで取り上げたラドンとその娘核種は大気中の自然放射性核種の主成分であり、その環境中濃度の変動の様相を明らかにすることは公衆が実際に受ける被曝線量の算定にとって重要である。当研究で明らかにしたのは降雨に起因する濃度変動の特徴の一部であり、広域輸送の影響や降雨洗浄の詳しいメカニズムの解明にはなお多くの観測と解析を要する。低圧型インパクター (8段分級、0.06~6.2 μm) による5年間 (1988.7~1993.6) の千葉市における大気中⁷Beの粒度分布の傾向は、0.22~2.9 μmに約85%が集中しており、平均粒径 (AMAD、μm) は0.60~1.10 μmの範囲にあり、平均値は0.81 μmというものであった。平均粒径については特に規則的周期変動に見られず、また粒径が小さいことから成層圏起源であることが推定される。大気中放射性物質のサイズ分布の変動特性の研究は人間被曝の定量にとって重要度が高いので継続的な研究が望まれる。

【参考文献】

- 1) Fink, R. R. and Persson, B. R. R. : In-Situ Ge (Li) -Spectrometric Measurements of Gamma Radiation from Radon Daughters Under Different Weather Conditions, Natural Radiation Environment III, CONF-780422, p357-369 (1980).
- 2) 藤高和信、阿部史朗、阿部道子 : 「環境放射線の被曝評価に関する調査研究」最終報告書 (NIRS-R-17)、p89-95 (1989).
- 3) 吉岡勝広 : 降雨時の空間ガンマ線量変動の解析、日本保健物理学会第25回大会要旨集、p111 (1990).
- 4) 吉岡勝広 : 雨の短寿命ラドン娘核種の比放射能の季節変動特性の地上気圧配置による研究、「環境ラドン」(下道国、辻本忠編、電子科学研究所)、p207-216 (1992).
- 5) Yoshioka, K. : The seasonal variation of rainout ac-

- tivity of short-lived radon daughters, Radiation Protection Dosimetry, 45, p395-398 (1992)
- 6) 藤高和信：放医研環境セミナー報文集「環境と公衆の安全のためのアプローチ」(NIRS-M-93)、p89-96 (1993).
 - 7) Fujitaka, K., Matsumoto, M., Kaiho, k. and Abe, S.: Effect of rain interval on wet deposition of radon daughters : Radiation Protection Dosimetry, 45, p333-336 (1992).
 - 8) Minato, S. : Some observations of the variations in natural gamma radiation due to rainfall, Natural Radiation Environment III, CONF- 780422, p370-382 (1980).
 - 9) Hayakaea, H. : Short-lived radon daughter deposition activity on ground surface carried by rainfall, 保健物理, 22, p47-52 (1987).
 - 10) Fujinami, N., Esaka, S. and Minato, S. : Influence of the precipitation rate on the seasonal variation in the specific radioactivity of short-lived ^{222}Rn daughters in precipitation, J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters 95, 2, p111-118 (1985).
 - 11) 西川嗣雄：大気中ラドン娘核種の挙動とその環境 γ 線強度の影響に関する研究、九州大学工学部博士論文(1988)。
 - 12) 竹安正則、他：雨水中のラドン娘核種について、「環境ラドン」(下道国、辻本忠編、電子科学研究所)、p279-286 (1992)。
 - 13) 藤波直人、江坂 忍：雨雪水中のRa(B+C)濃度に対する降水形態の影響、日本保健物理学会第28回大会要旨集、p50 (1993).
 - 14) 竹安正則、山崎敬三、辻 元忠：降水中ラドン娘核種の濃度比について、日本放射線影響学会第36回大会要旨集、p191 (1993).
 - 15) 藤波直人：放医研環境セミナー報文集「環境と公衆の安全のためのアプローチ」(NIRS-M-93)、p97-105 (1993).
 - 5) Fujitaka, K., and Abe, S. : International Radiation Protection Association 口頭発表、1988. 4. (Sydney).
 - 6) 藤高和信、阿部史朗、阿部道子：「環境放射線の被曝評価に関する調査研究」最終報告書 (NIRS-R-17)、p89-95 (1989)。
 - 7) 藤高和信、阿部史朗：日本保健物理学会第23回大会口頭発表、1988. 5. (千葉)。
 - 8) 阿部道子、阿部史朗：日本保健物理学会第31回大会口頭発表、1988. 10. (広島)。
 - 9) 阿部道子、阿部史朗、白井 忠*、井上浩三*：日本保健物理学会第24回大会口頭発表、1989. 5. (名古屋)(*東京ダイレック)。
 - 10) 藤高和信、阿部史朗：日本放射線影響学会第32回大会口頭発表、1989. 8. (北九州)。
 - 11) 阿部史朗、阿部道子：日本放射線影響学会第32回大会口頭発表、1989. 8. (北九州)。
 - 12) 藤高和信、阿部史朗：日本保健物理学会第25回大会口頭発表、1990. 5. (つくば)。
 - 13) 阿部道子、阿部史朗：第27回理工学における同位元素研究発表会口頭発表、1990. 7. (東京)。
 - 14) 阿部道子、阿部史朗：文部省科学研究費総合研究「環境生態系に関する長半減期放射線核種のキャラクター化と生物影響」研究成果報告書、p11-18 (1991)。
 - 15) 阿部道子、阿部史朗：第17回放医研環境セミナー報文集「環境モニタリングの今日的意義」(NIRS-M-80)p132-146 (1991)。
 - 16) 藤高和信、阿部史朗：日本保健物理学会第26回大会口頭発表、1991. 5. (堺)。
 - 17) 藤高和信、松本雅紀：京都大学原子炉実験所ラドン・シンポジウム口頭発表、1991. 8. (熊取)。
 - 18) Fujitaka, K., Matsumoto, M., Kaiho, K. and Abe, S.: Fifth International Symposium on the Natural Radiation Environment 口頭発表、1991. 9. (Salzburg).
 - 19) Fujitaka, K., Matsumoto, M., Kaiho, K. and Abe, S.: Effect of rain interval on wet deposition of radon daughters : Radiation Protection Dosimetry, 45, p333-336 (1992).
 - 20) 藤高和信、松本雅紀：ラドン娘核種の沈着による空間放射線上昇：「環境ラドン」(下道国、辻本忠編、電子科学研究所)、p314-322 (1992).
 - 21) 藤高和信：放医研環境セミナー報文集「環境と公衆の安全のためのアプローチ」(NIRS-M-93)、p89-96 (1993).
 - 22) 阿部道子、他：日本放射線影響学会第36回大会口頭発表、1993. 10. (広島).

【研究発表】

- 1) 藤高和信、阿部史朗：第23回理工学における同位元素研究発表会口頭発表、1986. 7. (東京)。
- 2) 藤高和信、阿部史朗：日本保健物理学会第22回大会口頭発表、1987. 5. (東海)。
- 3) 藤高和信、阿部史朗：第23回理工学における同位元素研究発表会口頭発表、1987. 7. (東京)。
- 4) Abe, M. and Abe, S. : Fourth International Symposium on the Natural Radiation Environment 口頭発表、1987. 12. (Lisboa).