

NIRS - M - 49

特別研究「原子力施設等に起因する
環境放射線被曝に関する調査研究」

(昭和53年～57年度)

最終報告書

昭和59年3月

放射線医学総合研究所

NIRS - M - 49

**Report on the Project Research
"Exposure to Environmental
Radiation due to Nuclear Facilities"
(1978~1982)**

March 1984

**National Institute of Radiological Sciences
Chiba, Japan**

序

本特別研究は昭和53年度から57年度にいたる5か年間に実施されたもので、その構成は次のようになっている。

1. 放射性物質の環境中における挙動に関する調査研究
 - 1 A 海洋における挙動
 - 1 B 陸圏における挙動
2. 放射性物質の体内代謝に関する調査研究
3. 環境放射線による臓器吸収線量の測定ならびに評価に関する調査研究
4. 低レベル環境放射線モニタリングに関する調査研究

環境放射線被曝の線源としては、原子力発電所、核燃料再処理工場などの原子力施設からの大気放出、海域放出のみならず、放射性廃棄物の陸地処分、深海処分も対象として考えた。研究手法としては、生物その他を使用する実験的研究、フォールアウト核種として環境と生物に存在するものを調査解析する研究、安定元素の定量結果を解析する研究その他が用いられている。

本特別研究の遂行により環境中での放射性核種の挙動の特性や環境要因との関係について多くの有益な情報が得られ、また生体へのとりこみ、線量寄与に関してもその年齢による代謝の相違や食物成分との関連など新しい知識の集積を得ることができた。

これらの成果の詳細をとりまとめて本特別研究の最終報告書とする次第である。

特別研究班長 市川龍資

目 次

特別研究「原子力施設等に起因する環境放射線被曝に関する

調査研究」 序

市 川 龍 資

1. 放射性物質の環境中における挙動に関する調査研究	1
1 A 海洋における放射性物質の挙動(概要)	1
1 A - 1 アワビによる Co の蓄積 上田泰司、鈴木 譲、中村良一、中原元和、清水千秋	3
1 A - 2 海産二枚貝類の Co の蓄積 上田泰司、鈴木 譲、中村良一、中原元和	5
1 A - 3 海産魚による Co の蓄積 上田泰司、中原元和	7
1 A - 4 ナマコおよびクルマエビの Co 代謝 鈴木 譲、中村良一、中原元和、上田泰司	9
1 A - 5 アワビによる放射性コバルト蓄積に対する化学形及び 蓄積経路の影響 中村良一、中原元和、鈴木 譲、上田泰司	12
1 A - 6 ヒメジャコによる Co の蓄積 上田泰司、鈴木 譲、中村良一、中原元和	15
1 A - 7 海産生物の放射能汚染海水と接触時間とその後の 除染状況との関係 中原元和、中村良一、鈴木 譲、上田泰司	17
1 A - 8 マダコによる ^{60}Co の海水からの取り込みと排出 中原元和、小柳 卓、上田泰司、清水千秋	21
1 A - 9 (1) 貝類中の微量元素の定量 石井紀明、平野茂樹、松葉満江、小柳 卓	23
(2) 中深層魚の微量金属元素量 中原元和、上田泰司、鈴木 譲、石井紀明	27

(3) 頭足類の微量金属元素量

上田泰司、中原元和、石井紀明、鈴木 讓、鈴木浜治	30
1 A -10 海水中の放射性核種の物理化学的形態とその変化	
平野茂樹、小柳 卓	33
1 A -11 北太平洋深層水中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 分布	
長屋 裕、中村 清	37
1 A -12 海洋中におけるプルトニウムの挙動	
長屋 裕、中村 清	43
1 B 陸圏における放射性物質の挙動 (概要)	48
1 B - 1 表土から地下水系への水および放射性物質の移動	
内田滋夫、渡部輝久、鎌田 博、木村重彦、森澤真輔	49
1 B - 2 砂質土壌中におけるヨウ化物イオンおよびヨウ素酸 イオンの移動	
内田滋夫、鎌田 博	53
1 B - 3 土壌から植物への放射性物質の移行 -土壌に混入した放射性物質の挙動について-	
本間美文、大桃洋一郎	59
2. 放射性物質の体内代謝に関する調査研究 (概要)	66
2 - 1 Mn の幼若期・胎児期における代謝特性	
西村義一、稲葉次郎、市川龍資	68
2 - 2 幼若期ラットにおける ^{65}Zn の代謝	
西村義一、稲葉次郎、市川龍資	76
2 - 3 ラットにおける放射性アンチモンの代謝	
稲葉次郎、西村義一、木村健一、市川龍資	81
2 - 4 幼若期における超ウラン元素の生物体内挙動および 化学形・共存物質の影響	
岡林弘之、白石義行、内山正史、稲葉次郎 西村義一、市川龍資	84

2-5	クロレラに取り込まれた放射性コバルトの化学的検討 西村義一、稲葉次郎、市川龍資	89
2-6	メダカに取り込ませた ^{60}Co のラットにおける全身残留 稲葉次郎、西村義一、木村健一、市川龍資	94
2-7	生物同化型ヨウ素の代謝 内山正史、白石義行、湯川雅枝、岡林弘之、市川龍資	97
2-8	同時投与された放射性 Co、Mn、Zn の比較代謝と 生物同化型投与による修飾 内山正史、白石義行、湯川雅枝、岡林弘之、市川龍資	104
2-9	ラットにおける海藻にとり込まれた放射性クロムの摂取 白石義行、市川龍資	113
2-10	食物連鎖におけるトリチウムの代謝 新井清彦、武田 洋、樫田義彦	115
2-11	動物体内におけるトリチウムの代謝 武田 洋	119
2-12	H T O 投与後のラットにおけるトリチウムの全身残留と 臓器分布における年齢依存性 稲葉次郎、西村義一、武田 洋、樫田義彦、市川龍資	123
2-13	超ウラン元素の食品 — 人体系における移行 — 河村日佐男、田中義一郎	127
2-14	標準日本人の設定 (1) 人体器官・組織の元素組成 田中義一郎、河村日佐男、野村悦子、白石久二雄	131
	(2) 身体器官・組織の質量および大きさ 田中義一郎、野村悦子、河村日佐男	134
3.	環境放射線による臓器吸収線量の測定ならびに 評価に関する研究 (概要)	136

3-1	放射線のエネルギー付与過程の微細構造 丸山隆司、野田 豊、白貝彰宏、山口 寛、河内清光 金井達明、松沢秀夫	137
3-2	人体臓器組織の吸収線量の測定 丸山隆司、野田 豊、白貝彰宏、山口 寛、隈元芳一 寿藤紀道、福本善己、岩井一男、西沢かな枝	140
3-3	線量算出における主要核データの測定ならびに評価 喜多尾憲助	144
4.	低レベル環境放射線モニタリングに関する調査研究(概要)	155
4-1	気象条件と空間放射線変動との関連 藤高和信、阿部史朗	156
4-2	環境における散乱フォトンの計算法の比較 阿部史朗、藤元憲三	161
4-3	大気中トリチウムの化学形別測定法 岩倉哲男、井上義和、田中霧子	163
4-4	大気中 ^{85}Sr の簡易迅速測定法 岩倉哲男、井上義和	168

1 放射性物質の環境中における挙動に関する調査研究

Behavior of Radionuclides in the Environment

1 A 海洋における放射性物質の挙動 (概要)

Behavior of Radionuclides in the Marine Environment

海洋放射生態学研究部は全員が下記の5つのグループに属し、それぞれの分野から調査研究を行った。すなわち、1) 海産生物による放射性核種の取り込み、蓄積、排出の調査研究、2) 超ウラン元素などの海洋中における移行と分布に関する研究、3) 海洋試料中の安定同意元素に関する調査研究、4) 海水中の放射性核種の物理化学的形態とその変化に関する研究、5) 深海投棄された放射性物質の挙動に

および海水懸濁物および生物起源物質の効果の調査研究である。これ等の課題の1) から4) までは沿岸に於ける放射性核種の挙動に関わるものであり、5) は外洋と深海におけるそれである。

沿岸に於ける放射性物質の挙動研究は、前回の特別研究で作成した放射性物質移行の基礎的な考え方を元にして研究を進めた。それを図示すれば図1の様になる。すなわち、前回の特別研究で沿岸に放出

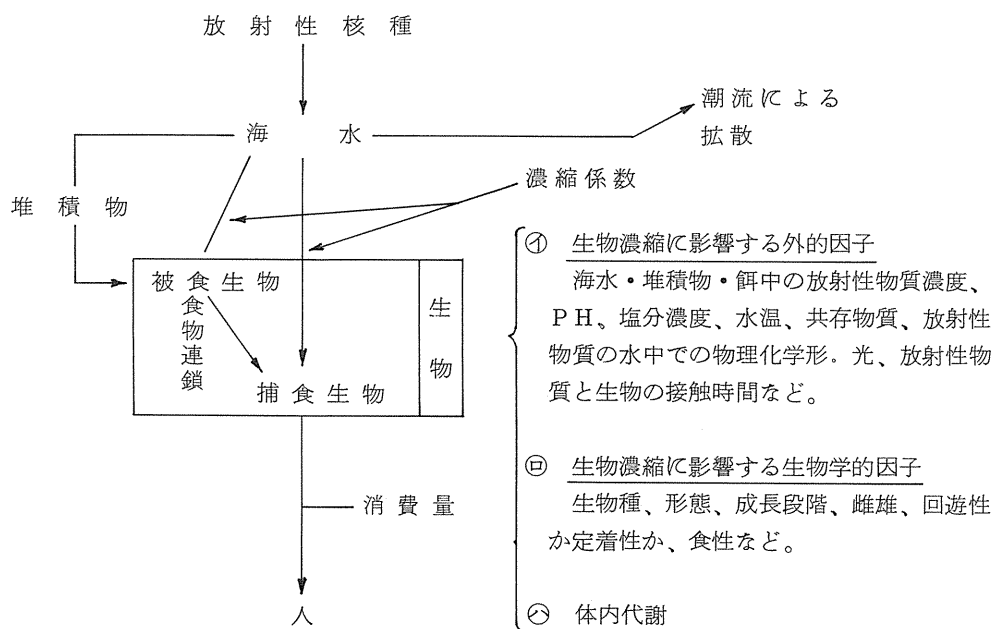


図 1.

された放射性物質が人に到る経路として、堆積物→生物よりも、海水→生物の方が主である事を明らかにした。今回の特別研究に於いては、ラジオアイソトープトレーサー実験から、放射性物質の生物濃縮の変動の原因を求めめるために、生物濃縮に影響を及ぼす諸因子を、便宜上① 外的因子、② 生物学的因

子および③ 体内代謝に分類して、研究者相互の連携を強めながら調査研究を進め、多くの成果を得た。また安定元素定量から、多くの生物について濃縮係数を求めると共に、新しい定量法の開発にも取組んだ。

その他、沿岸と、外洋・深海に於いての超ウラン

元素等の外野調査から、これらの元素の自然環境での挙動に関して成果を得た。

これ等の各々に関しては、後記の諸論文に詳述してある。

今後さらに調査研究を進めて行くことにより、海経由での被曝線量推定がより正確に、且又いろいろの状況に対応して可能となるであろう。

1A-1 アワビによる Co の蓄積

海洋放射生態学研究部 上田泰司、鈴木 譲、中村良一、中原元和
東京大学 清水千秋*

Accumulation of Co by Abalone

Division of Marine Radioecology

Taishi UEDA, uzuru SUZUKI, Ryoichi
NAKAMURA, Motokazu NAKAHARA
and Chiaki SHIMIZU*

* Faculty of Agriculture, University of
Tokyo

(目的)

生物濃縮に対して、放射性核種の水中での化学形がどのような影響をもつかを知るために、アワビを塩化物の $^{60}\text{CoCl}_2$ 添加海水と、有機物の ^{57}Co -シアノコバラミン(ビタミン B_{12}) 添加海水中で飼育し、その肝ぞうを取り出してゲル濾過を行って、肝ぞうに取り込まれた両化学形の放射性 Co が、どのような構成成分と結合しているかを検討した。

(方法)

海水 1 ℓ に $40\mu\text{Ci}$ の $^{60}\text{CoCl}_2$ を加えた中で、50 羽のアワビ (*Haliotis discus*) を 3 日間 20°C で飼育した。他の 68 羽のアワビは $5\mu\text{Ci}$ の ^{57}Co -シアノコバラミンを含む海水で同様に飼育した。これらのアワビは茨城県水産試験場より入手した。3 日後、肝ぞうを取り出し、そのうち約 2 羽を 10 ml の 0.025M トリス酢酸バッファー溶液 ($\text{pH}8.4$) を加えてホモジナイズ、10,000 rpm で 30 分間遠沈し、上澄をゲル濾過した。ゲル濾過にはセファデックス G-75 ($75 \times 2\text{cm } \phi$) を用い、40 ml/時の流速で行った。流出液を 5 ml 毎に集め、その中の ^{57}Co と ^{60}Co の放射能濃度を、アロカ製オートシステム (JDC-752 型) で計測した後、各 5 ml の 280nm での吸収を日立の 124DB 型の分光分析装置で調べた。

さらに非放射性的の CoCl_2 とシアノコバラミン(ビタミン B_{12}) を用いて下記の実験を進めた。すな

わち CoCl_2 (Co として 4.4mg) とシアノコバラミン (Co として 4.4mg) を夫々別個の 3 ℓ の海水に加えた中で、アワビを 2 日間飼育した後、その肝ぞうについて前記と同様にゲル濾過を行い、前記のゲル濾過像での放射能濃度がピークを示した辺りの流出液を集めて、*Lactobacillus leichmannii* によりビタミン B_{12} 活性の bioassay を行った。

(結果)

Fig. 1 に示した様に、 ^{57}Co -シアノコバラミンは肝ぞう中では I の記号で示した物質 (分子量約 40,000) とだけ結合しているが、 $^{60}\text{CoCl}_2$ は II (分子量約 1.5×10^6) と III の記号で示した 2 つのピーク (物質) と結合していた。この III の記号をつけた物質はさらにセファデックス G-50 でのゲル濾過では 2 つのピーク (分子量約 7,000 と 1,500) に分かれた。I、II、III の各ピークの部分の bioassay では、ピーク I のみが強いビタミン B_{12} の反応を示した。

この事から、環境水中での放射性 Co がアワビに取り込まれる場合は、Co の化学形が塩化物か有機物であるかによって肝ぞう中での存在状態が異なる事があると分った。またビタミン B_{12} はその分子量は約 1,360 であるが、アワビの肝ぞう中では分子量約 40,000 の物質に取り込まれていて、然もその活性は維持されている事が分った。

(研究発表)

Ueda, T. Suzuki, Y. Nakamura, R.
Nakahara, M. and Shimizu, C.
Accumulation of Co by Abalone I-

Effect of Chemical Form,
J. Radiat. Res., 23, 99-104, 1982.

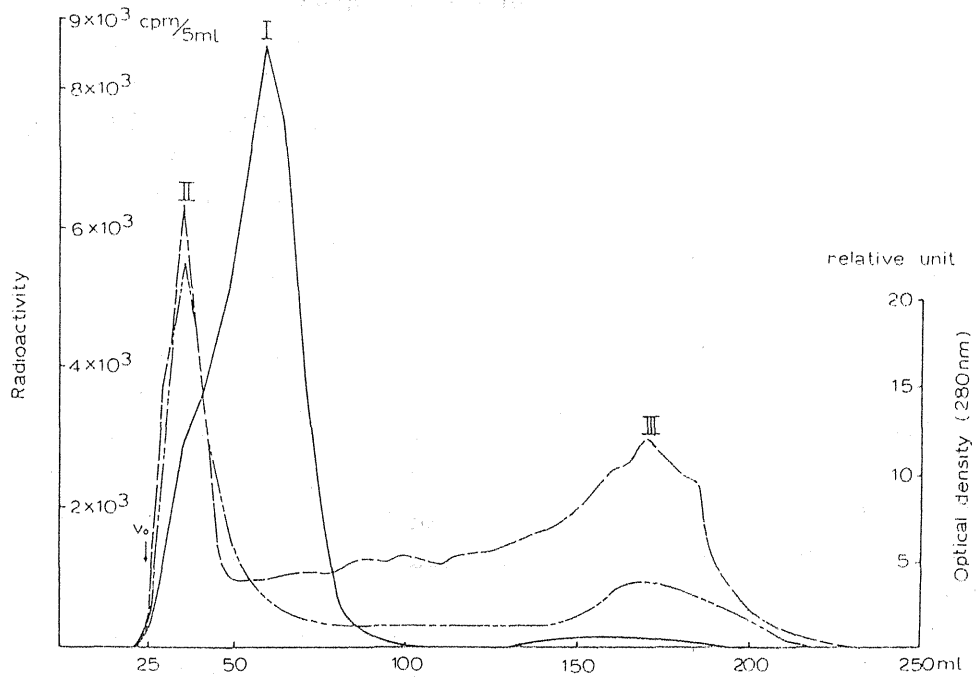


Fig. 1. Gel filtration profile on Sephadex G-75 of radioactive Co accumulated in liver of abalone
—— ^{57}Co , - - - ^{60}Co , - · - · - optical density

1 A-2 海産二枚貝類の Co の蓄積

海洋放射生態学研究所

上田泰司、鈴木 謙、中村良一、中原元和

Accumulation of Co by Several Species of Marine Bivalves

Division of Marine Radioecology

Taishi UEDA, Yuzuru SUZUKI,

Ryoichi NAKAMURA and

Motokazu NAKAHARA

(目的)

前報で環境水中の Co の化学形の違いが、アワビにとりこまれた場合、その肝ぞう中での存在形態に差を与える事が分かったので、放射能としてはどれ程の差になるのかを定量的に求めた。

(方法)

海水 100 l に 200 μ Ci の $^{60}\text{CoCl}_2$ を加えた中でコタマガイ (*Gomphina melanaegis*) 22 個を 15°C で 1 週間飼育した。もう 1 つの水槽では、30 μ Ci の ^{57}Co -シアノコバラミン 30 μ Ci を加えた 6 l の海水中で 22 個のコタマガイを同様に飼育して Co の蓄積を観察した。1 週間後に清浄海水に貝を移し、Co の排泄を観察した。貝全身の放射能測定にはパッカード社製のホールボディカウンター (446 型) を用いた。取り込み 7 日目には解剖して、肝ぞう、吸出水管、外とう膜、エラ、腎ぞう、斧足、閉かく筋、腸、その他に分けてアロカ製オートウエルγシステム (JDC-752) で放射能を測定し、体内での分布を見た。

またコタマガイの他、ウバガイ (*Spisula sachalinensis*)、アカガイ (*Anadara broughtonii*)、アサリ (*Tapes japonica*)、ヒメジャコ (*Tridacna crocea*)、とホタテガイ (*Patinopecten yessoensis*) を $^{60}\text{CoCl}_2$ を加えた海水で飼育し、前報のアワビの場合と同様にゲル濾過を行い、これ等貝類の肝ぞう中での ^{60}Co

の存在状態を比較検討した。

(結果)

コタマガイの $^{60}\text{CoCl}_2$ と ^{57}Co -シアノコバラミンの取り込み及び排泄を示す。(Fig. 1)

^{60}Co の排泄(有効半減期)は 31 日で、その濃縮係数は 360 であった。 ^{57}Co は短半減期(1 日)で減少する成分(11%)と、長半減期(98 日)で減少する主成分(89%)の 2 つに分かれ、その濃縮係数は 650 であった。 ^{60}Co と ^{57}Co の体内での分布を Table 1 に示す。両化学形により可成りの分布の差が認められた。すなわち Co の海水中での化学形の差は貝の Co 蓄積に対し影響がある事が定量的にも認められた。

また、取り込まれた $^{60}\text{CoCl}_2$ の肝ぞう中での存在形態は、アカガイとアサリの様に肝ぞう中の 3 つの構成成分と、ジャコガイ、コタマガイ、ウバガイとホタテの様に 2 つの構成成分と結合している場合がある事が分った。

(研究発表)

Ueda, T., Suzuki, Y., Nakamura, R.

Nakahara, M.

Accumulation of Co by Several Species of Marine Bivalves.

Bull. Japan. Soc. Sci. Fish., 48,

993-997, 1982.

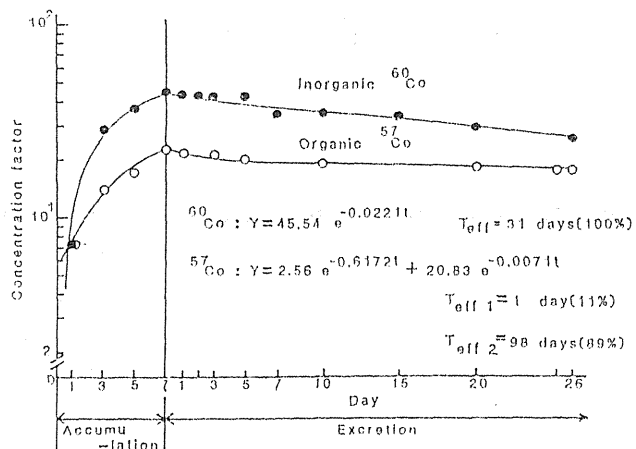


Fig 1. Accumulation and excretion of Co by whole body of *Gomphina melanaegis*

Table 1. Distribution of ^{60}Co and ^{57}Co in soft parts of *G. melanaegis* (7 days' exposure)

	^{60}Co	^{57}Co
Gill	8.8	47.7
Liver	5.5	19.7
Kidney	40.0	1.8
Mantle	13.6	14.2
Intestine	1.5	0.3
Foot muscle	4.1	3.0
Siphon	2.1	1.0
Adductor muscle	2.5	0.7
Remainder*	21.9	11.6
	100.0	100.0

* debris of tissues and organs.

1A-3 海産魚によるCoの蓄積

海洋放射生態学研究所 上田泰司、中原元和

Accumulation of Co by Marine Fish

Division of Marine Radioecology

Taishi UEDA and Motokazu NAKAHARA

(目的)

アワビ、二枚貝類に引き続き魚類についても、海水中のCoの化学形と蓄積量の関係およびCoの体内での分布、存在状態を検討した。

(方法)

ドロメ (*Chasmichthys gulosus*) 13尾を $10 \mu\text{Ci}$ の $^{60}\text{CoCl}_2$ を加えた5ℓの海水中で、又別の13尾を $3.5 \mu\text{Ci}$ の ^{57}Co -シアノコバラミンを加えた5ℓの海水中で 15°C で1週間飼育し、Coの蓄積を観察した。その後清浄海水にドロメを移し、Coの排出を観察した。全身中の放射性Coの計測には前報の計測器を用いた。また蓄積3日目に3尾のドロメを解剖して頭、皮、エラ、ヒレ、骨、筋肉、卵巣、肝ぞうとその他の内ぞうに分けてその

放射能を前報の様に計測して、体内での分布を見た。

ドロメの他にメジナ (*Girella punctata*) とクロダイ (*Acanthopagrus schleyeri*) の各3尾を $560 \mu\text{Ci}$ の $^{60}\text{CoCl}_2$ を含む8ℓの海水中で、別の各3尾を $20 \mu\text{Ci}$ の ^{57}Co -シアノコバラミンを含む500mlの海水中で3日間飼育して肝ぞうを取り出し、Coの肝ぞう中の存在状態についてゲル濾過により検討した。

(結果)

ドロメの $^{60}\text{CoCl}_2$ と ^{57}Co -シアノコバラミンの取り込みと排出の様相およびこれらの曲線から得られたパラメータの値をFig.1に示す。 ^{60}Co の濃縮係数は32、 ^{57}Co のそれは3と計算された。

またドロメ体内での ^{60}Co と ^{57}Co の分布をFig.

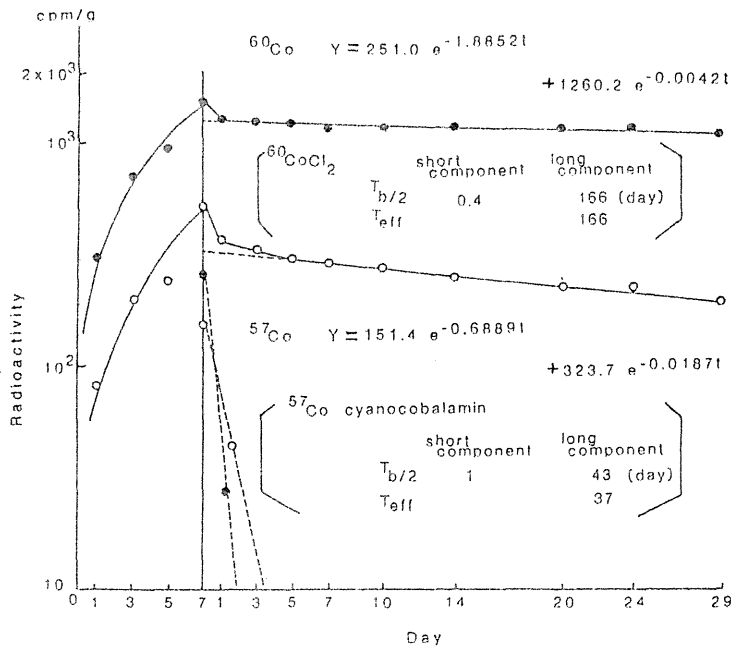


Fig. 1. Accumulation and excretion of Co by *Chasmichthys gulosus*.

2に示す。取り込み、排出には化学形による差が見られたが、体内での分布に関し両化学形間の差は明らかではなかった。

また ^{60}Co と ^{57}Co の肝ぞう中での存在状態は、メジナでは2つの成分と、クロダイとドロメでは3つの成分と結合していた。

(研究発表)

Ueda, T. and Nakahara, M.

Accumulation of Co by Marine Fish.
Bull. Japan Soc. Sci. Fish., 49, 651-654, 1983.

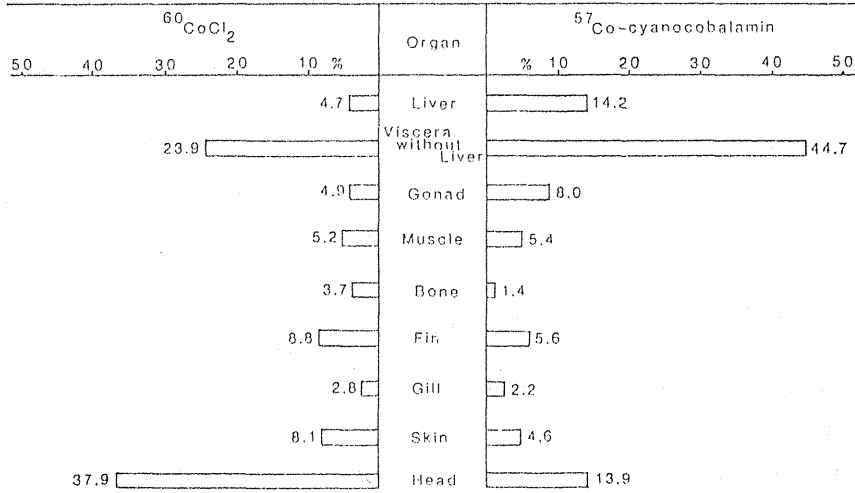


Fig. 2. Distribution of Co in *Chasmichthys gulosus*.

1 A—4 ナマコおよびクルマエビのCo代謝

海洋放射生態学研究部

鈴木 謙、中村良一、中原元和、上田泰司

Uptake and Excretion of Cobalt by Sea Cucumber *Stichopus japonicus* and Prawn *Penaeus japonicus*

Division of Marine Radioecology

Yuzuru SUZUKI, Motokazu NAKAHARA,

Ryoichi NAKAMURA and Taishi UEDA

(緒 言)

海産生物による放射性物質の代謝に関する研究の一環として海産魚¹⁾に引続き今回は底生動物の中から放射能汚染に関するデータがほとんどなく、またわが国では多く食用に供されている棘皮動物のナマコと、甲殻類のうちその幼体も含めて食物連鎖の被食生物として重要な役割を果すクルマエビについて⁶⁰Coの海水からのとり込み、蓄積および排出速度、体内分布、更に生体組織の構成成分と⁶⁰Coの親和性等を調べた。

(方 法)

⁶⁰Co (⁶⁰CoCl₂) を 200 μCi 添加した海水 100 l にナマコ (*Stichopus japonicus*, 平均体重 200 g) を 10 個体入れ 7 日間飼育した。その後清浄海水に戻し ⁶⁰Co の排出状況を 42 日間に亘って観察した。この間 ⁶⁰Co の体内分布及び ⁶⁰Co とナマコ組織の構成成分との親和性についてゲル濾過法、電気泳動法などで調べた。一方、クルマエビ (*Penaeus japonicus*, 平均体重: 7.6 g) を 30 尾、⁶⁰Co を 400 μCi 含む海水 100 l に通気しながら 7 日間飼育した。また有機型の ⁵⁷Co (⁵⁷Co - cyanocobalamin) 10 μCi を添加した 2 l 海水中で 5 尾のクルマエビを 7 日間毎日海水の ⁵⁷Co 濃度を一定に保つよう調整しながら飼育した。両者共その後は清浄海水に戻しそれぞれ ⁶⁰Co、⁵⁷Co の排出状況を観察すると共に体内分布や特に肝臓の構成タンパク質との親和性について比較した。

(結 果)

i) ナマコ: 実験期間中、⁶⁰Co のナマコにおける体内分布に大きな変動はなく可食部にほぼ 75%、腸に 18%、体液に 7% であった。重量比でほぼ 3% である腸の環境水との ⁶⁰Co 濃度比は飼育 1 週間後で約 20 であった。ナマコ体内にとり込まれた ⁶⁰Co の排出速度は遅く 6 週間経過後も約 60% が残留し、体内の 80% の ⁶⁰Co の生物学的半減期は 73 日であった。また、ナマコ縦走筋と腸 (コノワタ) のそれぞれの構成成分と ⁶⁰Co の親和性をトリスバッファ (pH 8.4) 抽出液についてゲル濾過法で検討したところ前者では分子量 10 万以上と 1 万以下の構成成分に全体の 95% が結合していたが後者ではこれらの外に分子量 4~5 万のものと 2 万前後の構成成分と結合している (図 1) ことがわかった。ナマコ腸における ⁶⁰Co のこのようなゲル濾過像は他の生物 (魚類、軟体類) には見られない特異的なものであるが、どのような物質であるか更に検討する必要がある。

ii) クルマエビ: ⁶⁰Co および ⁵⁷Co の排出曲線から無機型 Co の方が有機型 Co よりわずかに早く排出される傾向があるが両者共クルマエビの成長に伴う脱皮によって全身の放射能の約 90% が失われた (図 2)。この事は殻、脚、鰓などへの物理的吸着が多いことを意味している。肝臓のゲル濾過像では有機型、無機型で差は認められず特に低分子域に高い放射能ピークが存在した。このピーク附近のフラクションを集め結合タンパク質を精製した後、

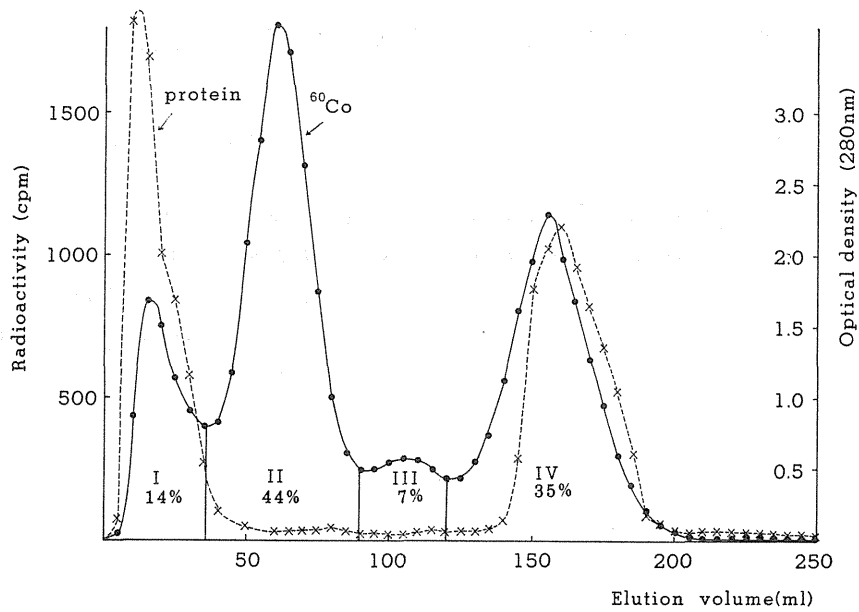


図1. ナマコ腸の ^{60}Co ゲル濾過像
(セファデックスG-75)

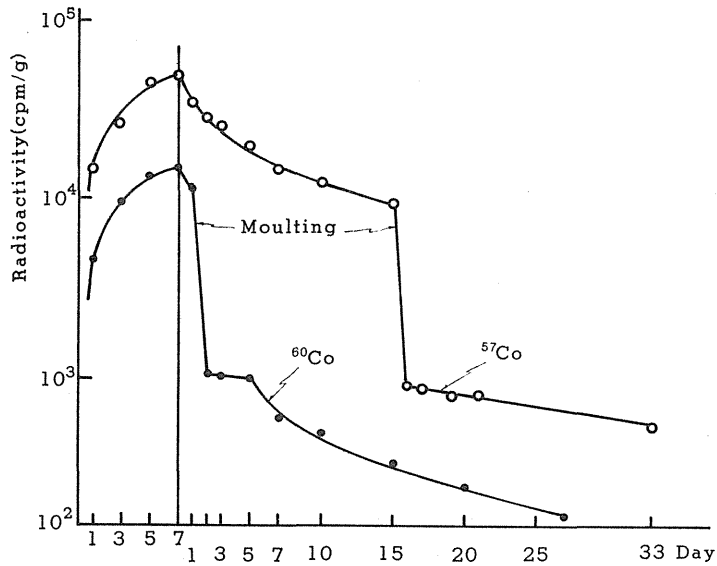


図2. クルマエビによる放射性Coの排出と脱皮との関係

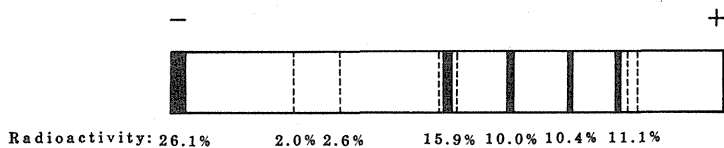


図3. クルマエビ肝臓中低分子画分の6.5%
ポリアクリルアミド電気泳動像

ポリアクリルアミドゲルによる電気泳動を行ったところ少なくとも4個の電氣的に異なるタンパク質が認められた(図3)。

このようにナマコやクルマエビによって海水からとり込まれた放射性物質は組織中のタンパク質や炭水化物等に有機的に結合しているが、その分子構造や生物学的機能などについては今後更に研究を進める必要がある。

(参考文献)

- 1) 鈴木 譲、中村良一、中原元和、上田泰司
特別研究「原子力施設等に起因する環境放射線被曝に関する調査研究」中間報告書 NIRS-M-36, 6-8, 1981.

(研究発表)

- Suzuki, Y., Nakamura, R., Nakahara, M. and Ueda, T.
Uptake and Excretion of Cobalt by Sea Cucumber *Stichopus japonicus* and Prawn *Penaeus japonicus*.
Bull. Japan. Soc. Sci. Fish., 48, 1495-1500, 1982.

1 A—5 アワビによる放射性コバルト蓄積に対する 化学形及び蓄積経路の影響

海洋放射生態学研究部

中村良一、中原元和、鈴木 譲、上田泰司

Effects of Chemical Forms and Intake Pathways on the Accumulation of Radioactive Cobalt by the Abalone *Haliotis discus*

Division of Marine Radioecology

Ryoichi NAKAMURA,

Motokazu NAKAHARA,

Yuzuru SUZUKI and Taishi UEDA

(緒 言)

原子炉からの温排水に含まれる誘導放射性核種の中で最も注目される ^{60}Co は以前から海産無背椎動物によく濃縮されることで知られているが、近年においてもマダコの鰓心臓やシャコ貝の腎臓に極めて高い濃縮係数が認められている。このような事情から、軟体動物による放射性コバルト蓄積機構の解明が必要とされるため、我々はアワビを用いて、コバルトの化学形の違いによる蓄積の差及び蓄積経路の違いによる差を調べた。

(方 法)

海水からの放射性コバルトの蓄積実験は、塩化物の ^{60}Co 又はシアノコバラミン (ビタミン B_{12}) の ^{57}Co を添加した濾過海水中でアワビを1週間飼育し、その間の蓄積を調べた後、非汚染海水に移しておよそ7週間の排出を観察し、排出及び取り込み定数を求めて平衡時における濃縮係数をコバルトの化学形別に推定した。一方、餌からの蓄積については、最初に、餌となるアナアオサ (*Ulva pertusa*)、アラメ (*Eisenia bicyclis*) 及びツノマタ (*Chondrus ocellatus*) を塩化物の ^{60}Co 又はシアノコバラミンの ^{57}Co を含む海水中で飼育し、それぞれの化学形の放射性コバルトを取り込ませた。このように調製した餌をアワビに投与した後、放射性コバルトの排出を8~9週間にわたり測定し、餌とともにアワビに取り込まれた場合の消化管からの

吸収率及び排出定数を求め、それらの値を用いて、“餌からの濃縮係数”を計算した。

(結 果)

海水からの取り込みではFig. 1 に示したように、海水中の化学形による差が極めて顕著であり、平衡時ではシアノコバラミン (^{57}Co) が無機イオン形 (^{60}Co) に比べておよそ5倍の高さに達している。他方、餌から取り込ませた場合のアワビの体内残留率をFig. 2 に示したが、投餌後3ないし4日目の残留率から推定したシアノコバラミン (^{57}Co) の吸収率は餌の海藻の種類にかかわらず、無機イオン形のコバルト (^{60}Co) より遙かに高い値であり、逆に排出速度 (Turnover rate) ではシアノコバラミンが遅いため、イオン形に比べて、より蓄積し易い傾向が明らかである。

海水からの蓄積に対する餌の海藻経由の蓄積を比較するため、餌経由の濃縮係数を求めた。平衡時の濃縮係数は取り込み係数 (u) と排出定数 (β) の比であり、後者はFig. 2 の曲線から既に求められている。これに対し、

$$u = \frac{\text{アワビにより1日に取り込まれたRI濃度}}{\text{海中水のRI濃度}}$$

であるが取り込みを餌からだけに限れば、最終的には

$$u = (\text{日間摂餌率}) \times (\text{海藻の濃縮係数}) \times (\text{吸収率})$$

となる。したがって

餌経由の濃縮係数=

$$\frac{(\text{日間摂取率}) \times (\text{海藻の濃縮係数}) \times (\text{吸収率})}{\text{排出定数}}$$

である。アワビによる日間摂餌率を体重の3% (0.03)とした場合の餌経由の濃縮係数を Table 1 に示す。餌からの場合でも無機形に比

べてシアノコバラミンの濃縮が遙かに高く、特にアナオサからの取り込みが顕著であった。実際の海での蓄積は海水及び餌から同時に起るため、それを100%とした時の餌からの寄与(%)を同じく Table 1 に示したが、アナオサを餌とする場合だけ、餌からの蓄積割合が大きく、アワビが最も好

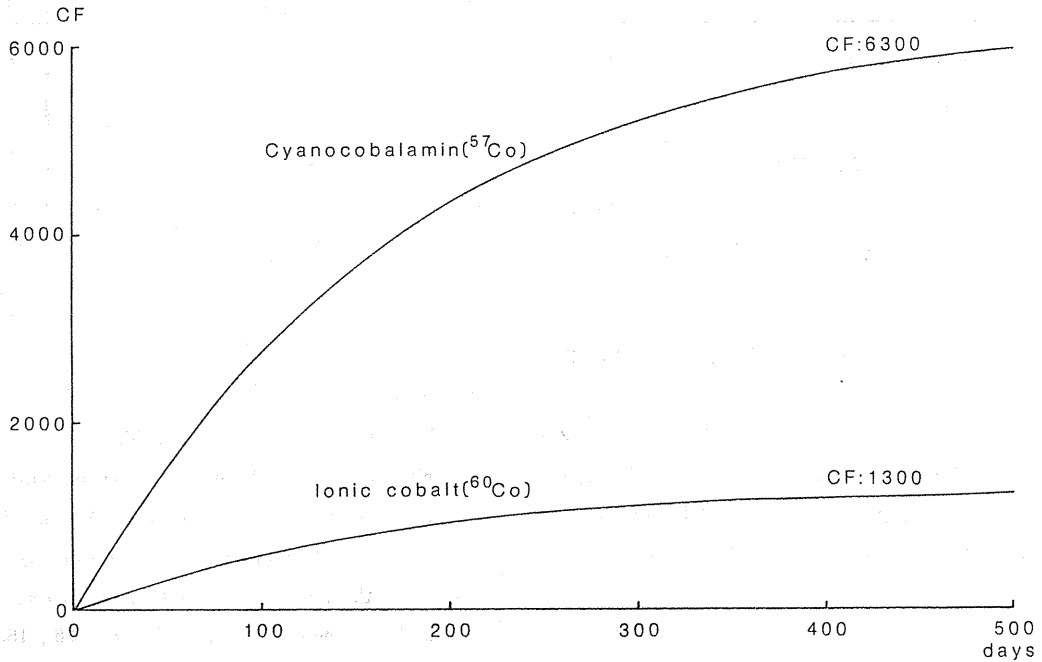


Fig. 1 Estimated accumulation curves of cobalt for *Haliotis discus*.

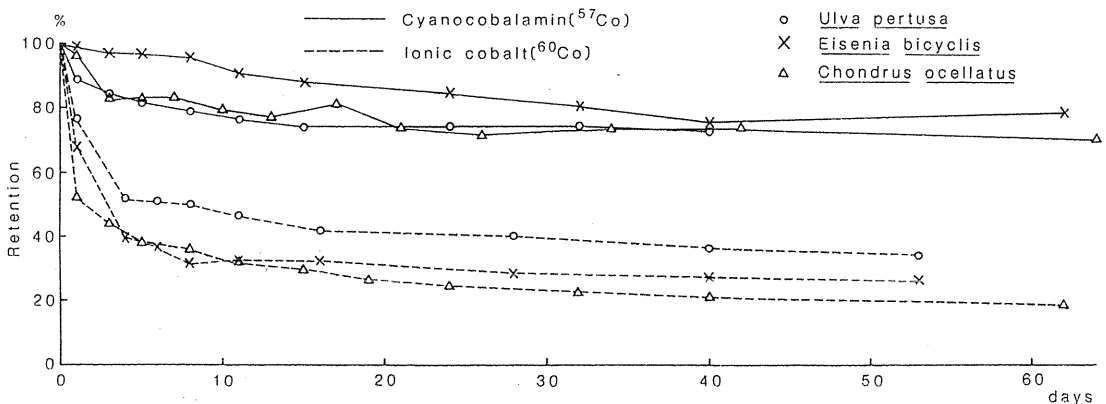


Fig. 2 Retention(%) of radioactive cobalt in marine algae by *Haliotis discus*.

Table 1. Concentration factors of *Haliotis discus* and contribution(%) of food algae to the accumulation of radioactive cobalt by the abalone

	The chemical form added in the experimental sea water				A B
	Cyanocobalamin(⁵⁷ Co)		Ionic cobalt(⁶⁰ Co)		
	CF (A)	Contribution (%)	CF (B)	Contribution (%)	
From sea water	6300		1300		5
From food					
<u>Ulva pertusa</u>	27000	81	1700	57	16
<u>Eisenia bicyclis</u>	500	7	80	6	6
<u>Chondrus ocellatus</u>	1800	22	250	16	7

むとされているアラメからの蓄積割合は極めて低いという結果を得た。

それゆえ、自然の海でアワビが主としてアラメを食べているならば、餌からの蓄積は無視することが出来、大部分の放射性コバルトは直接海水からアワビの鰓や外部組織を通じて取り込まれるとの結論に達した。

(研究発表)

1) Nakamura, R. Nakahara, M.

Suzuki, Y. and Ueda, T.

Effects of Chemical Forms and Intake Pathways on the Accumulation of Radioactive Cobalt by the Abalone *Haliotis discus*.

Bull. Japan. Soc. Sci. Fish. **48**, 1639-1644, 1982.

1A-6 ヒメジャコによるCoの蓄積

海洋放射生態学研究部

上田泰司・鈴木 譲・中村良一・中原元和

Accumulation of Co by Bivalve *Tridacna crocea*

Division of Marine Radioecology

Taishi UEDA, Yuzuru SUZUKI,

Ryoichi NAKAMURA and Motokazu

NAKAHARA

(目的)

ジャコガイ類はCoを高濃度に蓄積すると言う報告がある。一方、我々は同じく軟体動物に属するマダコはそのエラ心ぞうにCoを高濃度に蓄積する事を、本特別研究の進展中に認めため、ジャコガイのCo蓄積の機構を明らかにしてマダコの結果と比較し、タコや貝の様な無脊椎動物のCo蓄積に共通する特異な点があるかどうかの解明を目指した。

(方法)

沖縄産のヒメジャコ (*Tridacna crocea*) 35個体を200 μ Ciの $^{60}\text{CoCl}_2$ を含む1000 lの海水中で7日間、25℃で飼育した後清浄海水に貝を移して飼育を続けた。この間前報と同様に貝がらと軟体部、さらに軟体部を各器官に分けたものについてCo蓄積と排出を観た。また、腎ぞう中に見られ

たCo親和性のタン白質様物質の電気泳動も行った。

(結果)

ヒメジャコの貝がらと軟体部、および主な部位の ^{60}Co 取り込みと排出をFig. 1, 2に示す。腎ぞう(Kidney)の ^{60}Co は他の器官に比べて高い蓄積を示し、排出に於いてもFig. 中に示した様にその排出常数は前報の貝類のそれよりも1桁小さい値であった。また腎ぞうのCoの濃縮係数は58,000であった。この事から野外調査に於いて他の貝には認められないのにジャコ貝類に ^{60}Co が認められるのは、この腎ぞうへの蓄積とその排出の遅さによるものである事が分った。またこのCoに対して親和性を示す物質はタコのエラ心ぞう中のCo親和性物質(濃縮係数約10万)とは、その電気泳動像とアミノ酸組成からも異なったものであることが分った。

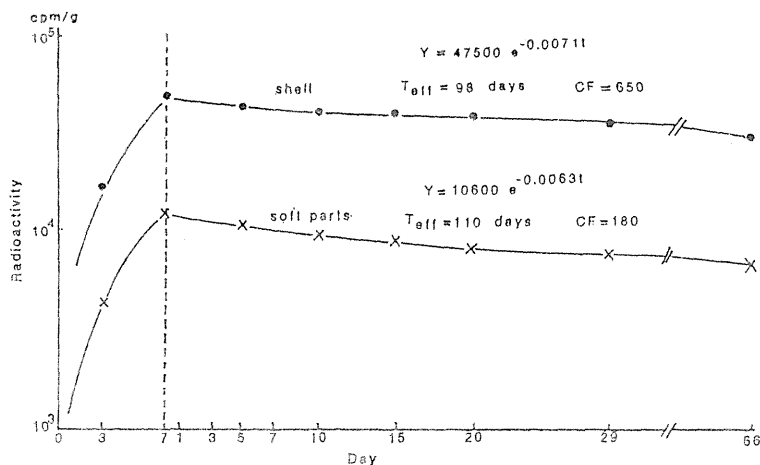


Fig. 1. Accumulation and excretion of ^{60}Co by shell and soft parts of *T. crocea*.

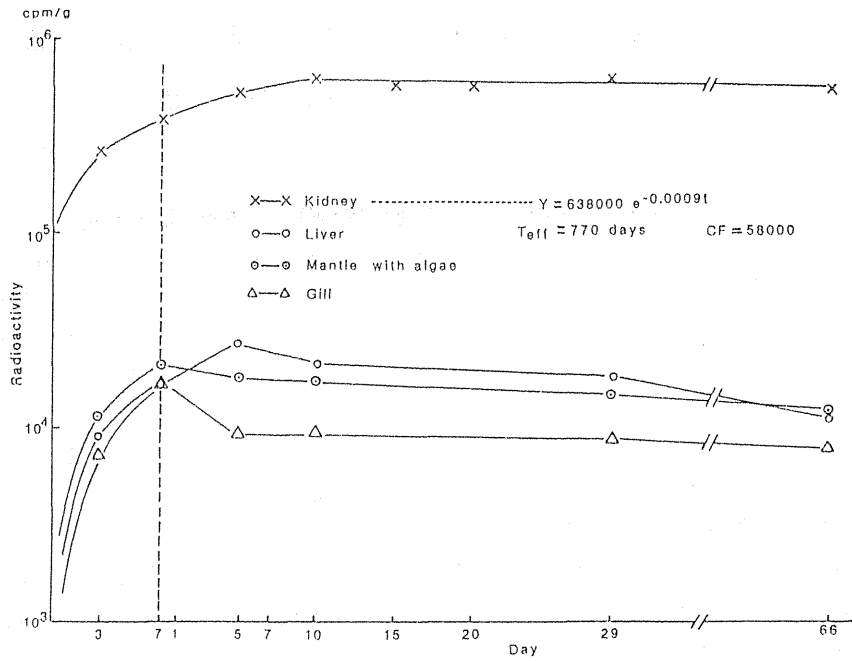


Fig. 2. Accumulation and excretion of ^{60}Co by four organs of *T. crocea*.

(研究発表)

Ueda, T. Suzuki, Y. Nakamura, R. and Nakahara, M.

Accumulation of Co by Bivalve

Tridacna crocea.

Bull. Japan. Soc. Sci. Fish. 48, 1293—1297, 1982.

1 A-7 海産生物の放射能汚染海水と接触時間と その後の除染状況との関係

海洋放射生態学研究部

中原元和・中村良一・鈴木 譲・上田泰司

Relation between Exposure Period in Radioactive Seawater and Excretion Rate of Radionuclides by Marine Organisms

Division of Marine Radioecology

Motokazu NAKAHARA, Ryoichi

NAKAMURA, Yuzuru SUZUKI and

Taishi UEDA

(緒 言)

原子力施設から海洋環境へ放出される放射性廃液は、その場所の地形や汐の干満、潮流等の影響を受け、現場に停滞したり、短時間で外洋に運びさられたりする。この様な環境に生息する海産生物の放射能汚染の状況は、海水中の放射能レベルの変動や、汚染海水との接触時間の変化等の影響を大きく受けるものと考えられる。この様な観点から、汚染海水との接触時間がその後の生物の除染の状況にどのような影響を与えるかについて実験を行った。

(方 法)

トレーサーとしては、 ^{60}Co (塩化物、比放射能: 130.8 mCi/mg Co) を用いた。供試生物としては、沿岸に生息し、比較的移動性の少ないメバル (*Sebastes inermis*) 12尾 (平均体重: $47.6 \pm 8.5 \text{ g}$) とクロアワビ (*Haliotis discus*) 96個体 (平均体重: $21.2 \pm 6.2 \text{ g}$) を用いた。 ^{60}Co でラベルした海水中でこれらの生物を別々に飼育し、メバルの場合は取り込み3, 6, 18, 31日にそれぞれ2尾ずつ、クロアワビの場合は取り込み1, 3, 7, 14日にそれぞれ19個体ずつ非汚染海水中に移し、その後の全身からの ^{60}Co の除染状況を追った。取り込み・排出実験ともに水温は 15°C に調整した。

(結 果)

図1, 2にメバル及びアワビによる ^{60}Co の取り

込み状況を示した。メバルは31日間、アワビは14日間の取り込み実験であったが、メバルの31日目の濃縮係数は1, アワビの14日目の濃縮係数は100近くにまで達し、やはり軟体類と ^{60}Co との高い親和性が示された。グラフに見られる二重マルの時点で生物の一部を非汚染海水中に移し、 ^{60}Co の排出状況を追った結果が図3及び図4である。メバルでは初期に速く排出される成分と、排出の遅い成分の2成分が見られ、アワビでは3成分の存在が推察された。また、汚染海水との接触時間の違いによって、各成分の割合が変化することも観察された。

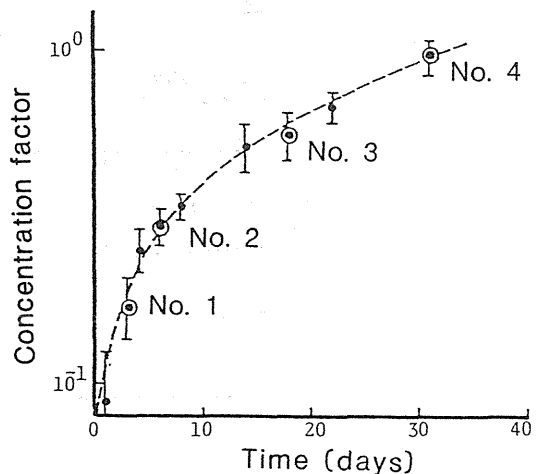


Fig. 1 Uptake of ^{60}Co by Mebaru at 15°C

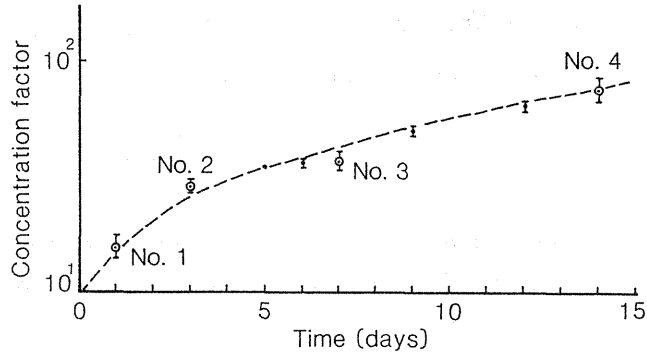


Fig. 2 Uptake of ^{60}Co by abalone at 15°C

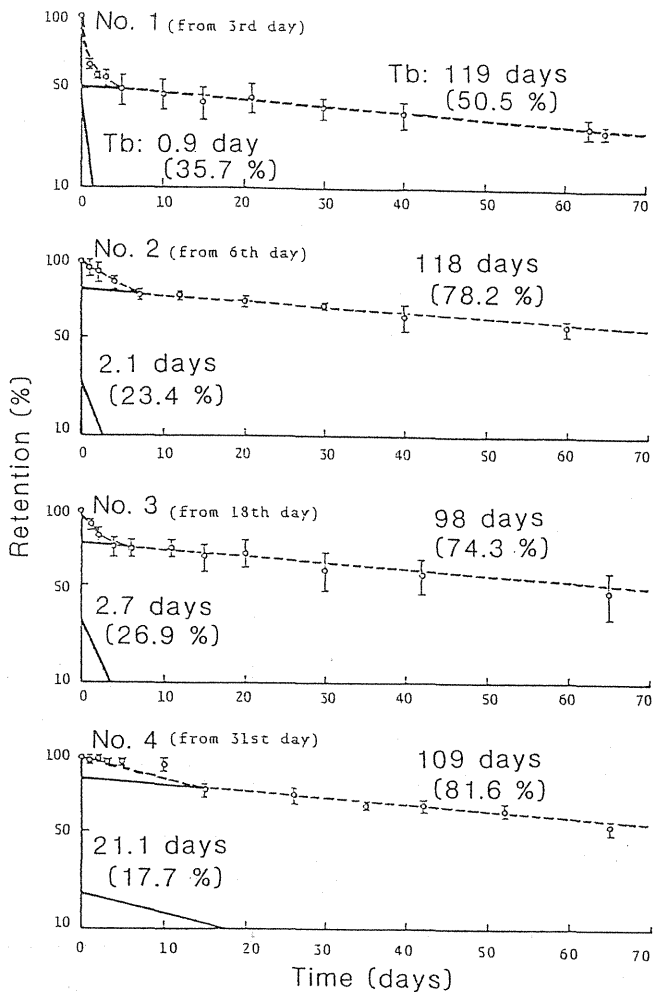


Fig. 3 Loss of ^{60}Co from Mebaru at 15°C

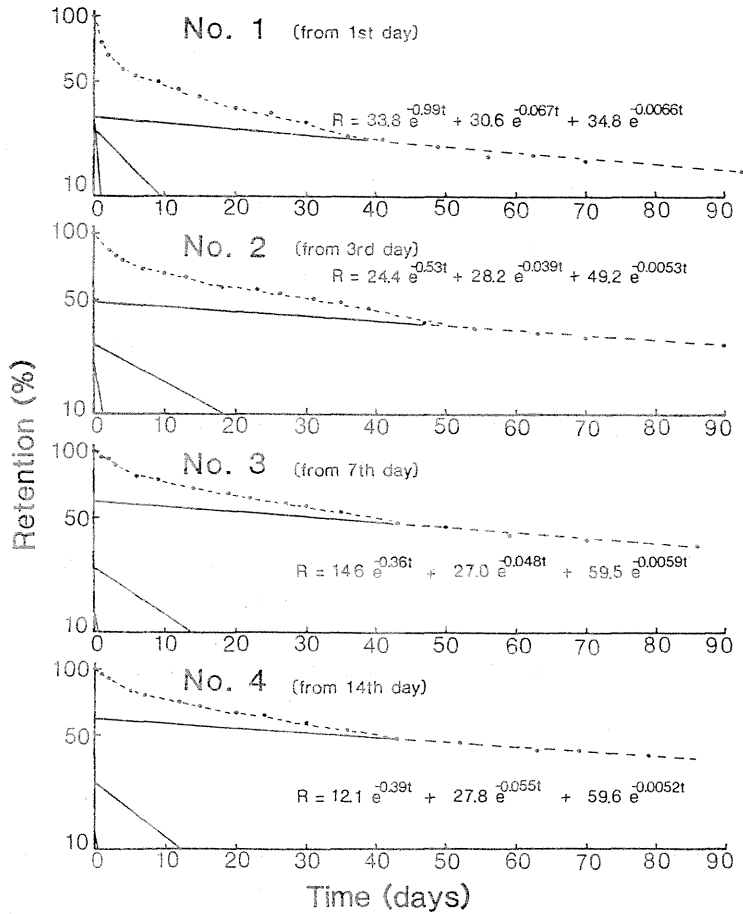


Fig. 4 Loss of ^{60}Co from abalone at 15°C

それぞれの成分について生物学的半減期と、排出実験スタート時点の全体に対する寄与割合(%)を求めて、メバルについては表1、アワビについては表2に示した。メバルについて見ると、排出の遅い成分の生物学的半減期は4群とも100日程度と揃っていたが、その寄与割合は接触時間3日間の50%から31日間の82%まで、接触時間が長くなるにつれて増加する傾向が見られた。この排出の遅い成分は実際にメバル体内に取り込まれ、物質代謝の流れによって排出されたものと推定される。一方、排出実験初期の排出の速い成分は、排出の遅い成分と逆の関係にあり、汚染海水との接触が長くなるにつれて、全体に対する寄与割合は減少してくる、また、生物学的半減期も、次第に長くなる等の傾向

が見られた。

アワビでは、それぞれの成分の生物学的半減期が、排出の速い方から1日、10日、100日程度と、4群ともほぼ似た値を示した。しかし、それぞれの成分の全体に対する寄与割合は、メバルで見たと同じ様に汚染海水との接触時間の違いによって変動した。変化の傾向は、接触時間が短かいと、排出の速い成分の割合が大きく、接触時間が長くなるにつれて排出の遅い成分が増加してくる。しかし、この傾向も接触時間が7日から10日以上になると、3成分の割合はほぼ一定になるものと推察された。

これらの結果から、ある海域の生態系の生物が放射能汚染海水と接触した場合、接触時間が短ければ、汚染海水が去った後の生物の放射能除染の速度は、

接触が長かった場合よりも速まることが予測される。(研究発表)

日本放射線影響学会第25回大会 1982年
10月(秋田)口頭

Table 1 Biological half-lives(day) and contribution %
of each component of Mebaru

	No.1	No.2	No.3	No.4
1st component	0.9 day (35.7%)	2.1 (23.4%)	2.7 (26.9%)	21.1 (17.7%)
2nd component	119 (50.5%)	118 (78.2%)	98 (74.3%)	109 (81.6%)

Table 2 Biological half-lives(day) and contribution %
of each component of Abalone

	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4
1st component	0.7 day (33.8 %)	1.3 (24.4 %)	1.9 (14.6 %)	1.8 (12.1 %)
2nd component	10.3 (30.6 %)	17.7 (28.2 %)	14.3 (27.0 %)	12.5 (27.8 %)
3rd component	104.5 (34.8 %)	130.8 (49.2 %)	118.2 (59.5 %)	134.4 (59.6 %)

1 A—8 マダコによる⁶⁰Coの海水からの取り込みと排出

海洋放射生態学研究部 中原元和、小柳 卓、上田泰司
東 京 大 学 清水千秋

Uptake and Excretion of Cobalt-60 taken up from Seawater by *Octopus vulgaris*

Division of Marine Radioecology

Motokazu NAKAHARA,

Taku KOYANAGI,

Taishi UEDA and Chiaki SHIMIZU*

* Faculty of Agriculture, University of Tokyo

(緒 言)

海洋生態系での⁶⁰Coの移行・蓄積の機構を明らかにする目的で、沿岸海域に普遍的に見られ、水産上重要なマダコについて、⁶⁰Coの海水からの取り込み・排出実験を行った。

(方 法)

実験には、マダコ (*Octopus vulgaris*) を8尾 (平均体重820g) 用いた。500ℓの海水を入れた水槽に⁶⁰Coを塩化物の形で添加し、その中でマダコを飼育して⁶⁰Coの取り込み実験を行った。経時的に1個体ずつ取り上げ、全身及び各臓組織への⁶⁰Coの蓄積状況を観察した。又取り込み実験7日目に4尾を非汚染海水に移し、タコからの⁶⁰Coの排出を追った。実験水温は20℃に調整し、実験期間中は非汚染のコタマガイ (*Gomphina melanaegis*) を餌として与えた。また、⁶⁰Coを高濃度に蓄積した臓組織については、Sephadex G-75によるゲル濾過実験を行ない、臓組織中の成分と⁶⁰Coの結びつきについても検討した。

(結 果)

図1に、マダコの全身及び各部位における⁶⁰Coの取り込みと排出について示す。部位別では、頭足類特有の臓器である鰓心臓が⁶⁰Coと特異的な親和性を示し、25日目にCFで33,000に達した。次いで肝臓、腎臓が高く、筋肉は最低であった。取り込み実験中の肝臓のゲル濾過像の経時変化を図2に

示す。経時的に⁶⁰Coのピークの位置が変化し、肝臓中で⁶⁰Coと結合している成分が時間と共に変わることが示唆された。

(研究発表)

- 1) Nakahara M., Koyanagi T., Ueda T., and Shimizu C., Peculiar Accumulation of Cobalt-60 by the Branchial Heart of Octopus. *Bull. Japan. Soc. Sci. Fish.* 45, 539, 1979.
- 2) Nakahara M., Koyanagi T., Ueda T., and Shimizu C., Uptake and Excretion of Cobalt-60 taken up from Seawater by *Octopus vulgaris*. *Bull. Japan. Soc. Sci. Fish.* 48, 1739-1744, 1982.

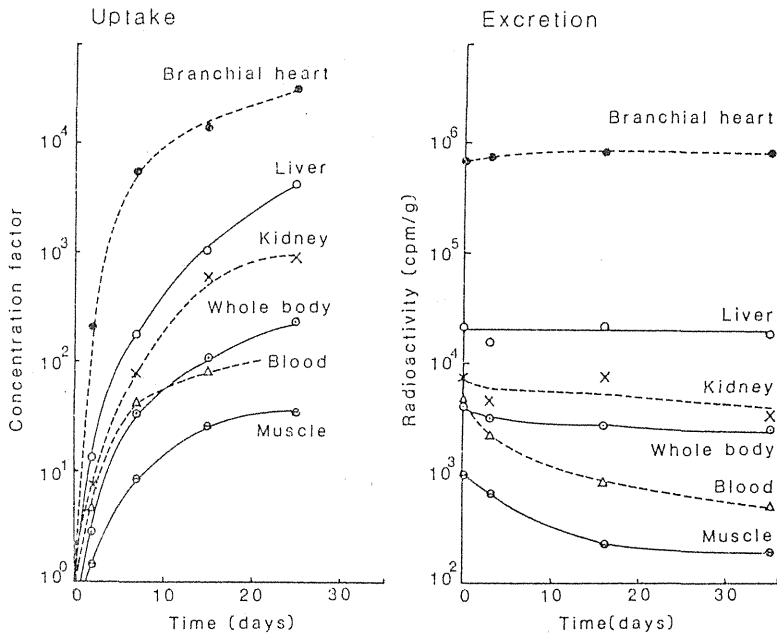


Fig. 1. Uptake and excretion of ^{60}Co by *Octopus vulgaris* at 20°C .

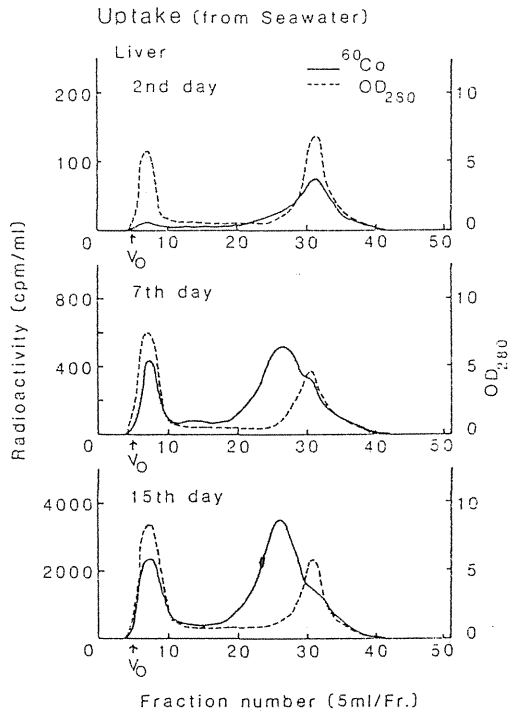


Fig. 2. Change of Sephadex G-75 gel filtration profiles of ^{60}Co in liver during uptake experiment.

1 A-9(1) 貝類中の微量元素の定量

海洋放射生態学研究部

石井紀明・平野茂樹・松葉満江・小柳 卓

Determination of Trace Elements in Shellfish

Division of Marine Radioecology

Toshiaki ISHII, Shigeki HIRANO,

Mitsue MATSUBA and

Taku KOYANAGI

(縮言)

汚染物質による海洋汚染をモニタリングするための Indicator としてムラサキイガイが多くの研究者によって用いられているが、無脊椎動物の中にはある元素に対してムラサキイガイよりも高い濃縮性を示す生物種が存在している。放射性核種や重金属による海洋汚染を調査するための、より有効な Indicator をスクリーニング作業によって検索するためには原子吸光法のような単元素分析法では充分に対処しきれず、放射化分析法、PIXE、蛍光 X 線分析法等の多元素同時分析法が非常に有効であると考えられる。

今回は、高い検出感度、広いダイナミックレンジ、元素間の化学干渉が少ない等の特性を有し多元素同時分析が可能なプラズマ発光分析法 (ICP-AES)

を貝類に適用してその有効性について検討した。

(試料及び分析法)

1977年から1980年にかけて茨城県を中心とする太平洋沿岸で採取した24種の二枚貝、巻貝の軟組織を分析試料とした。軟組織は110℃で乾燥したあと450℃で高温灰化した。灰化試料を0.5 N HNO₃で溶解後100 ml に fill up して ICP-AES 用試料とした。原子吸光法の場合は、トリオクチルアミン-キシレン、ジチゾン-クロロホルムによる溶媒抽出、イオン交換等によってマトリックス元素を除去したあとパーキン・エルマー Model 403型、及び日立ゼーマン170-70型で分析した。

ICP-AESの測定条件をTable 1に示す。Fig. 1は、亜鉛のキャリブレーションカーブを示したも

Table 1. Analytical condition of ICP-AES

Instrument	Shimadzu Model ICPQ-100						
Plasma source	Inductively coupled plasma						
Frequency	27.120	MHz					
RF Power	1.6	kW					
Coolant gas flow rate	Ar 10.5	l/min.					
Plasma gas flow rate	Ar 1.5	l/min.					
Aerosol carrier gas flow rate	Ar 0.8	l/min.					
Sample solution uptake rate	1.8	ml/min.					
Spectrometer							
Mount	1.0 m	Paschen-Runge					
Reciprocal linear dispersion	4.8 Å	—	5.2 Å (1st)				
Range	1850	Å	—	4600 Å			
Integration time	15	sec.					
Analytical lines							
Mn	257.61 nm,	Fe	259.94 nm,	Co	345.35 nm,	Ni	231.60 nm
Cu	324.75 nm,	Zn	202.50 nm,	Cd	226.50 nm,	Sr	407.77 nm

のであるが、各曲線の傾きとバックグラントレベル（亜鉛濃度が0.00 ppm時の発光強度）は標準溶液中に含まれるマトリックス元素の量によって異なった。なおFig 1に示した亜鉛だけでなく他の目的元素でも0.02～2.0 ppmの濃度範囲で優れた直線性が得られたが、同じ濃度範囲を原子吸光法でカバーするためにはフレーム法とフレイレス法とを使い分ける必要がある。10⁵以上の広いダイナミックレンジを有するICP-AESは、10²程度の濃度範囲しかカバーできない原子吸光法と比べて直線性において非常に優れていることになる。

チョウセンハマグリを試料溶液中の微量元素をICP-AESと原子吸光法で分析した結果をTable

2に示す。ICP-AESと原子吸光法の測定値は良く一致しており、ICP-AESが貝類に十分適用できることが判った。今回の目的元素に対するICP-AESの検出下限は概ね数ppbであり、試料溶液中の濃度は10倍以上高いためバックグラント補正機構を用いなくてもマトリックスマッチングだけで十分に満足のおくデータを得られた。

ICP-AESによる測定値を基にして得られた二枚貝、巻貝中の微量元素濃度をTable 3, 4に示す。但し、コバルトに関しては変動係数が10%を超える例が二、三あったのでその場合は原子吸光の値で置き変えた。マガキの銅、亜鉛濃度が試料によって大きく異なっていることがTable 3

Table 2. Comparison of two analytical methods of ICP-AES and AAS for the measurement of concentrations of trace elements in sample solution of Chosenhamaguri *Meretrix lamarcki*

		Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Cd	Sr
ICP-AES	Mean (μg/ml)	0.677	22.9	0.177	0.680	1.54	14.1	0.066	4.16
	RSD*1 (%) , N=5	0.34	0.34	8.06	0.60	0.20	0.24	1.54	0.31
AAS	Mean (μg/ml)	0.61	21.4	0.15*2	0.71*2	1.41	13.6	0.061*2	3.97
	RSD*1 (%) , N=5	0.98	0.71	4.25	3.62	1.01	0.26	3.52	0.56

*1 Relative standard deviation was calculated for the five time measurements of the same sample solution which was introduced to the nebulizer and graphite cell cleaned by the distilled water after every measurements.

*2 Values obtained by flameless AAS method (Injection volume; 20 μl).

Table 3. Concentrations of trace elements in soft part of Pelecypoda (mg/kg wet weight)

Sample*	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Cd	Sr
Chosenhamaguri <i>Meretrix lamarcki</i>	0.53	21-80	0.18	0.50-1.7	2.4	13	0.14	4.1
Ubagai <i>Spisula sachalinensis</i>	7.9	100	0.20	0.59	1.9	13	0.10	4.2
Wasuregai <i>Cyclosunetta menstrualis</i>	11-80	49	0.45	1.0	7.8	49	0.27	5.9
Marusarubo <i>Scapharca satowi</i>	1.7	140	0.27	0.38	1.0	37	1.1	12
Asari <i>Tapes philippinarum</i>	1.1	47	0.42	0.76	1.4	13	0.15	11
Magaki <i>Crassostrea gigas</i>	2.1-6.2	54	0.37	0.25	8.0-460	14-910	0.74	3.9
Hotategai <i>Patinopecten yessoensis</i>	0.46	18	0.23	0.86	0.76	24	1.8	4.9
Ishikagegai <i>Clinocardium californiense buellowi</i>	1.5	100	0.23	0.49	1.0	11	0.20	5.2
Akazara <i>Chlamys farreri</i>	0.97	20	0.22	0.35	0.72	59	3.5	—
Igai <i>Mytilus coruscus</i>	0.62	22	0.31	0.32	0.74	18	0.21	—
Nunomeasari <i>Novathaca euglypta</i>	1.7	37	0.29	0.52	2.1	15	0.26	—
Kotamagai <i>Gomphina melanaegis</i>	0.91	35	0.36	0.71	5.6	13	0.80	—

* Scientific names were cited from "Kai" (Hyojun Genshoku Zukan Zenshu, Vol. 3) published by Hoikusha Inc. Tokyo.

に示されているが、低い値は宮城産、高い値は茨城県日立市会瀬海岸で採取したもの（ミドリガキ）である。

Table 5 は、5種の貝類について微量元素の体内分布を原子吸光法により調査したものであるが、マンガン、鉄、銅、亜鉛等の遷移元素は内臓器官に蓄積されているのが判る。但し、マガキ（ミドリガキの場合）はTableにみられるように銅と亜鉛は体内で均一に分布している。

（結論）

ICP-AESを海産無脊椎動物の貝類に適用してその有効性について調べた結果、ICP-AESは広いダイナミックレンジ、ppbレベルの高い検出感度、共存元素による化学干渉をあまり受けないなどの特性を持つことが判った。従って、多元素を同時にしかも短時間内に分析する能力を有するICP-AESは、スクリーニング作業を実施する上で非常に有効な分析手段であると結論された。更に分析の対象とする元素（鉛、アルミニウム、希土類等）、試料（海藻、海水、海底土）を拡大していく方針である。

Table 4. Concentrations of trace elements in soft part of Gastropoda (mg/kg wet weight)

Sample		Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Cd	Sr
Shiraitomakibai	Muscle* ¹	0.34	9.9	0.06	0.16	0.41	17	0.11	4.1
<i>Buccinum isaotakii</i>	Others* ²	0.88	56	0.19	0.39	12	39	3.1	—
Tsumetagai	Muscle	0.75	17	0.02-0.16	0.40	9.0	28	0.10	8.2
<i>Neverita didyma</i>	Others	25	210	0.83	1.4	120	44	0.43	—
Sazae	Muscle	0.22	17	0.13	0.11	5.0	23	0.09	4.8
<i>Batillus cornutus</i>	Others	2.3	620	0.30	0.69	20	43	12	—
Kuroawabi	Muscle	0.14	40-120	0.17	0.95	10	5.6-20	0.11	5.2
<i>Nordotis discus</i>	Others	0.74	400-1800	1.6	6.3	14	58	2.6	—
Kubogai	Muscle	0.82	50	0.21	0.38	17	38	0.14	4.7
<i>Chlorostoma argyrostoma lischkei</i>	Others	2.1	240	1.0	4.2	110	51	0.34	—
Ibonishi	Muscle	0.81	79	0.22	0.32	19	25-110	0.76	3.9
<i>Thais clavigera</i>	Others	1.4	150	0.47	1.5	250	95	2.7	—
Ezoboramodoki	Muscle	0.77	22	0.07	0.19	7.8	16	0.13	4.5
<i>Neptunea intersculpta</i>	Others	0.85	44	0.18	0.28	17	52	5.1	—
Yatsushirogai	Soft part	2.5	110	0.14	0.28	0.99	13	0.33	—
<i>Tonna luteostoma</i>									
Boshubora									
<i>Charonia sauliae</i>	Soft part	1.5	150	0.40	1.4	47	60	2.5	—
Bai									
<i>Babylonia japonica</i>	Soft part	6.3	110	0.31	0.31	130-420	63-210	6.5	—
Bekkougasagai									
<i>Cellana grata</i>	Soft part	1.9	390	0.37	0.98	1.8-5.6	35	0.62	—
Ishidatami									
<i>Monodonta labio</i>	Soft part	1.9	100	0.36	1.4	33	19	0.18	—

*¹ foot and adductor muscle, *² gill, mantle, digestive tract and liver.

Table 5. The distribution of trace elements in shellfishes (mg/kg wet weight)

Sample		Mn	Fe	Cu	Zn	Ni
Chosenhamaguri <i>Meretrix lamarcki</i>	Foot and Adductor muscle	0.41	23	0.80	18	0.50
	Mantle	0.59	21	2.3	10	0.80
	Gill	0.47	27	2.0	17	1.3
	Digestive tract	0.44	25	1.9	13	0.80
Magaki <i>Crassostrea gigas</i>	Liver	0.76	46	7.5	19	7.2
	Adductor muscle	1.3	15	79	180	—
	Mantle	5.6	41	530	1100	—
	Gill	13	47	690	1100	—
Wasuregai <i>Cyclosumetta menstrualis</i>	Digestive tract	4.6	82	460	990	—
	Liver	3.4	53	530	1000	—
	Foot and Adductor muscle	0.80	40	1.3	13	—
	Mantle	33	47	1.6	17	—
Kuroawabi <i>Nordotis discus</i>	Gill	41	81	6.8	32	—
	Digestive tract	2.3	54	2.1	18	—
	Liver	3.3	82	26	20	—
	Foot and Adductor muscle	0.20	110	13	16	—
Boshubora <i>Charonia sauliae</i>	Mantle	0.80	290	10	53	—
	Gill	1.5	210	7.8	28	—
	Digestive tract	1.5	390	6.4	31	—
	Liver	1.9	700	17	52	—
Boshubora <i>Charonia sauliae</i>	Foot and Adductor muscle	0.70	20	3.1	23	—
	Mantle	0.60	12	3.0	8.8	—
	Gill	1.7	33	7.5	9.8	—
	Digestive tract	6.0	200	39	21	—
	Liver	3.8	880	97	130	—

1A-9(2) 中深層魚の微量金属元素量

海洋放射生態学研究所

中原元和・上田泰司・鈴木 譲・石井紀明

Amounts of Trace Elements in Mesopelagic Fishes

Division of Marine Radioecology

Motokazu NAKAHARA,

Taishi UEDA,

Yuzuru SUZUKI and Toshiaki ISHII

(緒 言)

近年、水深数百 m と比較的深みに生息する、いわゆる中深層魚が、日本人の食卓に上るようになってきた。これは漁業技術の向上もさることながら、領海問題などの絡みで漁場が狭まってきた為、今までは漁獲量が少なかった中深層の魚資源が注目される様になったものと考えられる。これらの中深層の魚は、沿岸性や表層性の魚とは生息環境が異なり、また食性等も異なるものと思われるので、海洋の放射能汚染にともなう魚の汚染の程度も両者で異なる可能性が予想される。この様な点を確かめる目的で、中深層魚の筋肉中の安定元素分析を行ない、沿岸性の魚の結果と比較した。同時に、主として核実験に由来すると考えられる筋肉中の¹³⁷Cs及び骨中の⁹⁰Srについても、両者で比較を行った。

(方 法)

実験に用いた魚の名前と平均体重を表1に示す。供試魚は1978年10月と1979年6月に購入したものをを用いた。購入後、直ちに解剖し、筋肉及び脊椎骨を集めて110℃で乾燥後、電気炉(450℃、48時間)で灰化した。灰化試料中のCoとCsについては放射化分析法で測定した。適当量の灰分を、原研のJRR-3により260時間、 2×10^{13} n/cm²/secで照射後、8NのHClに溶かし、イオン交換樹脂(Dowex 1×8、100-200メッシュ、12×1cm ϕ)に通した。カラム流出液をCs画分、4NのHClでの溶出画分をCo画分とした。放射化したCsとCoは1024チャンネル波高分析器(Northern Scientific Co.)と接続したGe(Li)半導体検出器(Princeton Gammatec Co.)で測定した。Mn、Fe、Cu及びZnの定量は、灰化試料約5gから8N-HClで抽出し、TOA-Xylene

Table 1. Sample organisms

	Japanese name	Scientific name	Average body weight (g)
Mesopelagic fishes	Akoudai	<u>Sebastes matsubarae</u>	2700
	Mutsu	<u>Scombrops boops</u>	2650
	Medai	<u>Hyperoglyphe japonica</u>	2250
	Aodai	<u>Paracaesio caeruleus</u>	1200
	Kinmedai	<u>Beryx splendens</u>	1550
	Himedai	<u>Pristipomoides sieboldi</u>	1250
Coastal fishes	Hirame	<u>Palalichthys olivaceus</u>	200
	Ezoisoainame	<u>Lotella maximowiczi</u>	400
	Suzuki	<u>Lateolabrax japonicus</u>	300
	Katsuo	<u>Katsuwonus pelamis</u>	1700
	Ishimochi	<u>Argyrosomus argentatus</u>	130

で妨害イオンを除去した後、原子吸光法 (Perkin-Elmer社、403型) で行った。また、筋肉灰化試料中の¹³⁷Cs及び脊椎骨灰化試料中の⁹⁰Srのβ線計測は、試料を常法で処理後、低バックグラウンド・ガスフロー・カウンターで行った。

(結果)

表2に中深層魚及び沿岸魚の筋肉中の各微量元素濃度を示す。カッコの中の数字は、各サンプルに用いた魚体数を示している。中深層魚の筋肉中の各元素濃度は、Mn 0.05-0.09 ppm、Fe 1.7-3.9 ppm、Cu 0.12-0.27 ppm、Zn 2.6-8.7 ppm、Co 1.9-5.3 ppb、Cs 12.1-54.9 ppbとなり、同時に入手して計測した沿岸魚の値と大きな差は見られなかった。さらに、これらの値は、今までに報告された沿岸魚の値とも、ほぼ一致している。また、筋肉中の¹³⁷Cs、骨中の⁹⁰Srの濃度については、表3に示す。この場合も中深層魚と沿岸魚で大きな差は見られなかった。海水中の安定元素濃度は、深度によって変動が見られるが、Znの例でもその変動幅は、高々2~3倍程度と思われる¹⁾。一方、海水中の¹³⁷Cs及び⁹⁰Srの濃度については、両核種とも海洋の表層で高く、深くなるにつれて²⁾漸減する傾向が報告されており、表層の

濃度と深度1,000mの濃度とは、両核種とも約10倍以上の差が見られる。この海水中の濃度差を考慮すると、中深層魚と沿岸魚で¹³⁷Csと⁹⁰Srの濃度に差異が見られない表3の結果は、両者で¹³⁷Csと⁹⁰Srの濃縮係数が異なることを意味し、中深層魚の方が沿岸魚よりも高い濃縮係数を示すことを示唆している。

最後に中深層魚の筋肉中の安定元素濃度と、Thompsonら(1972)³⁾の海水中の元素濃度を用いて濃縮係数を算出した結果を表4に示す。

(参考文献)

- 1) Brewer, P. G., Spencer, D. W. and Robertson, D. E.
Trace element profiles from the GEOSECS-II test station in the Sargasso Sea, Earth Planet. Sci. Lett., 16, 111-116 (1972)
- 2) Nagaya, Y. and Nakamura, K.
Artificial Radionuclides in the Western Northwest Pacific (1)⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs in the Deep Waters.
J. Oceanogr. Soc. Jpn, 37, 135-144, 1981.

Table 2. Concentrations of trace elements in fish muscle (mg or µg/Kg wet)

Species	No. in Sample		Mn (ppm)		Fe (ppm)		Cu (ppm)		Zn (ppm)		Co (ppb)	Cs (ppb)
	I*	II**	I*	II**	I*	II**	I*	II**	I*	II**	I*	I*
Mesopelagic												
<i>Sebastes matsubarae</i>	(3)	(1)	0.09	0.06	1.7	2.2	0.19	0.12	4.6	2.6	-	54.9
<i>Scombrops boops</i>	(2)	(2)	0.06	0.06	3.6	3.7	0.19	0.27	3.0	3.0	2.3	29.5
<i>Hyperoglyphe japonica</i>	(3)	(2)	0.05	0.06	2.5	2.5	0.27	0.21	4.1	2.8	3.3	20.6
<i>Paracaesio caeruleus</i>	(6)	(2)	0.05	0.06	3.3	3.9	0.19	0.23	4.3	3.0	4.0	21.0
<i>Beryx splendens</i>	(5)	(2)	0.08	0.06	2.4	2.9	0.24	0.16	8.7	2.6	1.9	35.4
<i>Pristipomoides sieboldi</i>	(2)	-	0.06		2.9		0.26		3.9		5.3	12.1
Average ± SD***			0.06 ± 0.01		2.9 ± 0.7		0.21 ± 0.05		3.9 ± 1.8		3.4 ± 1.4	28.9 ± 15.1
Coastal												
<i>Palalichthys olivaceus</i>	(25)		0.13		2.3		0.18		3.6			
<i>Lotella maximowiczi</i>	(14)		0.10		3.2		0.16		3.4			
<i>Lateolabrax japonicus</i>	(10)		0.08		2.9		0.18		4.8			
<i>Katsuwonus pelamis</i>	(3)		0.06		4.0		0.88		4.5			
<i>Argyrosomus argentatus</i>	(41)		0.10		3.3		0.21		3.4			
Average ± SD***			0.09 ± 0.03		3.1 ± 0.6		0.32 ± 0.31		3.9 ± 0.7			

* data of Oct. 1978

** data of Jun. 1979

*** standard deviation

3) Thompson, S. E., Burton, C. A.,
 Quinn, D. J. and Ng, Y. C.
 Concentration Factors of Chemi-
 cal Elements in Edible Aquatic
 Organisms.
 UCRI-50564, Rev. 1, 1972.

(研究発表)
 Nakahara, M., Ueda, T., Suzuki, Y.,
 Ishii, T. and Suzuki, H.
 Concentration Factors of Mesopela-
 gic Organisms.
 Proc. 3rd NEA Seminar on Marine
 Radioecology, p. 323-334, OECD, 1980.

Table 3. Levels of ^{137}Cs in fish muscle and
 of ^{90}Sr in fish bone (pCi/Kg wet)

Species	^{137}Cs in muscle		^{90}Sr in bone II**
	I*	II**	
Mesopelagic			
<u>Sebastes matsubarae</u>	4.0	18.4	1.3
<u>Scombroops boops</u>	26.0	37.4	0.8
<u>Hyperoglyphe japonica</u>	—	9.7	2.0
<u>Paracaesio caeruleus</u>	14.4	13.4	0.9
<u>Beryx splendens</u>	—	26.0	2.0
Average \pm SD***	18.7 \pm 10.7		1.4 \pm 0.6
Coastal			
<u>Paralichthys olivaceus</u>		12.0	0.2
<u>Lotella maximowiczii</u>		15.1	0.9
<u>Lateolabrax japonicus</u>		43.8	4.3
<u>Katsuwonus pelamis</u>		12.6	2.1
<u>Argyrosomus argentatus</u>		7.0	1.3
Average \pm SD***	18.1 \pm 14.7		1.7 \pm 1.6

* data of Oct. 1978

** data of Jun. 1979

*** standard deviation

Table 4. Concentration factors of trace elements in
 muscle of mesopelagic fish

	Mn	Fe	Cu	Zn	Co	Cs
Fish	60	290	70	390	30	60
Seawater* ($\mu\text{g/l}$)	1	10	3	10	0.1	0.5

* Thompson et al. (1972)

1 A-9(3) 頭足類の微量金属元素量

海洋放射生態学研究所

上田泰司・中原元和・石井紀明・鈴木 譲

動力炉・核燃料開発事業団

鈴木浜治

Amounts of Trace Elements in Marine Cephalopods

Division of Marine Radioecology

Taishi UEDA,

Motokazu NAKAHARA,

Toshiaki ISHII,

Yuzuru SUZUKI and

Hamaji SUZUKI*

* Health and Safety Division, Power Reactor
and Nuclear Fuel Development Cooperation

(緒 言)

日本人にとって頭足類(イカ・タコ)は、魚類と同様に重要な海産食品であるが、欧米では余り食わず、頭足類の放射能汚染の研究は余り行われていない。したがって我々はこの問題につき検討を行なっているが、その中でマダコの鰓心臓への ^{60}Co の特異的な蓄積を見出した¹⁾。本報告は ^{60}Co で見られた現象が安定元素でも見られるか検討すると共に、 Co 以外の微量金属元素についても検討し、あわせて濃縮係数を求める事を目的とした。

(方 法)

生物試料としてマダコ(*Octopus vulgaris*)、ミズダコ(*paroctopus dofleini*)、ヤリイカ(*Doryteuthis bleekeri*)、バカイカ(*Stenoteuthis bartrami*)、スルメイカ(*Todarodes pacificus*)を購入して用いた。これらの試料から、肝臓、鰓心臓および可食部(外套膜・足)の3部位をとり出して、各生物種毎に任意に3群に分けて灰化、抽出、測定を行った。結果の数字はこの3群の平均値である。ただし、鰓心臓については小さな器官(全体重の約0.2%)であるため、各生物種毎にまとめて1試料とした。Mn、Fe、Cuお

よびZnの定量には、灰化試料約5gから8N-HClで抽出してTOA-Xyleneで妨害イオンを除去した後、原子吸光法(Perkin-Elmer社、403型)を用いた。 Co と Cs の定量には放射化分析を行った。すなわち灰分50mgにつき、原研のJRR-3により260時間、 $2 \times 10^3 \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ で照射後、8NのHClに灰試料を溶かし、イオン交換(Dowex 1×8、100-200メッシュ、 $12 \times 1\text{cm}^{\phi}$)を行い、流出液をCs画分とした。 Co はイオン交換樹脂から4NのHClで溶出させた。 Cs と Co は1024チャンネル波高分析器(Northern Scientific Co.)と接続したGe(Li)半導体検出器(Princeton Gammatoc Co., 40ml)で測定し、回収率を原子吸光法により補正した。回収率は Co で87、 Cs で93%であった。放射化分析の測定値のバラツキは12%以下であった。

(結 果)

Table 1に可食部の分析結果を、Table 2にそれから計算した濃縮係数を示す。濃縮係数算出のための海水中の金属元素量は、Thompson²⁾の値を用いた。これまでに報告されている金属元素量^{3,4)}と結果は似ている。Table 3に肝臓と鰓心臓の分析

結果を示す。マダコの肝臓と鰓心臓中のCo濃度が大きい点が目につく。特にマダコの鰓心臓は海水中のCo量を0.1 μg/ℓとして濃縮係数を求めれば約1.0万にも達する。縮言で述べた様に⁶⁰Coのマダコの鰓心臓への特異的な蓄積は、本実験の安定元素

の面からも認められた。マダコ以外の頭足類ではこのような特異的な蓄積は認められなかったし、またCo以外の元素についても特異性は認められなかった。マダコの鰓心臓中のこのCoに特異的な結合を示す物質については検討中である。

Table 1
Amounts of elements in the edible parts of cephalopods (mg or μg/kg of wet weight)

	Mn	Fe	Cu	Zn	Co	Cs
	(mg)				(μg)	
<i>O. vulgaris</i>	0.33	1.8	2.5	14	8.1 ¹⁾	3.5 ²⁾
<i>P. dofleini</i>	0.17	1.4	4.0	13	2.2	1.9
<i>D. bleekeri</i>	0.12	2.8	1.2	8	4.5	3.2
<i>S. bartrami</i>	0.13	1.8	2.6	14	8.8	4.6
<i>T. pacificus</i>	0.09	1.1	1.2	12	3.1	3.6
Average±SD*	0.14±0.03	1.8±0.6	2.0±1.2	12.2±2.5	5.3±3.0	3.4±1.0

1) average of 9.1 in October and 7.0 μg in May sample

2) average of 3.3 in October and 3.6 μg in May sample

*: standard deviation

Table 2
Concentration factors in the edible parts of cephalopods

	Mn	Fe	Cu	Zn	Co	Cs
<i>O. vulgaris</i>	3×10 ²	2×10 ²	8×10 ²	1×10 ³	8×10 ¹	7
<i>P. dofleini</i>	2	1	13	1	2	4
<i>D. bleekeri</i>	1	3	4	1	5	6
<i>S. bartrami</i>	1	2	7	1	9	9
<i>T. pacificus</i>	1	1	4	1	3	7
Mean	2×10 ²	2×10 ²	7×10 ²	1×10 ³	6×10 ¹	7

Table 3
Amounts of elements in the liver and branchial heart of cephalopods (mg or μg/kg of wet weight)

	Mn	Fe	Cu	Zn	Co	Cs	
	(mg)				(μg)		
<i>O. vulgaris</i>	1.08	110	110	520	3520 ¹⁾	2.9 ²⁾	liver
<i>P. dofleini</i>	1.20	90	190	160	640	2.3	
<i>D. bleekeri</i>	0.39	33	90	25	48	3.1	
<i>S. bartrami</i>	0.46	81	540	78	—	—	
<i>T. pacificus</i>	0.73	150	96	43	480	3.0	
<i>O. vulgaris</i>	0.89	69	41	43	9450 ³⁾	5.6 ⁴⁾	branchial heart
<i>P. dofleini</i>	0.50	5	20	17	420	4.3	
<i>D. bleekeri</i>	—	—	—	—	30	1.8	
<i>S. bartrami</i>	0.32	10	66	15	67	2.9	
<i>T. pacificus</i>	0.47	16	70	23	—	—	

1) average of 4470 in October and 2570 μg in May sample

2) average of 3.4 in October and 2.3 μg in May sample

3) average of 13900 in October and 4998 μg in May sample

4) average of 7.8 in October and 3.4 μg in May sample

—: no data

(参考文献)

- 1) Nakahara, M., Koyanagi, T., Ueda, T. and Shimizu, C.
Peculiar Accumulation of Cobalt-60 by the Branchial Heart of Octopus.
Bull. Japan. Soc. Sci. Fish., **45**, 539, 1979.
- 2) Thompson, S. E. Burton, C. A., Quinn, D. J. and Ng, Y. C.
Concentration Factors of Chemical Elements in Edible Aquatic Organisms.
UCRL-50564, Rev. 1, 1972.
- 3) Ishii, T., Suzuki, H. and Koyanagi, T.
Determination of Trace Elements in Marine Organism-1.
Bull. Japan Soc. Sci. Fish., **44**, 155-162, 1978.
- 4) Tsuchiya, Y.
Inorganic Elements in Muscle of Marine Organisms. in *Fisheries Chemistry*, Koseisha Koseikaku Co., Ltd, Tokyo, 1965, p. 148-156, (in Japanese)

(研究発表)

- Ueda, T., Nakahara, M., Ishii, T., Suzuki, Y. and Suzuki, H.
Amounts of Trace Elements in Marine Cephalopods.
J. Radiat. Res., **20**, 338-342, 1979.

1 A—10 海水中の放射性核種の物理化学的形態とその変化

海洋放射生態学研究部 平野茂樹・小柳卓

Physico-chemical State of Radioactive Nuclide and Its Change in Seawater

Division of Marine Radioecology

Shigeki HIRANO and Taku KOYANAGI

(緒 言)

海洋に導入される人工放射核種の物理化学的形態は、既存の安定同位元素の形態とは異なるのが一般であり、両者の間に交換平衡関係が成立するに到るまでの間は、それぞれ異なる挙動をとるものと考えられる。平衡に達するまでの時間は、放射性および安定元素の種類や、その物理化学的形態によって変ることが知られているが、その間における生物濃縮や排出など、生物学的な挙動に生ずる差は、海洋生態系における放射性核種移行の解析、さらには人体への還元ならびに放射線被曝の予測、推定に必要なパラメーターの値を左右する重大な要因の一つとなる。本研究では、原子力施設より放出が予想されるいくつかの放射性同位体を持ち、且つその安定同位体が生物にとって必須元素とされているコバルトおよびヨウ素を取りあげ、形態の異なるRIを用いたトレーサー実験を中心に、海水中における挙動、ならびに生物への移行、あるいは代謝について比較検討を行った。

沿岸海洋では天然の安定コバルトは大部分が有機化合物の形で存在するとされているが、一方、無機態のコバルトと有機態のコバルトとは海産生物による取り込みや排出に差のあることが知られている。そこで海水中に無機の Co^{2+} イオンとして放出された場合に、放射性コバルトがどのような化学種で存在するかを、実験的に求めた Co^{2+} イオンと海水中に存在する陰イオン、あるいはアミノ酸との安定度定数から計算によって推定した。ヨウ素に関しては、海水中における酸化状態による形態の違いが問題となり、比較的安定な存在形態であるヨウ化物イオン(I^-)とヨウ素酸イオン(IO_3^-)との間で生物濃

縮に差のあることが知られている。したがって放射性ヨウ素がいずれの形で存在するかによって生物による取り込みや排出におよぼす影響を主体に検討を試みた。

(方 法)

$\text{Co}(\text{II})$ と海水中に存在する主な無機陰イオン、あるいはアミノ酸との安定度定数を計算するため、まず陽イオン交換樹脂(Dowex AG50W-X8、および-X4、Na型、50~100メッシュ)を用いたバッチ法により分配係数を求めた。すなわち、イオン強度を海水と等しい $\mu=0.67$ に調整した過塩素酸ナトリウム水溶液に硫酸イオン、塩素イオン、あるいは各アミノ酸を別々に加え、 $^{60}\text{Co}^{2+}$ を添加して恒温で振とうし、無機イオンの場合は24時間、アミノ酸の場合は一週間を経過したのち、樹脂とふりまぜ、 ^{60}Co の水相-樹脂間の分配係数を常法により算定した。この分配係数から Co^{2+} イオンと各々の配位子との安定度定数を求める計算法はLoman¹⁾およびSchubert²⁾の方法によった。一方、ヨウ素の実験に用いたトレーサーの ^{125}I はNaIの形で購入し、その一部を臭素で酸化して IO_3^- イオンの形にして海水に添加した。 $^{125}\text{I}^-$ または $^{125}\text{IO}_3^-$ の形でスパイクした海水は、生物飼育実験中それぞれ適時交換し、生物活動による酸化還元反応によって水槽中でヨウ素の形が変化するのを防いだ。

海産生物として魚ではドロメ(*Chasmichthys gulosus*)を、海藻ではヒジキ(*Hizikia fusiforme*)、ネジモク(*Sargassum sagaminum*)ツノマタ(*Chodruss ocellatus*)を用い、水温17℃に調節した水槽内で通気、海藻の場合は照明を施し飼育した。放射能の取り込み、あるいは清浄

海水中に移したのちの排出状況は生物体全身放射能の経時的な測定によって観察した。

(結果)

硫酸イオンおよび塩素イオンとCo(II)について得られた安定度定数を文献値と共にTable Iに示した。文献値はイオン強度が海水の値から大きく離れていたり、あるいは強酸性水溶液中で求められている点などから、海水中の化学種を同定する目的に用いるのは不適當と思われる。本実験により得られた安定度定数と、2価のコバルトの加水分解定数の文献値とを用いて無機海水中の2価のコバルトの化学種の推定を行なった結果、2価のコバルトの化学平衡について主要無機イオンだけが関与するものと仮定す

れば、pH 8.0では、フリーの Co^{2+} イオンが63%、 CoCl^+ が約27%、そして CoSO_4^0 が8.6%の割合で存在すると推定された。すなわち、一般に無機イオンの反応速度が早いことからみて放出直後の海水中では遊離の Co^{3+} イオンの形が存在形態の半分以上を占めることがわかる。

Table IIに無機配位子の場合と同様に陽イオン交換法で得たCo(II)と各種アミノ酸との安定度定数を示す。これらの安定度定数を用い、各アミノ酸の海水中の濃度を 10^{-7} 、 10^{-8} 、および 10^{-9} mol/lと仮定して、化学平衡に達した状態での各錯体の存在割合を計算によって推定した。結果はTable IIIに示した通りで、海水中のアミノ酸の錯形成能力

Table I Stability constants of Co(II) complexes.

Ligand	Ionic strength	Medium	Stability constants			Reference
			β_1	β_2	β_3	
OH^-	1.0	KCl	1.413×10^4	—	—	GIASSON and TEWARI (1978)
SO_4^{2-}	0.67	NaClO_4	12 ± 0.27	91.5 ± 11.4	$1,110 \pm 250$	This work
	0	—	2.29×10^2	—	—	SILLEN and MARTELL (1964)
Cl^-	2.72	NaClO_4	7.94×10^2	—	—	SILLEN and MARTELL (1964)
	0.67	NaClO_4	0.79×0.055	—	—	This work
	0.69	HClO_4	4.9	—	—	SILLEN and MARTELL (1964)
	1.5	NaClO_4	0.50	—	—	SILLEN and MARTELL (1964)

Table II Stability constants of $^{60}\text{Co(II)}$ with amino acids ($\mu=0.67$).

Complex	$\log \beta_1$	$\log \beta_2$	$\log \beta_3$
Co-phenylalanine	4.4	8.2	11.7
Co-histidine	7.4	—	—
Co-valine	4.3	8.5	—
Co-proline	4.1	—	—
Co-tyrosine	7.2	—	—

Table III Abundance ratio (%) of $^{60}\text{Co(II)}$ complexes in seawater estimated from experimentally obtained stability constants.

Species	Molal concentrations of amino acids used in the calculation		
	10^{-7} mol l $^{-1}$	10^{-8} mol l $^{-1}$	10^{-9} mol l $^{-1}$
Co-phenylalanine	3.0×10^{-2} %	4.1×10^{-3} %	4.3×10^{-4} %
Co-histidine	31	4.3	0.45
Co-proline	9.1×10^{-4}	1.3×10^{-4}	1.3×10^{-5}
Co-valine	9.1×10^{-2}	1.3×10^{-2}	9.7×10^{-3}
Co-tyrosine	0.67	9.3×10^{-2}	9.7×10^{-3}
Co-inorganic complexes	25.2	35.1	36.5
Free Co^{2+} ion	43.4	60.5	63.0

がそれほど大きくないため、Coの存在形態としては、遊離の Co^{2+} イオンや無機錯体の割合の方が多くなることがわかる。

Fig.1にドロメ (*Chasmichthys gulosus*) による放射性ヨウ素の取り込みおよび排出の状況を示した。 $^{125}\text{I}^-$ イオンの形でラベルした海水中では、 ^{125}I の取り込みが早く、また濃縮係数として約10という値が観察された。 $^{125}\text{IO}_3^-$ の形でラベルした海水からの取り込みは低く、濃縮係数は1前後に留った。清浄海水中に移した汚染ドロメからの ^{125}I の排出を観察した結果、 $^{125}\text{I}^-$ の場合には約15日の生物学的半減期で排出されるのに対し、 $^{125}\text{IO}_3^-$ の方は、短時間の内に大部分の ^{125}I が排出され残留した ^{125}I の排出はほとんどみとめられなかった。これは IO_3^- イオンの形のヨウ素がドロメにとって可給性をもたないことを示すものと推定される。

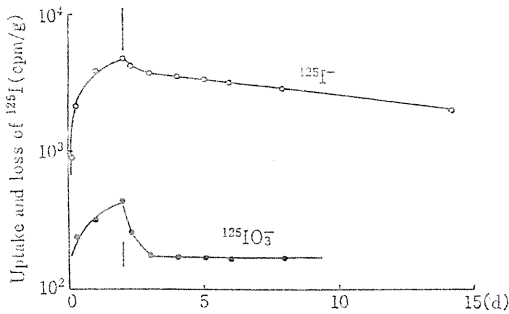


Fig. 1. Uptake and loss of radioactive iodine by *Chasmichthys gulosus* in seawater.

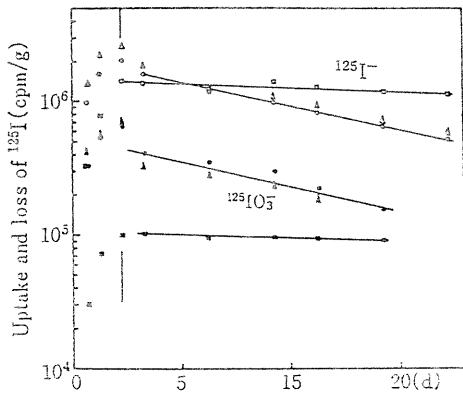


Fig. 2. Uptake and loss of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ by seaweeds in seawater. (Δ , \triangle Hijiki, \circ , \bullet Nejimoku, \square , \blacksquare Tsunomata)

同様の実験を3種の高藻、ヒジキ、ネジモク、ツノマタについて行なった結果をFig2に示した。 I^- , IO_3^- 両化学形の ^{125}I の取り込み、排出のパターンは、褐藻に属すヒジキ、ネジモクと、紅藻の一種ツノマタとの間で大きな差を示した。すなわち、褐藻では両化学形のヨウ素の取り込みの差がほぼ1桁であるのに対し、紅藻では1桁以上の差を示し、また生物学的半減期が紅藻ではいずれの形のヨウ素でも非常に長く、排出が遅いことがわかった。

(参考文献)

- 1) Loman, H. and E. van Dalen
J. Inorg Nucl. Chem., **28**, 2037, 1960.
- 2) Schubert, J.
J. Phys. & Colloid. Chem. **52**, No. 2, 340, 1948.
- 3) Sillen, L. G. and Martell, A.E.
Stability Constants of Metal Ion Complexes.
The Chemical Society, London Spec. Publ., **17**, p. 754, 1964.
- 4) Giasson, G. and Tewari, P.H.
Canad. J. Chem. **56**, 435, 1978.

(研究発表)

1. Hirano, S. and Koyanagi, T.
A Study on the Chemical Forms of Radionuclides in Seawater-II. Chloride and Sulfate Complexes of ^{60}Co .
J. Oceanogr. Soc. Jpn., **36**, No. 1, 35-38, 1980.
2. Hirano, S. and Koyanagi, T.
A Study on the Chemical Forms of Radionuclides in Seawater-III. Complexes of Co with Amino Acids.
ibid, **37**, No. 3, 145-147, 1981.
3. Hirano, S., Matsuba, M. and Koyanagi, T.
A. New Method for the Determination of Iodide Ion in Seawater.
Radioisotopes, **32**, 125-126, 1983.

4. Hirano, S., Ishii, T., Nakamura, R., Matsuba, M. and Koyanagi, T.
Chemical Forms of Radioactive Iodine in Seawater and Its Effects upon Marine Organisms.
ibid., **32**, 319-322, 1983.
5. Hirano, S., Matsuba, M. and Koyanagi, T.
Influences of Stable Iodine upon the Concentration of Radioactive Iodine by Marine Organisms.
ibid. **32**, 353-358, 1983.

1 A-11 北太平洋深層水中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 分布

海洋放射生態学研究部 長屋 裕, 中村 清

^{90}Sr and ^{137}Cs Contents in North Pacific Deep Waters

Division of Marine Radioecology

Yutaka NAGAYA and Kiyoshi NAKAMURA

放射性廃棄物の深海投棄に関連して、深海における人工放射性核種の挙動、特に海水懸濁物と結びついている海底への堆積および海水中への回帰についての検討が極めて重視されている。そこで日本近海を含む北太平洋で、放射性降下物に由来する ^{90}Sr 、 ^{137}Cs などの深層における分布・移動等を検討して深層中での人工放射性物質の挙動について知見を集めた。

(方法)

東京大学海洋研究所の研究船「白鳳丸」の共同利用航海において、1976~1979年に北太平洋西部で(第1図)、また1980~1982年に北太平洋中部で(第2図)表層から海底直上までの各層の海水を採取して分析した。北太平洋西部についてのデータは、便宜上フィリピン海盆、北西太平洋海盆西部、四国海盆北部、日本海北部および南部の5海域に分けて整理し、北太平洋中部については各測点毎に検討した。

(結果)

^{90}Sr および ^{137}Cs の鉛直分布の例を第3図および第4図に示す。これら核種の鉛直分布は上下2層の構造を示し、上層での濃度勾配は下層でのそれよりはるかに大であって、溶存する放射性核種の鉛直移動がおそいことを示している。一方、下層中に放射性核種が普遍的に存在することは、下層での鉛直混合速度が異常に高いためとは考えにくいので、粒子状物質と結びついた放射性核種が急速に沈降しつつ分離したためと考えるのが妥当であろう。この推論は第4図の例のように、地域によっては下層中での濃度が海底に近づくにつれて増加する場合もあることによっても支持される。このような海底附近で

の濃度増加は、高濃度水塊の沈降・水平移動によるものでない限り、沈降粒子の深海での分解又は海底堆積物からの再放出によると考えられるからである。

海洋中に存在する放射性核種の全量(Inventory)を放射性降下物による供給推定量(Input)と比較した結果を第1表および第2表に示す。北太平洋西部での海水中全量と放射性降下物量の比は、局地的な変動はあるものの、平均値が ^{90}Sr で1.2、 ^{137}Cs で1.1であって、放射性降下物量と海水中全量はほぼ一致している。これに反し、北太平洋中部では、この比は ^{90}Sr で1.9、 ^{137}Cs で1.6であって明らかに海水中全量の方が多い。この過剰な ^{90}Sr および ^{137}Cs は、中部太平洋における大規模な核実験による、いわゆる局地的降下物(Local Fallout)に由来するものであろうと考えられる。(研究発表)

(1) Nagaya, Y. and Nakamura, K.
Artificial Radionuclides in the Western Northwest Pacific (I) ^{90}Sr and ^{137}Cs in the Deep Waters. *J. Oceanogr. Soc. Jpn*, 27, 135-144, 1981.

(2) Nagaya, Y. and Nakamura, K.
Some Fallout Radionuclides in Pacific Deep Waters. The 1st Symposium on Integrated Global Ocean Monitoring, Oct. 1983, Tallinn, USSR.

(3) Nagaya, Y. and Nakamura, K.
Artificial Radionuclides in the Western Northwest Pacific (II)

^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the
Central North Pacific. (in pre-
paration)

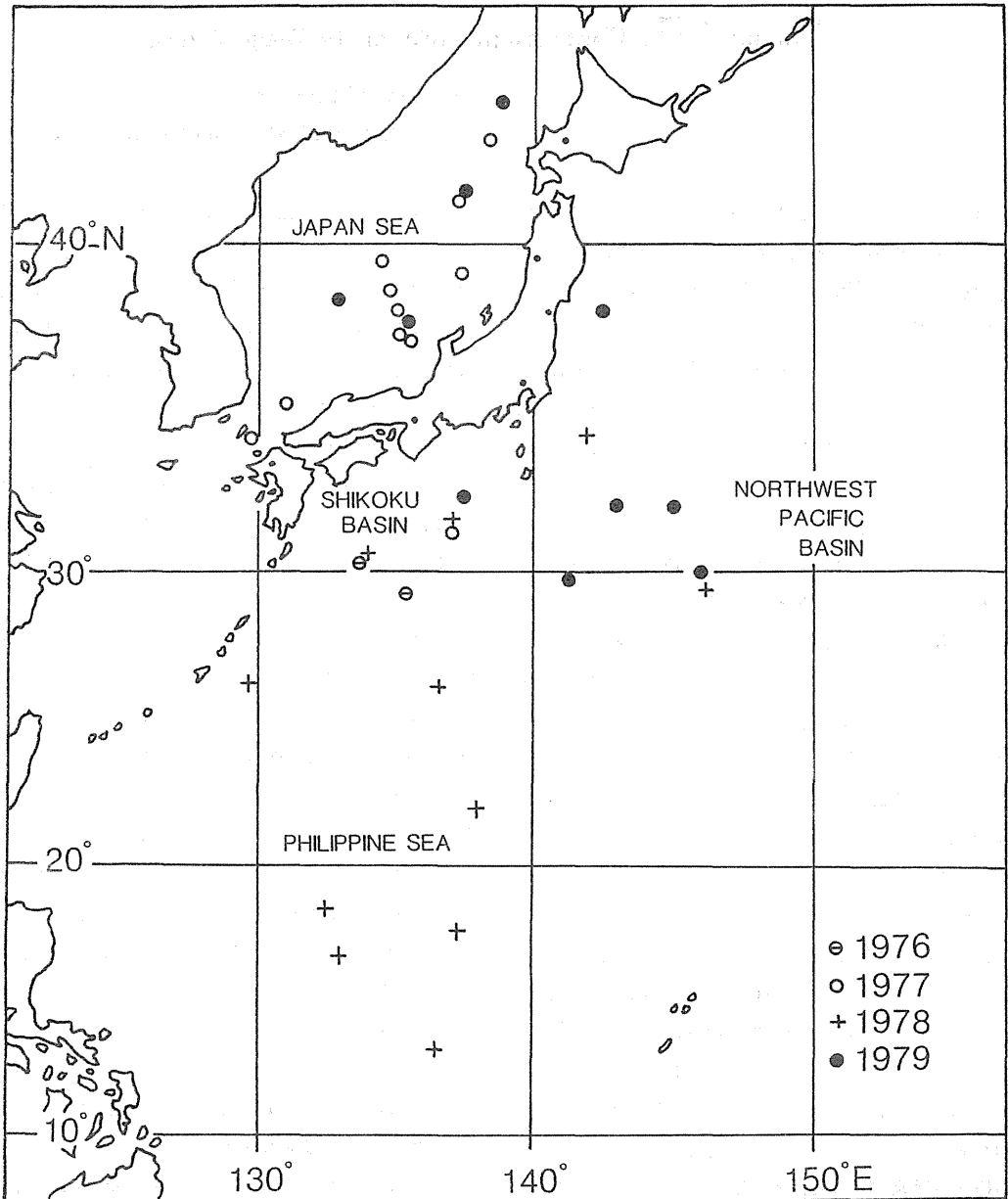


Fig. 1 Sampling stations on the western North Pacific.

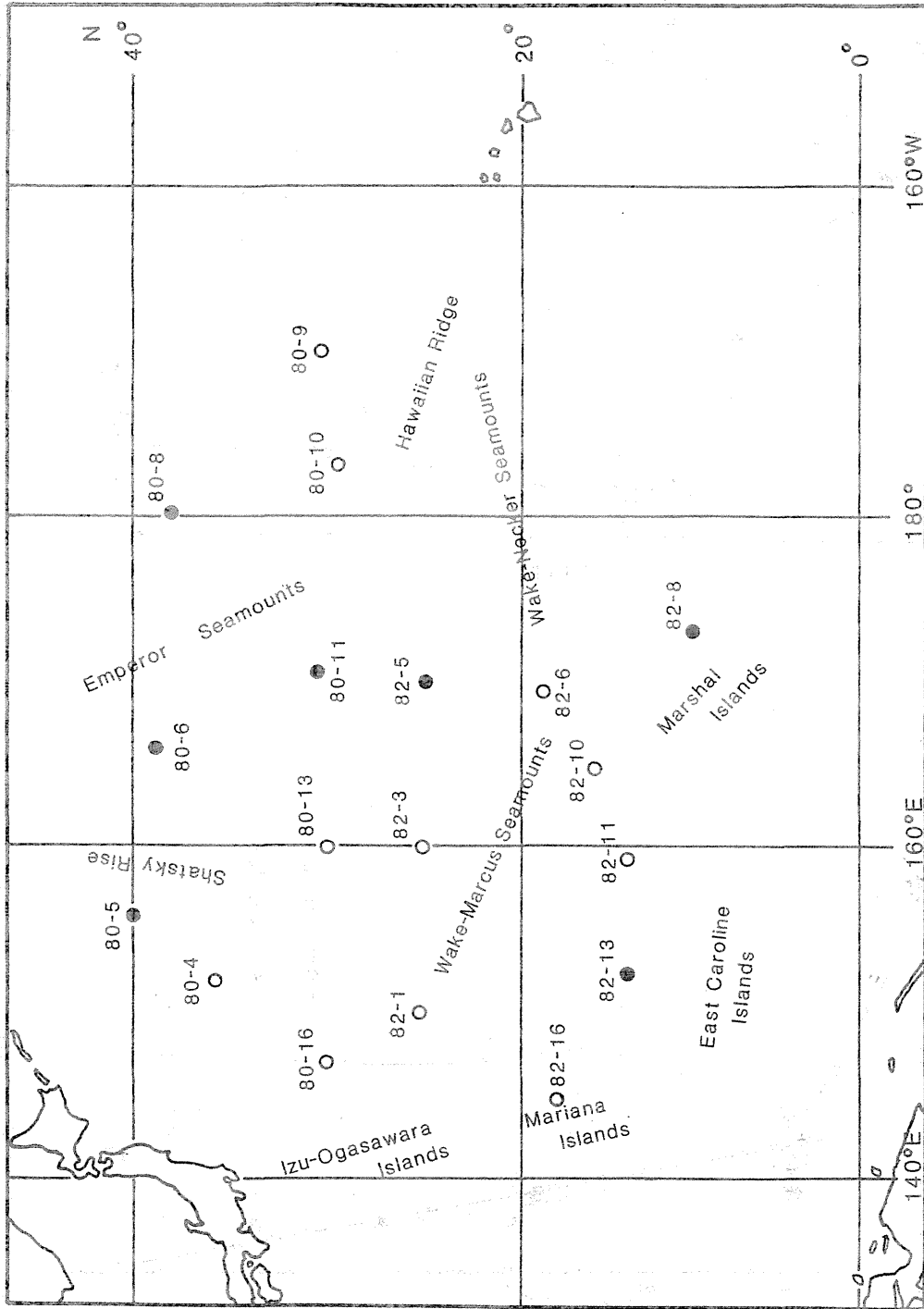


Fig. 2 Sampling stations on the central North Pacific.

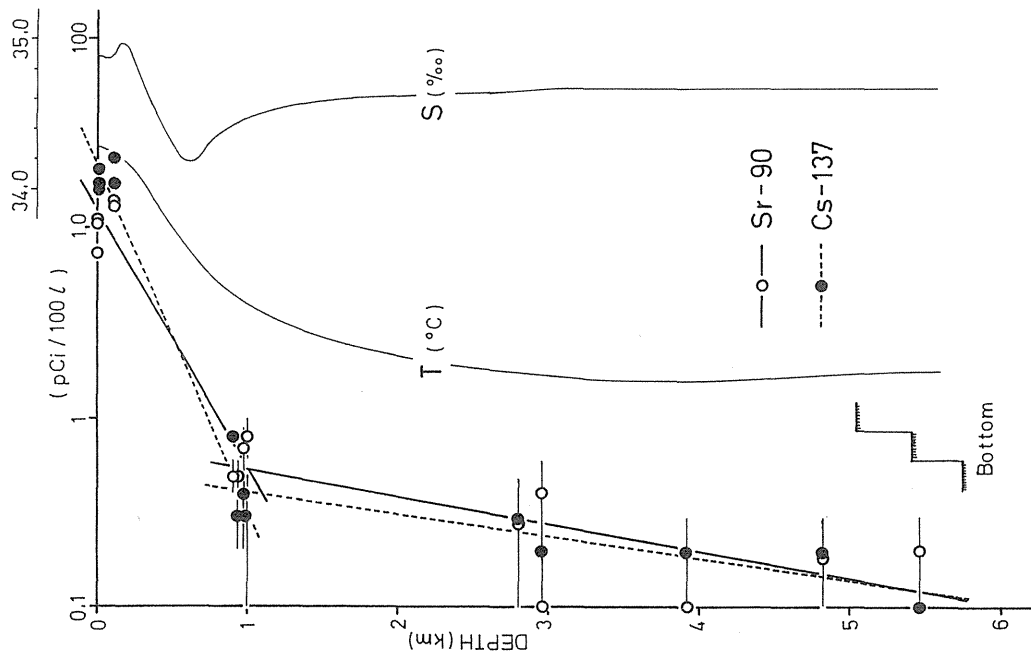


Fig. 3 Vertical Profiles of ^{90}Sr and ^{137}Cs on the Philippine Basin.

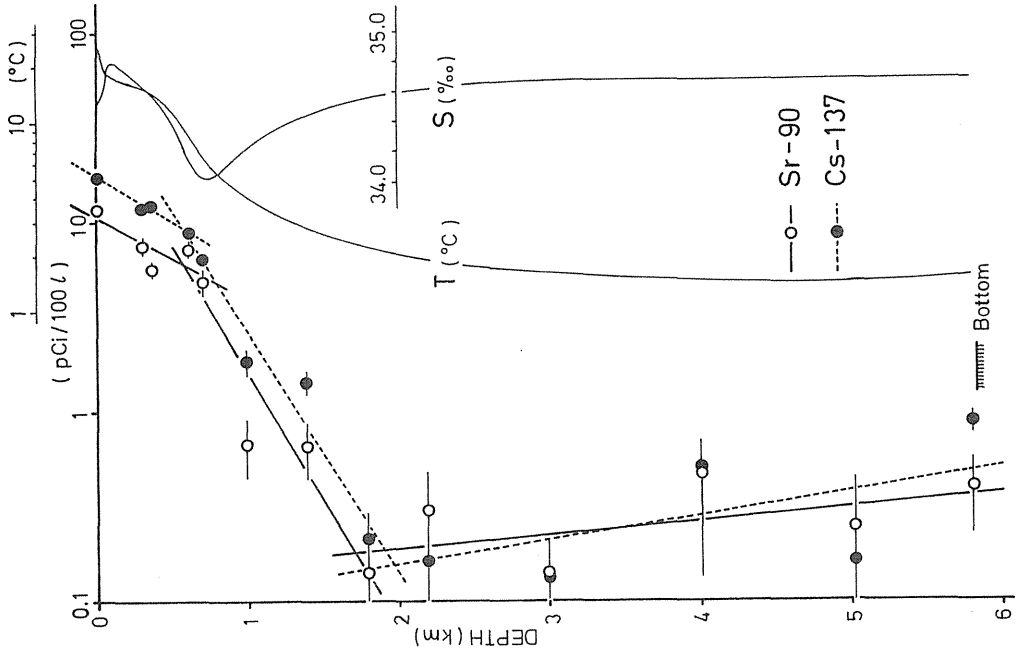


Fig. 4 Vertical profiles of ^{90}Sr and ^{137}Cs on the western Northwest Basin.

Table 1 Comparisons of radionuclide inventories and fallout inputs in the water column in the western Northwest Pacific (mCi/km^2).

	Philippine Basin	Western Northwest Pacific Basin	Northern Shikoku Basin	Northern Japan Sea	Southern Japan Sea
Latitude	13°N-26°N	30°N	31°N-32°N	41°N-44°N	37°N-38°N
No. of Stations	3	1	3	3	4
Mean Depth (m)	5,340	5,843	4,105	3,523	2,933
Upper Part	38	63	30	76	80
Deeper Part	12	12	9	2	3
Total	50	75	39	78	83
Upper Part	51	101	43	117	101
Deeper Part	10	11	22	7	6
Total	61	112	65	124	107
Fallout Input	37	53	53	73	57
Inventory	59	84	84	116	90
Input	1.4	1.4	0.7	1.1	1.5
Input	1.0	1.3	0.8	1.1	1.2

Table 2 Comparisons of radionuclide inventories and fallout inputs in the water column in the central North Pacific (mCi/km²).

Station No.	80-5	80-6	80-8	80-11	82-5	82-8	82-13
Latitude	40°02'N	39°03'N	38°03'N	30°34'N	25°02'N	12°46'N	11°59'N
Longitude	156°02'E	166°00'E	179°43'W	170°40'E	169°59'E	173°18'E	152°28'E
	8J	92	120	123	89	55	62
¹³⁷ Cs	80	80	80	60	51	34	34
Inv./Input	1.0	1.2	1.5	2.1	1.8	1.6	1.8
	79	72	88	84	63	38	53
⁹⁰ Sr	49	49	49	37	32	21	21
Inv./Input	1.6	1.5	1.8	2.3	2.0	1.8	2.5
¹³⁷ Cs / ⁹⁰ Sr	1.03	1.21	1.36	1.46	1.41	1.45	1.17
Inventory							

1 A-12 海水中におけるプルトニウムの挙動

海洋放射生態学研究所 長屋 裕, 中村 清

Behavior of Plutonium in Some Marine Environments

Division of Marine Radioecology

Yutaka NAGAYA and
Kiyoshi NAKAMURA

放射性廃棄物あるいは放射性降下物に含まれる人工放射性核種の中で、超ウラン元素、特にプルトニウムは、天然の同位体が存在しないこともあって、海洋中での挙動が、他の人工放射性核種とかなり異なると考えられている。またその半減期が比較的長く (^{238}Pu 87.7年, ^{239}Pu 24100年, ^{240}Pu 6570年など)、核燃料物質であることもあって、その海洋中での分布には興味を持たれている。吾々も日本近海を含む北太平洋で海水および海底堆積物中の $^{239,240}\text{Pu}$ の分布を調べた。

(方法)

東京大学海洋研究所の白鳳丸、淡青丸の共同利用航海で、海水は大量採水器 (250ℓ2連型)、海底堆積物は口径20cm又は12cmの柱状採泥器で採集し、分析した。また対比のために、海岸の波砕帯で採取した砂質堆積物の分析結果も検討した。

(結果)

第1図に北太平洋中部での $^{239,240}\text{Pu}$ の鉛直分布を示す。第2図に示す ^{90}Sr や ^{137}Cs と異なり、 $^{239,240}\text{Pu}$ は表面から深度の増加にもなって濃度が増加し、中層において最大値を示す。その後 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は深度の増加にもなって低下するが、深層での濃度はほぼ一定である。ただし海域によっては海底へ向かって濃度が増加する傾向を示すことがある。このような $^{239,240}\text{Pu}$ の鉛直分布は、 $^{239,240}\text{Pu}$ が海洋表面からは急速に除去されるが、中層に滞留すること、また深層への移動は、多分子状となったものが急速に沈降しつつ分解・分離することによってなされたことを示す。海底附近でのプルトニウム濃度の増加も、沈降粒子の深海での分解や、海底へ堆積したプルトニウムの回滞を示唆するものであ

る。

プルトニウムの海底への蓄積を吟味するために海底堆積物を分析した結果を第3図～第5図に示す。

第3図は海岸の破砕帯附近の砂質堆積物の ^{137}Cs および $^{239,240}\text{Pu}$ の濃度分布を示す。表面から10～12cm下に放射性核種濃度のピークが見られる。 $^{239,240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 比は0.03前後で放射性降下物のそれとほぼ同じである。陸上の場合これら放射性核種は表面から5cm以内にその70%内外が存在するとされているが、海底堆積物ではより深くまで $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{137}Cs が浸透している。第4図は東京湾 (多摩川河口沖6km, 水深24m) の堆積物の分析結果である。表面下20～30cmに濃度のピークがあり、 ^{137}Cs で307 pCi/kg-dry, $^{239,240}\text{Pu}$ では166 pCi/kg-dryの値を示す。砂質の堆積物に比べると $^{239,240}\text{Pu}$ は100倍内外の濃度を示し (^{137}Cs では約6倍)、微細な海水中粒子によるこれら核種の海水中からの急速な除去と堆積を示している。 $^{239,240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 比は0.5内外であって放射性降下物の10倍以上、またこの地点での海水の値 (約0.001) の500倍程度の高い値を示し、プルトニウムは ^{137}Cs よりも海水から除かれ易いことを示している。

第5図は北太平洋中部 (30°N, 170°W, 水深5,390cm) での堆積物についての結果である。表面下6～9cmに濃度のピークがある。 $^{239,240}\text{Pu}$ は表面下20cmにまで達して、これは深海における堆積速度からは説明不可能であって、堆積後の ^{137}Cs と $^{239,240}\text{Pu}$ が、かなりの速度で堆積物中を移動することを示している。深海堆積物中の $^{239,240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 比は、放射性降下物の場合より高

いが、沿岸堆積物よりは低い値である。海水中に入ったプルトニウムは ^{137}Cs よりも迅速に海洋表面から除去されるが、外洋の場合は深海底に達する割合は少なく、深層海水中に留まっている部分が多いと考えられる。

(研究発表)

- (1) Nagaya, Y. and Nakamura, K.
Some Fallout Radionuclides in
Pacific Deep Waters.
The 1st Symposium on Integrated
Global Ocean Monitoring, Oct.
1983, Tallinn, USSR.

- (2) Nagaya, Y. and Nakamura, K.
Artificial Radionuclides in the
Western Northwest Pacific (II)
 ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the Cen-
tral North Pacific. (in prepara-
tion)
- (3) Nakamura, K. and Nagaya, Y.
 $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in the Marine
Sediments of the North Pacific
and Adjacent Seas of Japan.
(in preparation)

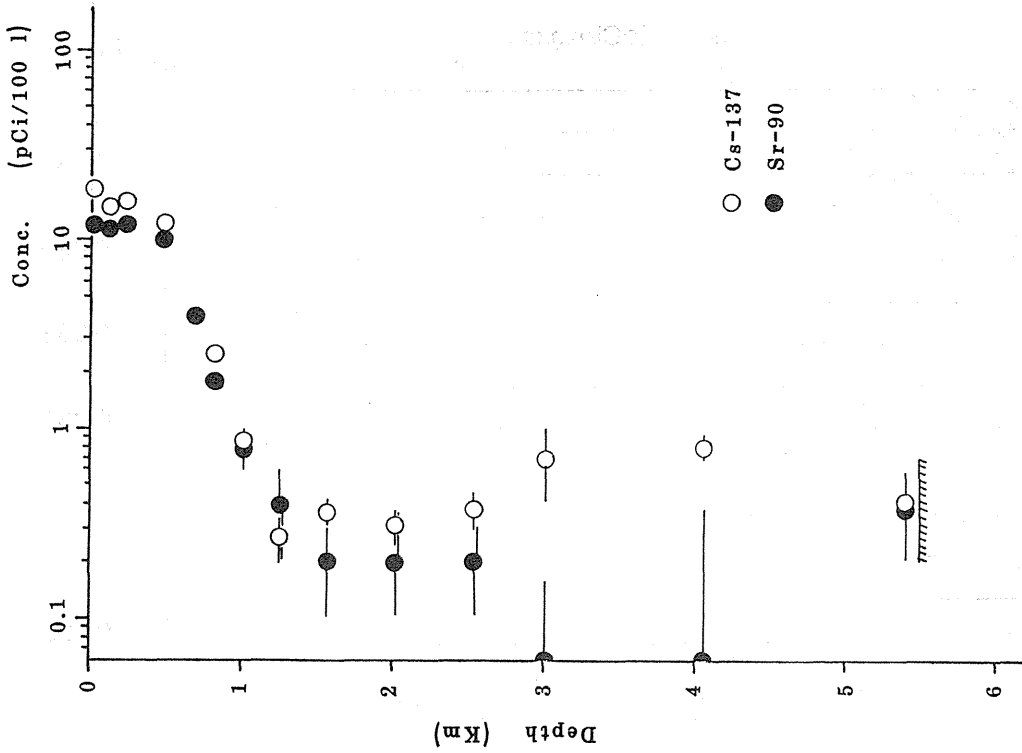


Fig. 2 Vertical profiles of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the contents central North Pacific (Stn. 80-11).

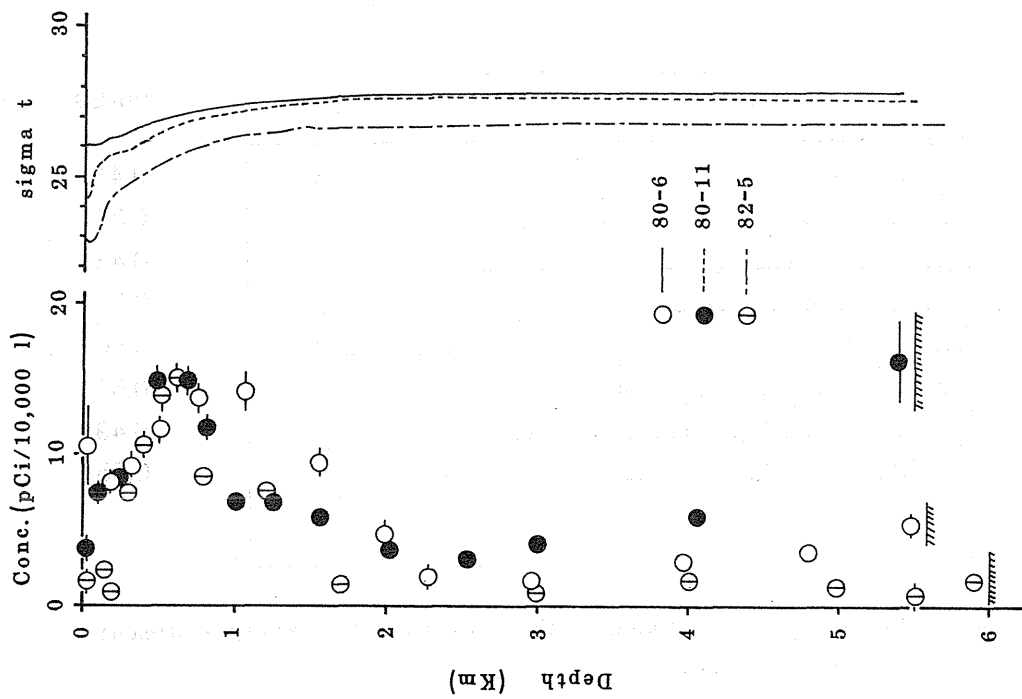


Fig. 1 Vertical profiles of $^{239,240}\text{Pu}$ contents in the central North Pacific waters.

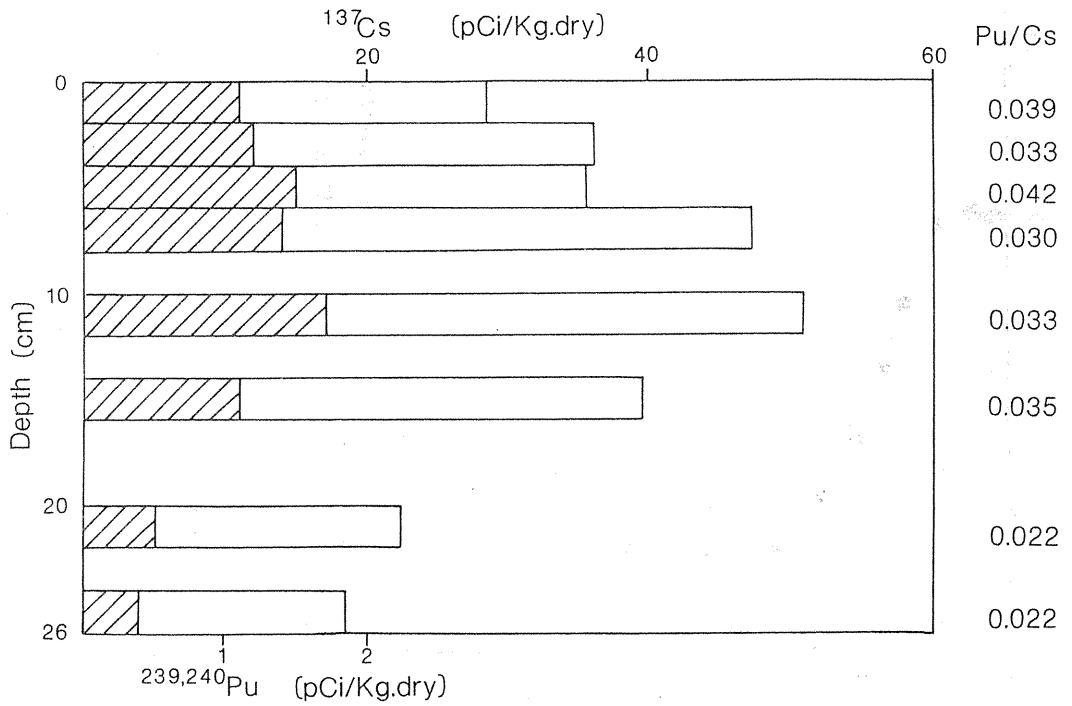


Fig. 3 Profiles of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs contents in a marine sediment core from a sandy beach.

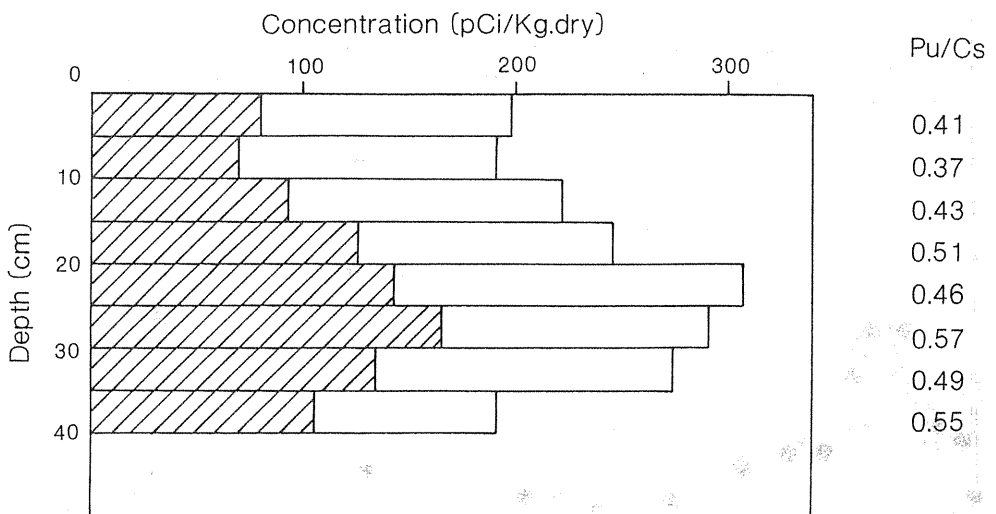


Fig. 4 Profiles of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs contents in a silty sediment core from Tokyo Bay.

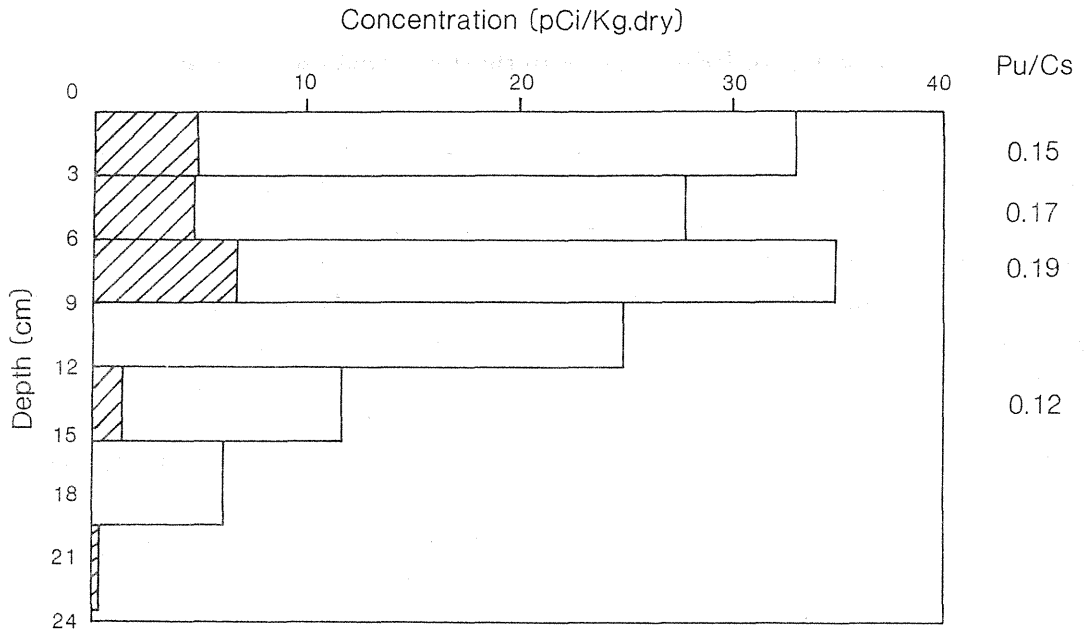


Fig. 5 Profiles of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs contents in a sediment core from the central North Pacific.

1 B 陸圏における放射性物質の挙動 (概要)

Behavior of Radionuclides in the Terrestrial Environment

原子力施設等から陸圏環境に放出あるいは漏出される放射性物質が人体にいたるまでの環境中の一連の挙動を総合的に把握するための一環として、陸サブグループでは、放射性物質による土壤汚染を想定し、放射性物質の土壤から植物への移行、土壤中における放射性物質の移動に着目し、「1. 土壌水中における放射性物質の挙動に関する調査研究」、「2. 土壌から植物への放射性物質の移行に関する調査研究」の2課題を設定し、調査研究を進めてきた。

さらに、陸圏における放射性物質の移動は、水の移動に影響されるところが大きいので、本調査研究のまとめに必要なパラメータの選定と数理解モデルの設定に関して、この分野での専門家を外来研究員として招き、協力を得た。

放射性物質の土壤中における挙動を把握するために、放射性ヨウ素の化学形と土壤の種類による収着と流出の様相の相異に焦点を絞り、 I^- と IO_3^- に着目し、標準的砂質と原子力施設等周辺から採取した数種の土壤について、 3H をトレーサーとして水の移動と比較的に室内実験規模で検討し、そのメカニズムの解明に努め、 I^- については、(1)一部は収着し、容易に移動しないが、残りは水とほぼ同じ速度で移動する。(2)収着される割合は土壤の種類や流入液中の I^- 濃度により異なる。(3)流出成分に関しては土壤カラム内で化学形の変化を生じていない。一方、 IO_3^- の場合には、土壤中での移動速度は水よりも

2~10倍遅く、その速度は土壤の種類により異なる。等の様相を明らかにした。

また、今までに行なったフィールドでのボーリング調査によって得られた ^{90}Sr の土壤中深度分布の様相について、種々の水文気象学および土壤・地質学的パラメータを加味して、 ^{90}Sr の土中浸透に関する数理解モデルを設定し、電算機によって試行した結果、実測データと解析データはよく一致しており、本モデルは土壤中放射性核種の深度分布状態の予測にも役立つことが確められた。

放射性物質の土壤から植物への移行に関しては、土壤中無機元素の植物に吸収され得る形態としての可給態の存在状態について、特に、土壤肥料、植物栄養の学問分野で重要視されている Zn に焦点を絞って調査研究を進めた。 ^{65}Zn 混入土壤について、数種の抽出剤を用いて経日的に ^{65}Zn を抽出し、この実験結果を基にして、迅速交換プール、交換プール、難交換プールを想定したコンパートメントモデルを設定し、各プールに存在する量と、これからの関連プールへの移動の様相を表す移動速度定数等を求める数理解析を行なった。田無火山灰土壤を対照試料とし、原子力施設等周辺の那珂川土壤に、本モデルによる実験と解析を試み、各プールに存在する Zn 量の範囲および各プール間の Zn の移動速度定数の範囲等を明らかにした。

1 B—1 表土から地下水系への水および放射性物質の移動

環境放射生態学研究部 内田滋夫, 渡部輝久, 鎌田 博
農林水産省農業土木試験場 木村重彦 (外来研究員)
京都大学工学部 森澤眞輔 (外来研究員)

Movement of Water and Radionuclides from Surface to Aquifer

Division of Radioecology

Shigeo UCHIDA, Teruhisa WATABE,
Hiroshi KAMADA,
Shigehiko KIMURA* and
Shunsuke MORISAWA**

1. 緒言

地表面に流出した放射性物質 (以下, R I と記す) の地下水層への移動, すなわち通気層中における R I の移動に関してはまだ不明確な部分が多い。特に, 野外の実通気層中での R I の移動については, 野外調査例そのものが極めて少ないため, 野外データに基いた R I の移動を予測評価する研究はあまり見られない。

本研究は, 水の通気層中の垂直浸透を実証的に調査研究し, さらにその研究成果を駆使し, R I の通気層内移動を記述する現段階で可能なレベルの数字モデルを構成し, 野外の実測データと比較することにより, そのモデルの妥当性を検討しようとするものである。

研究対象とする R I は, 土壌中での移動が比較的速く, また野外実測データも他の R I に比べよく整っている ^{90}Sr とした。

2. 通気層中における水の垂直移動

2-1 研究方法

土壌中における R I の輸送媒体は水である。したがって, 土壌中における R I の移動を解析する場合, まず水の移動を把握する必要がある。放医研・東海施設に 3 本の試掘井を設け, この地域における水の垂直浸透を研究するため, 2 年間にわたる野外調査

を行った。調査は, 雨量計および自記水位計による降雨量および地下水位の観測, ボーリング調査や電気および ^{60}Co による地層調査, ^{252}Cf 中性子水分計による経月的な通気層水分分布パターンの観測, さらに降水, 地下水および通気層中の ^3H 濃度測定等を行った。

2-2 研究結果および考察

上記の調査結果から, 通気層中における自然条件下での水の移動は, 速い部分, 遅い部分および停滞部分の 3 つに区分できると考えられる。第 1 の速い移動は土壌中の大孔隙を浸透するもので, その浸透速度は $0.4 \sim 5 \text{ m} / \text{日}$ と変動範囲が大きいが, これは浅層地下水の水平流動量に相関するものであり, 人為的な地下水の揚水が浸透速度に影響を及ぼすためである。この大孔隙は土層中において約 2.5 % と計算された。地表下 1 ~ 3 m 以下の土層中では容気率が数 % であり, ほとんど飽和状態に近い。この土層中での停滞水量は砂層の場合数 % 以下であり, 大部分は遅い移動の水である。この移動は分散が非常に少なく, その速度は約 $3 \text{ m} / \text{年}$ である。

3. 通気層中における放射性物質の移動

3-1 研究方法

前述したように, 土壌中における R I の移動を予測する場合, 水の移動を記述するモデルを得る必要

* Division of Water Management, National Research Inst. of Agricultural Engineering

** Dept. of Sanitary Engineering, Kyoto Univ.

がある。本研究では、現在までに得られた通気層中における土壌水移動に関する知見を基に、まず通気層中における土壌水移動モデルを構成し、さらにR Iの移動を予測するモデルを構成する。モデルの検証に関しては、東海施設内の調査地点で得られている³Hの通気層内分布データを土壌水移動モデルの検証に、また同一地点で得られている⁹⁰Srの通気層内分布データをR I移動モデルの検証に用いた。

モデルの時間および空間スケールに関しては、フォールアウトデータ、水文気象データ、地層地質データおよび通気層内R I分布データ等の各スケールを考慮して、時間スケール1ヶ月、空間スケール10数cm〜数10cm程度とした。

3-2 土壌水移動モデル

通気層中における土壌水移動は鉛直方向一次元であると仮定し、対象地層を地層柱状図を参照して、51個の水平層に区分し、さらに以下の仮定の下にモデルを構成した。

1) 土壌水分量(体積含水率[cm^3/cm^3])で表示)は、空気乾燥状態にある土壌の水分量 θ_{air} 以下には減少しない。

2) 土壌水分量は、重力排水が停止又は生起する限界水分量 θ_{fc} 以上には増加しない。

3) 地表面からの水分の蒸発および水分供給に伴う、地層の乾燥および湿潤は第1層から始まり、順次下層に到る。

仮定の1)および2)の模式図をFig. 1に示す。

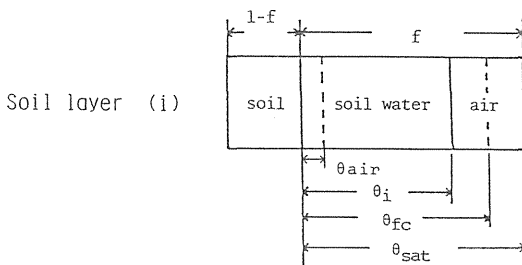


Fig. 1 Schematic illustration of i -th element stratun and soil moisture variation.

3-3 放射性物質移動モデル

第 i 層におけるR Iの物質収支式を、R Iの土壌と土壌水との間の反応式を連立させて数学モデルを構成する。用いる記号の意味については、末尾に記号一覧として示した。

第 i 層に存在するR I量 M_i は、

$$M_i = \theta_i C_i A_{zi} + (1-f_i) p_i S_i A_{zi} \quad (1)$$

で与えられる。また、第 i 層へ流入するR Iのフラックス(第 i 断面のR Iフラックス) F_i は

$$F_i = \begin{cases} q_i C_{i-1} - \left\{ \theta D(\partial C / \partial z) \right\}_i & q_i \geq 0 \\ q_i C_i - \left\{ \theta D(\partial C / \partial z) \right\}_i & q_i < 0 \end{cases} \quad (2)$$

で与えられ、第 i 層から流出するR Iのフラックス(第 $i+1$ 断面のR Iフラックス) F_{i+1} は

$$F_{i+1} = \begin{cases} q_{i+1} C_i - \left\{ \theta D(\partial C / \partial z) \right\}_{i+1} & q_{i+1} \geq 0 \\ q_{i+1} C_{i+1} - \left\{ \theta D(\partial C / \partial z) \right\}_{i+1} & q_{i+1} < 0 \end{cases} \quad (3)$$

で与えられる。したがって、R Iの第 i 層における物質収支式は

$$dM_i/dt = F_i - F_{i+1} - \lambda M_i \quad (4)$$

となる。また、第 i 層中における土壌中のR I濃度 S_i と土壌水中のR I濃度 C_i との間には常に、

$$S_i = k d_i \cdot C_i \quad (5)$$

なる関係が成立すると仮定した。

土壌水移動モデルおよび(4)、(5)式をCrank-Nicolson法により差分近似して数値モデルを得た。

4 気象およびフォールアウト・データについて

数値計算は³Hについては1964年〜1980年の204ヶ月について、⁹⁰Srについては1960年〜1980年の252ヶ月について実施した。この期間の気象データのうち、月降水量は水戸における値を気象庁年報から読みとって利用した。また、蒸発量については水戸において実測されていないので、他の気象データからPenman式を用いて推定した。フォールアウト・データのうち、⁹⁰Srについては同じ水戸における実測値(実測値がない1972年4月〜1972年12月の値は計算により推定)を、また³Hは東京における実測値(1980年4月〜1980年12月は筑波での実測値)を、それぞれ使用した。

5 計算結果および考察

東海施設内において1980年に実測した通気層内⁹⁰H濃度分布と、土壌水移動モデルを用いて推定した⁹⁰H濃度分布を比較検討した結果、採用した本モデルは、本研究の目的の範囲内で、実現象を記述するために使用しうるものと考えられる。ただし、通気層中の⁹⁰Hの分散現象を数値シミュレーションした結果、実測データに比べて分散が大きいたことが示された。モデルに組み込んだ分散効果の他に、モデルを離散化して数値的に解くことに伴って生じる数値（擬似）拡散の効果が発生していることも考えられるので、数値拡散を処理した数値モデルについて今後検討する必要がある。

Fig. 2は、東海施設内において、1980年に実測した通気層内⁹⁰Sr濃度分布（破線）と、本研究のR I移動モデルによる推定濃度分布（黒丸点）である。計算に採用した環境パラメータをTable 1に示す。推定濃度分布の数値計算に際しては、前述の諸仮定に加えて、次の仮定を採用した。

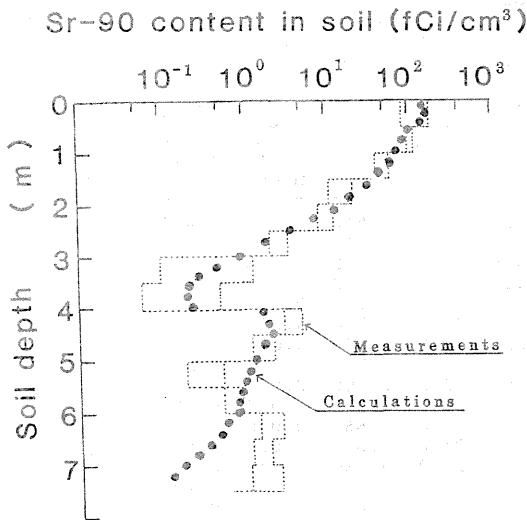


Fig. 2 Comparison of calculated ⁹⁰Sr profile with the observed, at Tokai site in 1980.

降下する⁹⁰Srの内98%は、Table 1に揚げる分配係数で土壌に吸着し、残り2%の⁹⁰Srはその1/10の分配係数で土壌に吸着する。

Fig. 2は、実測⁹⁰Sr濃度分布と推定濃度分布とが比較的良好に一致することから、多くの設定条件下ではあるが、本研究で採用したR I移動モデルが、通気層中での⁹⁰Srの移動を予測するのに使用しうることを示唆している。しかし、モデルの設定に際して用いた仮定の中で、いくつかは、十分検討する必要がある。特に、上記の降下する⁹⁰Srの2%は98%の⁹⁰Srの1/10の分配係数で土壌と反応するとの仮定については、フォールアウト中⁹⁰Srの物理化学的存在形態の観点からその妥当性を検討する必要がある。しかし、前述したように、土壌水の移動は3成分に区分できるが、一般にR Iの分配係数は水の移動速度が速い場合には小さくなる傾向がある。したがって、吸着特性の面から⁹⁰Srを2成分に区分するのでなく、土壌水の移動モデルを各成分ごとに構成し、さらに⁹⁰Srの土壌との反応を速度式で記述するという数学モデルについても検討する必要がある。

本研究の計算には、京都大学大型計算機センターのFACOM OSVI/F4および放医研那珂湊支所のNEC-MS-30を使用した。

〔記号一覧〕

- C : 土壌水分中の⁹⁰Sr濃度 (fCi/cm³)
- D : 分散係数 (cm²/month)
- F : ⁹⁰Srの通気層内フラックス (fCi/cm² month)
- f : 土層の空隙率 (cm³/cm³)
- i : 土層の深さを表わす添字 (z = i Δz)
- kd : ⁹⁰Srの土壌と土壌水との間の分配係数 (cm³/g)
- M : 土層要素内の⁹⁰Sr存在量 (fCi)
- q : 土層内の土壌水分フラックス (cm³/cm² month)
- S : 土壌中の⁹⁰Sr濃度分布 (fCi/g)
- t : 時間パラメータ (month)
- z : 空間パラメータ (cm)
- ρ : 土壌の真密度 (g/cm³)
- θ : 土壌水分量 (cm³/cm³)
- θ_{air} : 空気乾燥状態の土壌水分量 (cm³/cm³)
- θ_{fc} : 重力排水停止又は生起する限界土壌水分量 (cm³/cm³)
- Δt : 時間ステップ幅 (month)
- Δz : 空間ステップ幅 (cm)
- λ : ⁹⁰Srの崩壊定数 (1/month)

(研究発表)

1) 木村重彦

東海地区における地下水の挙動, 第12回「原子力施設と沿岸シンポジウム」東京, 1981, 11.

2) 鎌田 博, 内田滋夫, 木村重彦, 森澤眞輔

土壌通気層における水の移動と放射性核種の深

度分布, 日本原子力学会昭和58年秋の分科会, 札幌, 1983, 9.

3) 森澤眞輔, 井上頼輝, 鎌田 博, 内田滋夫
 フォールアウト Sr-90 の成層通気層内移動とその分布予測, 日本原子力学会誌, 25, 1020-1034, 1983.

Table 1 Environmental parameters and their numerical values allocated for each element stratum at Tokai site for estimating profile of fallout ⁹⁰Sr.

No.	Soil type	Depth	ΔZ	Dm	ρ	kd	f	θ _{air}	θ _{fc}
		[cm]	[cm]	[cm]	[g/cm ³]	[cm ³ /g]	[-]	[-]	[-]
1	sand	8.0	16.0	10.0	2.65	14.0	0.420	0.050	0.190
2		24.5	17.0	10.0	2.65	11.0	0.420	0.050	0.190
3		42.0	18.0	10.0	2.65	9.0	0.419	0.050	0.185
4		60.5	19.0	10.0	2.65	6.0	0.417	0.050	0.180
5		80.0	20.0	10.0	2.65	5.0	0.415	0.050	0.175
6		100.0	20.0	10.0	2.65	5.0	0.413	0.050	0.165
7		120.5	21.0	10.0	2.65	5.0	0.410	0.050	0.150
8		142.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.410	0.050	0.140
9		164.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.407	0.050	0.130
10		186.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.405	0.050	0.120
11	fine sand	208.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.405	0.050	0.125
12		230.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.400	0.050	0.125
13		252.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.400	0.050	0.130
14		274.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.400	0.050	0.145
15		296.0	22.0	10.0	2.65	5.0	0.395	0.050	0.165
16		317.5	21.0	10.0	2.65	5.0	0.393	0.050	0.180
17		338.0	20.0	10.0	2.65	5.0	0.390	0.050	0.200
18		358.0	20.0	10.0	2.65	5.0	0.385	0.050	0.225
19		377.5	19.0	10.0	2.65	5.0	0.380	0.050	0.260
20		396.0	18.0	10.0	2.65	5.0	0.400	0.050	0.280
21	humus	412.5	15.0	10.0	2.65	40.0	0.500	0.050	0.375
22		429.0	18.0	10.0	2.65	40.0	0.540	0.050	0.460
23		449.0	22.0	10.0	2.65	40.0	0.540	0.050	0.470
24		472.5	25.0	10.0	2.65	25.0	0.470	0.050	0.480
25	loam	496.5	23.0	10.0	2.65	30.0	0.670	0.050	0.480
26		519.0	22.0	10.0	2.65	30.0	0.710	0.050	0.490
27		540.0	20.0	10.0	2.65	30.0	0.730	0.050	0.510
28		560.0	20.0	10.0	2.65	30.0	0.740	0.050	0.530
29		580.0	20.0	10.0	2.65	30.0	0.730	0.050	0.540
30		600.0	20.0	10.0	2.65	30.0	0.720	0.050	0.550
31		620.0	20.0	10.0	2.65	30.0	0.700	0.050	0.550
32		640.0	20.0	10.0	2.65	30.0	0.670	0.050	0.550
33		660.0	20.0	10.0	2.65	30.0	0.660	0.050	0.550
34		680.0	20.0	10.0	2.65	25.0	0.600	0.050	0.550
35	gravelly loam	700.0	20.0	10.0	2.65	20.0	0.460	0.050	0.450
36		720.0	20.0	10.0	2.65	20.0	0.450	0.050	0.430
37		740.0	20.0	10.0	2.65	12.0	0.450	0.050	0.420
38		760.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.450	0.050	0.410
39	sand & gravel	780.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.450	0.050	0.395
40		800.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.440	0.050	0.390
41		820.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.440	0.050	0.375
42		840.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.430	0.050	0.365
43		860.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.420	0.050	0.360
44		880.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.415	0.050	0.360
45		900.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.410	0.050	0.360
46		920.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.400	0.050	0.360
47		940.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.380	0.050	0.360
48		960.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.370	0.050	0.360
49		980.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.365	0.050	0.365
50		1000.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.365	0.050	0.365
51	1020.0	20.0	10.0	2.65	2.0	0.365	0.050	0.365	

1 B-2 砂質土壌中におけるヨウ化物イオンおよびヨウ素酸イオンの移動

環境放射生態学研究部 内田滋夫, 鎌田 博

Movement of Iodide and Iodate through Sandy Soils

Division of Radioecology

Shigeo UCHIDA and Hiroshi KAMADA

1. 諸 論

原子力諸施設から放出される放射性核種の中で、放射性ヨウ素は甲状腺被曝が問題となる核種であるが、特に ^{129}I は半減期が 1.6×10^7 と非常に長いので、その影響評価のためには、環境中における長期的な蓄積と移行に関するデータを得る必要がある。放射性ヨウ素および安定ヨウ素の土壌中での挙動は、その化学形により異なることが知られている^{1), 2)}。しかし、この種の研究ではバッチ実験のみであり、土壌中で移動に関する研究は少ない。

本研究は、砂質土壌中におけるヨウ化物イオン（以下、 I^- と記す）およびヨウ素酸イオン（以下、 IO_3^- と記す）の移動をカラム実験により検討した。

2. 実験方法

茨城県下の放医研・東海施設前庭および放医研・那珂湊支所近傍より採取した砂質土壌（以下、それぞれ東海土壌および那珂湊土壌と記す）に加え、標準試料として豊浦標準砂を用いた。土壌試料の物理・化学的特性を Table 1 に示す。これらの土壌試料は実験室内で風乾した後、フルイで $980 \mu\text{m}$ 以

Table 1
The physical and chemical characteristics of soil samples.

Locality	Texture (%)						Humus* (%)	CEC**
	>2.0	2.0-0.84	0.84-0.42	0.42-0.25	0.25-0.105	0.105> (mm)		
Tokai (surface)	0.4	2.8	30.9	49.1	15.0	1.8	0.13	1.9
Nakaminato (about 5m depth)	8.7	9.5	13.5	38.1	29.1	1.1	0.03	3.33
Toyoura (standard sand)	-	-	-	12.5	87.1	0.4	0.03	1.22

*) Measured by Tyurin method.

**) Cation-exchange capacity (meq/100g of soil): measured by Schollenferger method.

上の砂や植物根を取り除きカラムに充填した。カラムは内径 2.0 cm 、長さ 22 cm のものを用い、土壌柱は 2.0 cm になるように充填した。

雨水や土壌溶液中には種々のイオンが共存するが、実験条件を単純化するため、本研究では $5 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$ の CaCl_2 溶液を模擬環境水として用いた。カラム流入原液に関しては、雨水中のヨウ素含量が数 ppb であることから、上記の CaCl_2 溶液に NaI 又は NaIO_3 を添加して、ヨウ素濃度を 1.0^{-8}

mol/l (約 1 ppb) に調整した溶液に無担体状の ^{125}I を添加したものを使用した。また、土壌水のトレーサーとしてトリチウム水（以下、 HTO と記す）を使用した。カラムに土壌を充填後、 CaCl_2 溶液 $1 \sim 2 \text{ l}$ を通水してコンディショニングを行い、充填時の濁りを取り除き、土壌の未飽和イオン吸着座を Ca^{2+} 又は Cl^- で飽和させた。

流入液の間隙内平均流速は $2.7 \times 10^{-2} \text{ cm/sec}$ である。

3. 実験結果および考察

3種類の砂質土壌を充填したそれぞれのカラムに NaI 溶液をカラムの全間隙水量 (V_0) の5倍量 (

$5V_0$) 流入後, CaCl_2 溶液を通水して得られた I^- の流出破過曲線 (以下, BTCと記す) を Fig. 1 に示す。縦軸は流出液中の ^{125}I 濃度 (C) を流入液

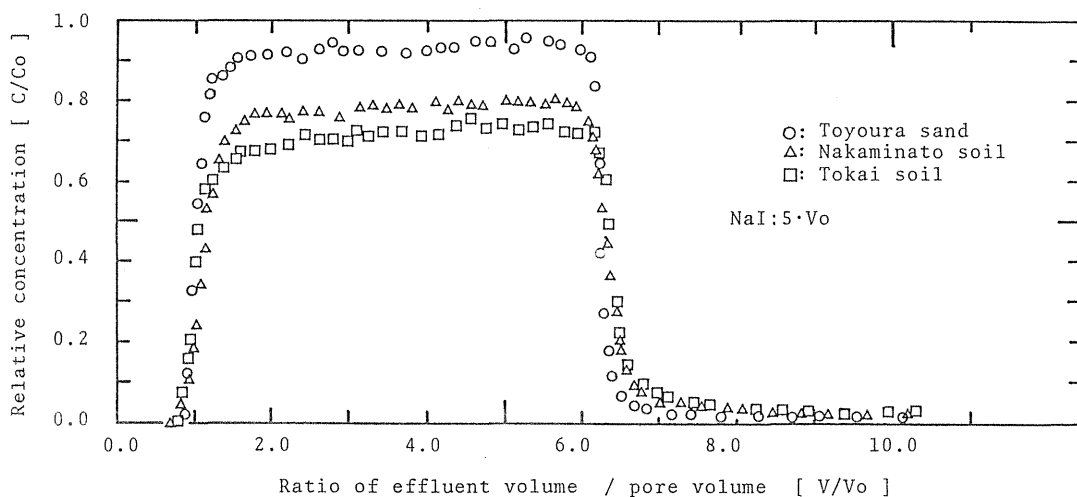


Fig. 1 The breakthrough curves of iodide (I^-) obtained by introducing 5 times pore volume ($5V_0$) of NaI solution and leaching with 5×10^{-4} mol/l CaCl_2 solution for Tokai, Nakaminato and Toyoura soils. The concentration of I^- is 10^{-8} mol/l, and column length is 20 cm

中の濃度 (C_0) で除した相対濃度であり, 横軸は流出量 (V) を V_0 で除した値である。Fig. 1において, 3種類の砂質土壌によるBTCの立ち上がり部および脱離部のパターンは, ほとんど同じである。どの土壌の場合でも, C/C_0 が1.0になる前に, すなわち流出液中の I^- 濃度が流入液中の I^- 濃度と等しくなる前にプラトー状となるが, プラトー部における C/C_0 値は土壌により異なる。本図には示していないが, HTOによる同様の実験では, 立ち上がり点およびそのコウ配は I^- のそれとほとんど同じであるが, 立ち上がり後すみやかに C/C_0 が1.0になる。脱離部でも HTOは I^- と同様, 急激に濃度が減少しているが, HTOはテイリングがほとんど認められないのに対して, I^- の場合は C/C_0 が0.05~0.02のレベルが続く。

流出液中のヨウ素の化学形は, どの土壌の場合でも90%以上が I^- であり, 少なくとも流出成分については, 土壌カラム内を通過する際に化学形の変化は生じないと考えられる。

この I^- のBTCにおいて, C/C_0 が1.0以下でプラトー状になる現象をくわしく検討するために, 東海土壌を充填したカラムに, NaI 溶液を $77V_0$ (1650ml) 流入後, CaCl_2 溶液を $84V_0$ (1800ml) 通水して, そのBTCを求めた。その結果を Fig. 2に示す。NaI 溶液の流入量を増加しても, プラトー部の C/C_0 値は約0.7でほぼ一定であった。また, 脱離部からテイリング部における C/C_0 値は $80 \sim 100 (V/V_0)$ までは0.1~0.05であるが, $100 \sim 160 (V/V_0)$ は0.02でほぼ一定であった。したがって, I^- に対する東海土壌の収着飽和量はかなり大きく, 約100gの東海土壌に 10^{-8} mol/lのNaI 溶液1650mlを流入しても, 飽和量に達しないこと, および土壌に収着した I^- は 5×10^{-4} mol/lの CaCl_2 溶液では容易に脱離されないが, 長期間テイリングが生じることから, 必ずしも不可逆的な収着反応ではなく, 徐々に脱離されることが明らかとなった。

Fig. 3は, 3種類の砂質土壌によるカラム内収

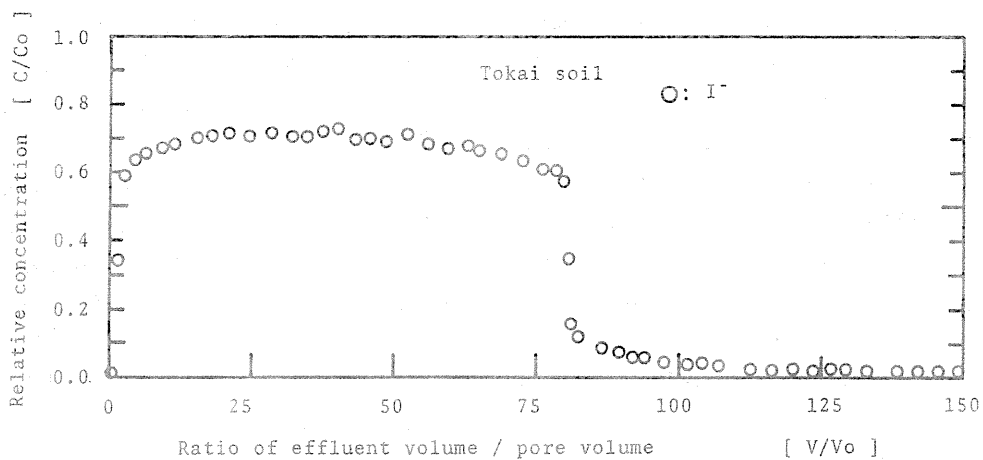


Fig. 2 The breakthrough curve of I⁻ obtained by introducing 77% of NaI solution and leaching with CaCl₂ solution for Tokai soil.

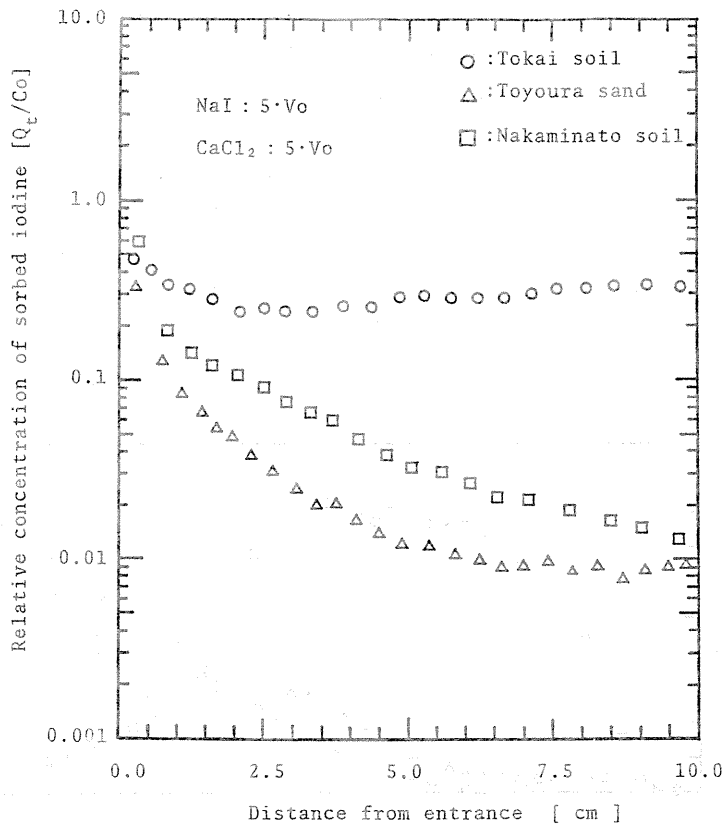


Fig. 3 The redistributions of I⁻ in Tokai, Nakaminato and Toyoura soil columns. Five times pore volume (5V₀) of 10⁻⁸ mol/l NaI solution was introduced into each column and successively leached with 5×10⁻⁴ mol/l CaCl₂ solution by 5V₀.

着分布の違いを検討したものである。NaI 溶液を 5 V₀ 流入後、CaCl₂ 溶液を同量通水してからカラムを解体し、収着分布を求めた。図の横軸は溶液の流入端からの土壌カラム長さであり、縦軸は土壌カラム内の単位容積当りに存在する全 I⁻ 量 (Q_t) を流入液中の I⁻ 濃度 (C₀) で除した値で、相対的な収着量を表わす。東海土壌の収着分布は他の 2 種類の土壌とは異なっており、流入端での収着量の増加は少し認められるが、ほぼ一定の収着分布を示している。那珂湊土壌および豊浦標準砂の収着分布は、流入端から流下方向に向かって収着量が減少している。特に、豊浦標準砂の場合は流入端から 0.5 cm までは収着量が急激に減少しているが、それ以降はほぼ一定となっている。このように、I⁻ の土壌カラム内での収着分布は、土壌の種類により異なっているが、どの土壌の場合でも、流入端付近における CaCl₂ 溶液による顕著な脱離現象は認められない。

これらの実験結果より、土壌カラムに流入した I⁻ の一部は土壌（主に流入端付近）に収着され、残りは土壌カラム内を水とほぼ同じ速度で移動することが明らかとなった。しかし、カラムに流入した I⁻ のうち、一部のみが土壌に収着される現象についてのメカニズムは明らかでない。収着分布が土壌により異なるのは、I⁻ の土壌への収着速度が土壌により異なるためと考えられる。すなわち、豊浦標準砂

は収着速度が速いため大部分が流入端で収着されるが、東海土壌は他の 2 種類の土壌よりも収着速度が遅いため、流入端からかなりカラム深部まで収着量が多くなっている。

流入液中ですべて陰イオンで存在するにもかかわらず、その一部のみが土壌に強く収着され、残りは水とほとんど同じ速度で土壌中を移動する I⁻ の移動予測に関しては、従来の理論とは異なった新しい理論を検討してゆく必要がある。井上ら³⁾は、I⁻ と同様の流出パターンを示す放射性核種の移動予測に関して、流出および収着成分の割合を実験的に求め、流出成分は水と同じ速度で土壌中を移動し、収着成分は土壌と放射性核種の収着反応は主としてイオン交換反応のみであるとする従来の理論にしたがって移動すると仮定して移動予測する方法を提案している。I⁻ の場合も、井上らの方法により、安全評価の精度は改常されると予想される。しかし、¹²⁹I は前述したように長半減期核種のため、表層土壌に蓄積した¹²⁹I の土壌—農作物—人体経路による被曝が重要となる。その場合、表層土壌に蓄積した¹²⁹I の長期間における移動や分布が問題となるため、収着成分に関して従来の理論が適用できるかどうか検討する必要がある。

Fig. 4 は、3 種類の砂質土壌による IO₃⁻ の BTC である。NaIO₃ 溶液を 10 V₀ 流入後、Ca

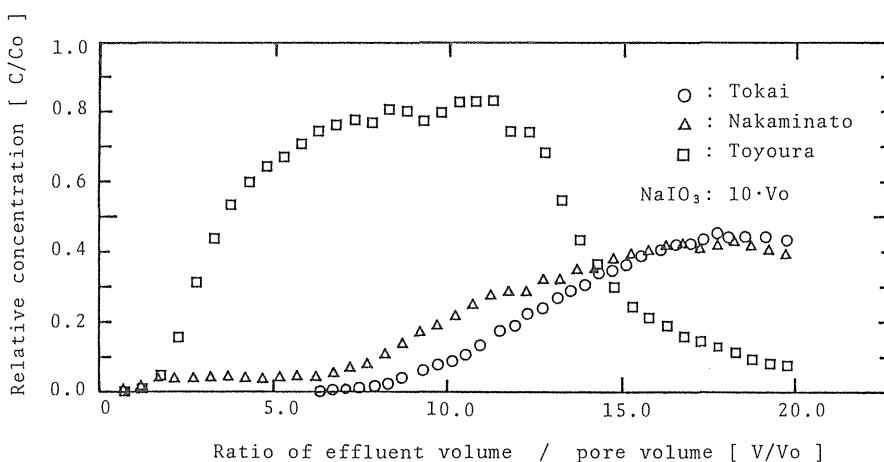


Fig. 4 The breakthrough curves of iodate (IO_3^-) obtained by introducing 10% of NaIO_3 solution and leaching with CaCl_2 solution for Tokai, Nakaminato and Toyoura soils. The concentration of IO_3^- is 10^{-8} mol/l.

CaCl₂ 溶液を同量流入して得られたBTCである。

I⁻と比較すると、IO₃⁻の場合は土壤中での移動速度はかなり遅い。BTCの立ち上がり点で比較すると、豊浦標準砂では約2倍、東海土壌では約10倍移動速度は遅い。また、立ち上がりコウ配もゆるやかであり、テイリングも著しいことがわかる。これは、IO₃⁻が土壌と収着・脱離反応をくり返しながら間隙中を移動するためと考えられる。流出液中のヨウ素の化学形は、那珂湊土壌の立ち上がり部(2~6 V/V₀)では、約50%がI⁻でありIO₃⁻であった。この変化が、土壌中を移動する際に生じたものか、流入液中に微量のI⁻が存在したためであるかは、立ち上がり部のC/C₀が0.1以下であるため不明である。しかし、那珂湊土壌の立ち上がり部以外の流出液中のヨウ素の化学形および他の2種類の土壌のすべての流出液中の化学形は、90%以上がIO₃⁻であった。この結果から、少なくとも流出成分に関しては、これらの砂質土壌中を通過する際に化学形の変化はほとんど生じないものと考えられる。

4. 結 語

砂質土壌中におけるヨウ化物イオンおよびヨウ素酸イオンの移動の様相を検討するため、3種類の砂質土壌を用いてカラム実験を行い、流出パターン、カラム内収着分布および流出液中のヨウ素の化学形を調べた。その結果、次のことが明らかとなった。

1) 土壌カラムに流入したI⁻は、大部分は水とほとんど同じ速度で土壌間隙を移動するが、一部分は土壌に収着される。収着される割合およびカラム内収着分布は土壌の種類により異なる。

2) 土壌に収着したI⁻は5×10⁻⁴ mol/lのCaCl₂ 溶液では容易に脱離しない。しかし、長期間テイリングが観察されることから、必ずしも不可逆的な収着ではない。

3) 土壌カラムに流入したIO₃⁻は、土壌との収着・脱離反応をくり返ししながら土壌中を移動するため、I⁻と比べると土壌中での移動速度はかなり遅い。

4) 流出液中のヨウ素の化学形は、90%以上が流入液中のヨウ素の化学形と同じであった。したがって、少なくとも流出成分に関しては、これらの土壌中を通過する際に化学形の変化は生じないと考えら

れる。

5) 砂質土壌中におけるI⁻の移動予測に関しては、流出成分は水と同じ速度で、収着成分は従来の理論により移動するという方法を適用することにより、予測精度は改善される。しかし、移動予測の精度をより高めるために、新しい理論を開発する必要がある。

(参考文献)

- 1) Whitehead D.C.
The Influence of Organic Matter, Chalk, and Sesquioxides on the Solubility of Iodide, Elemental Iodine, and Iodate Incubated with Soil. *J. Soil Sci.*, **25**, 461-470, 1974.
- 2) 結田康一
土壌から植物へ, 第7回放医研環境セミナー「最近の環境における放射性ヨウ素の諸問題」報文集, pp. 91-106, 1979.
- 3) 井上頼輝, 森澤真輔
非イオン状Y-90の地中移動, *原子力学会誌*, **18**, 445-451, 1976.

(研究発表)

- 1) 内田滋夫, 福井正美*, 桂山幸典*
海底砂層内における¹³⁷Csの拡散挙動に関する研究—非可逆吸着モデルの適応—, *保健物理*, **15**, 157-166, 1980.
- 2) 福井正美*, 内田滋夫, 桂山幸典*
放射性廃棄物処分による地下帯水層汚染の簡易評価法, *保健物理*, **16**, 11-21, 1981.
- 3) Fukui, M., Katsurayama, K., and Uchida, S.,
Estimation on a Contaminated Sub-surface Aquifer by ⁹⁰Sr resulting from the disposal of Radioactive Waste into Ground. *Annual Reports of the Res. Reactor Inst., Kyoto Univ.*, **13**, pp. 75-84, 1980.
- 4) 内田滋夫, 福井正美, 桂山幸典
イオン交換樹脂および土壌カラム内における重

- 金属イオンの挙動，昭和54年度農業土木学会大会，東京，1979，5.
- 5) 内田滋夫，鎌田 博
飽和土壌中における放射性ヨウ素の挙動，昭和55年度農業土木学会関東支部大会，浦和市，1980，10.
- 6) 内田滋夫，鎌田 博
飽和土壌中における放射性ヨウ素の挙動(II)，
—収着・脱離特性に関する研究—，昭和56年度農業土木学会大会，筑波，1981，5.
- 7) 内田滋夫
土壌水中における放射性物質の挙動に関する研究，環境放射能安全研究成果報告会，千葉，1983，1.
- 8) 内田滋夫，鎌田 博
砂質土壌中におけるヨウ素イオンおよびヨウ素酸イオンの挙動に関する研究，日本保健物理学会第18回研究発表会，東京，1983，5.
- 9) 内田滋夫，鎌田 博
土壌中における放射性ヨウ素の挙動(I)，
—ヨウ化物イオンの砂質土壌への収着・脱離現象に関する研究—，保健物理，18，337-343，1983.

1 B-3 土壌から植物への放射性物質の移行 —土壌に混入した放射性物質の挙動について—

環境放射生態学研究所 本間美文、大桃洋一郎

Studies on transfer of radioactive substances from soils to plants —Behaviour of radionuclides in soil

Division of Radioecology

Yoshifumi HOMMA and Yoichiro
OHMOMO

1. 諸言

放射性物質の土壌から植物への移行率を求めるためには、まず

1) 植物の放射性物質に対する吸収特性

2) 土壌中における放射性物質の存在状態

の2つが大きな変動要因となるものと考えられる。

特に2)について既往の元素吸収に関する知見に従って考えた場合に、植物は土壌中に存在する放射性物質の全量を吸収するわけではなく、土壌溶液中の放射性物質と、固相に存在するもののうち、動きやすい放射性物質とを吸収すると思われる。¹⁾ ここで土壌溶液中の放射性物質は植物に直接吸収されるが、動きやすい形態の元素は先ず土壌溶液中の元素が植物に吸収され、その濃度が減少した場合に、土壌溶液中へと放出されることにより土壌溶液を通じて吸収されるものと考えられる。²⁾ なお植物が吸収する形態としての可給態と云う観点から考えた場合には、上述の2つの形態に加えて通常は動きにくい、植物根が分泌するキレート生成能をもつ物質などにより可溶化されるような形態のものについても考慮する必要がある。³⁾ 可給態抽出剤として0.1N HClや各種キレート剤が用いられるのはこのような理由からであろう。³⁾

本研究では⁶⁵Zn混入土壌について可給態安定亜鉛(以下亜鉛とする)を抽出するために従来用いられて来た化学的性質が相互に異なる4種類の抽出剤を用い、混入後の日数経過にともなう抽出液中の⁶⁵Znの挙動の変化から、土壌溶液や固相における

動きやすい形態としての同位体交換プールに存在する亜鉛量、および同位体交換プールから土壌溶液への亜鉛の放出速度としての移動速度定数などを求める数理解析法について検討すると共に、実際に田無火山灰土壌および那珂川沖積土壌について解析を行なったので報告する。

1) プール別の亜鉛量と、プール間の亜鉛の移動速度定数の数理解析

各プールの亜鉛量などを求めるための数理解析を行なうにあたり、土壌中の亜鉛と各抽出剤が抽出する亜鉛について、次の前提をおいた。

前提(A): 土壌中には同位体交換の難易度の観点から、3種類の亜鉛プールが存在すると考える。これらは、迅速交換プール、交換プール、および難交換プールである。

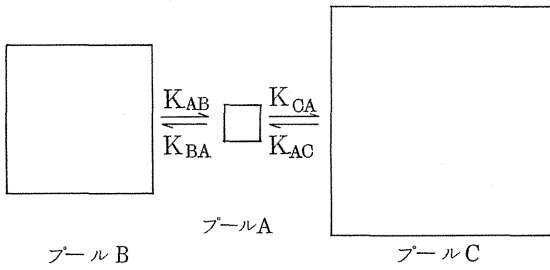
前提(B): 各プールでは亜鉛が均一に分布している。

前提(C): プール間の相互関係として、第1図に示す関係を仮定する。

前提(D): 土壌にもともと存在する亜鉛については、プール間で平衡に達しているものとし、⁶⁵Znはこの亜鉛と同位体交換によってのみ希釈されるものとする。

前提(E): プールAの亜鉛はどの抽出剤によっても全量抽出されるが、プールB、Cの亜鉛は、それぞれの抽出剤に対応して一定比率にて抽出されるものとする。

これら5条件を充足すると第1図のモデルは3コンパートメント閉鎖型となる。Shipleyらの3コ



第1図 亜鉛プールの配列

(K_{AB} , K_{BA} , K_{CA} , K_{AC} : 各プール間の移動速度定数)

コンパートメント開放型モデルの一般的解析法を一部変形準用することにより、コンパートメント間の物質の動きが記述される。⁴⁾

第1図のプールAに⁶⁵Znを添加した場合

Q_A , Q_B , Q_C : プールA, B, Cに存在する亜鉛量 (μg / 土壌 g)。

q_{At} , q_{Bt} , q_{Ct} : プールA, B, Cに存在する、⁶⁵Zn添加後t日目、⁶⁵Znの放射能に対する割合(%)。

q_{A0} : 添加した⁶⁵Znの全放射能(100とする)。

t: ⁶⁵Zn添加後の日数。

K_{AB} , K_{BA} , K_{AC} , K_{CA} : 第1図に示す方向での、プール間の、単位土壌量、単位日数あたりの亜鉛の移動速度定数。

とくと、次の微分方程式が成り立つ。「-」記号は、各プールからの⁶⁵Znの放出を示す。

$$\frac{dq_{At}}{dt} = -(K_{BA} + K_{CA}) q_{At} + K_{AB} q_{Bt} + K_{AC} q_{Ct}$$

$$\frac{dq_{Bt}}{dt} = K_{BA} q_{At} - K_{AB} q_{Bt}$$

$$\frac{dq_{Ct}}{dt} = K_{CA} q_{At} - K_{AC} q_{Ct}$$

また前提(D)より、

$$Q_A K_{BA} = Q_B K_{AB}$$

$$Q_A K_{CA} = Q_C K_{AC}$$

Laplace 変換、逆 Laplace 変換を行なって、

等式(1)、(2)、(3)を積分して、t日目に、プールA、B、Cの各々に存在する⁶⁵Znの全放射能に対する%を表わす式を次のように求める。⁴⁾

$$q_{At} = q_{A0} \left\{ \left[\frac{g_1 - (K_{AB} + K_{AC}) + K_{BA} K_{AC} / g_1}{(g_1 - g_2)} \right] e^{-g_1 t} + \left[\frac{K_{AB} + K_{AC} - K_{AB} K_{AC} / g_2}{(g_1 - g_2)} \right] e^{-g_2 t} + \left[\frac{K_{AB} K_{AC}}{g_1 g_2} \right] \right\} \dots \dots \dots (6)$$

$$q_{Bt} = q_{A0} \left\{ \left[\frac{-K_{BA} + K_{BA} K_{AC} / g_1}{(g_1 - g_2)} \right] e^{-g_1 t} + \left[\frac{K_{BA} - K_{BA} K_{AC} / g_2}{g_1 - g_2} \right] e^{-g_2 t} + \left[\frac{K_{BA} K_{AC}}{g_1 g_2} \right] \right\} \dots \dots \dots (7)$$

$$q_{Ct} = q_{A0} \left\{ \left[\frac{-K_{CA} + K_{AB} K_{CA} / g_1}{(g_1 - g_2)} \right] e^{-g_1 t} + \left[\frac{K_{CA} - K_{AB} K_{CA} / g_2}{(g_1 - g_2)} \right] e^{-g_2 t} + \left[\frac{K_{AB} K_{CA}}{g_1 g_2} \right] \right\} \dots \dots \dots (8)$$

ただし

$$g_1 + g_2 = K_{AB} + K_{BA} + K_{AC} + K_{CA} \dots \dots (9)$$

$$g_1 g_2 = K_{AB} K_{AC} + K_{BA} K_{AC} + K_{CA} K_{AB} \dots \dots \dots (10)$$

2) 実験方法、および実験結果

(1) 実験方法

実験には田無火山灰土壌と那珂川沖積土壌を用いた。これら2土壌の理化学性を第1表に示す。

⁶⁵Znを添加した土壌からの、16mlの0.005M DTPA、0.1M TEA、および0.01M CaCl₂の混合液(以下DTPAとする)^{1) 5) 6)}による⁶⁵Znと亜鉛の抽出を、添加後11、13、20、48、77、104、161、275、299日目の、風乾土8g程度を秤量した土壌を用いて、48時間のしんとう接触条件にて行なった。さらに40mlの1M MgCl₂^{7) 8) 9)}、40mlの0.01MEDTAと、1M CH₃COONH₄の混合液(以下EDTAとする)^{5) 9)}、

第 1 表 供試土壤の理化学的性質

土 壤	粒 径 組 成 (%)				P H	腐植 ¹⁾ 全窒素 ²⁾			交換性陽イオン (me/100g)					CEC ³⁾ (me/100g)
	粗砂	細砂	シルト	粘土		(%)	(%)	Ca	Mg	K	Na			
田 無 土 壤	7.0	21.5	45.4	26.1	5.92	4.51	0.33	7.57	0.91	0.22	0.28	21.0		
那 珂 川 土 壤	9.2	54.2	22.6	14.0	5.70	0.82	0.12	4.12	0.46	0.80	0.23	9.37		

1) チューリン法、2) 硫酸分解-アンモニア電極法、3) セミマイクロシレンベルガー法。

あるいは40 mlの0.1 N HCl 溶液¹⁾による¹⁰⁾ ⁶⁵Zn と亜鉛の抽出を、各々添加後13、48、161日目の風乾土あたり4g程度を秤量した土壤を用いて、24時間目のしんとう接触条件下にて行なった。

(2) 実験結果

第2表は、硝酸一過塩素酸による土壤の分解画分の亜鉛の抽出量を示す。

第3表はDTPAによる抽出画分の、また第4表はMgCl₂、EDTA、0.1 N HCl によるそれぞれの抽出画分の、⁶⁵Zn の抽出%と、亜鉛の抽出量を示す。

なお第3、4表には、⁶⁵Zn 添加後の日数経過の相互に異なる日に得た複数の亜鉛の抽出量の値の平

第2表 土壤の硝酸-硫酸-過塩素酸による分解
亜鉛量

μg/g、風乾土

田 無 土 壤	那 珂 川 土 壤
105 ± 4	78.0 ± 4.2

均值(C項)と、この平均値に各抽出画分の⁶⁵Zn の比放射能(同表における[B]/[A])の値をかけて得られる⁶⁵Zn の抽出%の補正值(D項)も示してある。これらの値を求めた理由は、前提(D)と、前提(E)に合致するようにしたためである。

第3表 DTPA抽出画分の安定亜鉛、および⁶⁵Zn の抽出量と
その補正值の日数経過にともなう推移

経過日数 (日)	田 無 土 壤				那 珂 川 土 壤			
	安定亜鉛 抽出量(A) (μg/土壤g)	⁶⁵ Zn 抽出量(B) (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	(A)の補正值 [(B) × (C)/A] (μg/土壤g)	(B)の補正值 [(B) × (C)/A] (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	安定亜鉛 抽出量(A) (μg/土壤g)	⁶⁵ Zn 抽出量(B) (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	(A)の補正值 [(B) × (C)/A] (μg/土壤g)	(B)の補正值 [(B) × (C)/A] (% ⁶⁵ Zn/土壤g)
11	3.13 ± 0.10	19.9 ± 1.0	3.64	23.1	3.66 ± 0.08	42.4 ± 0.2	3.81	44.1
13	4.11 ± 0.01	24.6 ± 0.2	3.64	21.8	4.11 ± 0.02	43.5 ± 0.3	3.81	40.3
20	3.95 ± 0.07	22.1 ± 0.4	3.64	20.4	4.36 ± 0.07	41.8 ± 0.8	3.81	36.5
48	3.52 ± 0.10	16.9 ± 0.3	3.64	17.5	3.69 ± 0.12	35.1 ± 0.5	3.81	36.2
77	4.16 ± 0.05	19.9 ± 0.4	3.64	17.4	4.05 ± 0.02	37.2 ± 0.7	3.81	35.0
104	—	—	—	—	3.33 ± 0.01	31.7 ± 0.1	3.81	36.3
161	3.85 ± 0.20	16.3 ± 0.2	3.64	15.4	3.60 ± 0.14	31.5 ± 0.2	3.81	33.3
275	3.11 ± 0.20	13.8 ± 0.3	3.64	16.2	3.82 ± 0.05	33.6 ± 0.8	3.81	33.5
299	3.32 ± 0.03	15.1 ± 0.3	3.64	16.6	3.64 ± 0.02	32.8 ± 0.8	3.81	34.3

第4表 MgCl₂、EDTA、および0.1N HCl抽出画分の安定亜鉛と、⁶⁵Znの抽出量と、その補正值の日数経過にともなう推移

抽出剤	経過日数	田 無 土 壤				那 珂 川 土 壤			
		安定亜鉛	⁶⁵ Zn	(A)の補正值	(B)の補正值	安定亜鉛	⁶⁵ Zn	(A)の補正值	(B)の補正值
		抽出量(A) (μg / 土壤g)	抽出量(B) (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	[平均値(C)] (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	[(B) × (C/A)] (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	抽出量(A) (μg / 土壤g)	抽出量(B) (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	[平均値(C)] (% ⁶⁵ Zn/土壤g)	[(B) × (C/A)] (% ⁶⁵ Zn/土壤g)
MgCl ₂	1 3	3.46±0.17	2.25±0.1	2.61	17.0	3.88±0.02	5.43±0.7	2.98	41.7
	4 8	1.43±0.01	7.4±0.2	2.61	13.5	1.96±0.05	2.25±0.2	2.98	3.42
	1 6 1	2.93±0.06	15.7±0.1	2.61	14.0	3.09±0.05	3.50±0.2	2.98	33.8
EDTA	1 3	1.487±0.23	7.27±1.1	13.95	68.2	7.28±0.29	7.03±1.6	6.96	67.2
	4 8	1.268±0.17	59.6±0.9	13.95	65.6	6.58±0.28	6.21±0.1	6.96	65.7
	1 6 1	1.431±0.12	61.6±0.6	13.95	60.1	7.01±0.11	6.26±0.4	6.96	62.2
0.1N HCl	1 3	2.083±1.01	86.5±0.6	20.21	83.9	13.50±0.51	9.33±2.9	12.38	85.5
	4 8	1.964±0.62	78.0±2.0	20.21	80.3	12.47±0.66	7.87±2.5	12.38	78.1
	1 6 1	2.017±0.79	80.1±0.7	20.21	80.3	11.18±0.10	7.83±1.7	12.38	86.7

3) 供試土壤のプール別亜鉛量、およびプール間の亜鉛の移動速度定数

各抽出剤が抽出する亜鉛量、および⁶⁵Znの放射納率は前提(E)により、

$$(Q_A + Q_B X_n + Q_C Y_n), (q_{A1} + q_{B1} X_n + q_{C1} Y_n)$$

となる。ただしX_n、Y_nは抽出剤nに対応する定数で、0~1の間の値をとる。n=1, 2, 3, 4を、それぞれDTPA、MgCl₂、EDTA、0.1NHC1に対応する数とする。

等式(4)、(5)、(6)、(7)、(8)より、

$$q_{A1} + q_{B1} X_n + q_{C1} Y_n = g_1 \frac{(Q_A + Q_B X_n + Q_C Y_n) g_1 g_2}{(Q_A + Q_B + Q_C) K_{AC}} - q_{A0}$$

$$K_{AC} + \frac{(Q_A + Q_B X_n + Q_C Y_n) g_2}{(Q_A + Q_B + Q_C) (g_1 - g_2)}$$

$$\frac{(K_{AC} - g_1)(K_{AC} - g_2)}{K_{AC}} \Big] e^{-g_1 t} +$$

$$-g_2 + \frac{(Q_A + Q_B X_n + Q_C Y_n) g_1 g_2}{(Q_A + Q_B + Q_C) K_{AC}}$$

$$+ K_{AC} \frac{(Q_A + Q_B X_n + Q_C Y_n) g_2}{(Q_A + Q_B + Q_C)} + \frac{(K_{AC} - g_1)(K_{AC} - g_2)}{K_{AC}} \Big] e^{-g_2 t} + \left[\frac{(Q_A + Q_B X_n + Q_C Y_n)}{(Q_A + Q_B + Q_C)} \right] \dots \dots \dots (11)$$

となる。

中性塩類としての化学的性質よりMgCl₂がプールCの亜鉛を抽出しないこと、すなわちY₂=0であることを考慮し、さらに(Q_A+Q_B+Q_C)としての第2表の値、および第3表や第4表の値から等式(11)の回帰式を求めることにより、g₁、g₂およびK_{AC}の値を決定する。さらにMgCl₂が土壤溶液中の亜鉛を全量抽出することを考慮し、かつHClがプールBの亜鉛を全量抽出することを仮定して、得られたこれらの値を等式(4)、(5)、(9)、(10)に代入することによって、他の移動速度定数や各プールの亜鉛量がそれぞれ一定範囲の値として求まる。得られた値を第5表、および第6表に示す。

第5表 プールに存在する亜鉛量の範囲
($\mu\text{g}/\text{土壌g}$)

土 壤	プールA+プールB (プールA) (プールB)		プールC
	田無土壌	16.33~19.80 (0.13~2.61)(16.20~17.19)	
那珂川土壌	6.66~ 7.74 (0.06~2.98)(4.76~ 6.60)	70.26~71.34	

第6表 プール間の亜鉛の移動速度定数の範囲
($1/\text{土壌}/1\text{日}$)

	K_{AB}	K_{BA}	K_{AC}	K_{CA}
田 無	1.36×10^{-3}	1.70×10^{-1}	5.93×10^{-5}	1.94×10^{-3}
土 壤	2.73×10^{-2}	1.80×10^{-1}		4.05×10^{-2}
那珂川	1.60×10^{-3}	1.27×10^{-1}	2.96×10^{-5}	6.97×10^{-4}
土 壤	7.95×10^{-2}	1.76×10^{-1}		3.52×10^{-2}

4) 本報告にて行なった解析について

プールAの亜鉛は、土壤溶液中の亜鉛以外に土壤の固相と極めて弱い結合をしている固相亜鉛の一部が含まれている可能性がある。¹¹⁾この場合、前者と後者で⁶⁵Znに対する同位体交換速度が明らかにちがうものであれば、両者をそれぞれ異なるプールの亜鉛として区別する必要がある。

次に前提(C)で述べた各亜鉛プールの配列の問題についてであるが、土壤中の亜鉛プールの相互関係についてはいくつかの配列が考えられる。本報告で採用した配列はその中のひとつである。

また本報告では、各プール間においては亜鉛については平衡に達しており(前提(D))、従って各プールの亜鉛量については増減がないと考え、また4抽出剤のそれぞれが各プールに存在する亜鉛を一定比率にて抽出するとした(前提(E))。すなわち本報告においては、各抽出剤が抽出する亜鉛量については、⁶⁵Zn添加後の日数経過ともなり変化がないものと考えた。しかし実験結果をみるとDTPA抽出剤を用いた場合は日数経過ともなり亜鉛抽出量の変動がないようであるが、MgCl₂やEDTA、HCl

の亜鉛抽出量については日数増大にもなって若干減少する傾向が認められた。このような亜鉛量の経日変化が実験誤差に基ずくものなのか、あるいは土壤にもともと存在する亜鉛が完全な平衡に達していないため、プールAやプールBからプールCと一方通行的に亜鉛が移動したことによるものなのかは今のところ不明である。しかし後者だとすれば、各プール間の亜鉛の移動に同位体交換以外の反応があることを示唆する。

計算から得られた移動速度定数のうちとりわけK_{AB}とK_{CA}が、また各プールの亜鉛量のうちプールAのそれがかなり幅をもった値となっている。これは特にMgCl₂が抽出する亜鉛量がプールAの亜鉛量のみから成る場合もあると仮定して、各プールの亜鉛量の範囲などを決定したことによる。今後の課題としては、各プールの亜鉛量を厳密に決定できるような理論式の展開の中で出て来る未知数の全てを解くことが出来るような実験系を組むことが必要となる。

5) 本報告で使用した両土壌における亜鉛の存在状態

Q_Aの値を狭い範囲内の値として特定出来なかったため、以下計算結果について、(Q_A+Q_B)と、Q_Cについて考えてみることにする。なおプールAおよびプールBの亜鉛は、添加した⁶⁵Znと、数+日程度までの間に同位体平衡に達するが、Lauerが⁶⁵Zn添加後60日までの間に同位体平衡に達する亜鉛を植物に吸収される形態、すなわち可給態としての動きやすいプールの亜鉛(Labile pool Zn)と命名している¹⁾以下両プールの亜鉛を動きやすいプールの亜鉛として述べる。

第2表の実験結果と、第5表の計算結果との対比から明らかなように、動きやすい亜鉛は両土壌において土壤において土壤の酸分解により溶出される全亜鉛のうちの8.5~18.9%にしか過ぎなかった。云いかえれば両土壌中に存在する亜鉛のうちかなりの部分は、難交換態としてのプールCに存在していた。

2土壌間で動きやすいプールの亜鉛量、および難交換態としてのプールCの亜鉛量を比較すると、こ

これらのいずれについても田無土壌のほうが那珂川土壌よりも高かったが、この傾向は動きやすいブールの亜鉛の場合により顕著であった。

なお各ブール間の移動速度定数についても本報告では一応の値が得られたが、とりわけK と、K_{OA} についてはきわめて幅をもった値として得られた。

〔参考文献〕

- 1) Lauer, D. A.
Evaluation of Plant-Available Zn by the DTPA Soil Test, 0.1N HCl Extraction and Labile Zn Measurements, Ph. D. Thesis, Department of Agronomy, Colorado State University, Fort Collins, Univ. Microfilms, Ann Arbor, Mich. (Diss. Abst., 36;615B) 1971
- 2) Khasawneh, F. E.
Solution Ion Activity and Plant Growth.
Soil Sci. Soc. Amer. Proc. **35**, 426-436, 1971
- 3) Brown, J. C., Tiffin, L. O. and Holmes, R. S.
Competition Between Chelating Agents and Roots as Factor Affecting Absorption of Iron and Other Ions by Plant Species.
Plant Physiol. **35**, 878-886, 1960.
- 4) Shipley, R. A. and Clark, R. E.
Tracer Methods for in Vivo Kinetics, pp. 216-222, Academic Press, 1972.
- 5) Brown, A. L., Quick, J., and Edding, J. L. A.,
Comparison of Analytical Methods for Zinc.
Soil Sci. Soc. Amer. Proc., **35**, 105-107, 1971.
- 6) Lindsay, W. L. and Norvell, W. A.
Development of a DTPA Soil Test for Zinc, Iron, Manganese and Copper.
Soil Sci. Soc. Amer. J., **42**, 421-428, 1978.
- 7) Stewart, J. A. and Berger, K. C.
Estimation of Available Soil Zinc Using Magnesium Chloride as Extractant.
Soil Sci., **100**, 244-250, 1965.
- 8) Martens, D. C. and Chesters, G.
Comparison of Chemical Tests for Estimation of the Availability of Soil Zinc.
J. Sci. Fd Agric., **18**, 187-192, 1967.
- 9) Tiller, K. G., Honeysett, J. L. and de Vries, M. P. C.
Soil Zinc and Its uptake by plants II. Soil Chemistry in Relation to Prediction of Availability.
Avst. J. Soil Res., **10**, 165-182, 1972.
- 10) Tucker, T. C. and Kurtz, L. T.
A Comparison of Several Chemical Methods with the Bio-assay Procedure for Extracting Zinc from Soils.
Soil Sci. Soc. Amer. Proc. **19**, 477-481, 1955.
- 11) Tiller, K. G., Honeysett, J. L. and de Vries, M. P. C.
Soil Zinc and Its Uptake by plants 1. Isotopic Exchange Equilibria and the Application of Tracer Techniques, 151-164, 1972.

〔研究発表〕

- 1) 本間美文, 大桃洋一郎
放射性物質および安定元素の土壌から植物への移行に関する調査研究、文部省科学研究費総合研究(A) 井上班(課題番号338029)、p.63、1979.

- 2) 本間美文、大桃洋一郎
 土壤-植物系における亜鉛の動態に関する研究
 (第1報)- ^{65}Zn で汚染させた土壤のDTPA、
 EDTA、HCl抽出について、日本土壤肥料学
 会北海道大会、札幌、1979. 8.
- 3) 本間美文、大桃洋一郎
 放射性物質および安定元素の土壤から植物への
 移行に関する調査研究-放射性物質および安定
 元素の土壤中における挙動に関する調査研究、
 文部省科学研究費総合研究(A) 井上班(課題番
 号338029)、p. 85~89、1980.
- 4) 本間美文、大桃洋一郎
 土壤-植物系における亜鉛の動態に関する研究
 (第2報)- ^{65}Zn で汚染させた土壤のDTPA、
 EDTA、HCl抽出について、日本土壤肥料学
 会鳥取大会、鳥取、1980. 4.
- 5) 本間美文、大桃洋一郎
 土壤中に混入した放射性物質の挙動に関する研
 究、東京大学ラジオアイソトープ総合センター
 ニュース、11、p.2-4、1980.
- 6) 本間美文、大桃洋一郎
 土壤-植物系における亜鉛の動態に関する研究
 (第3報)-土壤中の“難交換態”の亜鉛につ
 いて、日本土壤肥料学会名古屋大会、名古屋
 1981. 4.
- 7) 本間美文、大桃洋一郎
 土壤-植物系における亜鉛の動態に関する研究
 (第4報)-各種抽出剤が土壤から脱着する亜
 鉛について、日本土壤肥料学会名古屋大会、
 名古屋、1981. 4.
- 8) 本間美文、住谷みさ子、村松康行、大桃洋一郎
 土壤-農作物-人体経路における放射性並びに
 安定元素の移行に関する研究(その1)可給態
 に関する一考察、日本放射線影響学会第25回
 大会、秋田、1982.10.
- 9) 本間美文
 作物の元素吸収に影響を与える土壤中の因子の
 速度論的解析、日本土壤肥料学会京都大会、京
 都、1983. 4
- 10) 本間美文、大桃洋一郎
 土壤中の亜鉛の存在状態について、日本土壤肥
 料学雑誌、投稿中
- 11) 本間美文、大桃洋一郎
 土壤中における亜鉛の動態について-亜鉛プー
 ルの大きさ、亜鉛のプール間移動速度定数定量
 へのコンパートメントアナリシスの適用-、日
 本土壤肥料学雑誌、投稿中
- 12) Homma, Y., Ohmomo, Y. and
 Kumazawa, K.
 Theoretical Analysis on the Rate
 Constants of Element Transfer
 Among Isotopic Exchange Pools in
 Soil, 投稿中

2 放射性物質の体内代謝に関する調査研究（概要）

Studies on the Metabolism of Radionuclides

原子力施設等より環境中に放出された放射性物質は環境中において種々複雑な挙動をとるが、人体の被曝の観点からは、環境中に存在し続けて体外被曝線源となると共に、一部は人体内に取り込まれて体内被曝線源となる。

体内被曝線量の算定にはいくつかの方法があるが、基本的には、身体あるいは諸器官・組織での放射性物質の存在量に関する情報、すなわち、代謝情報および放射性核種の核データあるいはその放射線の人体組織による吸収に関する物理情報を用いて行なう。近年、MIRD法などの導入により物理情報の精度はかなり高いものとなっているが、代謝情報の精度向上は相対的に小さく、代謝研究推進の最大の理由がここにある。

線量算定の精度向上にも劣らず重要なことは、放射性物質の代謝メカニズムを生物学的に正しく理解することであり、代謝に影響を与える因子について定量的にとらえることである。こうすることにより、ある特定条件下で代謝モデルを決めることができた時、それを他の条件に適用したり、体内に沈着した放射性物質の体外排泄促進を試みることができよう。

以上を基本的な認識とし、本サブグループは下記の5つの小課題を設定して研究をすすめた。小課題-1, -2, -3は実験動物を用いてのトレーサー実験を主体とした研究であり、環境衛生研究部が担当した。小課題-4と-5は実際の人体あるいは環境試料を対象とした分析を主体とした研究であり、環境放射生態学研究部が担当した。実際には、これらの小課題に関しさらにbreak downした実行上のテーマを設け研究をすすめた。ここには、精粗はあるが、それら研究の内容を記載した。ただし、研究の一部は、紙面の都合もあり、特研中間報告書(NIRS-M-36, 1981)での発表にとどめた。なお、小課題-3のトリチウムに関する研究は、昭和55年4月より「トリチウム特研」の一環としてすすめられており、ここには「環境特研」としての研究の

みを記載してある。

本特別研究により、動物体内放射能測定装置、 α 線波高分析器、元素分析装置など必要とする機器のうちの一部が整備され、それにしたがって研究は従来に比し効率よく進めることができるようになり、一応予期された成果を得ることができた。しかし、放射能を投与した動物の長期飼育実験であったり、人体に実際に存在する極微量放射能あるいは極微量元素の分析であったり、そこに必然的に附随する多くの困難の故、一部の研究は未完成に終わった。と同時に、体内被曝の年齢依存性研究の重要性等、特研の進行中に決意を新たにする場面が多々あった。環境放射能による体内被曝研究が重要であること、それにもかかわらず、その研究が放医研以外の機関では行いにくい研究であることを考え、新たな視点の下で体内被曝、体内代謝に関する研究を今後も継続発展させることが肝要であると考えた。

小課題-1 幼若期・胎児期における放射性物質の特殊性の研究： ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{106}Ru , ^{60}Co 等数種の保健物理学的に重要な核種について、消化管吸収率、体内残留と分布ならびに母仔移行の様相を観察し、安定元素の体内量情報と共に幼若期代謝の特殊性を一部明らかにすることができた。

小課題-2 放射性物質の存在状態が体内代謝におよぼす影響の研究： Co , Mn , Zn , Fe 等の放射性核種を海産生物あるいは淡水産生物に取込ませ、それをモデル食品とした時の動物体内代謝を、無機塩の放射性核種を投与した時のそれと比較するという手法を中心に研究し、興味深い結果を得ることができた。

小課題-3 トリチウムの代謝：食物連鎖を考慮した動植物体内でのトリチウムの挙動、ならびにそれに対する動物の年齢の影響につき実験し、有用な情報を得ることができた。

小課題-4 超ウラン元素の食品——人体系における移行の研究：人体組織試料および食品等のPu

を高分解能アルファスペクトロメトリにより測定し、組織の線量を計算するとともに、それをICRPの肺モデル・代謝モデルで予測される推定値と比較検討をすすめ、興味深い結果を得ることができた。

小課題-5 標準日本人の設定に関する調査研究

：日本人人体器官組織中の重要元素に関し精密分

析を行ない、器官分布および全身量を求めた。また、身体器官組織の質量および大きさに関する数値も求めた。これらは放射性物質の摂取による体内被曝線量算定時のみならず、体外被曝による器官組織線量の算定にも役立ち、ひいては、衛生学あるいは毒科学等の観点からも貴重なデータであるといえる。

2-1 Mnの幼若期・胎児期における代謝特性

環境衛生研究部 西村義一、稲葉次郎、市川龍資

Studies on Metabolism of Manganese in Juvenile and Adult Rats

Division of Environmental Health

Yoshikazu NISHIMURA, Jiro INABA
and Ryushi ICHIKAWA

(諸 言)

原子力発電を中心とする原子力の開発利用がすすむにつれ、原子力施設等からさまざまな形で一般環境中にも放射性物質が放出されてくる可能性がある。これらが人体に取り込まれた場合、体内被曝がひきおこされることになる。 ^{54}Mn は中性子誘導放射性核種の一つであり、原子炉での生成量等からして、保健物理学上重要な核種である。このため、 ^{54}Mn の生体内代謝に関しては相当数の研究がなされている。^{1)~3)}しかし、その殆んどは成人や成熟動物を対象としたものであり、幼若期・胎児期におけるそれは非常に少ない。ここでは、Mn 代謝の幼若期・胎児期での特性を明らかにすることを目的とした。

(実験方法)

実験には放医研動植物管理課において生産・供給しているWistar系ラットを用いた。 $^{54}\text{MnCl}_2$ は、比放射能 $8 \mu\text{Ci}/\text{mg Mn}$ のものをNew England Nuclear, U.S.A より購入し、蒸留水で $1.0 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ (pH3.8) になるように調整してこれを投与液とした。

実験 I. 成熟ラットおよび幼若期ラットにおける ^{54}Mn の体内残留率

新生児、7日齢、14日齢、21日齢および約100日齢のラットに $^{54}\text{MnCl}_2$ を1回、胃カテーテルで経口投与した。

投与後、ラットはただちにポリスチレン製のコンテナに入れ、アーマックカウンターで全身計測を行って投与量を定めた。以後、適当な日数間隔で放射能の測定を行い、体内残留率の経日変化を観察した。投与後も水と飼料(船橋農場、MB-1)は自由に摂取させた。哺乳中のラットは投与後もそのま

ま母親に哺育させ、生後21日目で離乳させた。また、仔供の数は10匹にそろえ、7匹を投与群とし、残り3匹はコントロールとしてクロスコンタミネーションのチェックを行った。

実験 II. ^{54}Mn の胎児への取り込みと妊娠期間との関係

ラットを交配させ、腔栓(Plug)の検出日をもって妊娠0日目と定めた。こうして得た妊娠13日目から20日目のラット90匹に $^{54}\text{MnCl}_2$ を1回、尾静脈内投与した。投与後、表-1に示した日数間隔で受胎物(胎盤、胎膜、羊水および胎児)を摘出し、それぞれに含まれる放射能をアーマックカウンターで測定し、 ^{54}Mn の胎児への取り込みと妊娠期間との関係について調べた。

実験 III. 胎盤および母乳を介して哺乳期ラットに移行する ^{54}Mn

妊娠8、14および20日目のラットに $^{54}\text{MnCl}_2$ を1回、尾静脈内投与し、そのまま分娩させた。新生児の数は10匹にそろえ、これらのラットと同日に分娩するようにした ^{54}Mn を投与しない妊娠ラットを用意しておき、分娩と同時に $^{54}\text{MnCl}_2$ を投与した親との間で仔の半数を交換して哺育させた。親と仔は経目的に全身計測を行って放射能を測定したが、このfoster mother法により

- (1) $^{54}\text{MnCl}_2$ を投与した親から生まれ、その汚染母乳を飲んで育った群(胎盤と母乳経由の ^{54}Mn を受けとった群)
- (2) $^{54}\text{MnCl}_2$ を投与した親から生まれ、非汚染母乳を飲んで育った群(胎盤経由の ^{54}Mn だけを受けとった群)
- (3) 非汚染ラットの親から生まれ、汚染母乳を飲ん

Table. 1 An outline of experimental design and number of rats

Days of gestation when sacrifice	Days of gestation at injection				
	13	15	17	19	20
15	5				
17	5	5			
18	5	5	5		
19	5	5	5		
20	5	5	5	5	
21	5	5	5	5	5
Total number of experimental rats	30	25	20	10	5

で育った群（母乳經由の ^{54}Mn だけを受けとった群）の3群での ^{54}Mn の哺乳児への移行についての観察を行った。

（実験結果）

実験Ⅰ．成熟ラットおよび幼若期ラットにおける ^{54}Mn の体内残留率

成熟ラットおよび幼若期ラットに $^{54}\text{MnCl}_2$ を1回、経口投与した時の体内残率の経日変化を図-1に示した。値は投与量に対する百分率で、5~7匹の平均値と標準偏差値で表わしてある。成熟ラットでの消化管吸収率は低く、投与後3日目までに投与量の大半が排泄されてしまった。その後、ゆるやかに体内残留率を減少させ、投与後15日目で投与量の0.3%となった。図には示さなかったが、21日齢ラットでも成熟ラットとほぼ同じ値をとる。これに対して哺乳期ラットでは $^{54}\text{MnCl}_2$ は消化管からよく吸収され、例えば成熟ラットでは投与後15日目に投与量の $0.3 \pm 0.1\%$ であったものが、14日齢ラットでは $18.7 \pm 3.8\%$ と約60倍高い体内残留率を示した。さらに年齢依存性が観察され、投与後20日目における体内残留率はNew-born（新生児） $66.2 \pm 6.4\%$ 、7日齢 $32.5 \pm 5.4\%$ 、14日齢 $15.8 \pm 3.2\%$ となり、有意に幼若ラットほど高い値を示した。また、哺乳期のラットでは離乳が近づくにつれて体内残留率を低下させるという上に凸の特徴的な体内残留曲線を描き、離乳後は再び指数関数的にゆるやかに体内残留率が低下した。

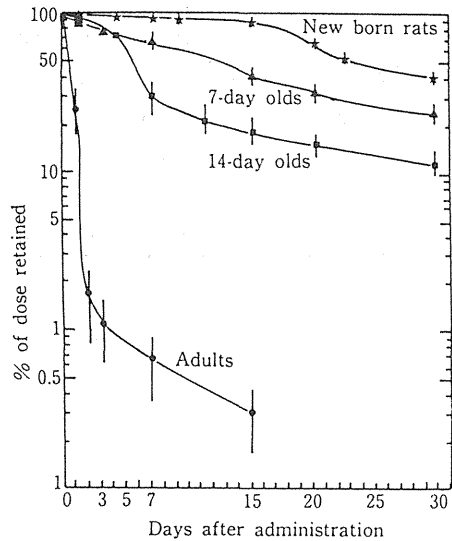


Fig. 1 Whole-body retention of $^{54}\text{MnCl}_2$ in rats of various ages after a single oral administration.

Bars represent means and standard deviation.

実験Ⅱ． ^{54}Mn の胎児への取り込みと妊娠期間との関係

表2、3、4および5に妊娠13日目から20日目のラットに $^{54}\text{MnCl}_2$ を1回、尾静脈内投与した時、胎盤、胎膜、羊水および胎児に取り込まれていた ^{54}Mn の量と妊娠期間との関係について示した。値は投与量に対する受胎物1gあたりの百分率(% of dose/g)で、5例の平均値と標準偏差値で表わしてある。妊娠13日目および15日目のラットに ^{54}Mn を投与した群では、胎盤、胎膜、胎児とも妊娠がすすむにつれて取り込み率が減少する傾向が認められたが、その他の群では顕著ではなかった。羊水にはほとんど放射能を検出することはできなかった。胎盤、胎膜に関しては妊娠がすすんでも大きな重量の増加はみられないが、胎児では妊娠17~18日目頃から急激に体重が増加し、1日1gあるいはそれ以上増えていくことが観察される。したがって、胎児1g中の値の変化が小さいということは逆に胎児1匹あたりへの取り込み量が増大しているということを意味している。図-2に胎児1

匹あたりに取り込まれていた⁵⁴Mnの量と妊娠期間との関係を示したが、妊娠がすすむにつれて胎児へ移行する⁵⁴Mnの量が著明に増加していくことがわかる。また、妊娠末期に投与されたラットほど胎児への取り込み量が大きくなる傾向が観察され、妊娠

20日目に⁵⁴MnCl₂を投与したラットでは24時間後に胎児1匹あたり0.9±0.2%、一腹にすると約10%が取り込まれていた。実験期間を通して母体血液濃度は10⁻³~10⁻⁴%と極めて低かった。

Table 2 Placental ⁵⁴MnCl₂ after intravenous administration to pregnant rats.

Days of gestation at sacrifice	Days of gestation when ⁵⁴ MnCl ₂ administered				
	13	15	17	19	20
15	0.14±0.03				
17	0.10±0.01	0.15±0.02			
18	0.10±0.01	0.12±0.02	0.17±0.03		
19	0.12±0.02	0.12±0.04	0.16±0.05		
20	0.07±0.01	0.09±0.01	0.13±0.02	0.15±0.03	
21	0.06±0.02	0.10±0.02	0.14±0.02	0.17±0.02	0.19±0.05

(% of initial dose/g, means ±S.D.)

Table 3 Fetal membrane ⁵⁴MnCl₂ after intravenous administration to pregnant rats.

Days of gestation at sacrifice	Days of gestation when ⁵⁴ MnCl ₂ administered				
	13	15	17	19	20
15	0.25±0.14				
17	0.12±0.04	0.45±0.20			
18	0.16±0.03	0.21±0.08	0.16±0.08		
19	0.05±0.04	0.16±0.04	0.16±0.05		
20	0.07±0.01	0.09±0.02	0.12±0.01	0.07±0.03	
21	0.05±0.03	0.09±0.02	0.10±0.02	0.15±0.03	0.09±0.07

(% of initial dose/g, means ±S.D.)

Table 4 Amniotic ⁵⁴MnCl₂ after intravenous administration to pregnant rats.

Days of gestation at sacrifice	Days of gestation when ⁵⁴ MnCl ₂ administered				
	13	15	17	19	20
15	0.02±0.01				
17	N.D.	N.D.			
18	N.D.	0.02±0.01	0.04±0.02		
19	0.01	N.D.		0.01	
20	N.D.	0.02	0.01	0.06±0.02	
21	N.D.	N.D.	N.D.	0.01	N.D.

(% of initial dose/g, means ±S.D.)

Table 5 Fetal $^{54}\text{MnCl}_2$ after intravenous administration to pregnant rats.

Days of gestation at sacrifice	Days of gestation when $^{54}\text{MnCl}_2$ administered				
	13	15	17	19	20
15	0.28±0.06				
17	0.16±0.02	0.27±0.05			
18	0.16±0.03	0.16±0.02	0.23±0.02		
19	0.13±0.01	0.21±0.02	0.24±0.05		
20	0.10±0.02	0.16±0.01	0.22±0.02	0.17±0.02	
21	0.09±0.01	0.14±0.02	0.18±0.02	0.24±0.03	0.23±0.08

(% of initial dose/g, means±S.D.)

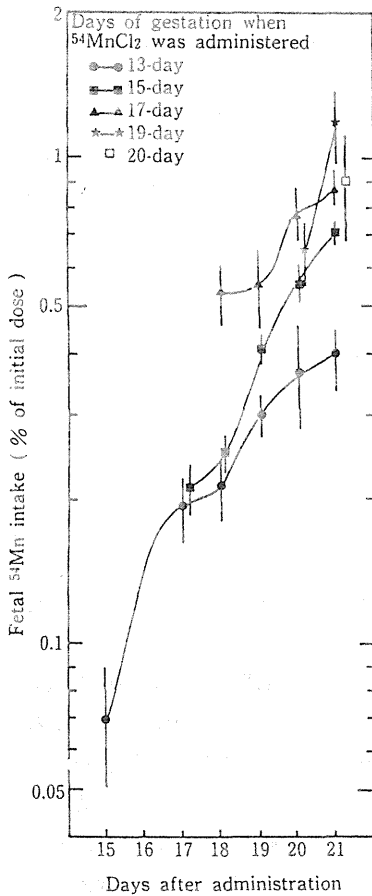


Fig. 2 Fetal ^{54}Mn intake after intravenous administration to mothers. Bars represent means and standard deviation.

実験Ⅲ. 胎盤および母乳を介して哺乳期ラットへ移行する ^{54}Mn

妊娠前期(8日目)、中期(14日目)および後期(20日目)のラットに $^{54}\text{MnCl}_2$ を1回、尾静脈内投与し、foster mother法により胎盤および母乳を介して仔に移行する ^{54}Mn の量を表わしたのが図3、4および5である。値は母親への投与量に対する百分率で、四腹の平均値と標準偏差値で示した。妊娠8日目のラットに $^{54}\text{MnCl}_2$ を静脈内投与すると、分娩時には胎盤を介して新生児1匹あたり約0.3%の ^{54}Mn が移行していた。その後、母乳

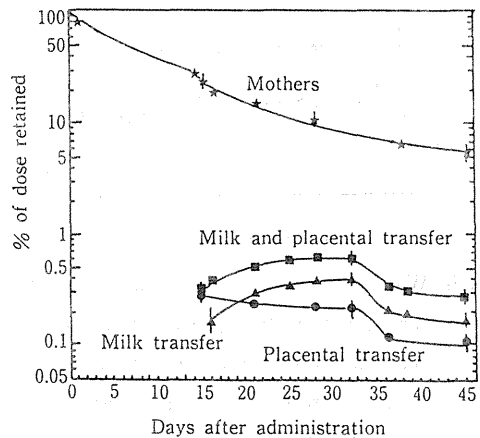


Fig. 3 Whole-body retention of $^{54}\text{MnCl}_2$ in 8-day pregnant rats after intravenous administration. Bars represent means and standard deviation.

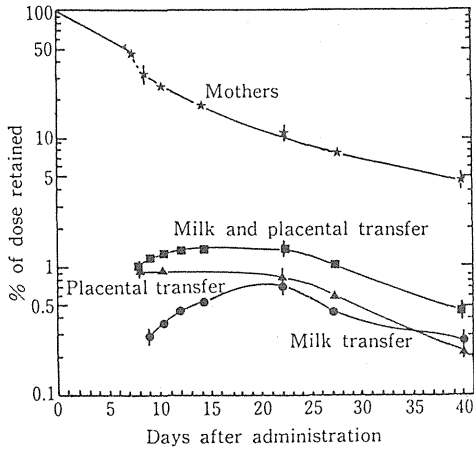


Fig. 4 Whole-body retention of $^{54}\text{MnCl}_2$ in 14-day pregnant rats after intravenous administration. Bars represent means and standard deviation.

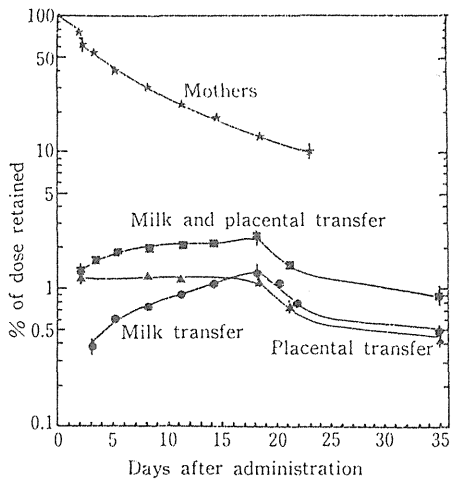


Fig. 5 Whole-body retention of $^{54}\text{MnCl}_2$ in 20-day pregnant rats after intravenous administration. Bars represent means and standard deviation.

からも移送され、胎盤由来のものとあわせると哺乳期間中に母親への投量の0.6%、一腹に換算すると6%が哺乳児へ移行した(図一三)。また、胎盤由来のものでも実験Iで観察された離乳期にかけての凸

の体内残留曲線を描くという興味深い結果が得られた。妊娠14日目のラットでも妊娠8日目のものとほぼ同様の傾向を示したが、胎盤および母乳からの移行量が妊娠8日目のラットよりも増加していた。妊娠20日目のラットではこの傾向はさらに顕著となり、胎盤を経由して分娩時に1匹あたり1.3%と、妊娠8日目ラットの約4倍多く新生児へ移行した。母乳を介して移行する ^{54}Mn の量も増加しており、分娩後16日目で一腹に換算して母親の投与量の1.3%が移行し、胎盤経由のものとおわせると2.5%近くに達した。

(考察)

成熟動物でMnの消化管吸収率が悪いことは1940年にGreenbergとCampbell¹⁾によってすでに示されている。Furchnerら²⁾もマウス、ラット、イヌおよびサルを用いて消化管からの吸収実験を行い、動物種間で差がみられるものの、いずれの動物でも消化管吸収率が低いことを明らかにしている。ヒトではボランティアに放射性Mnを経口投与した実験があり、消化管吸収率は0.06~0.16%の範囲にあると報告されている³⁾ MahoneyとSmall⁴⁾は注射後のヒトでの放射性Mnの消失は生物学的半減期が4日と38日の二つの指数関数の和で表現できると述べている。Mnの代謝は動物種間でかなり異なると言われていたが、著者らの実験から成熟ラットでの消化管吸収率は1%程度と推定され、ヒトを含めて成熟した動物での消化管吸収率はあまり高くないと言いうことができる。

これに対して幼若期動物でのMnの代謝についてはあまり知られておらず、Mn欠乏による障害(成長障害、骨格異常、生殖機能障害、新生児運動失調など)の面からの研究がほとんどである^{5)~7)}。実験Iにおいて各年齢のラットに $^{54}\text{MnCl}_2$ を1回、経口投与すると幼若期ラットでは成熟ラットあるいは離乳期すぎたラットにくらべて有意に体内残留率が高く、しかも年齢依存性が観察された。この年齢依存性は ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{144}Ce など多くの核種についても認められており^{8)~11)}、幼若期動物特有の消化管吸収機構の存在が推測される。

哺乳期ラットにおいては、離乳が近づくにつれて

上に凸の特徴的な体内残留曲線を描くが、この現象も ^{144}Ce 、 ^{106}Ru など他のいくつかの核種において観察されている⁹⁾¹¹⁾¹²⁾。Millerら¹³⁾は新生児マウスの腹腔内に $^{54}\text{MnCl}_2$ を注射し、その体内残留率を追跡したところ、投与後初期においてはほとんど排泄がみられないが、生後17~18日目をすぎた頃急激に体内残留率が減少することを報告している。これは、新生児マウスはMn濃度を調整する機構が不完全なためと考えられている。 $^{54}\text{MnCl}_2$ を哺乳期のラットに経口投与し、消化管と残体部分の占める割合を調べてみると、投与直後は消化管に80%以上あったものが次第に消化管の占める割合が少なくなり、離乳が近づいて体内残留率が低下する頃には数%しか消化管に留まっていなかったことが今回の実験で確かめられている。したがって新生児期、哺乳期にMnのホメオスタシス機構が不完全であることと、すでに ^{144}Ce で明らかにされているように¹¹⁾消化管内での滞留および腸管粘膜の脱落という現象がMnにもあるため、上に凸の特徴的な体内残留曲線を描くものと考えられる。経口投与以外の経路、例えば実験Ⅲで観察された胎盤由来で新生児へ移行した ^{54}Mn についても経口投与の場合と同様に上に凸の体内残留曲線を描くが、これも先に述べた2つの理由によるものと推測される。

Mnの胎児移行に関する情報はきわめて少ない。香川¹⁴⁾は妊娠ラットにMnを経口摂取させ、母仔移行を観察したところ、妊娠後期にMnの暴露を受けた場合の方が妊娠前期に暴露した時よりも胎児への移行量が大きくなることを報告している。実験Ⅱにおいても ^{54}Mn の胎児への取り込み量と妊娠期間との相関が認められ、妊娠がすすむにつれて胎児に移行する ^{54}Mn の量が増加する傾向が観察された。また、妊娠後期に投与したラットの方が胎児へ移行する ^{54}Mn の量は多く、分娩前日(妊娠20日目)に投与したラットでは一腹あたりで投与量の10%が胎児へ移行した。母体から胎児へ物質が移送される際には胎盤が重要な役割を果たしている。胎盤は基本的には哺乳動物特有の器官で、血液-脳関(Blood-brain barrier)のように胎児にとって必要な物質を送り込み、有害物質を送り込まないようにする障

壁としての機能を有しているものと考えられている¹⁵⁾。今回のMnの実験においては実験期間を通して母体血液濃度は $10^{-3}\sim 10^{-4}\%$ と胎児の濃度とくらべると2~3桁低く、胎盤や胎膜が障壁としての役割をほとんど果たしていないことがうかがわれる。

化学毒性を持つ有害物質の場合、胎盤や胎膜が障壁として働けば胎盤、胎膜そのものが障害を受けなにかぎり胎児に対してさほど大きな影響を及ぼすことはないと考えられる。しかし、放射性物質に関しては胎盤通過性が良ければ胎児に取り込まれて内部被曝がひきおこされるし、たとえ胎盤や胎膜が障壁として働いたとしてもこれらに捕捉された放射性物質から胎児が外部的に放射線を浴びるという特殊な事態を生ずる。したがって胎児期における放射性物質代謝を正しく理解することは被曝線量評価の上できわめて重要な意味をもってくる。

Mnは胎盤のみならず母乳を介しても比較的よく哺乳児へ移行する。母乳を介して移行する ^{54}Mn の量は、妊娠後期に投与されたラットほど多い傾向にあり、妊娠20日目に投与したラットでは哺乳期間を通じて墨積で最大10%に達した。著者らは他のいくつかの核種を用いてトレーサー実験を行っているが^{16)~18)}、Mnは母体-胎児あるいは母体-哺乳児への移行量が多い元素であると言うことができる。石沢¹⁹⁾は新生児胎便中のMnの含有率がきわめて高いことを報告しており、新生児期におけるMnのホメオスタシス機構の不完全さや今回の著者らの実験結果とも考えあわせて、Mnが胎児期あるいは新生児期に重要な役割を果たしていることが推察される。

(研究発表)

- 1) 稲葉次郎、西村義一、市川龍資：ラットにおける ^{125}Sb の体内代謝について—成熟ラットでの挙動—、日本放射線影響学会第24回大会、東海大(1981)
- 2) 西村義一、稲葉次郎、市川龍資：ラットにおける ^{54}Mn の母仔移行について、日本放射線影響学会第25回大会、秋田県生涯教育センター、(1982)
- 3) 西村義一、稲葉次郎：幼若期ラットにおけるマ

ンガン代謝特性に関する研究、日本衛生学雑誌、
38、764-771(1983)

(参考文献)

- 1) Greenberg, D. M. and Campell, W. W. :
Studies in mineral metabolism
with the aid of induced radioact-
ive isotopes. Manganese, Pro. Natl.
Acad. sci. 26, 448(1940)
- 2) Furchner, J. E. , Richmond, C. R. and
Drake, G. A. : Comparative metabolism
of radionuclides in mammals. Rete-
ntion of manganese-54 in the mouse,
rat, monkey and dog. Health Phys. 12,
1415-1423(1966)
- 3) MacDonald, N. S. and Figueroa, W. G. :
Manganese absorption and retention
in humans. In: semi-Annual Progr-
ess Report for the Period Ending
30 June 1969, pp51-52. California
University, Laboratory of Nuclear
Medicine and Radioactive Biology,
Los angels. (UCLA-12-724)(1969)
- 4) Mahoney, J. P. and Small, W. J. :
Studies on manganese. The biologi-
cal half-life of radiomanganese in
man and factors which affect this
half-life. J. Clin. Invest. 47, 643-
653(1968)
- 5) Hurley, L. S. and Everson, G. J. :
Delayed development of righting
reflexes in offspring of manganese
-deficient rats. Pro. Exp. Biol. Med.
102, 360-362(1959)
- 6) Hurley, L. S. , Everson, G. J. and
Geigen, J. F. :Manganese deficiency
in rats. Congenial nature of ataxia
J. Nutrition 66, 309-318(1958)
- 7) Hurley, L. S. and Everson, G. J. :
Influence of timing of shortterm
supplementation during gestation
on congenital abnormalities of
manganese-deficient rats. J. Nutri-
tion 79, 23-27(1963)
- 8) Nishimura, Y. , Inaba, J. and Ichik-
awa, 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)
- 9) 稲葉次郎、市川龍資：経口投与した ^{141}Ce に
よるラット消化管線量、幼若児における放射性
核種代謝の特殊性に関する研究(I) 保健物理、
7、141-145(1972)
- 10) Matsusaka, N. and Inaba, J. : Whole-
body retention of ^{86}Rb in the
young and adult mice. Radioisotopes
16, 78-82(1967)
- 11) Inaba, J. Nishimura, Y. , Ichikawa, R.
and Takeda, H. : Effect of age on the
intestinal absorption and whole-
body retention of some important
radionuclides in rats. Proceedings
Second Asian Regional Congress on
Radiation Protection 49, (1979)
- 12) 西村義一、稲葉次郎、市川龍資：幼若期ラット
における ^{106}Ru 化合物の代謝について、幼若児に
おける放射性核種代謝の特殊性に関する研究(Ⅲ)
保健物理、17、497-483(1982)
- 13) Miller, S. T. , Cotias, G. G. and
Evert, H. A. : Controle of tissue
manganese : Initial absence and
sudden emergence of excretion in
the neonatal mouse. Am. J. Phsiol.
229, 1084(1975)
- 14) 香川多津子、細田信子、二宮ルリ子、小泉直子、
塚本利之：マンガンの母仔間移行、第39回日本
公衆衛生学会総会講演集 27、742(1980)
- 15) 万年 甫：脳血液関門、その形態学的側面、科
学、42、656-664(1972)
- 16) Nishimura, Y. , Inaba, J. and Ichik-

- awa R. : Fetal Uptake of $^{60}\text{CoCl}_2$ and ^{57}Co -cyanocobalamin in different gestation stages of rats. J. Rad. Res. 19, 236-245 (1978)
- 17) Inaba, J., Nishimura, Y. and Ichikawa, R. : Metabolism of ^{65}Zn in Juvenile rats. (2) Prenatal and postnatal transfer of ^{65}Zn . J. Rad. Res. 22, 68 (1981)
- 18) 西村義一、稲葉次郎、市川龍資：ラットにおける ^{125}Sb の体内代謝について 2、胎児期および幼若期ラットでの挙動。保健物理学会第17回大会講演要旨集、91 (1982)
- 19) 石沢正一、吉田暢夫、岡田恭子、田中晴美：胎便中のマンガン。医学と生物学 81、189-191 (1909)

2-2 幼若期ラットにおける ^{65}Zn の代謝

環境衛生研究部 西村義一、稲葉次郎、市川龍資

On the Metabolism of ^{65}Zn in Juvenile Rats.

Division of Environmental Health

Yoshikazu NISHIMURA, Jiro INABA and
Ryushi ICHIKAWA

(緒 言)

誘導放射性物質として重要な核種の一つである ^{65}Zn の幼若期動物における代謝特性を明らかにすることを目的に、経口投与した ^{65}Zn の全身残留および母仔移行の様相をラットを実験動物として用いた観察を行った。

(実験方法)

放医研動植物管理課で生産・供給しているWis-tar系のラットを実験に使用した。

(1) 0日齢、13日齢、21日齢、40日齢および90日齢のラットに $^{65}\text{ZnCl}_2$ を1回、経口投与した。投与後、ラットはただちにポリスチレン製のコンテナに入れ、アーマックカウンターで全身計測を行って投与量を定めた。その後、適当な日数間隔をもって体内残留率の経日変化を観察した。また静脈内投与が可能な年齢のラット(23日齢、40日齢および90日齢)には1回、尾静脈内投与を行い、体内残留率の経日変化を調べ、あわせて主要臓器における ^{65}Zn の分布についても観察した。

(2) 妊娠前期・中期・後期のラットに $^{65}\text{ZnCl}_2$ を1回、尾静脈内投与し、foster mother法(投与動物の仔と無投与動物の仔を分娩と同時に半数を交換し、胎盤あるいは母乳由来の物質取り込みを観察する方法)により、新生児への ^{65}Zn の移行、母乳からの取り込みについての観察を行った。

(3) $^{65}\text{ZnCl}_2$ を妊娠後期のラットに1回、尾静脈内投与し、そのまま分娩させ、仔を哺育させた。この哺乳期ラットの離乳を早めたり遅らせたりすることにより、体内残留率に及ぼす影響を調べてみた。また、 $^{65}\text{ZnCl}_2$ を尾静脈内投与した母ラットの母乳を手しほり法により採取し、これをラットに投与

し、 $^{65}\text{ZnCl}_2$ 単独投与のものと比較した。

(結果および考察)

新生児から成熟ラットまで、さまざまな年齢のラットに $^{65}\text{ZnCl}_2$ を1回、経口投与した時の体内残留率の経日変化を図-1に示した。離乳児、若成熟、成熟ラットでは消化管吸収率は10~20%の範囲にあった。これに対して、新生児と哺乳児では消化管からほぼ100%が吸収され、幼若齢ラットほど体内残留率が高いという年齢依存性が観察された。離乳後の体内残留率の変化は認められなかった体内残留曲線はいずれの年齢のラットともほぼ平行関係にあり、ゆるやかな相における生物学的半減期は約45日と推定された。静脈内投与群においては23日齢、40日齢、90日齢ラット間に大きな差はみられず、投与後21日目ですべて投与量の53.7、52.0および47.0%という値を示した。13日齢の哺乳児および21日齢の離乳児に $^{65}\text{ZnCl}_2$ を経口投与し、21日後の臓器分布を比較してみると、両年齢間に差は観察できず、肝、腎に多く分布していた。濃度にすると骨への集積が顕著で、およそ5%が骨1g中にあった。

著者らは ^{65}Zn 以外の核種についても同様の観察を行っているが、ほとんどの核種において幼若動物の方が成熟動物よりも高い体内残留を示すことが認められている。さらに、幼若期と成熟動物の体内残留曲線の比較からおよそ以下の3つの型に分けられる(図-2)。I. ^{144}Ce 、 ^{106}Ru 、 ^{51}Cr 、 ^{110m}Ag などのいわゆる難吸収性核種で、成熟動物では消化管からほとんど吸収されない。幼若動物では、始めは高い体内残留率を示すが離乳が近づくとつれて急激に体内残留率を減少させるという上に凸の特異な残留曲線を描く。

離乳後の残留率はさほど高くない。

II. ^{60}Co 、 $^{115\text{m}}\text{Cd}$ 、 ^{203}Hg 、 ^{125}Sb などIと同じく難吸収性核種で成熟動物での消化管吸収率は良くない。しかし幼若児では成熟動物よりも消化管吸収率は高く、離乳後もIのような特異な残留曲線を描かずゆるやかに体内残留率を低下させる。

III. ^{65}Zn 、 ^{54}Mn 、 ^{59}Fe 、 ^{90}Sr など成熟動物での消化管吸収率は高い。幼若動物ではほぼ100%が消化管から吸収され、ゆるやかに体内残留率を減少させる。 ^{54}Mn のように上に凸の残留曲線を描くの

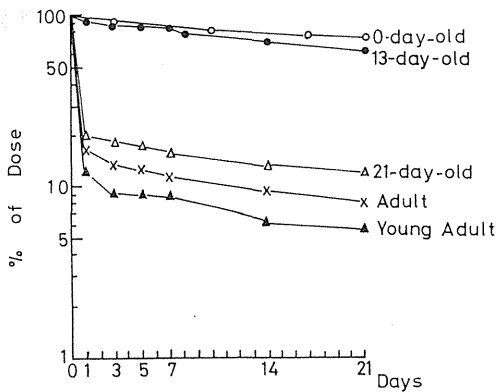


Fig.1 Whole-body Retention of $^{65}\text{ZnCl}_2$ in Rats of Various Ages after a Single Oral Administration.

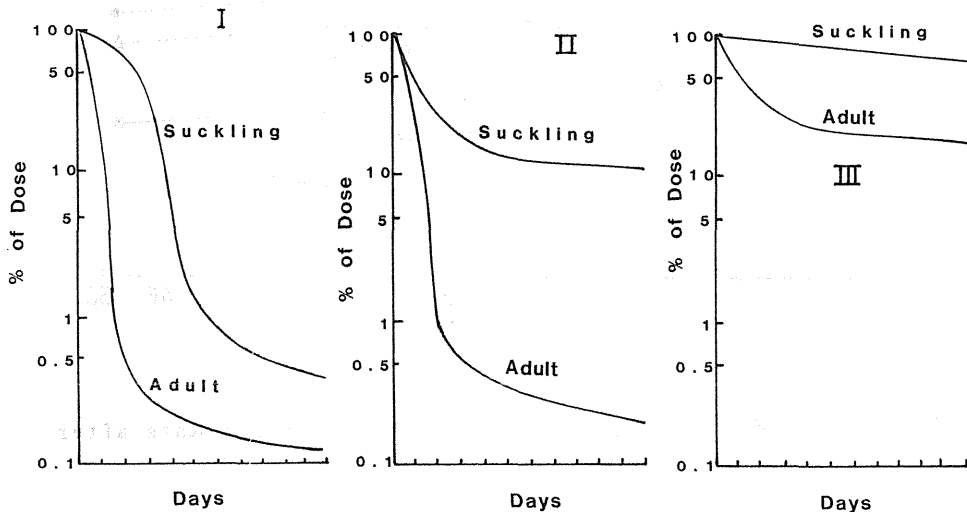


Fig.2 Whole-body Retention of Many Radionuclides in Adult and Suckling Rats after a Single Oral Administration.

もあるが、残留率は極めて高い。

この分け方は著者らが塩化物を用いた実験から行ったもので、化学形が異なれば当然違った形になってこよう。 $^{65}\text{ZnCl}_2$ はIIIの典型的な核種である。このように幼若動物ではほぼ100%が消化管から吸収される核種は胎盤通過性あるいは母乳からの移送も多くなることが予想される。妊娠7、14および20日目のラットに $^{65}\text{ZnCl}_2$ を尾静脈内投与しfoster mother法を用いて胎盤および母乳由来の ^{65}Zn の量を調べたものを図3、4、5に示した。胎盤を経由して新生児へ移行する。 ^{65}Zn は、妊娠後期に投与したラットほど高く、妊娠20日目のラットでは分娩時に新生児1匹あたり約3%、一腹にすると30%が移行していた。また、母乳からの移行量も妊娠後期に投与したラットほど多い傾向が認められ、妊娠20日目のラットで哺乳期間中に哺乳児1匹あたり1.5%、一腹にすると15%が母乳を介して移行した。胎盤と母乳の両者をあわせると、妊娠20日目のラットでは投与量の50%近くが仔に移行したことになる。

次に、哺乳児でなぜ高い体内残留率を示すのかを調べる目的の実験を行った。まず、離乳前(19日齢)のラットに $^{65}\text{ZnCl}_2$ を経口投与し、そのまま固型飼料に強制離乳させると、消化管吸収率は30

%ほどで21日齢ラットよりも若干高い体内残留率を示した。これに対して16日齢の哺乳児に $^{65}\text{ZnCl}_2$ を経口投与し、そのまま母親に哺育させるとほぼ100%が消化管から吸収される。この16日齢ラットに固型飼料を摂取させないように厳重な飼料管理を行い、半数を19日目で強制離乳させ、残りは21日目で正規に離乳させた。この結果強制離乳させた群での体内残留率の変化は認められず、哺乳児の高い体内残留率は母乳、飼料の影響によるものではなく、消化管側の要因が大きいことが示唆された(図-6)。さらに分娩直前の妊娠ラットに $^{65}\text{ZnCl}_2$ を尾静脈内投与し、分娩2日後に手しほりにより母乳を採取した。これを離乳期ラットに投与する

ことによる体内残留率の変化を観察した。コントロールとして $^{65}\text{ZnCl}_2$ 単独投与のものとR I freeのラットミルクに $^{65}\text{ZnCl}_2$ を添加したものを用意した。結果は図-7に示したが、各群との間に有意な差は観察されなかった。このことから、哺乳児の消化管吸収率が高いのはミルクを飲んでいることによるものではないものと推測された。

(研究発表)

- 1) 西村、稲葉、市川：幼若期ラットにおける ^{65}Zn の代謝についてその1 第23回日本放射能影響学会、長崎(1980)
- 2) 稲葉、西村、市川：幼若期ラットにおける ^{65}Zn の代謝についてその2 第23回日本放射能影響学会、長崎(1980)

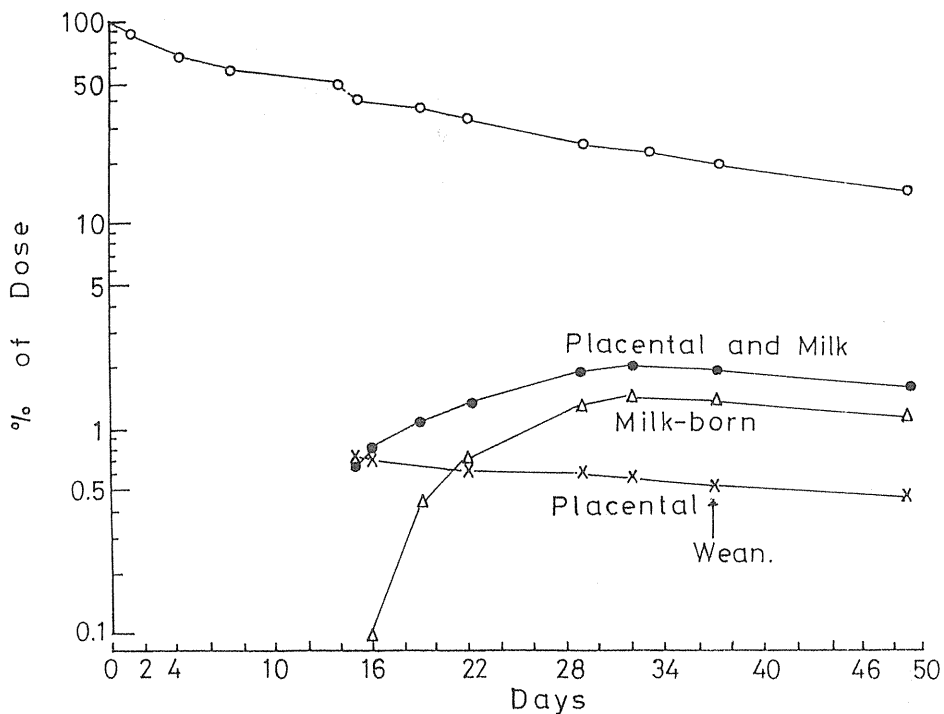


Fig.3 Whole-body Retention of $^{65}\text{ZnCl}_2$ in 7-day Pregnant Rats after Intravenous Administration.

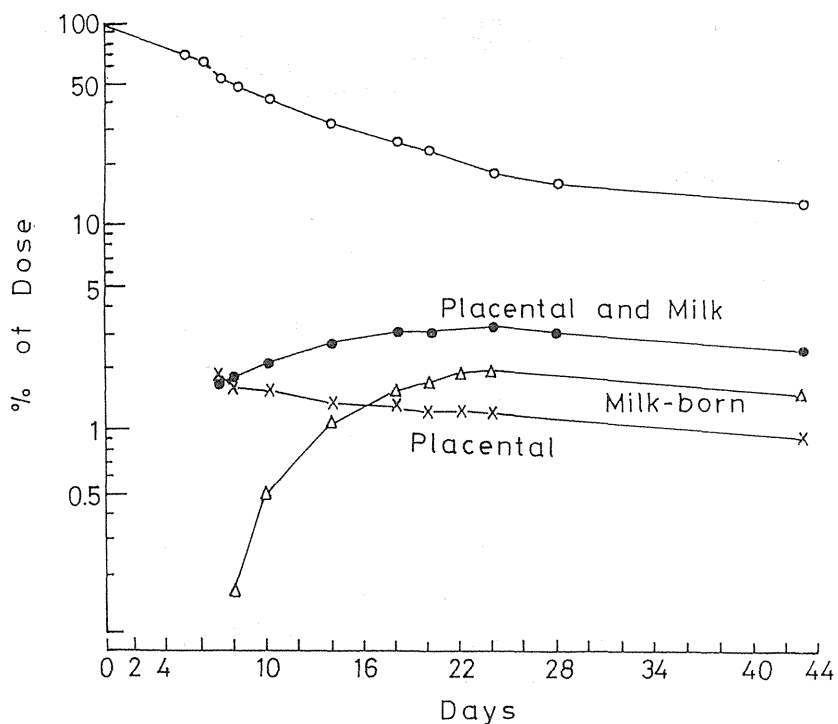


Fig.4 Whole-body Retention of $^{65}\text{ZnCl}_2$ in 14-day Pregnant Rats after Intravenous Administration.

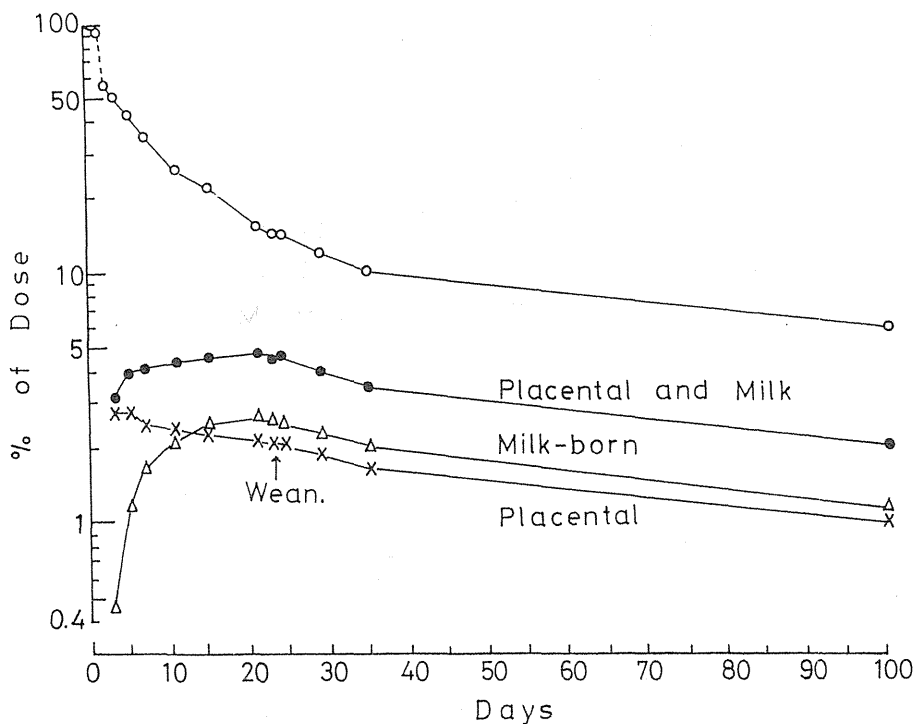


Fig.5 Whole-body Retention of $^{65}\text{ZnCl}_2$ in 20-day Pregnant Rats after Intravenous Administration.

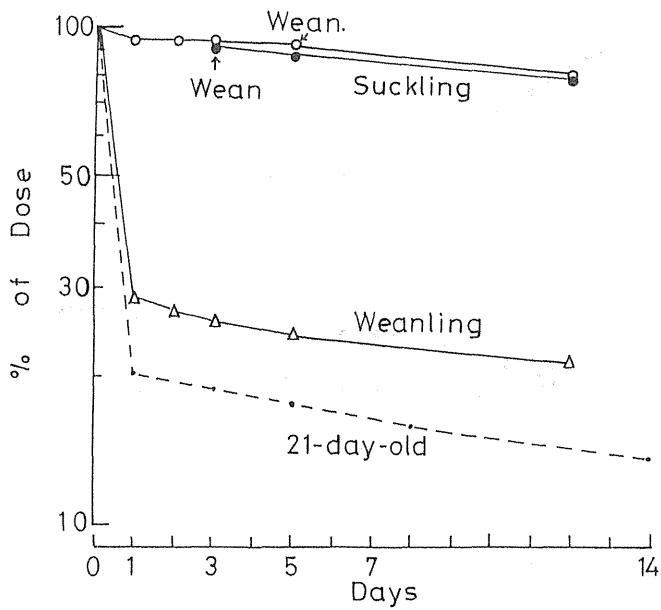


Fig.6 Whole-body Retention of $^{65}\text{ZnCl}_2$ in Suckling and Weanling Rats after a Single Oral Administration.

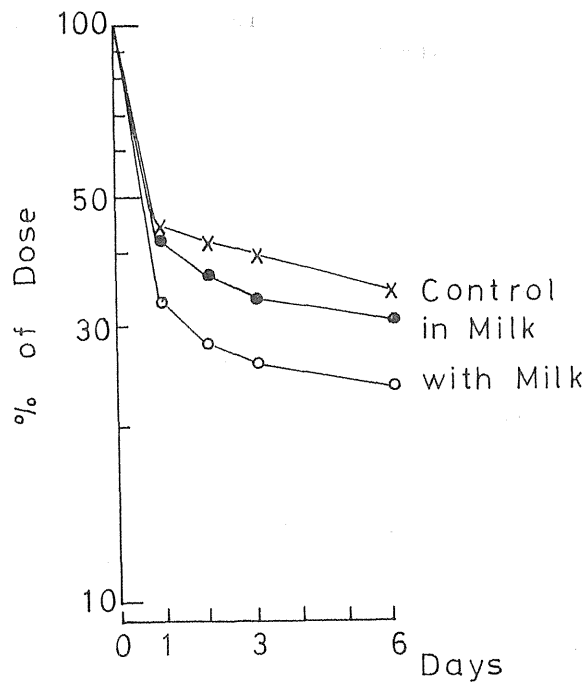


Fig.7 Whole-body Retention of $^{65}\text{ZnCl}_2$ in 21-day-old Rats after a Single Oral Administration.

2-3 ラットにおける放射性アンチモンの代謝

環境衛生研究部

稲葉次郎、西村義一、木村健一、市川龍資

Studies on the Metabolism of Antimony-125 in the Rat

Division of Environmental Health

Jiro INABA, Yoshikazu NISHIMURA,

Ken-ichi KIMURA and Ryushi ICHIKAWA

(緒言)

^{125}Sb は核分裂生成物であると共に Sn の中性子放射化によっても生成され、 β 崩壊により安定な ^{125}Te になるが、その物理的半減期は 2.7 年と比較的長い。かつて核実験フォールアウト中に検出されたことがあるが、最近では使用済核燃料の再処理に関連した職場で問題をされたり、また TMI 事故時の原子炉建屋内にたまった大量の汚染水の中に比較的多量に検出されたことで注目されており、原子力平和利用に起因する環境放射能として無視し得ない放射性核種の一つである。しかし、この核種の体内代謝に関する研究はあまり多くない。さらに、この元素は一般的化学毒性の観点による環境汚染物質の一つであるが、その毒性は非常に高いわけでもないが、栄養学あるいは衛生学上の関心もあまり高くなく、その観点からの研究もあまり多くない。ここでは、体内被曝線量の計算に用いるための体内代謝情報の精度向上を目的に、動物実験を行った。

(実験方法)

英国 R C C 製の ^{125}Sb 塩化物塩酸溶液 (carrier free) を日本アイトープ協会より入手し、生理的食塩水で希釈したものを実験に用いた。実験動物は放医研動植物管理課が生産供給しているウィスター系ラットを用い、特別に記載のない時は全て成熟雄ラット (体重約 300g) である。放射能測定にはアーマックカウンターを用い、ファントムにより自己吸収の補正を行った。

1. 成熟ラットでの全身残留、排泄、臓器分布

ラットに ^{125}Sb 液を胃カテーテルを用いてあるいは尾静脈内に 1 回投与し、1 匹用メタボリズムケー

ジまたは通常の金網製 5 匹用ケージで飼育し、投与直後およびその後経時的に全身放射能を測定した。また、糞と尿に分けた排泄物およびト殺した動物の種々の臓器中放射能も合せ測定した。

2. 全身残留の年令依存性と母仔移行

新生児を含む種々の年令のラットに ^{125}Sb を経口投与して全身残留を観察した。また、妊娠ラットに ^{125}Sb を尾静脈投与し、 ^{125}Sb の新生児への経胎盤移行を観察すると共に、継母法あるいは出産後の母親に ^{125}Sb を尾静脈投与する方法により、母乳を介しての哺乳児への移行の様相を観察した。

3. 赤血球中 ^{125}Sb の性質とそれを経口投与した時のラット体内残留

哺乳期ラットに ^{125}Sb を経口投与、それが成熟してから採血し、遠沈により赤血球を採取した。これを膜成分およびヘモグロビンに分け、それぞれについて放射能を測定した。また、これらを成熟非汚染ラットに経口投与し、体内残留を観察した。

(実験結果および考察)

1. 成熟ラットでの全身残留、排泄、臓器分布

成熟ラットに ^{125}Sb を経口投与あるいは静脈内投与した時の全身残留を Fig. 1. に示した。経口投与した時の消化管吸収率は小さく、体内残留はきわめて小さいものであった。静脈内投与の場合は経口投与した場合よりも一桁高い体内残留率を示し、排泄の経路はほとんどが尿である。なお、グラフにはあらわれていないが、5 匹用ケージを用いた実験では動物体表面のクロスコンタミネーションチェック用に RI 無投与のラットを同一ケージ内で ^{125}Sb 投与ラットを同居させたが、同居の数時間の後にはそれ

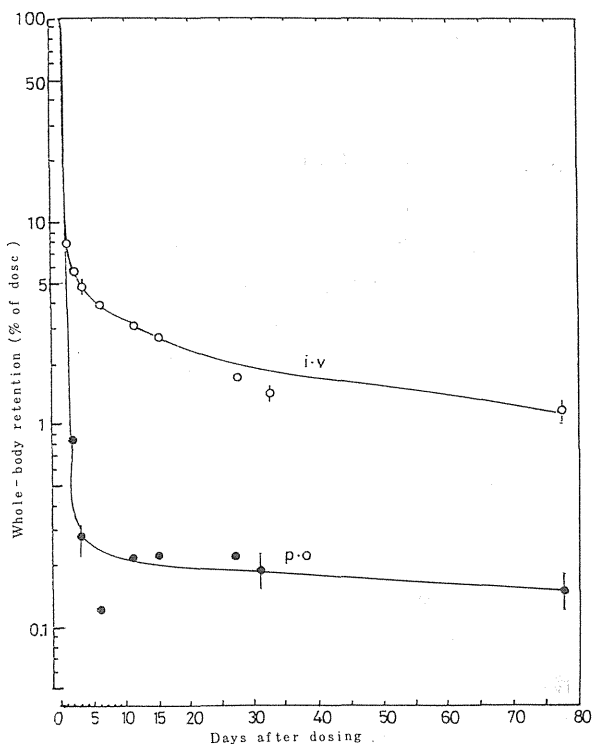


Fig. 1 Whole-body retention of ^{125}Sb in adult rat after single oral and intravenous administration

が高濃度に汚染されること、ただし、この汚染はすみやかに消失することを観察している。

全身残留は投与後初期には急激に低下するが、その後はきわめてゆるやかな低下となる。また、 ^{125}Sb は主として血液中に存在し、この傾向は時間の経過にかかわらず、投与後数ヶ月しても最大濃度は血液で見られる。

2. 全身残留の年齢依存性と母仔移行

結果の一部をFig 2.に示した。哺乳期ラットでは成熟ラットあるいは離乳ラットに比べて消化管吸収率がきわめて大きく、全身残留は約2桁高い値となった。この際、消化管内での滞留は顕著ではなかった。また、一担吸収された ^{125}Sb は容易には排泄されない。

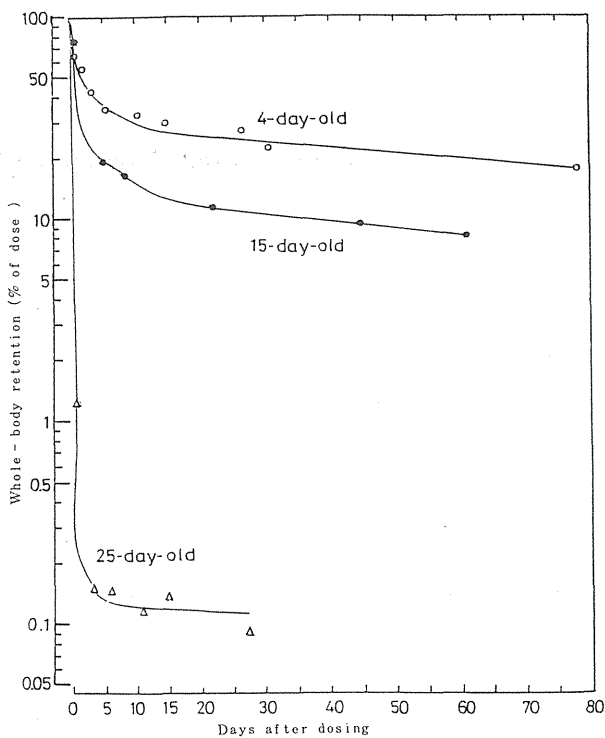


Fig. 2 Whole-body retention of ^{125}Sb in juvenile rat after single oral administration

母仔移行はきわめて小さいことが分った。すなわち、胎盤を経由しての新生児への移行は観察されたが、量的にはきわめて小さいものであった。また、母乳を介しての哺乳児への移行は測定できないほどわずかであった。

3. 赤血球中 ^{125}Sb の性質とそれを経口投与した時のラット体内残留

哺乳期に ^{125}Sb を経口投与し、その約100日後に殺したラットにおいて、 ^{125}Sb は主として血液中に存在するが、そこでは赤血球と結びついており、白血球あるいは血清部分の濃度はきわめて低い。赤血球を溶血させて膜成分を採取したが、その放射能はわずかに残るヘモグロビンの寄与と思われるものであり、膜成分との結びつきは弱く、 ^{125}Sb は主と

してヘモグロビンに組み込まれて存在すると考えられる。

^{125}Sb 標識赤血球あるいはヘモグロビンを成熟ラットに経口投与したところ、きわめて高い消化管吸収率が見られた。また、一度吸収されたものの排泄はゆるやかであった。すなわち、経口投与後7日目の全身残留は投与量の約70%であった。ちなみに ^{125}Sb 液を単独で、あるいは ^{125}Sb 液を非汚染赤血球あるいはヘモグロビンと混合して経口投与したコントロールでのその値は0.4%付近であった。

以上の実験結果から、 ^{125}Sb は離乳以降の動物では、経口投与あるいは静脈内投与の方法にかかわらず、体内残留が小さいことが分ったが、哺乳期ラットではそれがきわめて高いこと、体内に残留したものは主として赤血球を結びついており、したがって

全身がほぼ均等に被曝すること、また、赤血球に結びついた ^{125}Sb は成熟ラットによっても容易に吸収され、高い全身残留を示すなど、アンチモンの特徴的体内挙動の様相を明らかにすることができた。

(研究発表)

- 1) 稲葉次郎、西村義一、市川龍資：ラットにおける ^{125}Sb の体内代謝について 1. 成熟ラットでの挙動 2. 胎児期および幼若期ラットでの挙動、第17回日本保健物理学会、東海村(1982)
- 2) 稲葉次郎、西村義一、市川龍資：ラットにおける放射性アンチモンの代謝、日本放射線影響学会第25回大会、秋田(1982)
- 3) 稲葉次郎、西村義一、市川龍資：ラットにおける ^{125}Sb の体内代謝について(3)、第18回日本保健物理学会、東京(1983)

2-4 幼若期における超ウラン元素の生物体内挙動 および化学形・共存物質の影響

環境衛生研究部

岡林弘之、白石義行、内山正史、稲葉次郎

西村義一、市川龍資

Studies on the behavior of transuranic unclides in the body of juvenile stages and the effect due to their physicochemical states and coexisted materials.

Division of Environmental Health

Hiroyuki OKABAYASHI, Yoshiyuki
SHIRAIISHI, Masafumi UCHIYAMA,
Jiro INABA, Yoshikazu NISHIMURA
and Ryushi ICHIKAWA

(緒言)

プルトニウムをはじめ各種の超ウラン元素が核爆発実験によって生成し、広範囲に地球上に分布している。また原子力平和利用の進展に伴って種々の超ウラン元素が環境中に放出されるおそれがある。環境中に放出された超ウラン元素は経口、経気道、経皮膚という経路から体内にとりこまれ種々の臓器に蓄積されている。

これら超ウラン元素のうち、プルトニウムについては多くの動物実験、剖検試料中の濃度測定などの結果から体内挙動についてある程度の推定が行われているが幼若期の体内挙動、および摂取された際の核種の化学形、その時の共存物質による摂取後の体内挙動についてはなお不明の点が多い。そこでわれわれは母親から胎児への超ウラン元素の移行、超ウラン元素摂取時の共存物質が体内挙動に与える影響などをしらべる目的でこの研究を行った。

(研究経過)

プルトニウムの動物体内における濃度を測定するために、放医研において通常の固形飼料(船橋農場製、マウス・ラット繁殖用飼料)で飼育したWistar系の成熟ラット(日齢175~300日、♂15匹♀5匹)の主要臓器。組織について ^{239}Pu ・ ^{240}Pu の定量を行った。この固形飼料はプルトニウム含

有量の比較的多い牧草粉末、魚粉などを原料としているために、プルトニウム濃度が高いことが予想されるので、プルトニウムの濃度を高めるおそれのある牧草、魚粉を含まないプルトニウム含有量が少いと思われる低ヨード飼料(蛋白源に脱脂乳、炭水化合物として α 、 β 両澱粉を混合したもの)で飼育したラット、すなわち、生後6~7カ月間は固形飼料で飼育した後、10日~2カ月間低ヨード飼料で飼育したWistar系成熟ラット(♂20匹)についても同様に ^{239}Pu ・ ^{240}Pu 濃度を測定した。

これらラットの飼育に使用した二種類の飼料のほか固形飼料でラットを飼育している飼育室の空気、固形飼料で飼育したラットの出産直前の胎児、胎盤についても夫々含まれている ^{239}Pu ・ ^{240}Pu の濃度を測定した。

また超ウラン元素の臓器内分布は不均一と考えられ、特にラットの肝臓は多くの葉に分かれているので各葉中の ^{239}Pu ・ ^{240}Pu ・ ^{241}Am 濃度を測定するために、通常の固形飼料で飼育したラット(1.2年、♂5匹)の肝臓を図1に示すように1~8葉に分けて採取し、各葉に含まれているPu・Amの濃度測定を行った。

(分析試料と分析方法)

(1) 分析試料:Wistar系ラットはエーテル麻醉

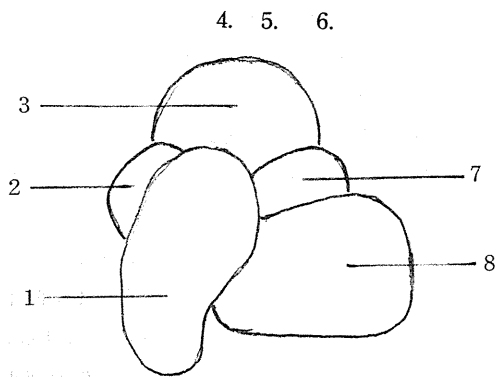


図1 ラット肝臓の各肝葉位置

ラットを背位にして解剖時に、開腹した際、最も腹壁に近い肝葉を1として、背中に向かって左側から時計廻りの方向に、順に2.3.4.……8.とした。

後股動脈脱血死させ、各臓器、組織を採取した。骨試料としては左右の大腿骨を採取し、消化管・胃は出来るだけ内容物を除去して試料とした。臓器はその全量を分析に用い筋肉は大腿骨周辺のもの採取した。

各臓器・組織は5匹分をまとめて1試料とし、頭・尻残部(臓器・組織を採取した残り)は1匹分づつを夫、1試料とした。飼育室内の空気はミリポアフィルターA A、孔径0.8 μ 、フィルター径47mmを用い、ポータブルダストサンプラーにて室内2カ所で集塵した。毎日約7時間づつ新しい漏紙で集塵し、5日間連続して行い、その1カ所当り5枚の漏紙を1試料として分析した。

固形飼料は船橋農場製のマウス・ラット繁殖用飼料、低ヨード飼料は蛋白源に脱脂乳、炭水化物として α 、 β の両澱粉を混合したもので飼料50gを夫々1試料とした。

胎児と胎盤は出産直前の母ラットから開腹採取した。胎児は2腹分(1腹7匹と13匹)を7匹、7匹、6匹の3試料とし、胎盤は7匹分、13匹分を夫々1試料とした。各葉別に採取した肝臓は各葉5匹分を1試料とした。

(2) プルトニウム分析法：プルトニウムの分析は放射線審議会測定部会で検討した方法に準じて行った。すなわち、各試料(飼育室の浮遊塵を採取した

ミリポアフィルター試料を除く)は秤量後ビーカーに入れ、 ^{236}Pu 標準溶液を1試料当り0.5 dpm程度加え、濃硝酸・過酸化水素水を用いて砂浴上で湿式灰化を行った。ミリポアフィルターは1試料毎にビーカーに入れ、 ^{236}Pu 標準溶液添加後、濃硝酸、過酸化水素水による湿式灰化を行った。湿式灰化後試料を8M硝酸溶液としたが、この際不溶性残渣がある場合には、この試料溶液をNo.6の漏紙で漏過し、漏紙上の残渣は漏紙と共に白金皿に入れ450℃のマッフル炉で灰化した。白金皿中の灰は弗化水素酸処理をした後、8M硝酸溶液に溶解し、先の漏液に合せて試料溶液とした。

試料溶液はあらかじめ8M硝酸溶液でコンディショニングしておいた陰イオン交換樹脂カラム(Dowex 1 \times 8, 100~200メッシュ、内径15mm、樹脂の高さ約70mm)を通し、溶液通過後8M硝酸溶液100ml、10M塩酸溶液200mlを流して樹脂に付着した夾雑物を除去した。樹脂通過液、樹脂洗滌液はアメリカウムを含んでいるので、後でアメリカウムを定量するために保存した。

樹脂に吸着したプルトニウムは稀弗化水素酸硝酸溶液(弗化水素酸0.5ml、硝酸60mlを水に溶解し全量を1,330mlとした)50mlで溶離した。プルトニウムを含んだ溶離液は100mlのビーカーに入れ、砂浴上で蒸発し、1mlの過塩素酸を加えて砂浴上で過塩素酸の白煙が出なくなるまで加熱した。冷後ビーカー中の残渣を5mlの1:9硫酸溶液に加温溶解した。稀硫酸溶液とした試料溶液にメチルレッド指示薬1滴を加え、濃アンモニア水を滴下し、指示薬が丁度黄色を示した時に1:9硫酸溶液を滴下し、液が丁度紅色を呈した時に更に余分に1滴硫酸溶液を加えた。この時の試料溶液のpHは約2.5であった。pH調製を終えた試料溶液は、ステンレススチール板を装着した電着容器に移し、ビーカーは少量の蒸留水で洗滌し、洗液は電着容器に加えた。

陰極のステンレススチール板と陽極の白金線の距離を約5mmとし、12V(1~2A)の直流を2時間通して電着を行った。電着終了時に、電流を通したまま、濃アンモニア水1mlを電解液に加え、

1 分間電流を通した後、電流を止め、電着容器を解体してステンレススチール板をとり出し、蒸留水で洗滌後赤外線ランプで乾燥し、高周波誘導加熱器で赤くなるまで加熱した。冷後ステンレススチール板上の α 放射能は、半導体検出器を接続したパルスハイアナライザーで α 線スペクトルをとり、プルトニウムの量を測定し、添加した ^{236}Pu のスペクトルから収率を計算した。

この方法で測定した場合に、 ^{239}Pu と ^{240}Pu から放出される α 線エネルギーは近似して、分けることが出来ないで、この報告では $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ の値を $^{239} \cdot ^{240}\text{Pu}$ として示した。

(3) アメリシウム分析法：アメリシウムの定量は D. Knab の方法 (Anal. Chem. 51/67 1.095~1.097, 1979) に準じて行った。すなわちプルトニウムを分離した時の樹脂通過液・樹脂洗滌液を合せてビーカーに入れ蒸発乾涸し、濃塩酸を加えて蒸発乾涸する操作を3回くり返し、試料を塩酸形にして0.5 M塩酸溶液に溶解して試料溶液とした。試料溶液はあらかじめ0.5 M塩酸溶液でコンディショニングしておいた陽イオン交換樹脂カラム (Dowex 50Wx8, 100~200メッシュ、内径15mm、樹脂の高さ約100mm) に注入した。ビーカーを少量の0.5 M塩酸溶液で洗い洗液をカラムに注入した後、2 M塩酸溶液130mlを50ml、80mlの2回に分けてカラムに注入し、樹脂に吸着した夾雑物を除去し、樹脂に吸着したアメリシウムを4 M塩酸溶液90mlで溶離した。アメリシウムを含んだ溶離液は100 mlのビーカーに入れ、硝酸5 mlを加えて砂浴上で蒸発し、ビーカー中の残渣を6 M硝酸溶液2 mlに溶解した。この6 M硝酸溶液に亜硝酸ソーダを飽和させたエタノール3 mlを加え、あらかじめ60%エタノール、40%6 M硝酸溶液でコンディショニングしておいた陰イオン交換樹脂カラム (Dowex 1x8, 100~200メッシュ、内径15mm 樹脂の高さ約100mm) に注入し、ビーカーは少量の60%エタノール・40%6 M硝酸溶液で洗滌し、洗液をカラムに注入した後、75%メタノール・25%硝酸溶液80 ml、60%メタノール・40%6 M硝酸溶液80 mlで

樹脂を洗滌し、樹脂に吸着したアメリシウムを60%メタノール・40%2.5 M硝酸溶液80 mlで溶離した。溶離液は100 mlのビーカーに入れ砂浴上で蒸発し、乾涸後塩酸5 mlを加えて乾涸する操作を2回くり返した後、ビーカー中の残渣を1 M塩酸溶液2 mlと飽和塩化アンモニウム溶液0.5 mlに溶解した。この液にメチルレッド指示薬を1滴加えてから濃アンモニア水を指示薬が黄変するまで滴下し、次に1 M塩酸溶液を滴下して液が丁度紅色を呈するようにした。この溶液をステンレススチール板を装着した電着容器に移し、ビーカーは少量の蒸留水で洗滌して洗液は電着容器に加え、電解液は5 mlを超えないようにした。陰極のステンレススチール板と陽極の白金線の距離は約5 mmとし、12 V (1~2 A) の直流を1時間通じて電着を行った。電着終了時に電流を通したまま5%アンモニア水10 mlを電解液に加えてから電流を止め、電着容器を解体してステンレススチール板をとり出し、蒸留水で洗滌し赤外線ランプで乾燥後、高周波誘導加熱器で灼熱した。冷後ステンレススチール板上の α 放射能を半導体検出器を接続したパルスハイアナライザーで α 線スペクトルをとり、アメリシウムの量を測定した。この定量法では、 ^{243}Am の標準溶液を試料に添加して化学収率を測定すべきであるが、 ^{243}Am の標準溶液が入手出来ないで、この分析法の収率をしらべるために IAEA製の ^{241}Am 標準溶液を、正確に2分した試料溶液の一方に加え、両試料溶液を全く同じ処理をして ^{241}Am を定量したところ、添加した ^{241}Am の74%~93%、平均83.3%が回収された。

(測定結果ならびに考察)

固形飼料のみで飼育したラットの臓器・組織中の $^{239} \cdot ^{240}\text{Pu}$ 濃度は表1の通りであった。雌雄の差・日齢差は明かでなかった。各臓器・組織中に $^{239} \cdot ^{240}\text{Pu}$ が認められたが、脾臓中の濃度が最も高かった。プルトニウムは主として骨と肝臓に蓄積するといわれているが、硝酸プルトニウムのエアロゾルを吸入したラットの場合に、吸入後の日数経過に従って、脾臓の濃度増加が認められ、また人体臓器の測定結果でも比較的脾臓の濃度が高い値を示している。

表1 固形飼料のみで飼育したラット臓器・組織内 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 濃度

臓器・組織	$^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ fCi/g	臓器・組織	$^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ fCi/g
頭	1.9 ± 0.24	生殖器	3.2 ± 0.45
肺	18 ± 2.3	消化管	3.7 ± 0.45
心臓	22 ± 2.6	大腿骨	5.9 ± 0.86
肝臓	4.2 ± 0.48	筋肉	1.1 ± 0.17
脾臓	49 ± 5.2	血液	6.1 ± 0.62
腎臓	10 ± 1.6	屍残部	1.2 ± 0.40

プルトニウムは血液中で鉄を含んだ transfer-
rin 蛋白と結合するといわれているが、脾臓は造
血臓器であり、鉄の含有量が高い。このような機構
でプルトニウムが脾臓に蓄積すると思われ、肝臓・
骨と共に脾臓中のプルトニウム濃度も見逃すことが
出来ない。

その他の臓器では、心臓と肺が高い値を示した。
この点については次のようなことが考えられる。ラ
ットの飼育ケージは餌箱がケージの上面にあり、ラ
ットが下から餌を食べるようになるので餌にプルト
ニウムが含まれていれば餌を食べる時にそのプルト
ニウムが餌の粉末と一緒に落ちてくるので、それを
吸入したためではないかと考えられる。そこで固形
飼料中の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 濃度を測定したところ 1g
当り 1.2 ± 0.2 fCi の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ が検出された。

プルトニウム含有量の異った飼料で飼育した場合
の臓器・組織内 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 濃度を知るために、
生後6~7カ月間は固形飼料で飼育した後、10日

~2カ月間低ヨード飼料で飼育したラットの臓器中
 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ ・ $^{241} \text{Am}$ 濃度を測定したところ表2
に示す結果が得られた。表1に比べて $^{239} \cdot ^{240}$
 Pu 濃度は低く、脾臓・腎臓では約1/10、肝臓
では1/6、骨では1/2.4となった。低ヨード飼
料中の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 濃度は 0.3 ± 0.2 fCi/g
で固形試料の牧草、魚粉などプルトニウム含有量の
多い原料を除いた飼料による動物体内の $^{239} \cdot ^{240}$
 Pu 濃度減少が示された。なお牧草粉末には $1.2 \pm$
 $0.6 \sim 2.1 \pm 0.3$ fCi/g の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ が含まれ
ていた。

固形飼料で飼育した妊娠ラットから分娩直前に胎
児・胎盤を取り出し、 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ を測定したとこ
ろ、胎児・胎盤中の濃度は1g当り夫々 0.8 ± 0.3
fCi, 2.6 ± 1.4 fCi で胎児1匹、胎盤1箇当
りの平均値は夫々 3.6 ± 1.5 fCi, 1.6 ± 0.9 f
Ci となり、胎盤がプルトニウムに対して障壁とな
っていることは明かであるが、母体から胎児にプ

表2 固形飼料で飼育後低ヨード飼料で飼育したラット臓器・組織内
 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ ・ $^{241} \text{Am}$ 濃度

臓器・組織	$^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ fCi/g	$^{241} \text{Am}$ fCi/g
肝臓	0.72 ± 0.15	0.09 ± 0.03
脾臓	4.9 ± 1.7	1.2 ± 0.51
腎臓	1.1 ± 0.29	検出せず
生殖器	1.6 ± 0.35	0.41 ± 0.12
消化管	2.7 ± 0.66	検出せず
大腿骨	2.5 ± 0.65	検出せず
筋肉	0.32 ± 0.13	0.12 ± 0.03

トニウムが移行していることも認められた。

プルトニウムは臓器内で不均一に分布し、かつ肝臓は多くの葉に分かれているので、ラット肝臓の各葉の間に $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 濃度差があるか否かをしらべ

るために、1.2年固形飼料で飼育したラットの肝臓を各葉別に採取し、 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu} \cdot ^{241} \text{Am}$ を測定したところ、表3に示すような結果が得られ、各葉中の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 濃度に明らかな差が認められた。

表3 固形飼料のみで飼育したラット肝臓の各肝葉中の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu} \cdot ^{241} \text{Am}$ 濃度

部 位	$^{239} \cdot ^{240} \text{Pu} \cdot \text{fCi/g}$	$^{241} \text{Am} \cdot \text{fCi/g}$	部 位	$^{239} \cdot ^{240} \text{Pu} \cdot \text{fCi/g}$	$^{241} \text{Am} \cdot \text{fCi/g}$
肝 - 1	2.6 ± 0.4 7	0.3 6 ± 0.0 9	肝 - 5	1 2 ± 2.5	1.0 ± 0.3 9
肝 - 2	4.5 ± 0.8 8	0.4 3 ± 0.1 6	肝 - 6	8.7 ± 2.4	2.9 ± 0.8 1
肝 - 3	2.1 ± 0.6 1	0.1 8 ± 0.0 6	肝 - 7	3.7 ± 1.2	0.3 8 ± 0.1 8
肝 - 4	1 9 ± 4.2	1.7 ± 0.5 0	肝 - 8	2.5 ± 0.5 6	0.1 3 ± 0.0 7

ラットの肝臓は4葉あるいは6葉に分かれているといわれているが、われわれが解剖したところでは8葉が認められた。然し各葉に含まれている $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu} \cdot ^{241} \text{Am}$ の濃度から、われわれが肝 - 4、肝 - 5とした部分の一つの葉と考えるべきであり、また肝 - 2、肝 - 7とした部分も一つの葉と思われる。

肝臓の外形的多様性はその機能とは大した関係をもたないといわれているが、表3に示した通り、 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu} \cdot ^{241} \text{Am}$ 濃度に差があることは、各肝葉の生理作用が全く同じではないことを示すものと思われる。従って肝臓の一部を採取して含まれている成分濃度を測定する場合には、特に採取場所に注意を払うことが必要である。

ラット飼育室内空気中の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 濃度は、1ℓ当り平均0.01 fCiであった。ラットの呼吸量を毎分70 mℓとすると飼育室内のラットが呼吸により摂取する $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ の量が1日当り1 fCiとなり、ラット臓器内 $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 蓄積量に大きな寄与をしていることがわかる。

臓器・組織中の $^{241} \text{Am}$ の濃度は、表2.3に記した通りであった。 $^{241} \text{Am}$ の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ に対する放射能の割合は、肝臓・脾臓・生殖器で夫々12.5%、24.5%、25.2%となった。固形飼料中の $^{241} \text{Am}$ の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ に対する割合は5.1%であったから、生物体内でAmとPuが異った挙動をとるものと思われる。

(結 語)

1) 飼料のちがいにラット体内の $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 蓄積量に差がみとめられたが、これはラットの消化管からの $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ 吸収を示すものではなく、摂餌の方法すなわちケージ上面の飼箱の飼料を下から食べる方法によって、飼料に含まれている $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ が飼料の粉末と一緒に落下し、それが呼吸系に入り、他の臓器に移行することが1つの原因ではないかと考えられる。

2) 胎盤は $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ に対してある程度の障壁となって胎児への移行を阻止していると思われるが、完全な障壁ではなく、母体から胎児へ $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu}$ が移行することが認められる。

3) 肝臓の各肝葉の間に $^{239} \cdot ^{240} \text{Pu} \cdot ^{241} \text{Am}$ の濃度差が認められ、肝臓の各肝葉の生理作用が全く等しいとは考えられない。従って肝臓内の放射性核種蓄積を測定する場合には、肝臓の一部を試料としなければならない時には、その採取場所に注意をしなければならない。

4) 生物体内でPuとAmは異った挙動をするので、 $^{241} \text{Am}$ から放出される60 KeVのγ線を外部から計測してPuの体内量を推定する場合には、摂取した時の両核種の放射能比・摂取から測定までの経過時間・摂取経路などの条件をよく考慮しないと、誤った推定をするおそれがある。

2-5 クロレラに取り込まれた放射性コバルトの化学的 検討

環境衛生研究部 西村義一、稲葉次郎、市川龍資

Study on the Chemical Form of Radiocobalt Incorporated into *Chlorella*.

Division of Environmental Health

Yoshikazu NISHIMURA, Jiro INABA
and Ryushi ICHIKAWA

(緒言)

^{60}Co は誘導放射性物質として最も重要な放射性核種の一つにあげられる。 Co は一般環境中ではさまざまな化学形態で存在すると言われている。海産生物体などにおいて Co の一部は有機化され、Cyanocobalamin として存在することはすでに知られており、また、海水中の Co の大部分は有機化されているとの報告もある。

こゝでは食物連鎖を考慮に入れ、一般環境中に放出された ^{60}Co がどのような挙動を示すかを知る目的で $^{60}\text{CoCl}_2$ に汚染させた食品モデルを作成し、これの動物体での動態を知る目的での実験を行った。また、 Co の化学形についても若干の検討を加えた。(実験方法)

実験-1 $^{60}\text{CoCl}_2$ 存在下で培養したクロレラをラットに経口投与した時の体内残留率

植物性食品モデルとしてクロレラ (*Chlorella vulgaris*) を用いた。小笠原培地を主体とした培養液 (2ℓ) の入ったフラスコにクロレラ少量と $^{60}\text{CoCl}_2$ (100 μCi) を同時に添加し、コイトロンを改良したクロレラ培養装置で約10日間、通気培養した。培養に際し、クロレラは遠心分離により、また、フラスコ等はすべて120℃3時間、乾熱滅菌処理し、培養液も0.45 μm のミリポアフィルターで吸引る過を行うことにより、無菌培養を行った。

$^{60}\text{CoCl}_2$ 存在下で約10日間培養したクロレラは3000 rpm・15分、遠心分離を行って採取し、これを蒸留水で3回、遠心洗浄した。遠心洗浄

後の上清には、ほとんど放射能は含まれていず、十分に洗浄ができたものと思われた。このようにして得たクロレラを、胃カテーテルで1回、経口投与した。投与後、ラットはただちにアーマック・カウンターで全身計測を行って投与量を定め、以後、適当な日数間隔で体内残留率の経日変化を観察した。対照群として $^{60}\text{CoCl}_2$ を単独投与したラット、および、R1で汚染されていないクロレラに $^{60}\text{CoCl}_2$ を投与時に添加したものを用いた。

実験-Ⅱ クロレラ体内で合成された Co 化合物の化学的検討。

アンバーライト XAD-2 は水溶性有機物の吸着能力が大きく、 $^{60}\text{CoCl}_2$ と ^{57}Co -Cyanocobalamin の吸着、溶出挙動を観察すると、 ^{57}Co -Cyanocobalamin を単時間のうちによく吸着することが確かめられている。また、 $^{60}\text{CoCl}_2$ は水で、 ^{57}Co -Cyanocobalamin はエタノールでほぼ100%が溶出されてくる。この樹脂を内径1cmのカラムに充填し、クロレラスープを通し、吸着した Co 有機物をエタノールで溶出させた (以下 Elute)。この Elute をラットに経口投与し、体内残留率の経日変化を観察した。さらに、 $^{60}\text{CoCl}_2$ 、 ^{57}Co -Cyanocobalamin および Elute は薄層クロマトグラフィに展開した。溶剤はブタノール酢酸 (ブタノール:酢酸:水=4:1:5) を用いた。展開は10cm行い、風乾後、薄層を5mmの間隔にメスで注意深く剝離し、それぞれの分画に含まれる放射能を測定した。

実験-Ⅲ クロレラ体内で合成された Co 化合物

(Cyanocobalamin 類縁物質)の定量法の検討

Cyanocobalamin (ビタミン-B₁₂)の定量法には、吸収スペクトル法、電気泳動法、ポーログラフ法、ペーパークロマトグラフィ、薄層クロマトグラフィなどの理化学的方法もあるが、環境試料などのようなビタミン-B₁₂濃度の低い試料の定量には不適で、微生物学的定量法が従来から広く用いられている。しかし、この方法は操作が煩雑で時間がかかること、抗生物質の影響を受けやすいことなどの欠点があり、近年、Saturation Analysis に基づいた Radioassay 法が開発されている。

この方法は、ビタミン-B₁₂特異結合蛋白である内因子(Intrinsic factor)をあらかじめセファデックス粒子に化学結合させて分子量を大きくしてある。この内因子結合セファデックスに標準Cyanocobalaminと、⁵⁷Co-Cyanocobalaminを反応させると、内因子と結合する⁵⁷Co-Cyanocobalaminと標準Cyanocobalaminは逆相関を示す。したがって標準Cyanocobalaminの代わりに未知検体試料を反応させることにより、未知検体試料中のビタミン-B₁₂の定量を行うことができる。元来は血清中のビタミン-B₁₂を迅速に測定することを目的に、臨床検査用に開発されたものであるが、生体試料や一般環境試料にも適用できるものと考えられ、この方法でクロレラ体内で合成されたCyanocobalamin類縁物質の定量を行った。

ビタミン-B₁₂の定量キットは、第一アイトーブ研究所より市販されており、キットの内容は

- (1) 内因子結合セファデックス(凍結乾燥品)
- (2) 標準ビタミン-B₁₂(Cyanocobalamin 8 ng,凍結乾燥品)
- (3) ⁵⁷Co ビタミン-B₁₂(Cyanocobalamin 0.2 ng, 0.3 μCi 凍結乾燥品)
- (4) Tween 溶液からなっている。

測定試料については、以下の通り、血清中のビタミン-B₁₂を測定する方法を改良して行った。

- (1) 安定体CoCl₂存在下で培養したクロレラお

よび、R I free のコントロールクロレラを3000 rpm 15分間、遠心分離し、蒸留水で3回洗浄してクロレラを採取した。

(2) このクロレラを凍結乾燥後、一定量を秤量しL-グルタミン酸バッファー(L-グルタミン酸0.6g KCN 2mgを精製水100mlに溶解)10mlを加え、沸騰水中で15分間、加熱した。

(3) これをろ紙でろ過してクロレラスープを得、アンバーライトXAD-2を充填したカラムに通した後、エタノールで溶出させたEluteを測定試料とした。

(結果および考察)

図-1に、⁶⁰CoCl₂存在下で培養したクロレラR I freeのクロレラに投与時に⁶⁰CoCl₂を添加

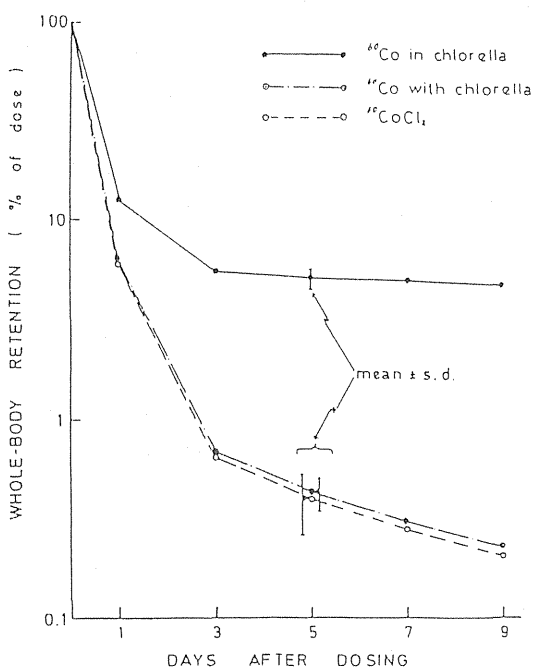


Fig. 1 Whole-body retention of ⁶⁰Co incorporated into Chlorella, ⁶⁰Co mixed with non-radioactive Chlorella and ⁶⁰Co as chloride solution after a single oral administration.

したもの、および $^{60}\text{CoCl}_2$ をラットに経口投与した時の体内残留率の経日変化を示した。投与時にクロレラに $^{60}\text{CoCl}_2$ を添加した群での体内残留率は $^{60}\text{CoCl}_2$ 単独投与のものとの差が認められず $^{60}\text{CoCl}_2$ の消化管吸収はクロレラを混ぜることによっても何の影響も受けないことが推察された。これに対して、 $^{60}\text{CoCl}_2$ 添加培養クロレラでは対照群に比べ明らかに高い体内残留曲線を描き、生物学的半減期も長くなる傾向が観察された。このことはクロレラ体内で $^{60}\text{CoCl}_2$ よりも消化管吸収の高くなる Co 化合物が合成されたことを示唆している。経口投与後、9日目の臓器分布を調べると、対照群では主要臓器を除いた残体部分に70%、肝臓に15~16%腎臓に6~7%という値を示した。一方、 $^{60}\text{CoCl}_2$ 添加培養クロレラでは残体に約50%、肝臓へ17%、腎臓へ30%と、腎臓へ高度な集積が観察された。これらの結果は、著者らがアナアオサで行った実験結果とよく一致した。

消化管吸収の高い Co 化合物には Cyanocobalamin がある。クロレラ体内で Cyanocobalamin あるいはこれの類似物質が合成されたものと考え、化学的検討を行った。アンバーライト XAD

-2 にクロレラスープを通し、水で無機 Co を流出された後、樹脂に吸着している有機 Co をエタノールで溶出させた。この Elute をラットに経口投与し、体内残留率の経日変化を観察すると図-2のよ

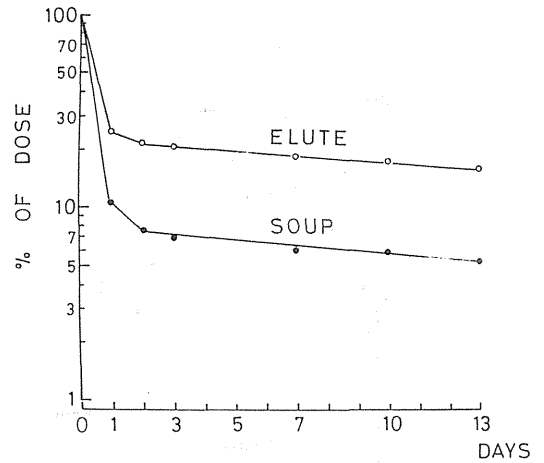


Fig. 2 Whole-body retention of $^{60}\text{CoCl}_2$ incubated chlor-ella soup and its elute from XAD-2 Column in rat after a single oral administration.

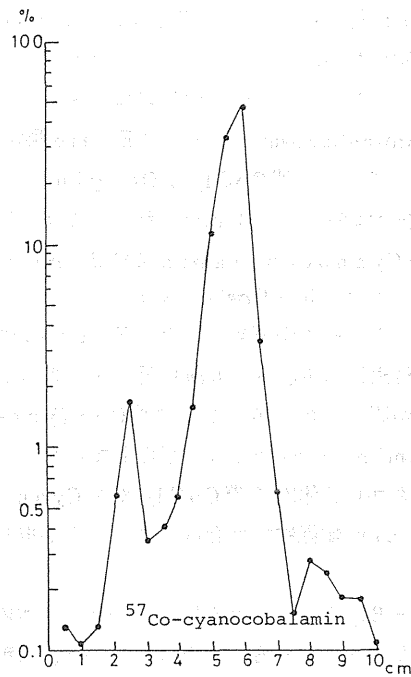
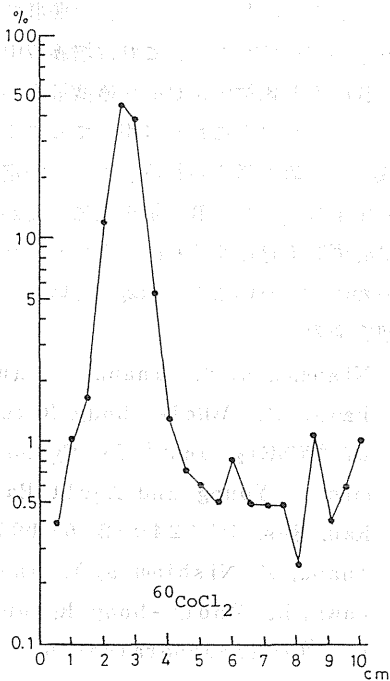


Fig. 3 Thin layer chromatography of $^{60}\text{CoCl}_2$ and ^{57}Co -Cyanocobalamin.

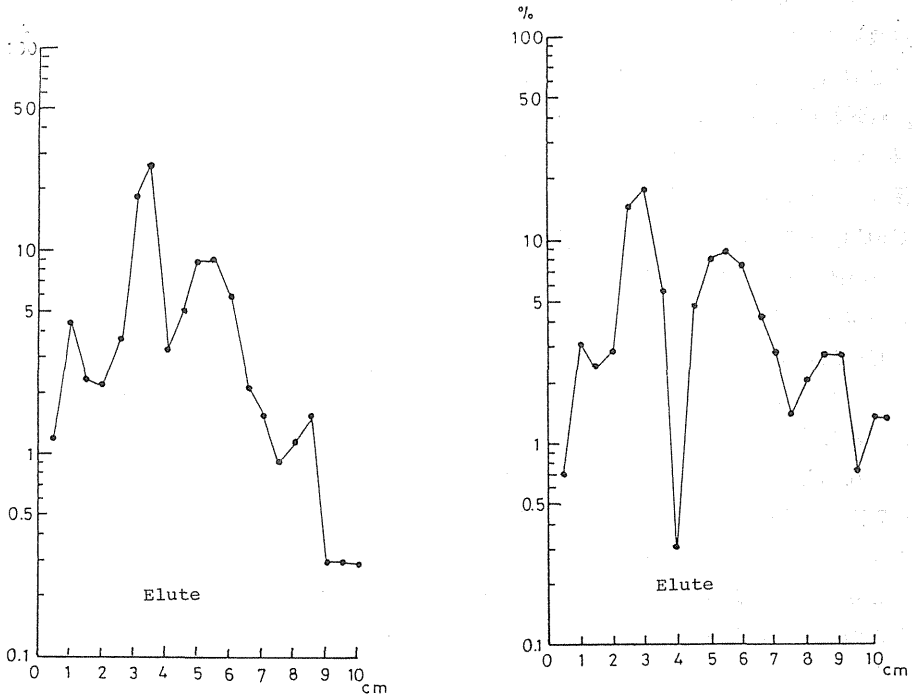


Fig. 4 Thin layer Chromatography of Chlorella elute.

うになる。こゝでクロレラスープよりも約3倍高い体内残留曲線が得られた。このEluteは、有機Co化合物と推測されるが、これを薄層クロマトグラフィに展開してみた。図-3は $^{60}\text{CoCl}_2$ および ^{57}Co -Cyanocobalamin 図-4はElute展開した時のものである。 $^{60}\text{CoCl}_2$ はOriginから2cm付近に極大ピークが一本認められた。これに対して ^{57}Co -Cyanocobalaminでは2.5cm付近に小ピークが1本、5~6cm付近に極大のピークが1本と計2本のピークが認められた。Eluteでは2.5~3cm付近に1本、5~6cm付近に1本の計2本のピークが観察されたが、これは ^{57}Co -Cyanocobalaminの展開形とよく類似していた。以上の結果、クロレラ体内で $^{60}\text{CoCl}_2$ からCyanocobalamin類縁物質が合成されたことが推測された。

ビタミン-B₁₂ 定量キットを用い、クロレラ体内で合成されたビタミン-B₁₂の定量を行うと、稀釈率を考慮に入れ、100μgのCoCl₂ 添加培養ク

ロレラで約400 ng/g dry、対照群でもこれに近い値が得られた。こゝで、対照群でもビタミン-B₁₂が定量されたが、これは培養液中にあるFeSO₄の共雑物中にCoが極微量ながら含まれており、クロレラがこれを利用してビタミン-B₁₂を合成したためと考えられる。また、安定体Coを添加してもビタミン-B₁₂量が増加しなかったが、これは必ずしも存在するCoの全てをクロレラが利用するわけではないことを示唆している。

(研究発表)

- 1) Nishimura, Y. Inaba, J. and Ichikawa, R. Whole-body Retention of $^{60}\text{CoCl}_2$ and ^{58}Co -Cyanocobalamin in Young and Adult Rats. J. Rad. Res. 17:240-246(1976)
- 2) Inaba, J. Nishimura, Y. and Ichikawa, R. Whole-body Retention of ^{60}Co Incorporated into a Seaweed in Rats. J. Rad. Res. 20:121

-125(1979)

3) 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 Physics 39:611-617 (1980)

2-6 メダカに取り込ませた⁶⁰Coのラットにおける全身残留

環境衛生研究部

稲葉次郎、西村義一、木村健一、市川龍資

Whole-body Retention and Tissue Distribution of ⁶⁰Co in Rats after Oral Administration of Freshwater Fish Contaminated with ⁶⁰Co

Division of Environmental Health

Jiro INABA, Yoshikazu NISHIMURA,
Ken-ichi KIMURA and Ryushi ICHIKAWA

(緒言)

環境中に放出された放射性核種による一般公衆の被曝を考えるにあたって、放射性核種の化学形に配慮しなければならない。放射性コバルトに関してはこれまでに、アオサおよびクロレラに取込まれたものの哺乳動物体内代謝が無機塩(塩化コバルト)の形で投与した体内代謝とは違うことを見つけ、報告してきた。アオサやクロレラは植物性食品のモデルとして考えられたものであるが、ここでは動物性食品のモデルとしてメダカに着目し、そこに取込まれたコバルトの哺乳動物体内代謝が無機塩のそれとどのように異なるかを観察することを目的とした実験を行った。

(実験方法)

放医研動植物管理課で維持しているヒメダカ *Oryzias latipes* (体重約0.4g)ならびにウイスター系成熟雄ラット(体重約300g)を供試動物をして使用した。放射性コバルトは⁶⁰CoCl₂の0.1N HCl水溶液、比放射能160mCi/mg Coを希釈して用いた。放射能測定はパックカード社アーマックカウンターにより全身計測を行った。

数ヶのプラスチック容器のそれぞれに井水2ℓと10μCiの⁶⁰Co塩化物を入れ、24時間放置の後、メダカ5匹ずつを投入した。これを室温23℃、蛍光灯照明下で時々金魚用飼料を与えながら飼育し、経時的に飼育水およびメダカの放射能濃度を測定した。

飼育開始の1、5、18および40日後にメダカの一部を殺し、少量の蒸留水を添加してガラス製ホモジナイザーによりホモジナイズし、胃カテーテルを用いてラットに経口投与した。ラットは経口投与後たゞちに全身計測を行ない、その後は5匹用ケージにより船橋農場製飼料で飼育しながら経時的に全身残留を追跡した。経口投与後8日目にはラットを殺し⁶⁰Coの臓器分布を観察した。なお、比較対照のため、数匹のラットには⁶⁰CoCl₂の水溶液のみを投与し、全身残留を観察した。

(実験結果と考察)

Fig.1は飼育水に対するメダカの⁶⁰Co濃度の比の経時変化を示したものである。値は個体により大

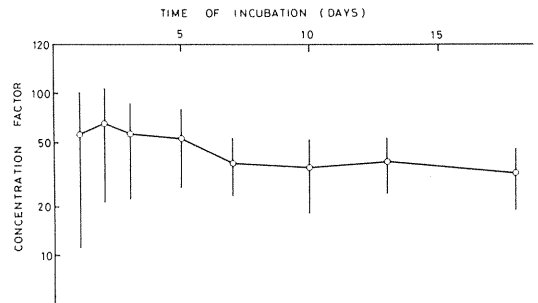


FIG. 1. Time course of concentration factor of ⁶⁰Co in fish (*Orizias latipes*). Each point represents the mean of five fish with its standard deviation. Concentration factor: $\left(\frac{\text{cpm per g of fish}}{\text{cpm per ml of culture water}} \right)$.

大きく変動するが、平均値で言えば、飼育開始直後に高く、時間の経過と共に漸減する傾向にある。

メダカホモジネートを経口投与したラットでの⁶⁰Coの全身残留はFig. 2に示した。一般に経口投与直後に急激に、時間の経過と共にゆるやかに減少するパターンを示すが、こゝで特徴的なことは、⁶⁰Co添加井水中でのメダカの飼育期間が長いものほど、ラットでの全身残留が高いことである。すなわち、コントロール群あるいは1日だけ⁶⁰Co添加井水中で飼育したメダカのホモジネートを投与したラットでは、投与後8日で投与量の1%以下しか体内に残留しないのに対し、40日間飼育したメダカのホモジネート中の⁶⁰Coは約20%が残留していた。

Table.1は、⁶⁰Co添加井水で18日間飼育したメダカのホモジネートをラットに経口投与し、8日後に頸動脈から放血させて殺して調べた⁶⁰Coの臓器分布を示している。比較のため⁶⁰CoCl₂液のみを経口投与した時の臓器分布もそこに示した。数値は殺した時点での全身濃度に対する各臓器の濃度

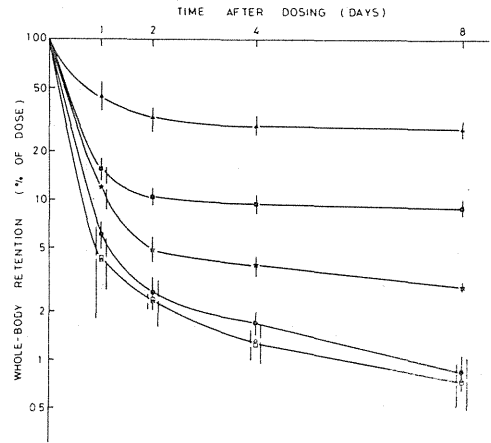


FIG. 2. Whole-body retention of ⁶⁰Co in rats after oral administration of radioactive fish or ⁶⁰CoCl₂ solution. Each point represents the mean of four rats with its standard deviation. Periods of incubation of fish in radioactive water are ▲, 40 days; ■, 18 days; ★, 5 days and ●, 1 day. △ and □ represent control-1 (⁶⁰CoCl₂ solution mixed with homogenate of non-radioactive fish) and control-2 (⁶⁰CoCl₂ alone), respectively.

Table 1. Distribution of ⁶⁰Co incorporated into fish and ⁶⁰CoCl₂ at 8th day after oral administration to rats. The fish were incubated in radioactive water for 18 days

	Relative concentration*	
	⁶⁰ Co incorporated into fish	⁶⁰ CoCl ₂
Whole-body	1.00	1.00
Blood	0.07 ± 0.11	0.06 ± 0.06
Heart, Lungs, Spleen and Pancreas	3.14 ± 0.75	2.00 ± 1.28
Liver	5.29 ± 0.64	5.06 ± 1.81
Kidneys	42.09 ± 4.99	8.19 ± 2.30
GI tract with content	1.43 ± 0.53	0.69 ± 0.39
Femurs	0.19 ± 0.22	2.67 ± 1.17
Muscle	0.48 ± 0.10	0.48 ± 0.25
Testicles	1.66 ± 0.59	0.37 ± 0.23
Remaining carcass	0.44 ± 0.02	0.87 ± 0.04

* Relative concentration : $\frac{\text{radioactivity in tissue}}{\text{weight of tissue}} / \frac{\text{radioactivity in whole-body}}{\text{weight of whole-body}}$

Values are the mean of four rats and their standard deviation.

の比で示しているが、こゝで特徴的なことは、腎臓の相対濃度がとび抜けて高く、次いで肝の濃度が高いことである。

こゝで得られた結果は、これまでに報告してきたアオサあるいはクロレラに ^{60}Co を取込ませ、それをラットに経口投与した時のものを非常に良く一致している。このことからして、メダカに取込まれた ^{60}Co もメダカ体内でシアノコバラミン型の ^{60}Co に変化したか、あるいは、メダカ飼育水中でシアノコバラミン型に変化し、メダカがそれを選択的に取込んだものと考えられる。環境中に放出され、魚介類に取込まれた放射性コバルトによる体内被曝線量

評価にあたっては、哺乳動物体内でのそのような放射性コバルトの代謝が、無機コバルトのそれとは違うことに配慮する必要がある。

(研究発表)

- 1) J. Inaba, Y. Nishimura, K. Kimura and R. Ichikawa :

Whole-body retention and tissue distribution of ^{60}Co in rats after oral administration fresh water fish contaminated with ^{60}Co , Health phys., 43, 247-250 (1982)

2-7 生物同化型ヨウ素の代謝

環境衛生研究部

内山正史、白石義行、湯川雅枝 岡林弘之、
市川龍資

Metabolism of iodine assimilated into biological substances by rat

Division of Environmental Health

Masafumi UCHIYAMA,

Yoshiyuki SHIRAIISHI,

Masae YUKAWA, Hiroyuki OKABAYASHI
and Ryushi ICHIKAWA

(緒言)

環境に放出された放射性ヨウ素で汚染された食品を介する甲状腺被曝線量の推定は、放射性ヨウ素の食物連鎖間の移行は比放射能法に、ヒトの代謝については無機 iodide の生理的パラメータに基礎をおいている。食品中のヨウ素の多様な存在状態は、無機 iodide 摂取後の代謝に関して、安定ヨウ素量以外の修飾因子となる可能性がある。若干の海産生物、ダイズに同化された¹²⁵I、粉乳に添加した¹²⁵Iをラットに経口投与し、ヨウ素代謝の修飾される様態を研究した。

(方法)

2-1 実験動物と飼育条件

ウィスタ系成熟雄ラット(60日、120日令)を¹²⁵I投与前、1週間以上、人為的にヨウ素を強化していない餌料で飼育。この餌料を妊娠ラット、分娩後の母ラット、離乳ラットにも与えた。若令ラットとして13、23、29日令ラットを使用した。¹²⁵I投与後は相互汚染を避けるため、離乳期と成熟令ラットは個体別にメタボリズムケージで飼育。哺乳期ラットは、¹²⁵Iを投与しない個体を混在させた。

2-2 ¹²⁵I 標識投与試料の調製

ヒジキ、ツノマタ(褐藻)、ハリガネ(紅藻)、

アナアオサ(緑藻)およびコタマガイ(二枚貝)を、¹²⁵I添加海水中で飼育。ダイズは本葉が出るまで屋外で水耕の後、¹²⁵I及び合成肥料を添加した水で水耕をつづけた。海藻は葉、足部、コタマガイはその可食部、ダイズは全植物体を使用して、氷冷下でホモジナイズし、胃内強制投与の可能な流動性が得られるまで、生理的食塩水を添加して、投与試料を調製した。

粉乳添加型¹²⁵I(牛乳型⁻I)は、重量比14%に調製した粉乳溶液に¹²⁵I(0.1N NaOH水溶液)を添加した。又、iodide投与群には、¹²⁵I(0.1N NaOH水溶液)を生理的食塩水に添加して投与試料を調製した。

2-3 甲状腺到達率測定時刻の決定

上述の餌料を1週間以上与えた成熟雄ラット、体重約400gに、自由摂取下で¹²⁵I(NaIの0.1N NaOH水溶液、⁻I型)を胃内に投与。3時間後から72時間後まで、9点における甲状腺到達率を計測。30時間後に最大値の出現を確認し、この時刻に¹²⁵I代謝の比較をおこなうこととした。

若令ラットについては、14日令ラットに⁻I型0.1mlを胃内に強制投与し、6時間後から36時間後まで6点で甲状腺到達率を測定し、成熟令と同様に30時間後に最大値の出現することを推定した。

2-4 消化管内容物が甲状腺到達率に及ぼす影響
-I 及び牛乳型 -I を用いて、自由摂餌群と投与前 2 4 時間絶食群、投与後絶食群の¹²⁵I 甲状腺到達率を比較。投与前摂餌で 30%、投与後摂餌で 50%、甲状腺到達率が抑制された。

甲状腺到達率と摂取するヨウ素の存在状態の関連を観察することが主眼の研究であるので、成熟令の実験には¹²⁵I の投与前 2 4 時間、投与後 30 時間の絶食期間を設定した。水に関しては自由摂取とした。若令期については自由摂餌下で実験をおこなった。

2-5 測定試料と計測方法

甲状腺は全年令にわたって摘出し、NaI (T1) ウェル型検出器で計測し、甲状腺ファントムの計数効率で校正した。

投与量は、成熟令と離乳令では、胃内投与が正確におこなえたので、投与体積から推定。哺乳期ラットは¹²⁵I 投与後、全身を NaI 型検出器の井戸に挿入し計測。同じジオメトリをもつファントムを調製して、これの計数効率で校正した。

成熟ラットについては、多くのシリーズで²⁵I 投与後 30 時間に排泄された糞便と尿、および内容物を含む大腸の放射能測定をおこなった。さらに若干のシリーズでは 30 時間目の血液および臓器の¹²⁵I の計測をおこない、体内分布の状況を観察した。

離乳期ラットでは、投与後 30 時間排泄尿の放射能計測もおこなった。

排泄物等の¹²⁵I 存在量はサイズの異なる数種の参照試料の計測効率で計数値を校正して決定した。

2-6 消化管吸収率

内容物を含む大腸の計測をおこなったシリーズについては、消化管吸収率 F は(1)式で算出した。

$$F = [I_0 - (E_f + E_c)] / I_0 \times 100 \quad (1)$$

ここで、 I_0 は初期投与量、 E_f 、 E_c は投与後 30 時間に排泄された糞便及び 30 時間後に残存していた大腸内容物の放射能である。

2-7 甲状腺到達率、排泄率等の表示

投与量のパーセントとして甲状腺、排泄物その他

の放射能を示した。さらに、存在型の修飾状況を定量するために、-I 型について得られた% dose 値で、他の存在型の% dose 値を規準化した比、-I 型相対値を使用した。

(結果)

3-1 消化管吸収率

成熟令ラットの生物同化型存在状態の消化管吸収率に対する修飾の程度を -I 型相対値を用いて Tab. 1 に示した。生物同化型投与による吸収率の低下は顕著である。

哺乳期ラットの消化管吸収率は測定不可能であった。しかし、その大腸内容物の¹²⁵I 残留率は、生物同化型投与群で -I 投与群の 8~9 倍で、吸収率の低下が示唆された。これは同一の存在型投与を比較すると、成熟令の約 50% 増加で、消化機構の不成熟を示すものと考えられる。

離乳期ラットについては、Tab. 3 に 23 日令、Tab. 4 に 29 日令の結果を -I 型相対値で示した。

29 日令の場合、アナアオサの消化管吸収率は、-I 残留比で 0.68 であり、180 日令の成熟令ラットの 0.71 にほぼ匹敵する。

-I 型の消化管吸収率は、29、60、180 日令について、93、97.6 ± 2.6、96.4 ± 2.9% であった。

3-2 尿中排泄率

成熟令ラットでは牛乳型 -I を含めて、いずれの生物同化型投与の場合にも、¹²⁵I の尿中排泄率は -I 型よりも大きい (Tab. 5)。

離乳期ラットについては、アラメを投与した 23 日令ラットで -I 相対値 0.94、アナアオサを投与した 29 日令ラットで、同じく 0.7 で、-I 型投与後の¹²⁵I 尿中排泄率より低く、成熟令ラットの場合と逆の傾向を観察した。

成熟令ラットに投与したアナアオサ同化型¹²⁵I 及び、ヒジキ同化型¹²⁵I の尿中排泄率の -I 型相対値は 1.9 ± 1.6、2.2 ± 1.8 で個体差は大きいが、同じ存在型を投与された離乳期ラットと比較して、

Table 1. Intestinal absorption of ^{125}I incorporated into various animal and plant material.

Material	Intestinal absorption (normalized to the value for ^{-}I)	Number of rats	Weight (g)	Age (days)
^{-}I	1.00 ± 0.03	15	236±22	180
^{-}I mixed with milk	0.95 ± 0.03	14	234±15	180
Harigane	0.32 ± 0.11	13	272±29	180
Aosa	0.71 ± 0.05	9	308±13	180
Hijiki	0.71 ± 0.04	30	283±25	180
Tsunomata	0.31 ± 0.08	21	296±12	180
Kotamagai	0.67 ± 0.07	25	143± 6	60
soybean plant	0.63 ± 0.06	18	136±10	60
^{-}I *	1.00 ± 0.03	25	138± 8	60

* used for Kotamagai and Soybean plant.

Table 2. Retention and excretion of ^{125}I by 13-day-old rats.

	^{-}I	Arame	Aosa
Thyroid	1.0	0.2	0.2
GI-tract	1.0	8.2	9.4
Liver	-	-	-
Kidney	1.0	1.0	0.7
Residue	-	-	-

Table 3. Retention and excretion of ^{125}I by 23-day-old rats.

	^{-}I	Arame
Thyroid	1.0	0.17
GI-tract	1.0	1.4
Feces	1.0	3.3
Liver	-	-
Kidney	1.0	1.0
Urine	1.0	0.94
Residue	-	-

Table 4. Retention and excretion of ^{125}I by 29-day-old rats.

	^{-}I	Aosa
Thyroid	1.0	0.09
GI-tract	1.0	1.5
Feces	1.0	37
Urine	1.0	0.7
Residue	1.0	1.1

存在型による修飾を強く受ける傾向があるといえる。

一方、 ^{-}I について比較すると、23、29日令いずれも約85%で、60日令の26.0±6.1%、180日令の17.3±13.3%より、若令期において尿中排泄率は高い。従ってアナアオサ投与後の尿中排泄率は、29日令と成熟令では同等であり、3-1で述べた消化管吸収率に関し、29日令と成熟

Table 5 Urinary excretion of ^{125}I associated with various animal and plant material.

Material	Urinary excretion ^{**}	Corrected for intestinal ^{**} absorption	Number	Weight (g)	Age (days)
^{-1}I	1.0±0.8	1.0±0.8	45	286±43	180
^{-1}I with milk	1.5±1.5	1.5±1.5	38	283±52	180
Harigane	0.8±0.6	2.4±2.1	13	272±29	180
Aosa	1.9±1.6	2.7±2.2	39	297±28	180
Hijiki	2.2±1.8	3.0±2.5	30	283±25	180
Tsunomata	1.0±0.9	3.1±2.7	21	296±12	180
Kotamagai	1.6±0.4	2.3±0.9	25	143±6	60
Soybean plant	1.2±0.4	1.9±0.7	18	136±10	60
$^{-1}\text{I}^*$	1.0±0.2	1.0±0.2	25	138±8	60

* Used for Kotamagai and Soybean plant.

** Normalized to ^{-1}I .

令はほぼ同等であった事実と矛盾しない。アナアオサに、若令期においては不活性で、成長すると活性を示すヨウ素の尿中排泄を促す生理作用を有する成分の存在が考えられる。

3-3 血中濃度

^{-1}I 型、牛乳型 ^{-1}I 、アナアオサ、ヒジキ、ハリガネを経口投与。30時間後の血液の ^{125}I を測定し、検体重量と体重から全身の血液に残留した ^{125}I の量を推定した。 ^{-1}I 型相対値で1.0、0.78、0.31、0.61、0.25が上記存在型について得られた。

^{-1}I 型相対値に関して異なる生物同化型投与群間で血中残留率と尿中排泄率との相関は認められない。消化管で吸収された ^{125}I の投与後30時間目の血中残留率は、上記の存在型について、 ^{-1}I 相対値はアナアオサ、ヒジキ、ハリガネの順に0.4、0.7、0.8である。消化管吸収率を考慮した尿中排泄率の ^{-1}I 相対値は、上記生物種について、2.7、3.0、2.4である(Tab. 5)。生物同化型の ^{125}I の、尿中排泄率が高く、血中残留率が低い現象は、その構成成分により、ラットのヨウ素代謝の回転率が高進する可能性を示唆する。

Table 6 Thyroidal uptake of ^{125}I incorporated into various animal and plant material and their concentration ratios.

Material	Thyroid uptake ^{**}	Corrected for intestinal ^{**} absorption	Number	Weight (g)	Age (days)	Concentration ratio
^{-1}I	1.00±0.29	1.00±0.29	45	286±43	180	-
^{-1}I with milk	0.99±0.43	0.99±0.43	38	284±52	180	-
Harigane	0.10±0.04	0.31±0.12	13	272±29	180	67
Aosa	0.12±0.10	0.17±0.14	39	297±28	180	24
Hijiki	0.26±0.10	0.37±0.14	30	283±25	180	53
Tsunomata	0.12±0.05	0.39±0.16	21	296±12	180	15
Kotamagai	0.42±0.12	0.63±0.18	25	143±6	60	5
Soybean plant	0.61±0.18	0.97±0.29	18	136±10	60	47
$^{-1}\text{I}^*$	1.00±0.16	1.00±0.16	25	138±8	60	-

* Used for Kotamagai and Soybean plant.

** Normalized to ^{-1}I .

3-4 甲状腺到達率

成熟令ラットについて生物同化型の ^{125}I の、投与後30時間目の甲状腺存在量は、 Γ I型の10~61%であった。消化管吸収率を考慮すると、ダイズ同化型の ^{125}I の甲状腺存在率は、 Γ I型と同等であったが、他の生物同化型では、 Γ I型の17~63%であった(Tab. 6)。

生物同化型 ^{125}I 投与群に観察された低い甲状腺存在率は、血中残留率の相対的低値と尿中排泄率の相対的高値を考慮すると、甲状腺到達率が低下したとは必ずしも断定できない。甲状腺到達率のピークが、投与後30時間以前に存在した可能性も考えられるからである。

幼若令についても、 ^{125}I の甲状腺到達率の存在状態による修飾が明瞭に認められる(Tabs. 2、3、4)。

13日令に投与されたアナアオサ存在型 ^{125}I の甲状腺到達率の Γ I相対値は0.2で、成熟ラットの平均値0.12より大きい。29日令では、0.09でアナアオサ構成成分は ^{125}I の甲状腺存在率に関して成熟令に観察されたものと、同等ないし若干低い修飾効果を示した。同様の存在状態による修飾効果は褐藻同化型投与の場合にも観察された。すなわち26日令でアラメを投与された被検群で ^{125}I 甲状腺存在率は、 Γ I型相対値で0.17であるが、成熟ラットにヒジキを投与した場合は、0.26を観察した。

Γ I型投与群の ^{125}I 甲状腺到達率には、明瞭な正の年齢依存性を認めた。すなわち、13、26、29、60、180日令の順に、1.5~1.9%、1.7%、2.4%、 $8.9 \pm 1.4\%$ 、及び $15.6 \pm 4.5\%$ を観察した。前述したが、成熟ラットへの ^{125}I 投与は24時間絶食後におこない、投与後も甲状腺存在量の測定時まで絶食を続けた。血流中及び甲状腺の安定ヨウ素量が、絶食のため低下した状態で投与された ^{125}I の甲状腺到達率が相対的に向上し、回転率も低下していた可能性も考えられるが、その修飾は高々100%と推定される。絶食による甲

腺到達率の向上を考慮しても、成熟令ラットの

^{125}I 甲状腺到達率は、離乳期、哺乳期のラットよりなお高く、正の年齢依存性は認められる。

3-5 ^{125}I の存在状態と組織結合強度

生物同化型の ^{125}I の消化管吸収率が Γ I型よりも抑制される機構の解明のために、消化酵素による ^{125}I の組織からの分離、低分子量成分への移行状況を Γ I型と比較した。

100倍量の生理的食塩水に対する5℃、24時間の透析で、 Γ I型の ^{125}I の放射能は全て透析外液へ移行した。粉乳に ^{125}I を添加した牛乳型についても同一の結果が得られた。

生物同化型ホモジネートの ^{125}I のうち、本質的に遊離状態にあると考えられる、生理的食塩水に直接移行するフラクションは、生物種間で変動が大きい。 Γ I型相対値で、ハリガネの4%からツノマタの88%に分布した。

高分子量フラクションに、至適PHで、ペプシンを42℃で24時間作用させたのち、100倍量の生理的食塩水に、これを透析した。ハリガネでは5%が透析外液へ移行したにすぎないが、ダイズでは50%が移行した。

さらに残留したフラクションに、 α -アミラーゼを加えて、42℃で24時間放置、100倍量の生理的食塩水にこれを透析した。ハリガネでは低分子化が若干進行し、処理前に残存した ^{125}I の13%が透析外液へ移行した。コタマガイで低分子化が最も効率的に進行し、86%が透析外液へ移行した。ヒジキ、アナアオサの低分子化も顕著であった。ツノマタ存在型 ^{125}I は、 α -アミラーゼによる低分子化は受けないようである。

全過程を通じて透析外液に移行した ^{125}I を、 Γ I型の ^{125}I の移行率で基準化すると、 Γ I 100%、牛乳型 Γ I 99%、ハリガネ31%、アナアオサ74%、ヒジキ85%、ツノマタ93%、コタマガイ98%、ダイズ65%であった。実験に使用した透析膜のもつ小孔は直径24nmであるので、

この小孔を通過できた ^{125}I は、腸管で十分に吸収される物理的サイズの分画に存在したと考えられる。

植物同化型 ^{125}I の*in vitro*の消化酵素による低分子化の傾向は、ツノマタの例外はあるが消化管吸収率の傾向と一致する。I型、牛乳I型を含めて、前者の消化管吸収への回帰は0.98である。

*in vitro*の消化酵素による分解産物の透析結果から消化管吸収率の概略の推定が可能である。

3-6 餌料及び投与試料の安定ヨウ素濃度

本研究で使用したラット餌料および成熟ラットの甲状腺の安定ヨウ素量を中性子放射化分析により定量した。餌料濃度については1.4 ppmが、甲状腺については平均35 μg が得られた。

Vinogradovによると、海水中のヨウ素濃度は50 ppbである。生物同化型 ^{125}I を調製するために、使用した海水も、ヨウ素について同濃度であったと仮定する。添加した ^{125}I の生物と飼育水間の分配は、濃度比として下記であった。ハリガネ67、ヒジキ53、アオサ24、コタマガイ16、ツノマタ15及びダイズ47。安定ヨウ素に関しても同じ濃度比を適用できることを仮定して、投与重量から推定した安定ヨウ素のホモジネート中の存在量は、ハリガネ、ヒジキ、アオサ、コタマガイの順に、1.3、1.8、0.6、0.26 μg である。Tab.1の消化管吸収率を適用すると、ホモジネートの投与で血流に入った安定ヨウ素量は上述の生物種で、0.42、1.28、0.43、0.17 μg と推定される。

甲状腺到達率を経時変化を観察したラットは前述の1.4 ppmの安定体ヨウ素濃度をもつ餌料を、平均17g/日摂取した。ヨウ素は24 μg /日、摂取されたことになる。餌料の構成成分に配慮すると、若干過少評価と思われるが、Tab.1の大豆の ^{125}I の消化管吸収率を適用して、約15 μg /日が、餌料を介して血流に移行すると考えられる。

ヒトのヨウ素代謝に関して安定ヨウ素の事前、同時および事後の大量投与は放射性ヨウ素の甲状腺到

達率を抑制し、尿中排泄率を高進することが知られている。Tab. 1、6と、前述のラットに投与された生物に含まれ血流に入る安定ヨウ素推定量を比較すると、血流への安定ヨウ素流入推定量と甲状腺到達率、あるいは尿中排泄率の関係は規則的とは云えない。

3-7 甲状腺における ^{125}I の実効半減期

^{125}I 甲状腺到達率を観察した成熟ラット群、5匹/群の平均値について、最大到達率出現後の実効半減期は、90時間であった。

(考察と結論)

I型投与群に関して、尿中排泄率は加齢に伴って減少し、甲状腺到達率は逆に加齢に伴って増加することを観察した。I型の消化管吸収率は、離乳期の29日令で93%、成熟令で96~97%でほぼ同等であるので、尿中排泄率と甲状腺到達率に関する加齢に伴う相互に逆方向の傾向は、ヨウ素の生理的回転率と関連があると考えられる。若令期でヨウ素の生物学的半減期は短かく、加齢により増大することが推察される。

ORNL-3849によると、ヒトの場合にも、甲状腺におけるヨウ素の生物学的半減期は加齢に伴って増加する。しかし、その甲状腺到達率に関しては、若令ほど高く、本研究の結果とは完全に矛盾する。ラットの生理学的パラメータからヒトのパラメータを推定する上で、若令期のラットについても、安定ヨウ素摂取量、甲状腺のヨウ素量等の測定が必要であろう。さらに、より正確な生物学的半減期を把握するために、同一個体の甲状腺残留率を長期間計測するべきであると考えられる。

甲状腺到達率、消化管吸収率、尿中排泄率等の生理的因子は、投与される ^{125}I の存在状態の修飾を受けることが示された。存在状態の差異に対応して、修飾の程度は同一年令に限定しても多様であり、若令期と成熟令の間にも差異が認められた。甲状腺到達率のI型相対値は通常は成熟令で高いが、アナアオサ同化型を13日令に投与した場合は、成熟令

より高い甲状腺到達率を観察した。

全ての年齢層に共通して、生物同化型¹²⁵I の甲状腺到達は、Ⅰ型の到達率より低いことを観察した。相対的に大きな未消化部分における¹²⁵I 残留率が、生物同化型投与群で、甲状腺到達率の低い主要な原因であり、投与生物の構成成分の生理作用と推定される尿中排泄率の高進も関与している。

ヒトの代謝の段階で生理的パラメータに若干過大評価をしていることになるので、現行の比放射能法によると、生物同化型放射性ヨウ素摂取を介する甲状腺

被曝は若干の過大評価になると考える。

放射性廃棄物の地中処分に対応して、陸上生物に同化された放射性ヨウ素についても代謝に及ぼす存在型の修飾に関する研究を推進することが、今後の課題であろう。

謝 辞

本研究の遂行に当り、放射性物質による海産物の標識その他に本特別研究海洋グループの協力を得たことを深謝する。

2-8 同時投与された放射性Co, Mn, Znの比較代謝と生物同化型投与による修飾

環境衛生研究部

内山正史、白石義行、湯川雅枝、岡林弘之
市川龍資

Studies on comparative metabolism of radiocobalt, —manganese and —zinc given simultaneously in the form of salt or incorporated into marine organisms by rat following a single oral administration.

Division of Environmental Health
Masafumi UCHIYAMA, Yoshiyuki
SHIRAISHI, Masae YUKAWA,
Hiroyuki OKABAYASHI and Ryushi ICHIKAWA

(緒言)

Co、Mn、Znは酵素、ホルモンあるいはビタミンに含まれ、生物の活動に機能する生元素である。これら元素の作用機序はすでに個々に生化学的及び中毒学的立場から解明されてきている。

原子力施設で生ずる液体放射性廃棄物に、これら元素の放射性同位体が存在し、規制レベル下で沿岸放出されている。その放出量は放射性Co>Mn>Znの順で、廃液の処理方法によっては人体に検出可能な放射能汚染を生ずる程度の生態系汚染を発生した事例が散見される。

海産生物のこれら元素の濃縮順序はZn>Co≒Mnであり、ラットへの単一核種投与実験について3元素の残留も、同様な傾向を示している。従って放出廃液中の濃度は低いが、ヒトの体内被曝の段階で放射性Znの寄与は相対的に無視できなくなる可能性がある。

ラットを用いて体内被曝線量計算の1因子である体内残留状況の核種間の比較および残留状況に及ぼす投与時の放射性核種の存在状態による修飾を観察するために⁵⁷Co、⁵⁴Mn、⁶⁵Znの経口投与実験をお

こなった。核種間の代謝比較における個体差から生ずる曖昧さを避けるために3核種を同時に同一個体に投与した。

放射性核種の異なる存在状態のモデルとして、日常、食品として摂取されているコタマガイ(*Gomphina melnaegis*)とハマチ(*Seriola quinqueradiata*)に⁵⁷Co、⁵⁴Mn、⁶⁵Znを同時投与して、3核種が代謝系に入り残留している状態の可食部を調製し、ラットの被検群に経口投与した。生理的食塩水に、Fe、Co、Mn、Znの塩化物をこれら可食部と等濃度になるように加え、さらに⁵⁷Co、⁵⁴Mn、⁶⁵Znを加えて、対照群への投与試料を調製した。

残留の全貌を把握する目的で、コタマガイ同化型投与シリーズは、詳細に約1年間の観察をおこなった。ハマチ同化型投与シリーズは、存在状態の差異により修飾される体内残留に関して、存在状態の例数を増して、より明確な結論を得る目的で、短期間の観察をおこなった。

(方法)

2-1 投与試料の調製

a 同化型標識生物の調製

汙過海水で飼育中のコタマガイを空气中に2時間放置後、その外套膜間に240、140、200 μCi の ^{57}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{65}Zn のキャリアフリー生理的食塩水溶液0.3 mlを投与。1時間放置後、汙過海水に ^{57}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{65}Zn の塩化物を加えて、それぞれ67、35、53 nCi/ml濃度に調製した飼育水に貝を移した。飼育は無投餌でおこない、等濃度の放射性核種を含む飼育水に適宜カイを移して飼育をつづけた。投与後3~4日経過した時点のカイの可食部を、ラットへの投与時まで-20℃のフリーザに保存した。

ハマチの尾柄部筋肉に、3核種の共存する生理的

食塩水を注射。放射能に汚染されていない海水で3日間飼育後、注射部位を含まない筋肉、肝臓、幽門垂、骨を摘出し投与時まで上記フリーザに保存した。

b 経口投与試料の調製

海産動物の冷凍試料を、氷冷下でホモジナイズした。

投与試料の一部を取り、放射能を計測。450℃で灰化後、ゼーマン型グラファイト炉原子吸光装置でFe、Co、Mn、Znを定量した。

この元素濃度とはほぼ同濃度が得られるように原子吸光用標準溶液(塩化物の塩酸溶液)を加えた ^{57}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{65}Zn 共存生理的食塩水を調製し、対照群への投与試料とした(Tab. 1)。

Table 1. Content of doses administered to rats in various experimental groups.

Groups	Dilution with saline, times	Radioactivity, μCi							Concentration of elements, ppm		Period of freezing, months	Age at administration, months
		^{57}Co	^{54}Mn	^{65}Zn	Co	Mn	Zn	Fe				
A*	1	2.54	0.44	0.69	0.77	0.92	10	24	2	12		
B	1	1.66	0.70	2.16	0.77	0.92	10	24		18		
C	15 / 25	1.26	4.23	4.65	0.038	0.43	3.9	42	6 - 8	12		
D	1	1.60	0.81	4.28	0.037	0.43	3.9	43		12		
E	20 / 25	0.13	0.26	0.25	0.13	0.25	4.9	42	4	12		
F	1	0.20	0.09	0.31	0.17	0.32	6.1	43		12		

footnote: * 2.68 for ^{57}Co , 0.47 of ^{54}Mn and 0.78 of ^{65}Zn in μCi of 16 groups and 2.17 of ^{57}Co , 0.35 of ^{54}Mn and 0.47 of ^{65}Zn in μCi for 5 groups.

- A: the group administered the clam homogenate
- B: the control group for group A
- C: the group administered the liver of yellowtail
- D: the control group for group C
- E: the group administered the muscle of yellowtail
- F: the control group for group E

2-2 ラット及び飼育条件と投与方法

ウイスタ系雄ラット(投与時1又は1.5才)を本研究のために開発されたメタルフリーメタボリズムケージ1個に3~5匹収容し、低ヨード餌料を与えて飼育した。

24時間絶食後、供試試料を胃ゾンデを用いて経口投与した。相互汚染を防ぐため投与後数日間は個体別にメタルフリーメタボリズムケージに収容した。

2-3 放射能計測とデータ処理

放射性物質投与後、NaI(Tl)型ホール

ボディカウンタと波高分析装置を用いて、経時的に全身残留量を計測。また、経時的に1ケージずつラットを屠殺して、脳、甲状腺、心臓、肺、すい臓、脾、肝臓、じん臓、生殖腺、胃、小腸上部、同下部、大腸、血液、筋肉、骨、毛、皮膚等を摘出し、残存放射能を計測した。また、屠殺前24時間の排泄物の放射能も計測した。

計数値は、ファントム又はスタンダード計測値と共に3元1次方程式の掃出し法による解法について開発したプログラムに入力して、 ^{57}Co 、 ^{54}Mn 、

^{65}Zn の存在量を得た。平均値の差を検定するプログラムを開発し、有意差検定をおこなった。

2-4 安定元素濃度の測定

臓器における equivalent biological half-time を安定元素濃度から求めるため、臓器、餌料を 500°C で灰化後、ゼーマン型グラファイト炉原子吸光装置を用いて標準添加法により Fe、Co、Mn、Zn の定量をしている。

(結果)

3-1 メタルフリーケージが金属元素摂取に及ぼす効果

5匹1群の11群の平均値に関して、Fe、Co、Mn の尿中レベルはメタルフリーケージ移動後、2日目には顕著に低下した。このケージを使用することで、ケージを介する金属元素の血流への移行が効

果的に阻止された。

3-2 標識投与試料中の放射性核種の存在状態

試料を糖分解酵素、タンパク分解酵素で分解後、生理的食塩水に透析して、RI と組織の結合力の経時の変化を観察した。コタマガイに同化された ^{54}Mn と ^{65}Zn は飼育期間と関係なく 2.4 \AA より小サイズの分子に随伴するか遊離の状態が存在し、 ^{57}Co は飼育期間によりこの分画の割合の変化する現象が、ラット腸管内で生じていると推定された。

3-3 放射性物質の体内残留

3-3-1 全身残留

3-3-1-1 生物同化型存在状態と塩型存在状態の比較

3-3-1-1-a コタマガイ同化型

Figs. 1 ~ 3 に投与後から 250 又は 362 日

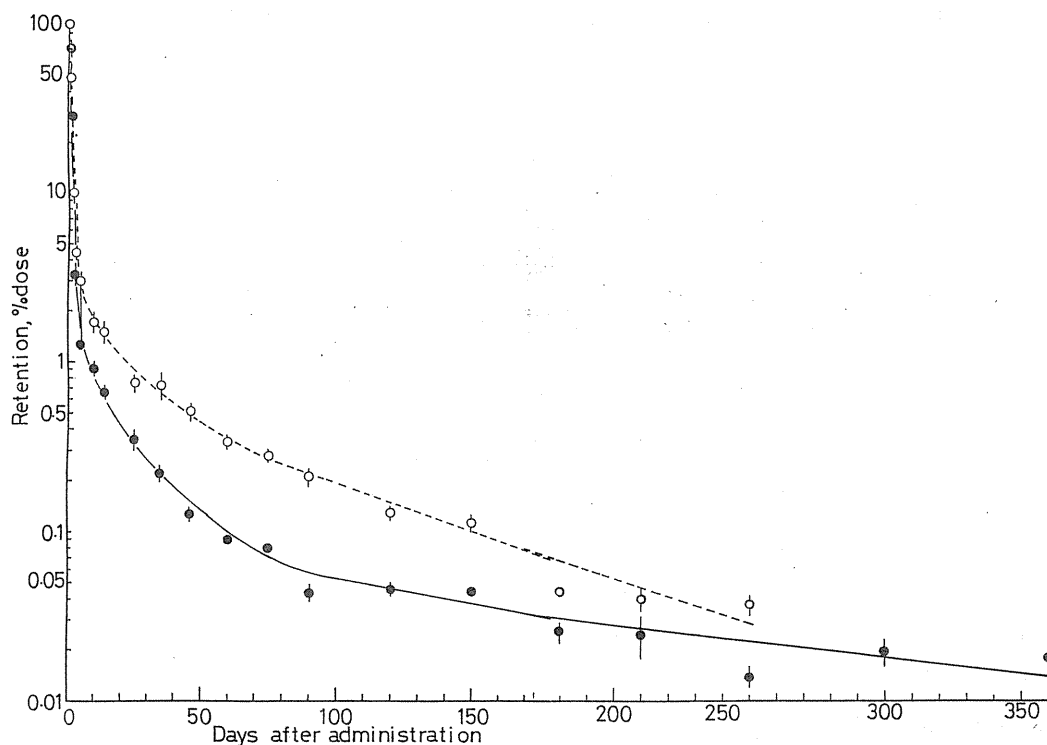


Fig. 1 Whole-body retention of ^{57}Co in salt or incorporated into a clam, *Gmphina melanaegis* after a single oral dose.
footnote: ○ in salt ● incorporated into the clam. Averages with one standard errors are given.

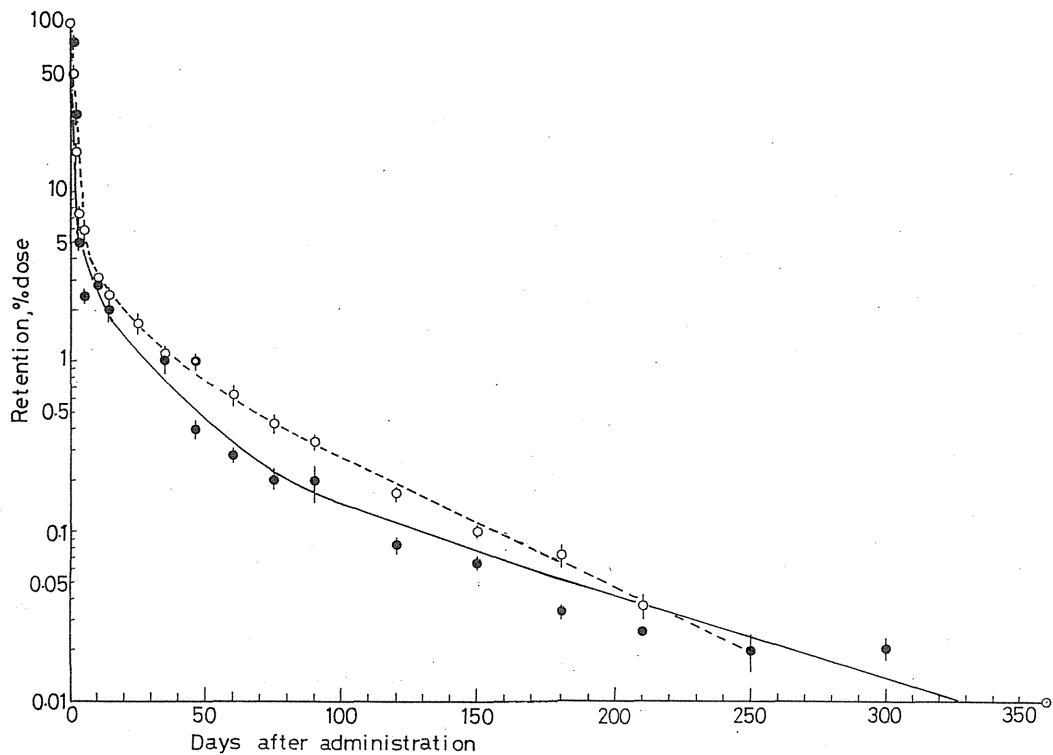


Fig. 2 Whole-body retention of ^{54}Mn in salt or incorporated into a clam *Gomphina melanaegis* after a single oral dose. footnote. ○ in salt ● incorporated into the clam. Averages with one standard errors are given.

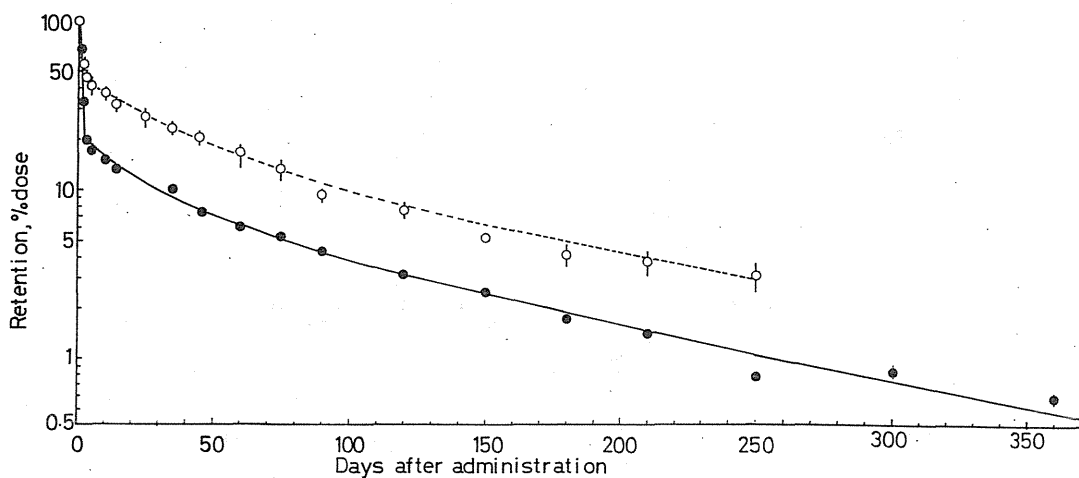


Fig. 3 Whole-body retention of ^{65}Zn in salt or incorporated into a clam *Gomphina naegis* after a single oral dose footnote : ○ in salt ● incorporated into the clam. Averages with one standard errors are given.

後の初期投与量の残留率を示した。 ^{57}Co はほとんどの測定点で塩型存在状態の方が統計的に有意に高い残留率を示す。残留率関数は4個の指数項の和で近似可能であった。

^{54}Mn は存在型間の残留率の差異は他の2核種より小さい。概して塩型の残留率の方が高く、残留率関数はいずれも3個の指数項の和で近似可能であった。

^{57}Co 、 ^{54}Mn に共通して、最大の実効半減期はコタマガイ同化型の方が長い。

^{65}Zn は25、90日後を除くと、全て塩型が1%危険率で有意に高い残留率を示した。残留率関数はいずれも4個の指数項の和で近似可能であった。

3-3-1-1-b ハマチ同化型

3-3-1-1-b-1 筋肉同化型

^{57}Co と ^{54}Mn に関する投与後3-4日間の全身残留率は、いずれも投与型による有意差は認められな

い。 ^{65}Zn については、5%の危険率で筋肉同化型の方が塩型よりも常に残留率が高い特徴的な現象を観察した (Fig. 4)。

3-3-1-1-b-2 肝臓存在型

^{54}Mn について4~25日後の期間、塩型が $P < 0.01 \sim P < 0.1$ で肝臓同化型よりも有意に高い残留率を示した。 ^{57}Co でも5、15、61日後に塩型が有意に高い残留率を示した。 ^{65}Zn は投与後180日間、両存在型間で残留率の差は認められなかった (Fig. 5)。

ハマチ同化型及び対応する塩型投与ラットの残留率関数のパラメータをTab. 2に示した。

3-3-2 全身被曝線量の ^{65}Zn 相対値及び存在状態による修飾効果

1回投与後の残留率関数を、無限時間まで積分することで得られるEquivalent Effective Half-Time (EEHT) を用いて、同量の放射性物質の1回経口摂取で受ける全身体内被曝線量の比較をおこない、さらに、摂取時の核種の存在状態

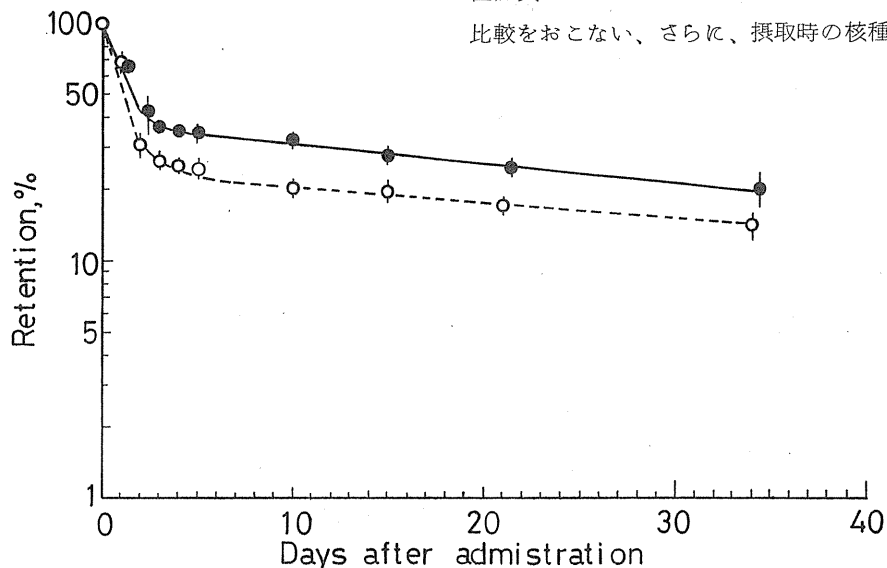


Fig. 4 Whole-body retention of ^{65}Zn in salt or incorporated into the muscle of yellowtail, *Seriola quinqueradiata* after a single oral administration.

footnote: ○ in salt ● incorporated into the muscle
Averages with one standard errors are given. The differences are statistically significant at 5% level except 2 points, 0 and 1 day postdose.

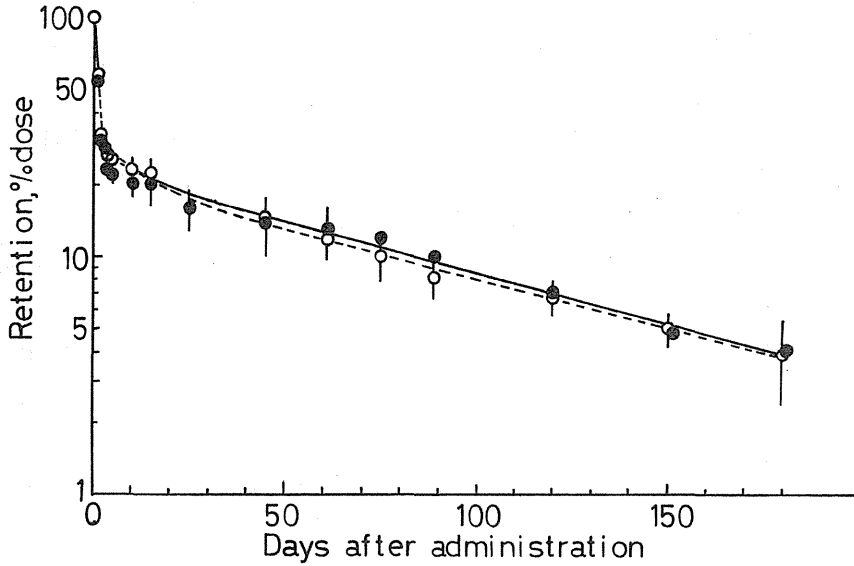


Fig.5 Whole-body retention of ^{65}Zn in salt or incorporated into the liver of yellowtail, *Seriola quinqueradiata* after a single oral administration.
 footnote: ○ in salt ● incorporated into the liver
 Averages with one standard errors are given.

Table 2. Parameters of retention functions in the whole-body of rat for ^{57}Co , ^{54}Mn and ^{65}Zn in salt or incorporated into yellowtail following a single oral administration.

Radionuclides	Forms	a_1	λ_1	T_{e1}	a_2	λ_2	T_2	a_3	λ_3	T_{e3}	a_4	λ_4	T_{e4}
^{57}Co	A	86.8	-1.32	0.52	12.4	-0.569	1.2	0.80	-0.023	30.0	---	---	---
	B	97.1	-1.41	0.49	2.49	-0.172	4.0	0.45	-0.019	36.5	---	---	---
	C	94.1	-1.50	0.46	4.59	-0.422	1.6	1.28	-0.050	13.8	---	---	---
	D	96.9	-1.05	0.66	2.63	-0.247	2.8	0.45	-0.028	24.9	---	---	---
^{54}Mn	A	94.4	-1.43	0.48	3.90	-0.308	2.3	1.71	-0.053	13.2	---	---	---
	B	89.9	-1.31	0.53	8.32	-0.412	1.7	1.76	-0.025	27.7	---	---	---
	C	97.7	-1.76	0.39	2.26	-0.039	17.8	---	---	---	---	---	---
	D	98.4	-1.11	0.63	1.09	-0.068	10.2	0.51	-0.017	42.0	---	---	---
^{65}Zn	A	70.2	-1.48	0.67	6.28	-0.203	3.4	23.5	-0.014	48.0	---	---	---
	B	71.0	-1.31	0.53	7.85	-0.065	10.7	21.2	-0.010	72.3	---	---	---
	C	61.9	-1.23	0.57	38.1	-0.019	35.6	---	---	---	---	---	---
	D	76.3	-1.22	0.57	23.7	-0.01	69.1	---	---	---	---	---	---

footnote: A is the control for the muscle homogenate, B the control for the liver homogenate.
 C is the muscle homogenate and D the liver homogenate.
 a_i is given in % dose, λ_i in day^{-1} and T_{ei} in days.

がこれを修飾する効果を評価した。ここで、EEHTは次式で与えられる。

$$\text{EEHT} = \sum_{i=1}^n a_i T_i$$

残留関数、 $R(t) = \sum_{i=1}^n a_i \exp\{-(0.693/T_i) \cdot t\}$

の i 成分がもつ残留率関数構成比と実効半減期であ

る。

Table 3に核種別、存在型別にEEHTを示した。塩型を摂取した場合、 ^{65}Zn は、 ^{57}Co の20倍、 ^{54}Mn の14倍の積分濃度を与える。生物同化型を摂取した場合、 ^{65}Zn は ^{57}Co の17倍、 ^{54}Mn の13倍の積分濃度を与える。

また、生物同化型の ^{57}Co 、 ^{54}Mn あるいは ^{65}Zn

を経口摂取して受ける全身被曝線量預託は、対応する核種の同一量を塩型で経口摂取した場合の約90%に相当する。

放射性核種を同化した生物種の差異と、線量預託の低減方向への修飾の関係は、コタマガイの方がハマチよりも大きい。⁵⁷Coと、⁵⁴Mnでは約40%大きく、⁶⁵Znでは、約2.8倍に達する。

3-3-3 臓器残留

3-3-3-1 生物同化型存在状態と塩型存在状態の比較

被検群間の臓器および組織重量に差異のあることに配慮して、放射能の残留率を重量で除した残留率濃度で、残留状況を示した。

投与2日後は投与試料が体外へ未だ完全には排泄されていない状態である。存在状態間での残留率濃度の差異には核種による差異が現れている。

⁵⁷Coでは、心臓、じん臓、甲状腺、脳においては存在状態による差異は判然としないが、その他の全ての臓器組織において、コタマガイ存在型投与群の残留率濃度の方が統計的に有意に高い。ここで統計的有意とは $P < 0.01 \sim P < 0.1$ を意味している。内容物を含む大腸を除くと、最大の残留率濃度は肝臓に認められ、次いでじん臓における濃度が高い。両臓器間の濃度差には存在状態の差異が反映しており、じん臓の相対濃度で示した肝臓の濃度は、塩型投与群で1.4倍、コタマガイ存在型投与群で6.2倍である。

⁵⁴Mnの濃度分布は⁵⁷Coと対照的である。投与時の存在型の差異が濃度の差異に統計的に有意に反映する臓器の全てについて、塩型投与群の残留率濃度は相対的に高い。両投与群に共通して肝臓、じん臓の濃度が相対的に高い。じん臓の相対濃度で示した肝臓の濃度は、塩型投与群で9.1倍、コタマガイ存在型投与群では、⁵⁷Coと同じく6.1倍であった。

⁶⁵Znは甲状腺を除く全ての臓・組織において、塩型投与群の残留率濃度が有意に高い(肺の $P < 0.1$ を例外として全ての臓・組織で $P < 0.01$)。

肝臓、すい臓における濃度が最大であり、じん臓の相対値で示した肝臓の濃度は、両投与群とも約1.4であった。

この時期において骨は相対的に濃度の低い臓・組織に属することは、全核種に共通している。

いずれの核種に関しても、塩型投与群は投与2~5日後に残留率濃度関数がピークを形成する。生殖腺の⁵⁴Mnのみは、若干遅れて15日後にピークを形成する。他の臓器との間の放射性核種の可逆的移行の存在を示唆している。コタマガイ同化型投与群においても、⁵⁴Mnに関しては上記の全臓器で、⁶⁵Znでは骨と生殖腺において、濃度のピーク形成現象が認められ、しかも塩型投与群のピークよりも早期に出現する。

ピーク出現後、肝臓の⁵⁴Mnの例外はあるが、観察可能な時間範囲で、塩型投与群は相対的に高い残留率濃度を示した。

指数関数回帰を適用して残留率濃度の時間変化を、時間の指数項の和で近似し、Tab. 4に、パラメータの数値を示した。

3-3-4 存在状態が臓器内被曝線量に及ぼす修飾効果

1次近似として、標的臓器の線量として他の臓器に存在する線源からの寄与を無視することとした。すなわち濃度の時間積分について、放射性核種の投与時の存在型による差異を比較した。

Tab. 4に示した残留率濃度関数を無限時間まで積分して、肝臓、じん臓、生殖腺、骨について単位重量当りのEEHT(SEEHT)を核種別、存在型別に、Tab. 5に示した。

SEEHTに関して、コタマガイ存在型の塩型に対する比、すなわち修飾の程度は核種、臓器により多様である。肝臓、じん臓、生殖腺、骨の4臓器のSEEHTの平均値を核種間で比較すると、修飾強度は⁶⁵Zn : 0.32、⁵⁷Co : 0.52、⁵⁴Mn : 0.62で、⁶⁵Znが最大の修飾を受ける。また修飾に関する感受性が最も高い臓器は生殖腺である。

Table 3. Equivalent Effective Half-Times (EEHT) of ^{57}Co , ^{54}Mn and ^{65}Zn in the whole-body of rat administered them in the form of salt or that incorporated into marine organisms.

Radionuclides	A ₁	A ₂	A ₃	Clam	Muscle of fish	Liver of fish
^{57}Co	1.1	0.8	0.7	0.8	0.7	0.8
^{54}Mn	1.8	0.8	1.1	1.2	0.8	1.0
^{65}Zn	24.1	11.8	16.5	9.7	13.9	16.8

footnote: A₁, A₂, and A₃ indicate the control groups respectively for the clam, the muscle of fish and the liver of fish groups. The EEHT is given in terms of days.

Table 4. Parameters of retention functions in the tissues and organs of rat for ^{57}Co , ^{54}Mn and ^{65}Zn in salt or incorporated into a clam, Gomphina melagaenis following the single oral administration.

Organs	Nuclide	Form	a ₁	T _{e1}	a ₂	T _{e2}	a ₃	T _{e3}	a ₄	T ₄	a ₅	T _{e5}
Liver	^{57}Co	A	0.0169	20.9	0.327	3.9	-8.66	0.38	---	---	---	---
		B	0.551	0.4	0.043	6.2	0.00048	19.9	---	---	---	---
	^{54}Mn	A	0.0443	23.2	0.581	3.7	-0.604	1.2	---	---	---	---
		B	1.45	1.2	0.044	10.5	0.00223	2.3	-0.420	0.74	---	---
	^{65}Zn	A	0.233	33.8	0.116	14.2	12.1	0.94	-13.0	0.80	---	---
		B	0.567	1.8	0.044	33.9	0.0083	63.6	---	---	---	---
Kidney	^{57}Co	A	4.81	0.8	0.026	9.6	0.0202	40.0	-86.2	0.3	---	---
		B	0.208	3.1	3.81	0.21	0.0227	6.6	0.014	17.1	0.00052	84.9
	^{54}Mn	A	0.072	2.5	0.030	19.1	-0.15	1.0	---	---	---	---
		B	4.89	0.24	-1.19	0.37	0.0467	10.2	-6.87	0.08	---	---
	^{65}Zn	A	0.992	1.9	0.180	30.5	---	---	---	---	---	---
		B	0.708	0.7	0.250	3.0	0.0234	117.	---	---	---	---
Gonad	^{57}Co	A	-0.0847	0.5	0.028	1.8	0.0027	8.2	0.0014	110.	---	---
		B	0.0130	0.8	0.00037	121.	---	---	---	---	---	---
	^{54}Mn	A	-0.0102	3.0	0.0109	50.4	---	---	---	---	---	---
		B	0.0023	-0.72	0.00465	10.6	0.00018	72.6	---	---	---	---
	^{65}Zn	A	-0.626	0.54	0.406	28.8	---	---	---	---	---	---
		B	5.57	2.4	0.052	15.5	0.0371	38.3	-5.60	2.4	---	---
Bone	^{57}Co	A	0.0197	2.1	0.0017	85.6	-0.0846	0.5	---	---	---	---
		B	0.0097	6.2	0.067	0.3	0.0014	12.2	0.0013	231.	---	---
	^{54}Mn	A	0.0042	8.6	0.0016	97.5	-0.0082	0.9	---	---	---	---
		B	-0.0023	0.6	0.0060	8.1	0.0004	225.	---	---	---	---
	^{65}Zn	A	0.143	162	0.191	1.9	-1.17	0.3	---	---	---	---
		B	-0.0977	3.7	0.24	1.0	92.2	0.06	---	---	---	---

footnote: "a_i" is the concentration in the ith component of the retention function in terms of % dose / g.

T_{ei} is the effective half-times for the ith component of retention function and given in terms of days / g.

A and B indicate radionuclide in salt and that incorporated into the clam, respectively.

Table 5. Specific Equivalent Effective Half-Times (SEEHT) in the liver, kidney, gonad and bone of rat for ^{57}Co , ^{54}Mn and ^{65}Zn in salt or incorporated into a clam, *Gomphina melanaegis*, following the single oral administration.

	^{57}Co			^{54}Mn			^{65}Zn		
	A	B	B / A	A	B	B / A	A	B	B / A
Liver	1.3	0.58	0.45	2.5	1.8	0.72	10.5	3.1	0.30
Kidney	5.0	1.88	0.38	0.61	0.56	0.92	7.4	4.0	0.54
Gonad	0.19	0.06	0.32	0.52	0.06	0.12	11.4	2.3	0.20
Bone	0.14	0.13	0.93	0.18	0.13	0.72	23.1	5.6	0.24

footnote: the SEEHT is given in terms of days / g.

A and B are the SEEHTs for the groups administered radionuclides in the form of salt and that incorporated into the clam, respectively.

全身残留に関して観察したのと同様に、臓器の積分濃度も、 ^{65}Zn は ^{57}Co 、 ^{54}Mn より大きい。

^{65}Zn の ^{57}Co 又は ^{54}Mn との相対値は臓器間で、変動が大きく、塩型投与では、 $^{65}\text{Zn}/^{57}\text{Co}$ はじん臓 1.5 < 肝臓 8.1 < 生殖腺 6.0 < 骨 1.65、 $^{65}\text{Zn}/^{54}\text{Mn}$ は肝臓 4.2 < じん臓 1.21 < 生殖腺 2.19 < 骨 1.28 を観察した。一方コタマガイ存在型投与群について、 $^{65}\text{Zn}/^{57}\text{Co}$: じん臓 2.1 < 肝臓 5.3 < 生殖腺 3.8 < 骨 4.3、 $^{65}\text{Zn}/^{54}\text{Mn}$: 肝臓 1.7 < じん臓 7.1 < 生殖腺 3.8 < 骨 4.3 を得た。

積分濃度の ^{65}Zn 相対値に関して、塩型投与は、コタマガイ存在型投与の、約 2 倍であることを、 ^{57}Co 、 ^{54}Mn に共通して、結論することができる。(ヒト体内被曝線量の推定および考察)

米国及び西独の BWR 19 施設からの液体廃棄物中の $^{58+60}\text{Co}$ 、 ^{54}Mn 、 ^{65}Zn の 1974 年放出実績 4.234、1.05、0.994 Ci の比率が、日本の BWR にも適用可能であること、Thompson による海産無せき椎動物の Co、Mn、Zn の CF : 10^3 、 10^4 、 10^5 及び海産魚の Co、Mn、Zn の CF : 1×10^2 、 6×10^2 、 2×10^3 がコタマガイ、ハマチ筋肉に適用可能であることを仮定する。さらに両海産生物をラットに径口投与して得た ^{57}Co 、 ^{54}Mn 、 ^{65}Zn の残留率濃度関数がヒトに適用可能であることも仮定する。

上述の組成で放出された海水中に長期間生息したコタマガイ、ハマチを経口摂取して生ずるヒトの全

身体内被曝線量の ^{60}Co 、 ^{54}Mn の ^{65}Zn の相対値は、(1)式を用いて 15、19% ; 47、27% である。

放出放射能の放射性核種 i の構成比を ^{65}Zn の構成比で基準化した放出比を I_i 、 ^{65}Zn の CF で基準化した核種 i の CF を CF_i 、ラットで得られた Equivalent Effective Half - Time を ^{65}Zn の EEHT で基準化した i 核種の EEHT を EEHT_i 、MIRD pamphlet No. 11 の全身の単位蓄積放射能当りの吸収線量率について、 ^{65}Zn の数値で基準化した核種 i の線量率を S_i とすると、1 回摂取による全身体内被曝線量預託の ^{65}Zn 相対値 D_i は(1)式で与えられる。

$$D_i = I_i \times \text{CF}_i \times \text{EEHT}_i \times S_i \quad (1)$$

EEHT_i は Tab. 3 から得られる。また S_i は、 ^{60}Co : 2.1×10^{-5} 、 ^{54}Mn : 8.7×10^{-6} 、 ^{65}Zn : 6.1×10^{-6} 、(rad/ $\mu\text{Ci} \cdot \text{h}$) である。

骨および生殖腺における ^{65}Zn の EEHT が、 ^{57}Co 、 ^{54}Mn の約 40 倍に相当することに配慮すると、原子力施設から放出される ^{65}Zn は、特に連続放出の場合には、十分に考慮すべき体内被曝線源である。

謝 辞

本研究の遂行に当たり、海産生物への放射能標識等に支援していただいた本特別研究海洋グループに深謝する。

また、同時投与された放射能の残留率等の計算のためのプログラム開発およびデータのカードパンチ等に関するデータ処理室の支援に感謝する。

2-9 ラットにおける海藻にとり込まれた放射性クロムの摂取

環境衛生研究部 白石義行、市川龍資

Uptake of Radioactive Chromium Associated with a Seaweed by Adult Rats

Division of Environmental Health

Yoshiyuki SHIRAIISHI and Ryushi ICHIKAWA

(緒言)

環境中に存在する状態の放射性クロムの体内代謝に関する研究の一環として、前回の経常研究において、天然に無機化合物として存在する放射性クロムの化学型(3価および6価)、ならびに異なる担体量が、体内挙動に及ぼす影響の程度を調べ、放射性クロムの消化管吸収の機構を明らかにした。¹⁾

今回は、食品中での放射性クロムの存在状態を考慮し、食品として植物性の海藻、アラメ(*Eisenia bicyclis* SETCHELL)を選び、これに3価あるいは6価の放射性クロムをとり込ませ、これらの放射性アラメを動物へ投与し、放射性クロムの体内挙動を、両価無機クロム化合物のそれと定量的に比較し、胃腸管吸収の機構を検討した。

(実験方法)

塩化クロム($^{51}\text{CrCl}_3$ (III))あるいはクロム酸ナトリウム($\text{Na}_2^{51}\text{CrO}_4$ (VI))の化学型で、1 mCiの ^{51}Cr を添加した2ℓの濾過海水を含む培養フラスコ中に約20gのアラメの葉状体を入れ、2,000ルクスの蛍光灯照明による長日条件下、15℃で5日間栽培し、アラメへ各価 ^{51}Cr をとり込ませた。

この放射性アラメのホモジネート(取込型と略称する)1 mlを胃カテーテルを用いて、ウイスター系成熟令雄ラットへ1回経口投与、あるいは開腹手術によって1回十二指腸投与した。

十二指腸投与は、まずラットにエーテルで軽く麻酔をかけ、直ちに開腹し、リング付きピンセットで十二指腸をとり上げ、これに注射器で各種存在型の

^{51}Cr を1 ml投与したが、この際胃内に流入しないように注意を払う。注入部の針跡に瞬間接着剤アロニアルファーを滴下して後、腹壁を断続縫合した。

投与後、アーマック液体シンチレーションカウンタにより経時的に25日間全身放射能を計測し、 ^{51}Cr の体内残留率を求めた。比較のため、取込型の一部を灰化したもの(灰化型)、上記と同じ栽培条件化、 ^{51}Cr 無添加海水を含む培養フラスコ内で栽培した非放射性アラメのホモジネートに各価無機 ^{51}Cr を混合したもの(混合型)、そして各価無機 ^{51}Cr の水溶液(無機型)を、取込型の場合と同様に経口あるいは十二指腸投与し、それぞれの体内残留を観察した。

消化管吸収率は、投与群別に胃腸管を除いた全身の放射能を測定して求めた。

なお、各投与群は、30匹のラットで構成される。(結果および考察)

Fig. 1およびFig. 2にみられるように、経口および十二指腸投与の場合ともに、各種存在状態の両価 ^{51}Cr の体内残留率は、投与後急速に減少し、投与後3日目に経口投与では、(両価 ^{51}Cr は)投与量の0.1~0.2%を示し、十二指腸投与では、経口投与の場合よりも、3価 ^{51}Cr はわずかに高く、6価 ^{51}Cr ははるかに高く0.3~2%を示した。その後22日間、各種体内残留曲線は、相対的にゆるやかに、かつほぼ同じ傾斜で減少した。

胃腸管吸収率は、経口投与の場合、両価 ^{51}Cr は類似し、投与量の0.1~0.2%の範囲内にあり、無機型>灰化型>混合型>取込型なる傾向を示した。

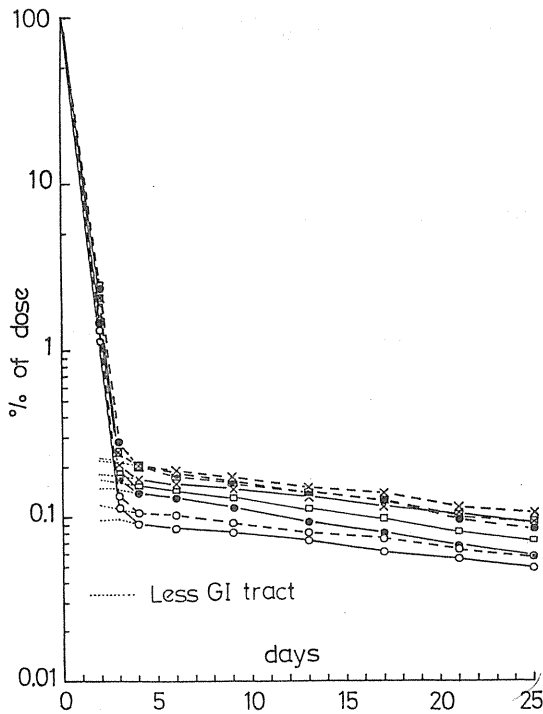


Fig. 1 Whole-body retention of ^{51}Cr by rats after a single oral and intraduodenal administration of the following materials: the algae exposed to $^{51}\text{CrCl}_3$ in seawater (○), the ash of the same radioactive algae (□), the mixture of non-radioactive algae with $^{51}\text{CrCl}_3$ solution (●), and the $^{51}\text{CrCl}_3$ solution (×). The retention curve for oral and intraduodenal administration is represented by a solid and broken line, respectively.

十二指腸投与の場合、3価 ^{51}Cr では、経口投与の場合よりもわずかに高く、6価 ^{51}Cr では、はるかに高く、無機型（投与量の1.8%）>灰化型（0.77%）>混合型 > 取込型（0.33%）なる傾向を示した。

これらの結果から、 ^{51}Cr の胃腸管吸収は、3価 ^{51}Cr では、この核種とアラメ有機成分との結合により抑制され、あるいは相対的に低い程度でアラメ有機成分の共存、アラメ無機成分の共存により抑制され、さらに胃液への曝露がこれらの抑制にわずかであるが関与するものと推察される。これに対し、6価 ^{51}Cr では、この核種の胃液への曝露、すなわち強力な酸化剤である6価 ^{51}Cr が酸性溶液中で有機物と容易に反応し3価型への還元^{2,3)}によって大きく抑制され、かつ相対的に低い程度であるが、3価 ^{51}Cr の場合と同様な傾向で、この核種とアラメ無機成分の共存が吸収の抑制に関与することが推察される。

結局、クロムの吸収率は、腸管におけるクロムの

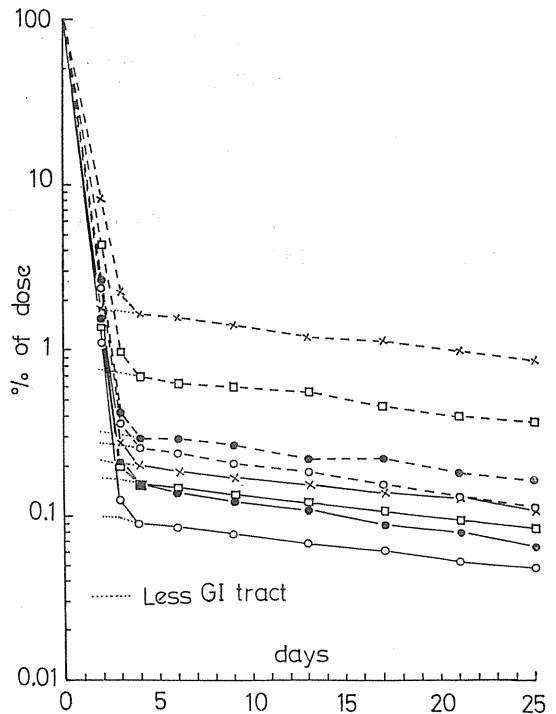


Fig. 2 Whole-body retention of ^{51}Cr by rats after a single oral and intraduodenal administration of the following materials: the algae exposed to $\text{Na}_2^{51}\text{CrO}_4$ in seawater (○), the ash of the same radioactive algae (□), the mixture of non-radioactive algae with $\text{Na}_2^{51}\text{CrO}_4$ solution (●), and the $\text{Na}_2^{51}\text{CrO}_4$ solution (×). The retention curve for oral and intraduodenal administration is represented by a solid and broken line, respectively.

存在型によって影響されると云えよう。

（参考文献）

- 1) 白石義行、市川龍資：第20回日本放射線影響学会（1977）。
- 2) Cotton, F. A. and G. Wilkinson: *Advanced Inorganic Chemistry. A Comprehensive Text.* (2nd ed.), Interscience Publishers, 1, 136 pp (1966)。
- 3) Rollinson, C. L.: *Chromium, molybdenum and tungsten*, In *Comprehensive Inorganic Chemistry*, Pergamon Press, pp. 623-769 (1973)。

2-10 食物連鎖におけるトリチウムの代謝

環境衛生研究部 新井清彦、武田洋、櫻田義彦

Tritium Behavior in Radioecological Food Chain

Division of Environmental Health

Kiyohiko ARAI, Hiroshi TAKEDA
and Yoshihiko KASIDA

(緒言)

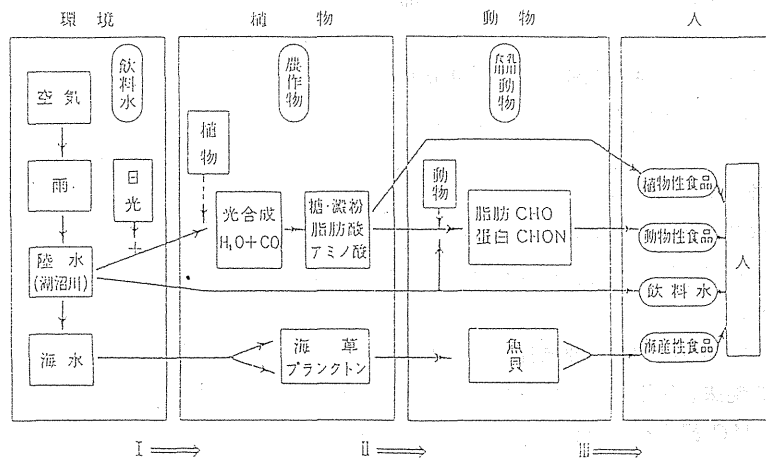
原子力施設などからの放出トリチウムによる環境汚染や、それに伴う被曝が近來問題視されるにいたった。

トリチウムは、主として水の形で環境に拡散し、植物に摂取されて、食物連鎖を通じて人体にとりこまれることが多いが、その経路は図1のように複雑

である。

この研究では、トリチウムの植物における代謝、すなわち、植物系食物連鎖におけるトリチウムの代謝を中心として、その動向を解明し、一般人の被曝線量を推定することを目的とした。そのために、先づ代表的食用作物である小麦について研究を行なった。

図 1 トリチウムの食物連鎖



小麦は人間の主食となるのみでなく、動物の飼料としても多用されており、そのトリチウム代謝の動向を知ることは、環境放射線被曝の研究に対して、有効な知見を与えるものと期待される。

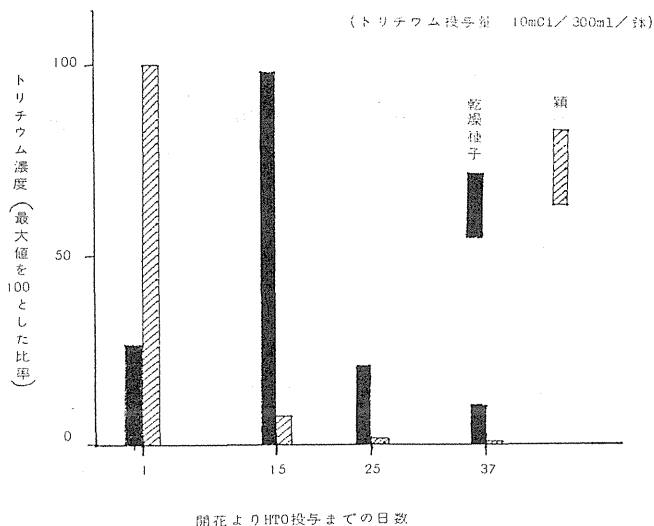
小麦におけるトリチウムの動向は、水として経根吸収され、植物体内を通過して葉面より蒸散されるものと、光合成同化産物の一部として、有機物の形で組織を構成するものとに分けることができる。後者は、同化吸収の時期や、植物体の部位により、分

布に差のあることが判明している。これらの量的関係が、被曝線量推定にどのように関与しているかを中心として、その結果を検討した。

(実験方法及び結果)

小麦は、前年の11月に、1/5,000アールのワグネルポットに播種し、屋外で栽培し、HTO投与実験に用いる数日前に、当所に設置されているトリチウム実験用チェンバー内に持ち込み、1日順化した後にトリチウムを投与した。投与時期は、開

図 2 小麦のトリチウム濃度分布



期と、開花後15、25、37日目で、投与量は、 $10\text{ mCi} / 300\text{ ml} / \text{鉢}$ のトリチウム水を用いた。この結果は、時期、部位別のトリチウム濃度分布を示す値が得られた。

またこれとは別に、同様の試験方法で、 $400\text{ mCi} / 1,000\text{ ml} / 5\text{ 鉢}$ のトリチウム水と、 $15\text{ mCi} / 2,500\text{ l}$ の ^{14}C を同時に投与して、高濃度二重標識実験を行なった。

投与時の栽培条件は、ガラス越の自然光線下で、昼温を外気平均温度に設定し、夜温をそれより 10°C 低くした。

試料小麦は、完熟後採取し、凍結捕集法で水分を分離し、自動燃焼法を伴用した液体シンチレーション法で、 ^3H 、 ^{14}C 濃度を測定した。

投与時期と取り込み濃度との関係を調べた実験では、開花期と、開花後15、25、37日目にトリチウム水を投与した小麦種子の、組織結合性トリチウムの値を比較して、表1に示すような値を得た。すなわち、種子では開花後15日目に最高値が見られ、25日目にはかなり低下し、37日目ではほとんど取り込みが見られない。また、穎ではこれと異なるパターンが見られ、開花期が高かった。

高濃度標識化実験では、表2、表3に示されるような結果を得た。すなわち、平均濃度 $T = 4 \times$

表 1 試料小麦の性質

収穫期	1979年6月下旬
1粒重量	45 ~ 50 mg
水分含量	12 ~ 15 %
穎重量	3 ~ 5 mg
T濃度	$4 \times 10^2\text{ pCi/mg dw}$
^{14}C 濃度	$1 \times 10^4\text{ pCi/mg dw}$

表 2 小麦 T、 ^{14}C 濃度分布

部位	T pCi/mg	^{14}C pCi/mg
種子	400 (100)	10000 (100)
穎	160 (40)	2800 (28)
茎	24 (6)	1600 (7)

10^2 pCi/mg 、 $^{14}\text{C} = 1 \times 10^4\text{ pCi/mg}$ の試料小麦250gが得られるとともに、T、 ^{14}C の小麦における吸収利用率が判明した。

(考察)

小麦種子における結合性トリチウムの値は、開花後15日目に投与したものに最高値が見られたが、これは、この時期が、小麦種子に最も同化生産物の取り込みが盛んなことを示している。これに比べて、25日目にはかなり低下し、37日目にはほとんど取り込まれなくなることが示されているが、これは、

完熟に近くなり、生育活動が終末に近いことによるものと考えられる。また開花期において低いのは、種子形成の初期であり、その後多くの同化産物の取り込みにより、トリチウム濃度が薄められたものと考えられる。

開花後15日目頃は、同化産物の種子への取り込みの活性度が高いので、この時期にトリチウムの摂取が起こると、効率良く種子に蓄積されるため、そのような小麦を食品としたときは、被曝線量が多くなることが見込まれる。トリチウムの取り込み時期が、開花後15日目より、25日目にずれると、同量のトリチウムの接触を受けても、種子に取り込まれる量は約1/4に低下する。それゆえにこのような食品としての植物の、時期・部位によるトリチウム同化の差は、被曝線量推定に当り、重要な因子となり得るものであることが判明した。

同化されるトリチウムの量は、組織の種類と時期により、値を異にするが、これらの相互関係は複雑である。しかし、トリチウム水と同時に、 $^{14}\text{CO}_2$ を投与して、両者の濃度分布を測定することにより、その一端を知ることができた。

登熟期の小麦に、HTO 400mCi, $^{14}\text{CO}_2$ 15 mCiを同時に投与し、得られた小麦種子250gより、平均濃度

$$T = 4 \times 10^{-4} \text{ mCi/g}$$

$$^{14}\text{C} = 1 \times 10^{-2} \text{ mCi/g}$$

の値を得た。

これより、 ^{14}C 、Tの利用率の比

$$U = \frac{cu}{Cu} \bigg/ \frac{tu}{Tu}$$

を求めると

cu, tu : 小麦250g中の ^{14}C 、Tの総量
Cu : 投与した ^{14}C 15 mCi, 吸収率
90%における ^{14}C の吸収量
Tu : 投与したT 400 mCi, 吸収率
50%におけるTの吸収量

としてあてはめると

$$U = \frac{1 \times 10^{-2} \times 250 / 15 \times 0.9}{4 \times 10^{-4} \times 250 / 400 \times 0.5} = \frac{2.5 \times 200}{13.5} = 370$$

が得られる。

この値は、蒸散係数が300~600というBierhagenらの報告(1965)と近似した値であった。

このことは、同化生産物に残留するトリチウムより、葉から蒸散して行くトリチウムが、非常に多量であることを示している。

(おわりに)

この研究は環境特研として53, 54年度に実施されたが、その後はトリチウム特研として実施されることになったため、環境特研として実行された2年分のみ結果をまとめてあるが、引き続き研究は進められておりこの報告に関連するものとしては、高濃度二重標識小麦の成分分析や、ラットに飼料として投与した結果、トリチウム水投与とは異なる動物体内分布が見られたことがあげられる。この件は、さらにトリチウム標識米、大豆などとの比較実験に進み、それらの中で、動物体内における体内分布の差異が見られたことを報告して、その関連を述べるものである。

(研究発表)

- 1) 新井、武田、樫田：HTOによる標識小麦のT分布について第21回日本放射線影響学会札幌(1978. 9)
- 2) 新井、武田、樫田：HTO, $^{14}\text{CO}_2$ による二重標識小麦のT, ^{14}C 分布について第22回日本放射線影響学会大阪(1979. 11)

(参考文献)

- 1) 戸町義次監修：作物の光合成と物質生産 (1971)
- 2) R. Kirchmann : Transfert et Incorporation du Tritium Dans Les Constituants de L'herbe et du Lait, en Conditions Naturelles, Health Physics, Vol. 21, July, pp61-66(1970)
- 3) R. Kirchmann et al : Distribution

- of Tritium in the Different
Organs of Calves and Pigs after
Ingestion of Various Tritiated
Feeds, Current Topics in Radiati-
on Research Quarterly, 12, pp291-
312 (1977)
- 4) Z. Pietrzak-Flis et al : Tritium
in Rabbits after Ingestion of
Freeze-Dried Tritiated Food and
Tritiated Water, Radiation
Research, 76, pp420-428 (1978)
- 5) J. F. Cline : Absorption and
Metabolism of Tritium oxide and
Tritium Gas by Bean Plants,
Plant Physiology, Vol. 28,
pp717-723 (1953)
- 6) Ivan C. Choi and S. Aronoff : Pho-
tosynthate Transport Using
Tritiated Water, Plant Physiology,
Vol. 41, pp1119-1129 (1966)
- 7) J. R. Kline and M. L. Stewart :
Tritium Uptake and Loss in Grass
Vegetation Which has been Exposed
to an Atmospheric Source of
Tritiated Water, Health Physics,
Vol. 26, pp567-573 (1974)
- 8) Franklin Raney and Yoash Vaadia :
Movement and Distribution of THO
in Tissue Water and Vapor
Transpired by Shoots of Heliant-
hus and Nicotiana, Plant
Physiology, Vol. 40, pp383-388
(1965)
- 9) Y. Belot, D. Gauthier, H. Camus
and C. Caput : Prediction of the
Flux of Tritiated Water from Air
to Plant Leaves, Health Physics,
Vol. 37, pp. 575-583 (1979)

2-11 動物体内におけるトリチウムの代謝

環境衛生研究部 武田 洋

Metabolism of Tritium in Animal

Division of Environmental Health

Hiroshi TAKEDA

(緒言)

環境中へ放出されたトリチウム(T)から、我々が被曝する場合、その存在状態から考えて、トリチウム水(HTO)の形が最も多いと思われる。この形で生物体内に取り込まれたTは、その一部が交換反応や代謝過程を通じて各種組織構成有機物と結合し、組織結合性Tになることが知られている。このことは、我々人類が多く他の生物(動物および植物を含む)を食料としている事実からして、Tによる被曝が、HTOのみならず、このT標識有機物の摂取によってもおこることを示すものである。ここではこのような食物連鎖によるT被曝を考慮し、HTO以外に、各種T標識有機物をラットに投与し、その体内挙動を調べ、Tからの被曝線量評価を行い相互比較した。T標識有機物としては、蛋白質、糖、核

酸の前駆物質であるT-ロイシン、T-グルコース、T-サイミジンを使用した。

(実験材料および方法)

Wistar系ラット(雄2.5~3.0ヶ月令、平均体重350~380g)に、単位体重当り一定量の各T標識化合物を経口投与し、その後約100日間経時的に屠殺し、各組織中の全T濃度、および凍結乾燥処理後の乾燥組織中の組織結合性T濃度を測定した。

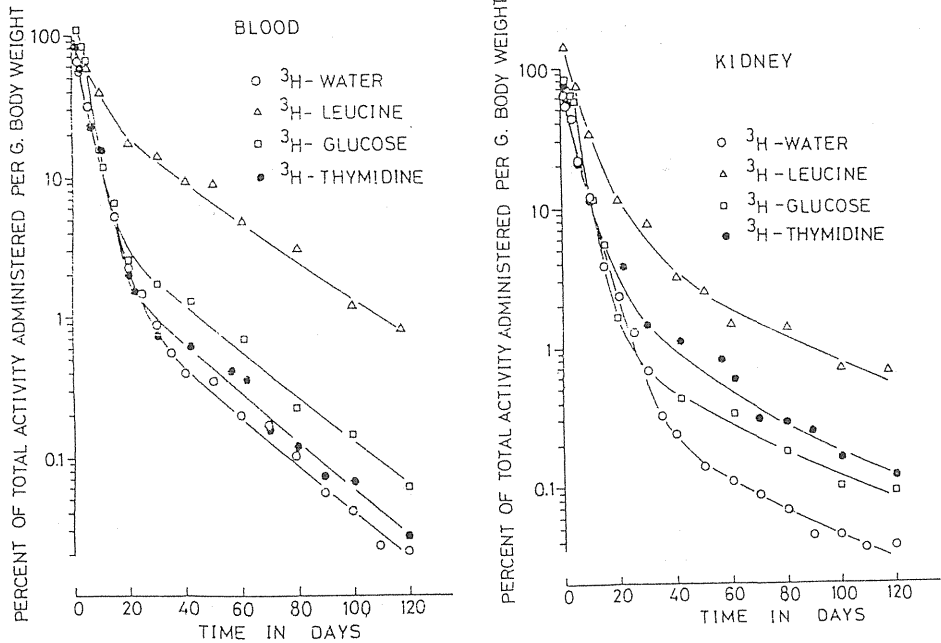
(結果および考察)

各T標識化合物を経口投与し、24時間後の各組織へのT分布を調べた(表1)。その結果、組織中全Tは、HTOの場合、脂肪組織を除けばほぼ均一分布を示すのに比べ、有機形で投与した場合には比較的不均一である。しかし、そのT濃度は、HTOの場合と比べ大きな差は認められなかった。次に、

表1. Distribution of Tritium in Various Tissues at 24 Hours after Ingestion of Tritiated Compounds.

Tissues	Relative Concentration*							
	Tritiated Water		Tritiated Leucine		Tritiated Glucose		Tritiated Thymidine	
	Total	Bound	Total	Bound	Total	Bound	Total	Bound
Blood	91		90		108		88	
Liver	75	3.1	133	92	77	11.9	74	3.5
Kidney	76	1.8	148	103	85	7.5	74	2.0
Testis	79	0.82	64	28	98	4.2	83	1.5
Spleen	75	1.9	72	68	87	8.9	86	18.7
Brain	74	1.2	63	24	77	8.7	71	0.9
Intestine	75	2.3	—	—	—	—	97	24.4
Fat Tissue	3.7	0.22	6.8	6.5	12	7.3	7.7	1.7

(図1)



組織結合性Tの濃度を比較すると、T-ロイシン投与の場合には、HTOの場合に比べかなり高い値が見られたが、T-グルコースとT-サイミジンの場合には、HTOの場合とそれほど大きな差は見られなかった。この結果は、有機形で投与された場合でも、T-グルコースやT-サイミジンのような化合物では、投与後初期にかなりの部分が分解するか、あるいはTの解離(リリース)が起こり、その大半が揮発性のT、つまりHTOとして存在していることを示している。また、有機形で投与した場合に、Tの分布が不均一になるのは、分解を免がれたその化合物に対して各組織の親和性に差があるためと考えられる。特に高い親和性が認められたのは、T-ロイシン投与の場合に肝臓と腎臓、T-サイミジン投与の場合に脾臓と小腸であった。

図1には、4つのT標識化合物投与後の血液と腎臓におけるTの排泄曲線を示した。この2つの例によって示されるように、HTOで投与した場合より、有機形で投与した場合の方が相対的にTの排泄は遅く、また、組織毎にそれぞれTの排泄パターンは異なっている。4つのT標識化合物投与後100日目の各組織中のT残留を調べてみると、T-ロイシン

の場合、脂肪組織を除いて、10~30倍、T-グルコースの場合は2~6倍、T-サイミジンの場合は、1~5倍、HTO投与の場合より高いT残留が認められた(表2)。

最後に、T標識化合物投与後100日間の各組織の被曝線量を比較すると、HTOの場合、含水量の少ない脂肪組織で線量は低く、また、含水量が多く、HTO摂取後各組織へのTの運搬経路である血液で比較的高い線量値が見られたが、その他の組織ではほぼ同じ線量値を示した(表3)。一方、有機形で投与した場合のTからの線量は、組織間で差が見られ、またHTOの場合に比べ相対的に高い値を示した。中でも最も高い線量値が見られたのは、T-ロイシン投与の場合で、HTOの場合の2~3倍であった。なおこのとき、HTO投与の場合にその線量の大部分が揮発性Tつまり水の形のTからであるのに対し、T-ロイシンの場合、その線量の主たる部分は不揮発性Tつまり組織中に結合したTによるものであった。T-グルコース、T-サイミジンの場合に、組織結合性Tからの全線量に対する線量寄与率は、HTOの場合より高いが、T-ロイシンの場合に比べればかなり低い値を示した。

以上、HTOおよび有機形のT化合物としてT-ロイシン、T-グルコース、T-サイミジンを選び、その被曝線量評価を行った。この結果、有機形で摂取した場合の方が、体外へのTの排泄が遅く、被曝

線量も多くなることが判明した。しかも、有機形の場合、その化合物に特異的に親和性を持つ組織の存在することが判明し、ここで調べられた組織以外にも、このような組織の存在することが考えられる。

(表2) Tritium Concentrations in Several Tissues at 100 Days after Ingestion of Tritiated Compounds.

Tissues	Relative Concentration*			
	Tritiated Water	Tritiated Leucine	Tritiated Glucose	Tritiated Thymidine
Blood	0.041	1.2	0.14	0.065
Liver	0.026	0.50	0.15	0.12
Kidney	0.045	0.72	0.10	0.16
Testis	0.034	0.41	0.07	0.08
Spleen	0.060	0.95	0.16	0.20
Brain	0.11	1.6	0.60	0.16
Intestine	0.035	—	—	0.14
Fat Tissue	0.68	1.9	3.7	0.88

* Relative Concentration is expressed as a percentage of activity given per gram of body weight.

(表3) Doses (rad) Accumulated during 100 Days in Various Tissues of the Rat after Ingestion of Tritiated Compounds.

Tissues	Doses from Ingestion of 1.0 μ Ci/g Body Weight			
	Tritiated Water	Tritiated Leucine	Tritiated Glucose	Tritiated Thymidine
Blood	1.6	3.9	1.7	1.6
Liver	1.2 (9.3%)	3.6 (72%)	1.5 (29%)	1.5 (10.6%)
Kidney	1.2 (6.9%)	3.9 (75%)	1.5 (26%)	1.7 (8.0%)
Testis	1.3 (4.2%)	2.1 (58%)	1.7 (14%)	1.6 (5.5%)
Spleen	1.2 (8.1%)	2.6 (88%)	1.4 (24%)	1.8 (13.0%)
Brain	1.2 (8.5%)	2.8 (64%)	1.7 (36%)	1.5 (8.7%)
Intestine	1.2 (7.1%)	—	—	1.6 (11.8%)
Fat Tissue	0.3 (64.0%)	1.0 (88%)	2.6 (90%)	0.7 (70.8%)

Values in parentheses are percentage contributions from tissue-bound tritium.

また。肝組織内におけるTの生化学的分布を調べた予備的実験は、投与した化学形によって明らかにその分布が異なることを明らかにしている。これらの結果は、Tの相対的危険度が摂取するときの化学形によって異なり、一般的には、HTOよりむしろ有機形Tの方がその危険度が高い可能性を示唆している。

(研究発表)

1) H. Takeda and Y. Kasida (1979)

Biological Behavior of Tritium after Administration of Tritiated Water in the Rat., J. Radiat. Res. 20, 174

2) H. Takeda (1982)

Comparative Metabolism in Rat after Single Ingestion of Some Tritiated Organic Compounds versus Tritiated Water.

J. Radiat. Res. 23, 345

3) H. Takeda (1982)

Tritium Metabolism in Rat Tissues. Proceedings of the Workshop on Tritium Radiobiology and Health Physics.

NIRS-M-41, 187-204

2—12 HTO投与後のラットにおけるトリチウムの全身 残留と臓器分布における年齢依存性

環境衛生研究部

稲葉次郎、西村義一、武田洋、樫田義彦、
市川龍資

Age Dependence of Excretion and Tissue Distribution of Tritium after Single Oral Dose of Tritiated Water to Rats

Division of Environmental Health

Jiro INABA, Yoshikazu NISHIMURA,
Hiroshi TAKEDA, Yoshihiko KASIDA
and Ryushi ICHIKAWA

(緒 言)

人体での水代謝に明確な年齢依存性があることはすでに良く知られている。しかし、トリチウム代謝の年齢依存性に関する報告は、ヒトでは勿論実験動物でもあまり多くない。ヒトの場合、成人がトリチウムを体内に取り入れた例は比較的多く、生物学的半減期等が詳細に調べられている。それらのほとんどは、職業人が職業上あるいは事後的に体内に取り入れた場合を対象に調べたものであり、幼若者ではそのような機会が無い。実験動物での観察例はヒトに比べれば多いが、それでも特に新生仔期・哺乳仔期では実験手技上の問題点が多いこともあって十分とは言えない。

ここでは、種々の年齢のラットにHTOを投与してその後の体内代謝を観察すると共に、投与後35日迄の線量預託を計算し、成熟ラットでの計算値は幼若ラットのそれに対して conservative であるか否かを確認する実験研究を行った。

(実験方法)

放医研動物管理課で繁殖維持しているWistar系のラットを実験動物とした。哺乳仔を含む種々の年齢のラットに、適切に希釈したHTOを胃カテーテルにより1回経口投与し、その後は23℃のRI動物室で自由摂餌により飼育を続けた。離乳以降のラットは1匹用メタボリズムケージで飼育し、哺乳

期ラットは1腹のサイズを10匹に調整した上で母親に哺育させた。この際、10匹の中の数匹にはHTOを投与せず、クロスコンタミネーションのチェック用に供した。この間、経時的に尿を採取して放射能濃度の測定を行った。また、経時的に動物を殺して、血液、脳、肝臓、筋肉、睪丸等を試料として採取して放射能濃度の測定を行った。この際、各組織は新鮮物をバックカード社製オキシダイザーにより処理して測定すると共に、その組織の一部は電気乾燥器を用いて恒量になるまで乾燥した後オキシダイザーにより処理して測定した。すなわち、結果的にHTOあるいは組織水トリチウムを組織結合型トリチウムに分けて測定した。

(実験結果および考察)

尿中トリチウム濃度の経時変化を動物の年齢別に調べた結果をFig. 1に示した。尿中濃度変化には明らかな年齢依存性が認められ、幼若な動物ほど濃度の低下は急激である。この一般的傾向の例外は哺乳仔で、そこでの排泄は離乳仔よりもわずかではあるが緩やかである。ラットでは母親が哺乳仔の尿をなめる習慣があり、哺乳仔尿→母体→母乳→哺乳仔という経路の循環が考えられるため、HTOを投与しない個体の尿中濃度も測定し、補正してある。なお、図1の縦軸の濃度比とは次の意味である。

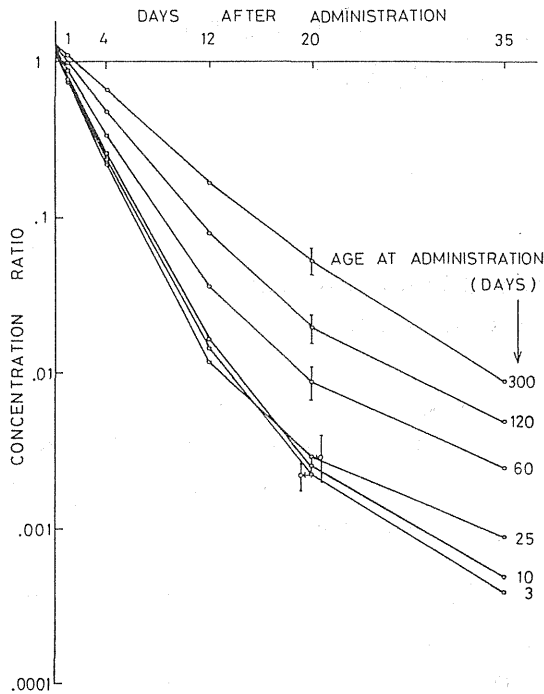


Fig. 1. Tritium concentration in urine sample after a single oral administration of tritiated water to rats of various ages. Each point represents the average value for more than 3 animals and their standard deviation if any.

$$\text{濃度比} = \frac{\text{試料 1 g あたりの放射能 (cpm)}}{\text{投与放射能 (cpm) / 体重 (g)}}$$

5種の組織・臓器中のトリチウム濃度を、HTOあるいは組織水トリチウムと組織結果トリチウムに分けて測定した結果はFig. 2に示した。組織によって相違があるが、いずれの場合も幼若な動物ほど早期に組織結合トリチウムの寄与が高くなる。

Fig. 3は、Fig. 1およびFig. 2から5組織での組織水および乾燥組織のトリチウム濃度を計算し、それらの算術平均値をグラフに示したものである。投与後の時間の経過にしたがい組織水トリチウムに比し組織結合性トリチウム濃度が相対的に高く

なるが、この傾向は幼若な動物ほど早期に顕著にあらわれる。すなわち、2本の線は幼若な動物ほど早期に交差する。さらに、幼若な動物ほど交差時の濃度が低い。

以上のデータに基づいて線量計算をすると以下のようなになる。Table 1は、Fig. 1およびFig. 2から各種組織器官中のトリチウム濃度の経時変化を、簡単のため2成分の指数関数で記述したものである。動物に体重1gあたり μCi のHTOを投与した時、投与後35日までに各種組織器官が受ける線量も計算し、Table 1の中に示してある。ここで特徴的なことは、組織によって多少の相違はあるが、幼若な動物ほど線量は低く、10日令と25日令のラットに投与した場合は、成熟動物に投与した場合の約半分の線量である。

環境に放出されたHTOによる一般公衆の線量を評価するにあたって、年齢群別に評価することが望ましいが、成人に対するdose factorを一般公衆全対に対して用いても、その結果、幼若者に対し過小評価となることはなく、むしろconservativeな値が得られることが確認できた。

(研究発表)

- 1) J. Inaba, Y. Nishimura, H. Takeda, Y. Kasida, and R. Ichikawa: Age dependence of excretion and tissue distribution of tritium after single oral administration of tritiated water to rats of various ages, *J. Radiat. Res.*, 22 287-296 (1981)
- 2) 稲葉次郎 トリチウム代謝の年齢依存性 第9回放医研環境セミナー, 1981年 12月放医研

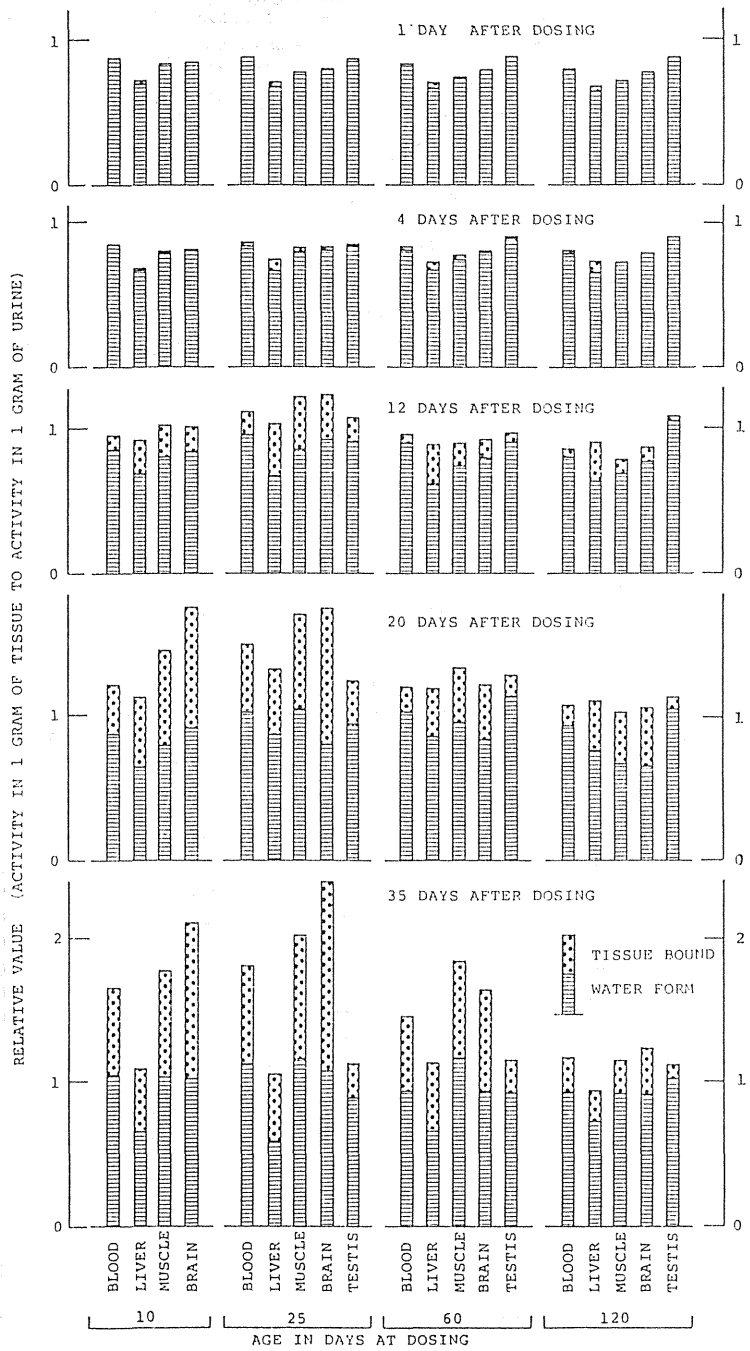


Fig. 2. Concentration of tritium in several tissues relative to that in urine of rats of various ages. Tritium activity was assayed separately from water form tritium and tissue organic tritium. For further details see text.

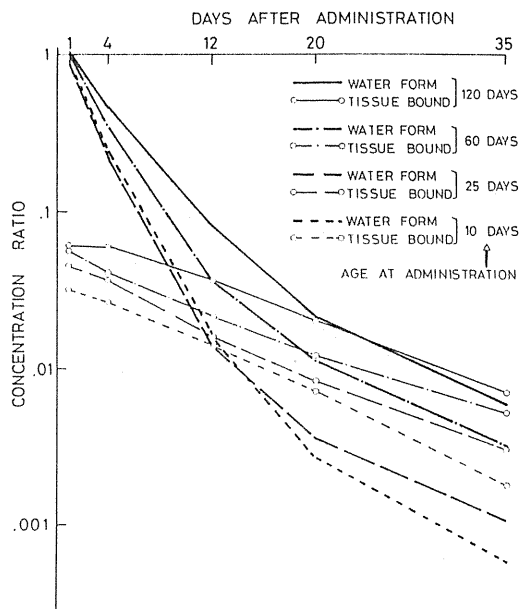


Fig. 3. Relative concentration of tritium in rats of various ages. Each value is arithmetic average of tritium concentration for blood, brain, liver, muscle and testis.

Table 1.

Retention function of tritium in body tissues and consequential radiation dose in first 35 days following oral administration of $1 \mu\text{Ci/g}$ body weight of tritiated water.

Age at administration	Tissue	Retention function ($\mu\text{Ci/g}$ tissue weight)	Dose (rad)
10	Blood	$R = 0.967e^{-0.382t} + 0.020e^{-0.092t}$	0.80
	Brain	$R = 0.974e^{-0.446t} + 0.024e^{-0.105t}$	0.70
	Liver	$R = 0.815e^{-0.363t} + 0.025e^{-0.094t}$	0.73
	Muscle	$R = 0.922e^{-0.391t} + 0.029e^{-0.094t}$	0.77
25	Blood	$R = 0.962e^{-0.422t} + 0.018e^{-0.069t}$	0.73
	Brain	$R = 0.903e^{-0.456t} + 0.029e^{-0.099t}$	0.66
	Liver	$R = 0.793e^{-0.387t} + 0.021e^{-0.070t}$	0.68
	Muscle	$R = 0.875e^{-0.408t} + 0.017e^{-0.058t}$	0.70
60	Testis	$R = 0.956e^{-0.426t} + 0.022e^{-0.088t}$	0.72
	Blood	$R = 0.938e^{-0.333t} + 0.046e^{-0.073t}$	0.99
	Brain	$R = 0.896e^{-0.371t} + 0.064e^{-0.089t}$	0.91
	Liver	$R = 0.801e^{-0.310t} + 0.043e^{-0.061t}$	0.93
	Muscle	$R = 0.871e^{-0.319t} + 0.042e^{-0.067t}$	0.96
120	Testis	$R = 0.905e^{-0.329t} + 0.098e^{-0.110t}$	1.06
	Blood	$R = 0.883e^{-0.263t} + 0.120e^{-0.086t}$	1.37
	Brain	$R = 0.810e^{-0.305t} + 0.175e^{-0.103t}$	1.26
	Liver	$R = 0.752e^{-0.252t} + 0.113e^{-0.085t}$	1.24
	Muscle	$R = 0.838e^{-0.253t} + 0.110e^{-0.082t}$	1.34
Testis	$R = 0.933e^{-0.253t} + 0.150e^{-0.094t}$	1.52	

* t: time after oral administration in days.

2-13 超ウラン元素の食品

—人体系における移行—

環境放射生態学研究所 河村日佐男、田中義一郎

Transfer of transuranic elements in the environment to the human body

Division of Radioecology

Hisao KAWAMURA and Giichiro
TANAKA

(緒言)

核燃料サイクルの確立に対応すべき環境放射能のリスク研究の主要なテーマのひとつである、超ウラン元素の環境中での挙動および、人体への移行と体内代謝に関しては、その重要性にもかかわらず直接の情報は現在なお限られている。一般人におけるフォールアウト起源のプルトニウムの器官・組織中濃度および器官分布の地理学的差異、および、吸入摂取と経口摂取の相対的寄与率などを明らかにし、ICRP Publication 30に導入された Lung Model (TGLM) および関連代謝データの適用上の問題を検討することを目的として、研究を進めた。器官・組織中 $^{239, 240}\text{Pu}$ 濃度の放射化学分析、および、吸入摂取と経口摂取の全身負荷量における寄与率の推定を行い、標準日本人の値を利用してアルファ線による骨線量の検討を行なった。

(研究方法)

器官・組織の剖検試料は1970年より東京地区において継続的に採取した。熱風乾燥器により乾燥後、マッフル炉により徐々に灰化を行ない、灰分重量を測定後、硝酸を加えて湿式灰化を行なって完全に有機物を分解した。さらに硝酸ナトリウムを含む硝酸塩混合物を添加して熔融処理を行なった。7.8 M硝酸溶液とした試料は、ヒドロキシルアミンを加えて還元したのち、Dowex 1×4 (50-100メッシュ) カラムにより、Pu(IV)を吸着分離した。イオン交換分離は、繰り返して行なうことにより、 ^{228}Th 等の除去につとめた。精製されたPu(IV)は、0.36M HCl-0.002M HF 溶液により溶離した。

Pu(IV)は、硫酸アンモニウム緩衝液より、ステンレス・スチール円板上に電着して、アルファ・スペクトロメトリーを行った。回収率決定のためには、高純度の ^{242}Pu トレーサーを全試料およびブランク試料に添加した。得られた人体組織試料の部分アルファ・スペクトルをFig. 1に示す。

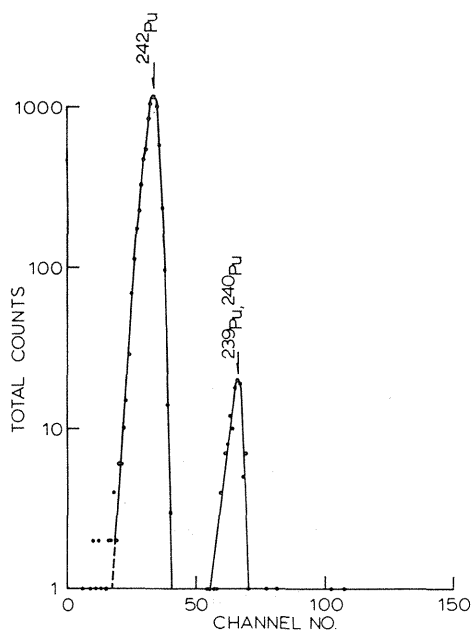


FIG. 1. α spectrum for a liver sample from a female subject who died in 1969. Counting time 3885 min, without background subtraction.

環境中に分散したフォールアウト・プルトニウムの人体への移行経路のうち、吸入摂取と経口摂取の全身負荷量への寄与の推定は次のように行なった。

吸入摂取量については、三宅らにより推定された東京地区の空气中²³⁹Pu濃度をベースとし笠井らにより実測・推定された空气中^{239,240}Pu濃度を参考にした。

環境物質および人体組織中の参照核種として⁹⁰Srを選び、人体の⁹⁰Sr負荷量は、プルトニウム分析試料のサイプリングと同時期の骨中⁹⁰Sr分析測定値より推定した。

人体組織中に沈着した²³⁹Puから放出されるアルファ粒子による組織線量当量は、ICRPの骨に関する線量算定モデルを標準日本人に適用して推定した。

(研究結果および考察)

分析値および分析方法のQuality assurance(品質保証)については、IAEAのA-12獣骨試料の相互比較分析および、NBSの天然マトリクス放射能標準試料SRM4352 Human Liverの分析により正確さおよび精度において満足な結果を得た。

1970年死亡例における器官組織中^{239,240}Pu濃度の定量値は次のようであった。すなわち、肺、肝臓、腎臓および骨組織の平均濃度は、それぞれ 0.23 ± 0.09 , 0.57 ± 0.37 , 0.02 ± 0.05 , および 1.10 ± 0.63 pCi/kg 組織であった。標準日本人の器官組織重量を用いて、器官・組織負荷量および全身負荷量を推定した。その結果、これら器官・組織負荷量の全身負荷量に対する割合は、肺7%、肝臓25%および骨格68%となった。これらの値は、他の研究者により他の地域の集団について報告された濃度値から、ICRP標準人の器官・

組織重量を適用して試みして計算されたものとは必ずしも一致しない。たとえば、肝臓および骨格の部分負荷量は、それぞれ、米国東部で0.50および0.49(1973-74)、米国西部で、0.62および0.21(1970年)、フィンランド南部で0.80および0.15(1976-77年)と推定された。

^{239,240}Puの体内分布パターンに地域差があるか否かについては、なお分析例を増して検討する余地が残されている。体内分布データの充実は、地球上における^{239,240}Puの時間空間的分布の情報の収集とあいまって、環境中プルトニウムの人体への移行過程における地理学的変異および代謝機構を明らかにするためきわめて重要な事である。

核分裂生成物の中で比較的長半減期の主要な核種である⁹⁰Srは、環境中のプルトニウムの挙動研究においてしばしば参照される核種のひとつである。環境試料中における^{239,240}Pu/⁹⁰Sr放射能比は、両核種の挙動を比較するうえで有用な情報である。人体における^{239,240}Pu/⁹⁰Sr比がいかなる値を取っているかについては、日本ではまだ確定したデータが存在しないので、その推定を行なった。

^{239,240}Pu負荷量は前述の値を用い、⁹⁰Sr負荷量は、骨中⁹⁰Sr/Ca比の実測値から、骨格内濃度分布を考慮して骨負荷量として計算した。その結果^{239,240}Pu/⁹⁰Sr全身負荷量比は 3.2×10^{-3} が得られた(Table 2参照)。地球上の他の地域、たとえば、米国では、 1.8×10^{-3} と推定されている。東京地区の地表空気中における^{239,240}Pu/⁹⁰Sr比は、三宅らにより 1.6×10^{-2} と推定さ

Table 1. Estimates of specific effective energy for alpha particles from ²³⁹Pu in bone (MeV per gram per nuclear transformation)

Target organ	Source organ	Reference Japanese Man	ICRP Reference Man
Cells near bone surfaces (BS)	Trabecular bone	0.26	0.21
Cells near bone surfaces (BS)	Cortical bone	0.26	0.21
Active red marrow (RM)	Trabecular bone	0.051	0.034

れているが、経口摂取の場合の前駆物質たる日常食中の $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 比は、研究者により幅があって未確定であると考えられる。最近の日常食中の $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 比は、報告値よりほぼ $10^{-4} \sim 10^{-3}$ と計算される。日常食中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{90}Sr の胃腸管吸収率をそれぞれ 1×10^{-4} および 3×10^{-1} と仮定すれば、経口摂取の約1年後の $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 負荷量比は 10^{-7} のオーダーと予測され、20年の連続摂取を仮定した場合でも、比較的小さい値となり、実測値 2.9×10^{-3} に対する寄与は無視できる程度となろう。したがって、全身負荷量における $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 比は、フォールアウト起源の $^{239,240}\text{Pu}$ の人体への移行経路としての経口摂取の重要性は現在までのところ小さいことを示唆するものであるが、なお、より詳細な理論的検討を予定している。

$^{239,240}\text{Pu}$ の吸入摂取量および経口摂取量を以下に述べるような方法で推定し、それぞれの摂取経路の全身負荷量に対する寄与率を推定した。空気中のプルトニウムはクラスY、その空気力学的放射能中央径0.4 mと仮定し、猿橋らの空気中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度を用い、一日の呼吸量は 20 m^3 とした。日常食中 $^{239,240}\text{Pu}$ 摂取量は、日本都市部の日常食中 $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ 比を用い、その $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 比 1×10^{-3} を仮定して計算した。考慮した器官・組織は、肺、肺リンパ節、肝臓、骨、精巣および卵巣である。器官、組織負荷量および全身負荷量の推定結果はFig. 2に示す。1957年より1975年までの期間において、経口摂取に起因する負荷量は、総負荷量（経口摂取および吸入摂取による負荷量の和）の 10^{-3} のオーダーであって、若干増加の傾向にあることが示された。

骨組織に沈着した放射性核種の放出するアルファ粒子から受ける骨表面近くの細胞（BS）および活性赤色骨髄（RM）の線量当量を推定するさい、線源器官および標準器官の質量が問題となる。本研究では、標準日本人の骨に関する標準値を用いて ^{239}Pu のアルファ粒子に対する比実効エネルギーを求めた（Table 1参照）。その結果日本人と欧米人の骨中 ^{239}Pu 濃度が等しいと仮定したとき、両

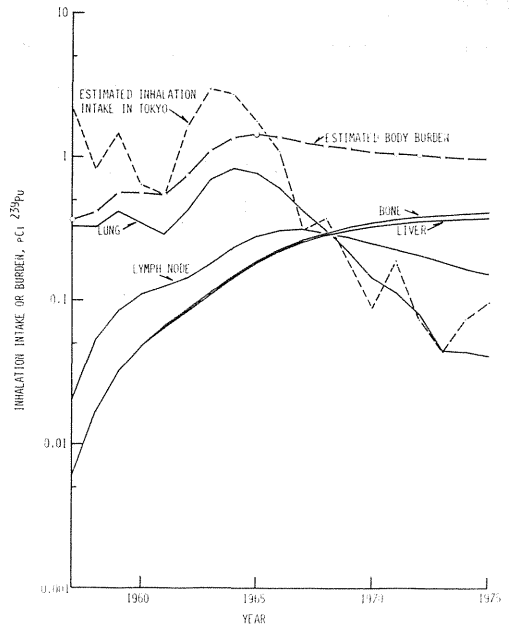


FIG. 2. Body burden estimated from the reported air ^{239}Pu concentrations in Tokyo (Mi79), and using ICRP Lung Model and metabolic data for plutonium (ICRP79). Class Y and $0.4\ \mu\text{m}$ AMAD were assumed for airborne fallout ^{239}Pu .

Table 2. Fallout $^{239,240}\text{Pu}$ and $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ body burden ratio in the Japanese adult male in 1970

Nuclide	Tissue	Average conc.	Burden* pCi
$^{239,240}\text{Pu}$		pCi/kg	
	Lung	0.23	0.25
	Liver	0.52	0.91
	Kidney	0.02	0.01
	Bone:		
	Trabecular	1.10	0.99
Cortical	0.55	1.82	
	Total		3.98
^{90}Sr		pCi/g Ca	
	Bone:		
	Trabecular	1.23	210
	Cortical	1.53	1,040
	Total		1,250

$$^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr} \text{ body burden ratio} = 3.98/1,250 = 3.2 \times 10^{-3}$$

*) The mass of tissues of the Japanese adult male was used for extrapolation. See text.

者の間に、骨表面近くの細胞に対する線量当量（HBS）の差は無いが、赤色骨髄の線量当量（HRM）は標準日本人（成人男子）では欧米人標準人のそれより大きいことが明らかとなった。

(今後の問題)

人体器官・組織中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の分布の定量的情報を積み重ねるとともに、吸入摂取量および経口摂取量の情報を収集することによって、地域差の問題吸入および経口摂取の両経路の相対的寄与率、ICRPモデルの適用上の問題点につき引き続いて検討を加えていきたい。

(研究発表)

- 1) 河村日佐男、田中義一郎
環境中Pu-239の人体への移行
原子力学会誌、22, 519, 1980.
- 2) Kawamura, H., Tanaka, G., McInroy, J.F. and Eutsler, B.C.
Concentration of $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ in Human Autopsy Tissues.
A Comparative study on different populations.
J. Radiat. Res, 22, 373-380, 1981.
- 3) Kawamura, H. and Tanaka, G.
Actinides Concentrations in Human Tissues.
Health Phys., 44, Supplement 1, 451-456, 1983.
- 4) 河村日佐男、野村悦子、田中義一郎、(J. F. McInroy)
一般人における ^{90}Sr および $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 負荷量、影響学会第22回大会、大阪、1979.
- 5) 河村日佐男、田中義一郎、野村悦子
人体中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の分布と $^{239}, ^{240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 比、影響学会第23回大会、長崎、1980. 10.
- 6) Kawamura, H., McInroy, J.F. Eutsler, B.C., Boyd, H.A., Romero, D., and Sanchez, A.
24th Annual Conference on Bioassay, Environmental and Analytical Chemistry, Annapolis, 1978. 10

2-14 標準日本人の設定

(1) 人体器官・組織の元素組成

環境放射生態学研究部

田中義一郎、河村日佐男、野村悦子、白石久二雄

Studies on Reference Japanese Man.

Content of elements in the body and tissues.

Division of Radioecology

Giichiro TANAKA, Hisao KAWAMURA,

Etsuko NOMURA and Kunio

SHIRAISHI

(緒言)

人体の各器官・組織における安定元素濃度およびその分布に関する定量的情報は、放射性核種の長期連続摂取における代謝パラメータ、母体から胎児への移行率、代謝の年齢による差異、同位体希釈効果、沈着した核種からの線量の空間分布などを推定するうえできわめて重要な課題である。

このような観点からこうした情報を充実させ、標準日本人の設定に資するため、本特研において、トレース・アナリシスの方法に立脚し、器官・組織試料の元素の濃度の分析測定および体内分布の推定を行っている。

(研究方法)

組織試料は、ポリエチレンまたはポリスチレン容器中で-30℃において凍結保存した。冷蔵庫内で解凍後、真空下で、温度範囲約70℃において恒量に至るまで乾燥した。有機物の分解のため、(a)石英ルツボを容器としたマッフル炉灰化、(b)テフロン圧力容器中での加圧酸化分解、および(c)低圧酸素プラズマによる灰化を検討し、主として方法(c)を用いて処理し得られた灰分は精密分析級の希鉍酸を用いて溶解し、定容として試料溶液とした。この試料溶液につき、原子吸光分析を行い、組織試料の単位重量あたりの元素含有量を求めた。原子化セルとして、加熱黒鉛炉および通常の空気アセレンフレームを使用した。また、同一試料につき、誘導結合アルゴンプラズマ光源による発光分光分析(ICP-AES)

を行ない、同一試料を原子吸光分析によっても定量し、その値を比較検討した。

これらの分析方法の検討は主として、ウシ肝臓、腎臓筋肉より調製した二次標準試料(NIRS Bovine Liver, NIRS Bovine Kidney および NIRS Bovine Muscle)を用いた。また、これらの二次標準試料は、Quality controlのために使用した。元素濃度に関する特性づけのため、原子吸光分析のほか、放射化分析およびエネルギー分散ケイ光X線分析をも検討した。骨試料は550℃で乾式灰化したのち、Spex Mixer/Millを用いて粉細混合し、その400mgを取り、50mlの0.1M HCl溶液としてDowex 1×8陰イオン交換樹脂カラム(100-200メッシュ、2.0×25cm)を通過させ除リン酸を行なった。溶液液につき、Sr, Mg, K, Na, Znはフレーム原子吸光により、Caはキレート滴定法により定量した。Srの分析値の正確さと精度については、WHO-IRCCの骨(D-736, D-737)の相互比較分析結果によると、全く一致した値を得ており、信頼性の高いことが証明された。

試料の前処理、化学的処理および原子分光分析の全般にわたって、外部汚染の要因を取り除くため、準クリーンルーム内で行い、分析者の手指などからの汚染も防止する処置を行った。

(研究結果)

(1) 器官の水分量: Fig. 1に示すごとく、Ref-

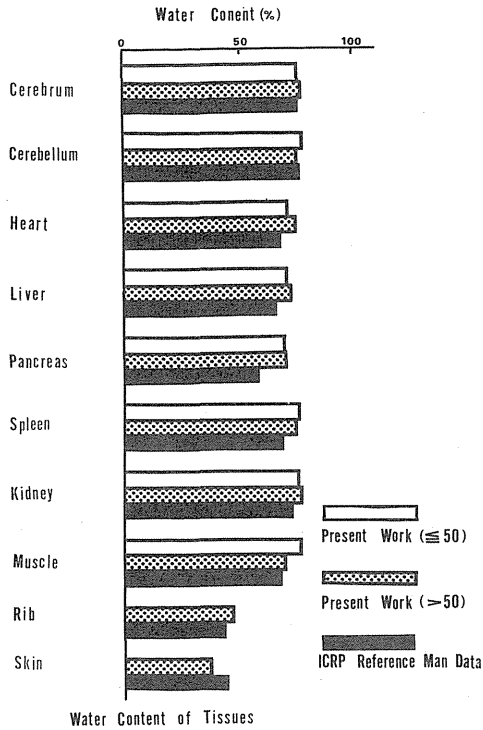


Fig.1. A Comparison between Present Data and ICRP Reference Man Data

erence Man と大きな差はないが、総体的に欧米人は脂肪量の差による僅少な影響があるものと推定され、更に詳細に検討を加える予定である。

(2) 人体器官中の各種元素濃度：恒量に達した完全に水分を除去した主要器官・組織を原子吸光分析および、ICP-AESなどを応用して精密分析を行った結果、Figs. 2-5のごとく、Reference Man とやや異なる値を得ている。日本人に関する他の報告値とも比較検討したところ、このデータの信頼性は高いものであることが分かった。

全般的に、Zn, Cd, Cr 等がやや高い傾向にあり、Perry らの指摘と一致する傾向を確認した。いっぽう、Pb, Mn 濃度は低い傾向がみとめられ、Cu, Fe などについては大きな相違がみられなかった。このほか、大量元素 (Ca, P, Mg) については、信頼性テストを試み、さらに検討を加える予定である。

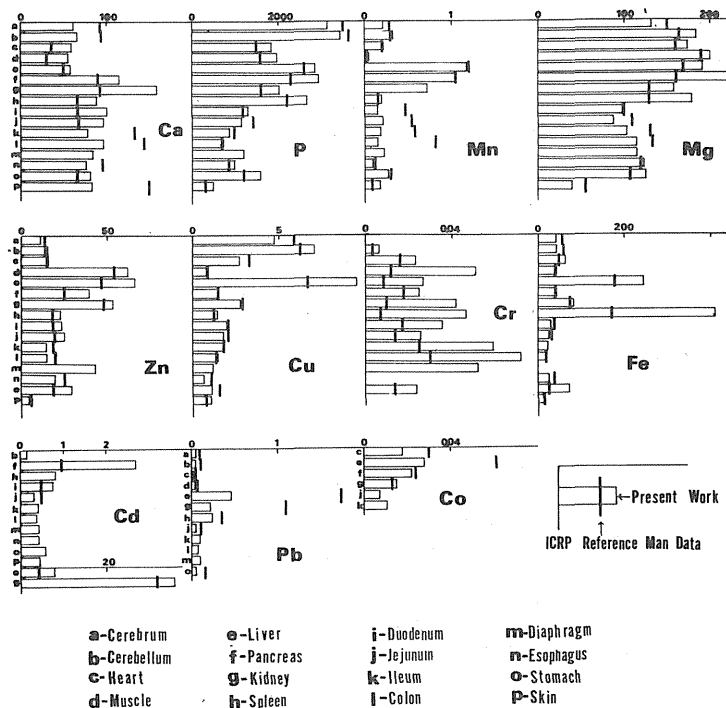
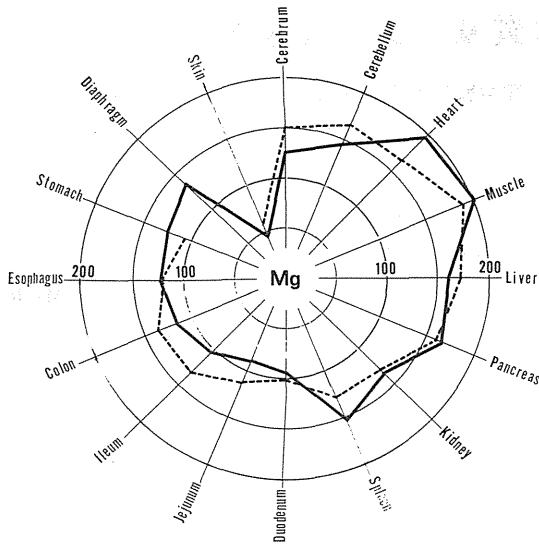


Fig. 2. Concentration of Elements in Tissues. (μg/flesh weight g)



— Present Work
 ---- ICRP Reference Man Data

Fig.3. Concentration of Mg in Various Tissues as Expressed in μg Element/g Tissue.

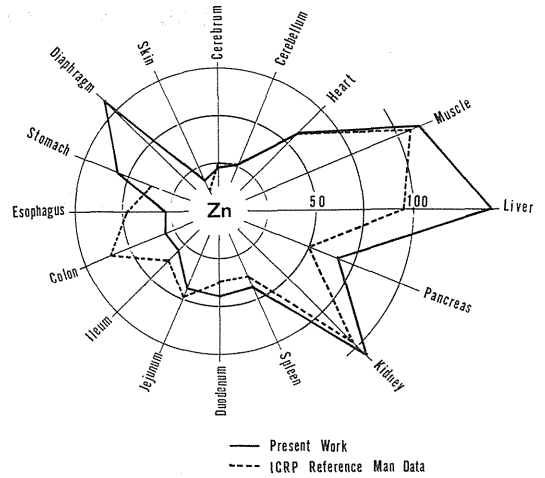


Fig.4. Concentration of Zn in Various Tissues as Expressed in μg Element/g Tissue.

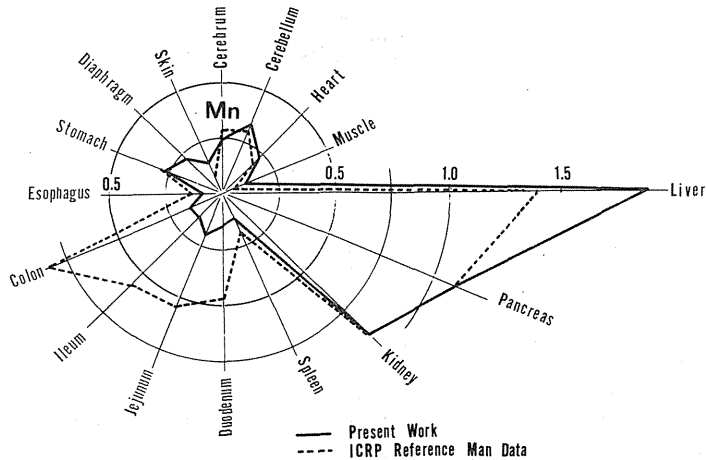


Fig.5. Concentration of Mn in Various Tissues as Expressed in μg Element/g Tissue.

(研究発表)

- (1) Tanaka, G., Kawamura, H., and Nomura, E.
 Reference Japanese Man II.
Health Rhys., 40, 601-614, 1981.
- (2) Tanaka, G., Kawamura, H., and Nomura, E.
 Characteristics of the Japanese

- Physique in Relation to Reference Man, 5th International Conference of IRPA, 1980. 3.9-14, Israel, Book of Papers Vol. I, 227-330
- (3) 河村日佐男、野村悦子、田中義一郎
 人体組織中多元素分析における原子吸光分析およびICP-AESの応用、第16回応用スペクトロメトリー東京討論会、東京、1980.10.

(2) 身体器官・組織の質量および大きさ

環境放射生態学研究部

田中義一郎、野村悦子、河村日佐男

Mass and dimensions of organs and tissues.

Division of Radioecology

Giichiro TANAKA, Etsuko NOMURA
and Hisao KAWAMURA

(緒言)

既に、標準日本人 (Reference Japanese Man, 以後 R. J. M. と略す) の主要器官12種類については、電算機処理により0才~90才までの数値の決定を終えた。引き続き、本報告では成人(20~50才)の(1)器官の大きさ、(2)ミネラル骨重量、につきそのどの成果について述べる。

(研究方法および結果)

(1) 成人器官の大きさ: 東京都監察医務院・中原義行医長との共同研究により、同医務院のデータを用い、"ICRP勧告の日本人への適用に関する調査委員会(主任研究者・高橋信次)・日本医学放射線学会"の依託によりまとめたものでTable 1に示す。

Table 1. Dimensions of organs of the normal Japanese (20-50 yr)

Organ	n	Male			n	Female		
		Length(cm) Mean ± S.D.	Width(cm) Mean ± S.D.	Thickness(cm) Mean ± S.D.		Length(cm) Mean ± S.D.	Width(cm) Mean ± S.D.	Thickness(cm) Mean ± S.D.
Lung(L)	472	236 ± 2.8	154 ± 2.2	5.5 ± 1.4	99	213 ± 2.5	140 ± 1.6	5.1 ± 0.9
(R)	477	243 ± 6.3	166 ± 2.4	6.3 ± 1.7	101	222 ± 2.3	152 ± 2.0	5.8 ± 1.2
Gall bladder	732	8.3 ± 1.9	3.6 ± 1.0	1.5 ± 0.7	153	8.1 ± 2.3	3.5 ± 1.0	1.5 ± 0.7
Spleen	560	11.9 ± 2.1	7.4 ± 1.6	2.9 ± 0.9	119	11.8 ± 2.1	7.1 ± 1.3	2.8 ± 0.8
Kidney(L)	656	11.9 ± 4.8	5.6 ± 1.1	3.5 ± 0.7	148	11.6 ± 1.4	5.4 ± 1.1	3.3 ± 0.6
(R)	665	11.5 ± 1.2	5.6 ± 1.0	3.3 ± 0.7	147	12.0 ± 7.2	5.3 ± 1.0	3.1 ± 0.6
Pancreas	627	1.95 ± 3.2	5.4 ± 1.6	2.3 ± 0.8	134	1.38 ± 2.8	5.2 ± 1.4	2.1 ± 0.6
Testis(L)	879	4.6 ± 1.6	3.1 ± 0.5	1.6 ± 0.4				
(R)	881	4.7 ± 1.3	3.1 ± 0.5	1.7 ± 0.4				
Adrenal(L)	743	5.6 ± 1.5	2.7 ± 0.7	0.9 ± 0.3	175	5.6 ± 0.8	2.7 ± 0.7	0.9 ± 0.3
(R)	742	5.3 ± 1.5	3.8 ± 0.7	0.8 ± 0.4	175	5.2 ± 0.7	3.2 ± 0.6	0.8 ± 0.3
Thyroid(L)	872	4.8 ± 1.2	2.5 ± 0.5	1.3 ± 0.4	190	4.5 ± 0.7	2.4 ± 0.4	1.3 ± 0.4
(R)	760	4.9 ± 0.9	2.6 ± 0.5	1.3 ± 0.4	173	4.8 ± 1.3	2.5 ± 0.6	1.3 ± 0.4
Hypophysis	825	1.6 ± 1.5	0.9 ± 0.6	0.6 ± 0.3	185	1.6 ± 0.9	0.9 ± 0.2	0.6 ± 0.1
Thymus	197	8.6 ± 2.5	5.0 ± 1.7	1.2 ± 0.8	51	8.3 ± 2.6	4.7 ± 2.1	1.1 ± 0.4
Brain	893	18.7 ± 3.5	15.4 ± 1.4	8.7 ± 1.4	182	18.0 ± 2.4	14.8 ± 1.2	8.3 ± 1.5

L : Left R : Right

器官の大きさは、長軸・短軸・厚さの三次元方向の値を示し、前報の器官重量と全く同一資料からのものである。

本試料中、肺は解剖時、胸廓より取り出したため正

常時より収縮しているが、他の器官はすべて正常人の値と見做されるものである。また、本表に示されたものは、線量計算上の日本人ファントムの基礎データとして器官モデル(例:楕円体)のディメンジ

ヨンを与えるものである。

(2) 標準日本人のミネラル骨：日本人男(女)のミネラル骨重量は、日本の文献値を基礎とし、BiglerおよびBorisovらの報告と比較対照して解析を行いTable 2の標準値を得た。その結果、R. J. M.の成人男子および成人女子のミネラル骨重量はそれぞれ、4.2 kgおよび3.2 kgとなった。ICRP Reference Manの成人男女との比較では84%および94%に相当する。なお、ICRPの仮定によれば手骨が足骨と同じ249gとされているが本研究によればR. J. M.では手骨は107g、足骨は229gでありその比は1:2.14である。このほか胸廓(Chest Cage)はR. J. M. / Reference Man比は0.66であった。内部被曝において線源器官としても重要な骨組織を考えると、上述のような欧米人と日本人の骨重量標準値、骨髄量などにおける相異等の影響を検討する必要があることが指摘される。

(研究発表)

- (1) Tanaka, G., Kawamura, H., Nomura, E. and Nakahara, Reference Japanese Man I. *Health Phys.* 36, 333-364, 1979.
- (2) Tanaka, G., Kawamura, H. and Nomura, E. Reference Japanese Man II. *Health Phys.*, 40, 601-614, 1981.
- (3) 田中義一郎、河村日佐男、野村悦子 標準日本人(Reference Japanese Man)に関する報告書 「ICRP勧告の日本人への適用に関する調査報告書」昭和55年3月(日本医学放射線学会)、pp 9-130
- (4) Tanaka, G., Kawamura, H. and Nomura, E. Characteristics of the Japanese Physique in Relation to Reference Man, 5th International Conference of IRPA, 1980. 3.9-14, Israel, Book of Papers, Vol. I, 227-230.

Table 2. Comparison of mass of mineralized bone of the Japanese and that of the Europeans and Americans.*

Bone	Male		Female	
	Reference Japanese	ICRP Reference	Reference Japanese	ICRP Reference Man
Skull (incl. mandible and teeth)	694	706	632	
Scapula	129	765	97	
Clavicle	50		38	
Rib	307		230	
Sternum	21		16	
Vertebral column	384	451	288	
Sacrum	83	98	62	
Innominate	354	392	280	
Humerus (2)	284	294	190	
Radius (2)	90	98	60	
Ulna (2)	112	118	76	
Hands (2)	107	294	72	
Femur (2)	781	784	571	
Patella (2)	28	0	21	
Tibia (2)	443	608	324	
Fibula (2)	104	98	76	
Feet (2)	229	294	167	
Total	4200	5000	3200	3400

- (5) Tanaka, G., Kawamura, H. and Nomura, E. Physical Characteristics of the Japanese in Relation to Reference Man, in *Radiation Protection, A Systematic Approach to Safety*, Pergamon Press, 1980.

3 環境放射線による臓器吸収線量の測定ならびに 評価に関する研究（概要）

Determinations of Organ or Tissue Doses from Environmental Exposures

（概要）

環境放射線のような低線量率、低線量被ばくによる国民線量あるいは確率的影響のリスクを評価する場合、リスクに関係した臓器・組織の線量が重要となる。原子力施設周辺での空気中の線量等は適当なモニタリング・システムによって評価されている。しかし、人体の臓器・組織線量を直接モニタすることは困難である。本研究の課題2は、空気中の線量から臓器・組織線量を評価するのに必要な線量計測因子をファントム実験および計算によって算出したものである。環境放射線のスペクトルと空気中での照射線量のデータが与えられれば、方向性を考慮しない臓器・組織線量を推定することができるようになった。環境放射能による体内被ばくについてはICRPの報告書やMIRD法の日本人への適用に関する技術的指針を用いて線量評価は可能である。

一方、低線量被ばくによる確率的影響については線量・効果関係は明確にされていない。この関係を得るために確率的影響のメカニズムの解明やモデルの

作成がマイクロシメトリの面から研究されている。本研究の課題1では、特殊な比例計数管を用いて、線エネルギーYや比エネルギーZといったマイクロシメトリで基本となる物理量の実験的あるいは理論的決定法について検討してきた。今回の研究期間中には最終的なデータを得るに至らなかったため、今後の研究課題として継続することになっている。

さて、環境放射線あるいは放射能による人体の被ばく線量を問題としていく場合、放射線の放出強度やエネルギー、放射性物質の半減期等核データおよび照射線量率定数などの正確な情報が必要不可欠である。本研究の課題3は、実験あるいは計算などにより up to date で最も信頼できるデータをレビューすると共に、データバンク設立のための基礎資料を与えた。この研究により環境放射線あるいは放射能による被ばく線量評価において基本的問題であった、諸物理量の現状が明らかにされ、この面の今後の研究を推進する上で貴重な指針を与えた。

3-1 放射線のエネルギー付与過程の微細構造

物理研究部

丸山隆司、野田 豊、白貝彰宏、山口 寛、
河内清光、金井達明、松沢秀夫

Microdosimetric Analyses of Energy Deposition for Low Level Radiations

Takashi MARUYAMA, Yutaka NODA
Akihiro SHIRAGAI, Hiroshi YAMAGUCHI
Kiyomitsu KAWACHI, Tatsuaki KANAI
and Hideo MATSUZAWA
(Division of Physics)

(緒言)

環境放射線ならびに放射能による被曝は低線量率、低線量であり、そのような被曝によるヒトへの影響を実験的に調べることは困難である。低線量域でのヒトへの放射線の影響を知る1つの手がかりとして、高線量での生物実験のデータあるいは広島、長崎における被曝者等の疫学的調査のデータを用いて外挿する方法がある。低線量域でのヒトへの放射線の影響は個人に対する身体的影響、すなわち発がん(白血病を含む)と、その個人の子孫に対する遺伝的影響である。放射線の影響がどのようなメカニズムで起るかには未だ明らかでないが、放射線のエネルギー付与によるDNA、染色体などの損傷の結果であることは確かである。放射線による生体へのエネルギー付与は入射した荷電粒子と物質との相互作用で生成された2次荷電粒子の飛跡に沿って生ずる。いずれの荷電粒子もクーロン力によってエネルギーを失い、その結果生体構成分子を電離・励起する。従って、付与されたエネルギーは徐々に減速する荷電粒子の飛跡に沿って集中する。

放射線と物質との相互作用は多種多様で、エネルギー付与が不連続性を有するため、エネルギー付与の空間分布は放射線のタイプにより大きく異なり、問題としている領域(例えば細胞の核など)の大き

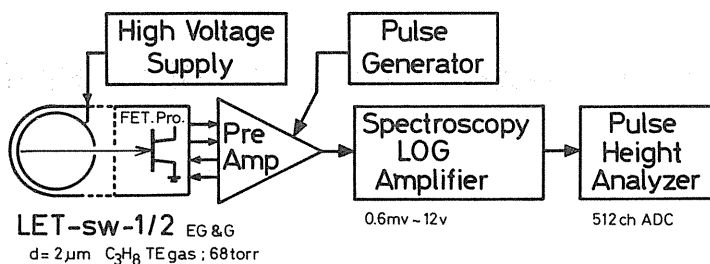
さにも依存することになる。ICRU(国際放射線単位測定委員会)はエネルギー付与に関し、確率量として線エネルギー、 $Y(J \cdot m^{-1})$ と比エネルギー、 $Z(J \cdot kg^{-1})$ を、非確率量として線エネルギー付与(LET)、 $L_{\Delta}(J \cdot m^{-1})$ と吸収線量、 $D(J \cdot kg^{-1})$ を定義している。¹⁾

本研究では、特殊な比例計数管を用いて種々の放射線の組織中でのY分布の予備的測定を行った。

(方法)

当初、組織等価物質を壁材としたRossi型比例計数管を用いたY分布測定装置の改良を行った。環境放射線場は γ 線が中心となるが、宇宙線による2次中性子なども混在している。従って、測定すべきYの値は $eV/\mu m$ から $MeV/\mu m$ オーダーまで広く分布することが予想される。従来、Y分布の測定には比例増巾器が用いられており、広い範囲にわたって分布するYスペクトルの測定を行う場合には、増巾器の利得を数段階変える必要があった。ある利得の設定値で2デカードのY分布が測定できるだけであったので、4デカード(例えば、 $100 eV/\mu m \sim 1 MeV/\mu m$)の測定を行うには少なくとも3種類の利得で測定を行わねばならなかったわけである。

この不便を解消するため4デカード以上にわたって直線性を有する対数増巾器が開発された。さらに、



Schematic of electronics used for acquisition of LET counter pulse-height spectra.

図1 Y分布測定に用いられる電子回路系

できるだけ小さいYの値まで測定するため、測定回路の低雑音化に努めた。図1は検出器と測定回路の概略を示す。検出器は単一芯線の球状比例計数管で、壁材に導電性組織物質(A-150 TEP)を用い、電離気体に低圧の組織等価ガスを封入した、いわゆる Rossi 型 LET 比例計数管である。この計数管は内径0.5インチ、壁厚0.05インチで、有効容積 8.58 cm^3 である。C₃H₈をベースとした組織等価ガスを68 mmHg封入したとき、固型軟組織で直径2 µmの球をシミュレートする。従って、この検出器からの信号波高を分析することにより、軟組織中でのエネルギー付与スペクトルが得られる。

基準のY値は検出器に内蔵されている²⁴⁴Cmか

らのγ線(校正時以外はシャッターで遮蔽されている)によって決められる。また、測定回路は測定の前後にパルサーにより、チャンネル・シフトなどがチェックされ、対数で示したY値と波高値の直線性が常に成立つよう厳重にコントロールされた。

γ線源としては⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ¹³³Ba および²⁴¹Amを用い、2 µm組織球の中でのY分布を測定した。また、診断用X線についてもY分布の測定を行った。

(結果と考察)

測定結果の1例として、図2および図3にそれぞれγ線およびX線のY分布を示した。γ線のエネルギーが高くなるにつれて、Yの値は広い範囲にわた

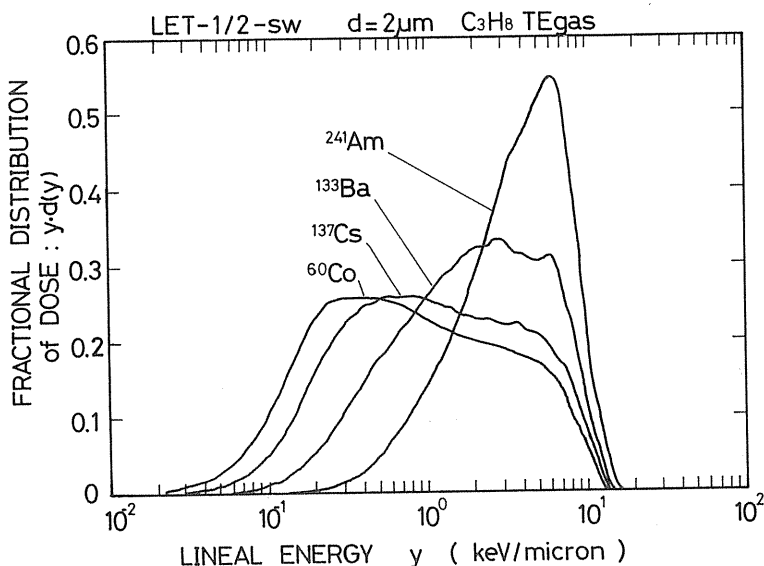


図2 γ線による2 µm直径組織等価球の中でのY分布

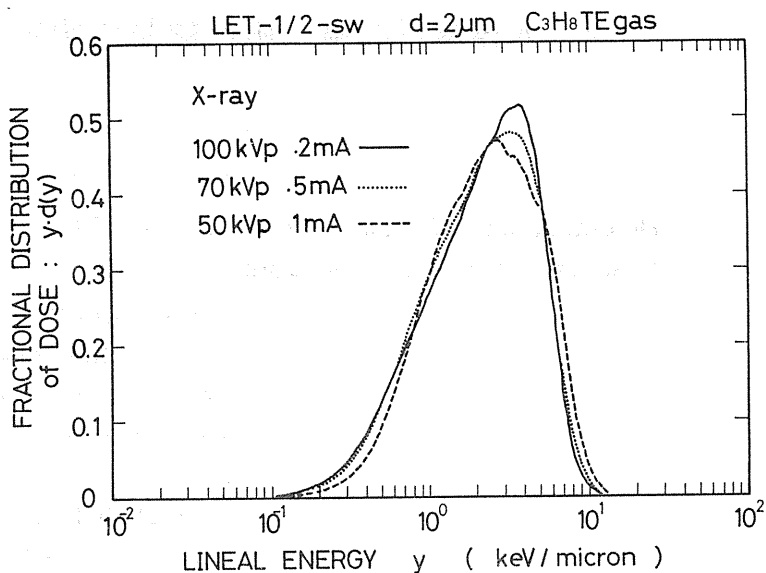


図3 種々の管電圧のX線によるY分布

って分布するようになる。X線では管電圧50～100 kV について測定を行ったが、X線は本来、エネルギー・スペクトルを有しているため γ 線のように明白なY分布のちがいが観測されなかった。しかし、わずかではあるが管電圧が低くなるとY分布は高い方にずれていく様子がみられる。

壁つき比例計数管を用いX、 γ 線について10 eV/ μ m 以上のY分布の測定が可能となった。しかし、壁材と管内ガスの密度の相異により、電子の場合には再入射効果といった壁効果が問題となる。例えば、5 keVの電子では、全事象の約20%がこの壁効果によって影響を受けるといわれている。この効果を取り除くには壁なし比例計

数管の利用が提案されている。われわれは米国から輸入した壁なし比例計数管によるY分布の測定を検討している。現在のところ、この比例計数管にガスを封入したとき、計数管構成物質からの漏出ガスによりガス圧の変化が著しく、技術的改良を図っている。この問題が解決されればここに示した電子回路系で測定が行われよう。

(参考文献)

- 1) ICRU-33, Radiation Quantities and Unit, International Commission on Radiation Units and Measurements, 1980,

3-2 人体臓器組織の吸収線量の測定

物理研究部 丸山隆司、野田 豊、白貝彰宏、山口 寛

技術部 隈元芳一

研究生 寿藤紀道、福本善己、岩井一男、西沢かな枝

Determinations of organ or Tissue Dose and Effective Dose Equivalents for X and Gamma rays.

Takashi MARUYAMA, Yutaka NODA,
Akihiro SHIRAGAI and Hiroshi
YAMAGUCHI (Division of Physics)
Yoshikazu Kumamoto (Technical Service
Division)
Norimichi JUTO and Yoshimi Fukumoto
(Japan Safety Appliances Association)
Kazuo IWAI (Nihon University)
Kanae NISHIZAWA (Kyorin University)

(緒 言)

ICRPの新勧告¹⁾により、第1近似ではあるが放射線による確率的影響のリスク評価が可能となった。原子力施設周辺での環境放射線によるリスクを考えると、職業上の被ばくとは異なりあらゆる年齢層が対象となる。従って、一般公衆にICRPの勧告しているリスク係数を適用することにはかなりの問題がある。しかし、医療被ばくについては放射線による発がんの潜伏期間を考慮したがん有意線量が提案²⁾されており、放射線による確率的影響のリスク評価は徐々にではあるが実用の段階に入ったと考えられる。いずれの場合にも、リスク評価の基本となるのは被ばくによって受ける人体の臓器・組織の吸収線量あるいは線量当量である。

環境放射線あるいは放射能による体外あるいは体内被ばくは、低線量、低線量率であるが、適当なモニタにより照射線量や摂取量などの測定量として扱われている。本研究はこれらの測定量から臓器・組織線量を推定すると共に、環境放射線による国民線量の推定ならびにリスク評価を行うに必要な基礎資料を得ることを目的としている。1981年の中間報告書において予備的な結果について述べたが、本報告書は最終結果を報告する。

(方 法)

(1) ファントム実験

最近、日本人の体位向上が著しく、若年層では欧米人(男性)の標準(身長170cm、体重70kg)に近づきつつある。1981年の厚生省の統計では25才以上の男子の平均身長が165cm以下(女子で156cm以下)であり、体重が男子で60kg以下(女子で53kg以下)である。実験ではファントムの大きさを容易に変えられないので、ランド女性ファントム(身長163cm、体重54kg相当)で日本人男女を模擬することにした。女性用のためウエストが男性に比べてかなり細くつくられており、男性の腰部の臓器線量を過大評価すると考えられる。ファントムの大きさだけでなく、臓器・組織の人体内での位置についてもかなりの個人差があるが、実験ではX線CT像³⁾で得られた人体解剖図を参考にしてファントムでの位置を決めた。

ファントムの臓器・組織の位置に熱ルミネッセンス素子(松下電器産業製UD-170A、BeO)を挿入し、種々の実効エネルギーのX線、¹³⁷Csおよび⁶⁰Coγ線を照射した。できるだけ大きな照射野を得るため、線源からファントム中心までの距離を450cm~500cmとした。ファントムがない

ときのファントム中心位置での照射線量を、電子技術総合研究所で比較校正した電離箱線量計で測定した。使用した熱ルミネッセン線量計素子は $^{60}\text{Co}\gamma$ 線で照射し、読取値のバラツキが平均値の $\pm 5\%$ 以内にあるものに限定した。

(2) 計算

ファントム実験は非常に時間のかかるもので、ファントムのサイズや臓器・組織の位置を変えながら線量を測定することは容易ではない。外部被ばくによる人体の臓器・組織線量についてはモンテカルロ法などを用いた計算がある。しかし、モンテカルロ法は比較的大がかりとなる。ここでは実験で求めた深部線量分布を用いる簡単な方法で線量を計算した。まず最初に、内部被ばく線量評価のために考案されたMIRDファントムを、日本人の体位に合致するように改良し、これを用いて図1に示すように、ファントム表面の入射点から、問題としている臓器・組織まで放射線の通過距離を求めた。ついで、MixDpファントムを用い種々放射線の平行ビームに対する深部線量分布を測定した。この深部線量分布曲線にファントム中の通過距離を内外挿して臓器・組織の線量を算出した。

(結果と考察)

(1) ファントム実験で求めた、臓器・組織線量のエネルギー依存性を図2に示す。甲状腺、乳房および

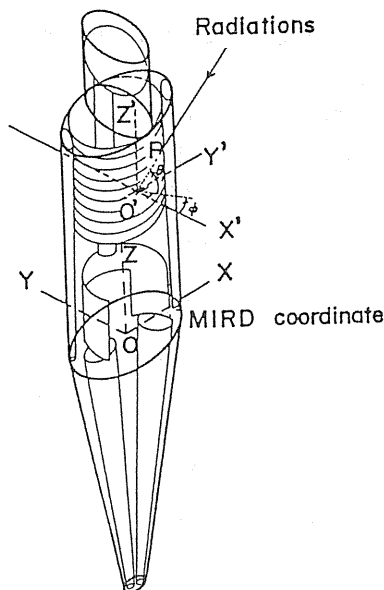


図1. 計算に用いたファントム

び精巣は人体表面にあるため、腹背方向の照射では人体の遮蔽の影響を受けず、しかも100 keV付近では後方散乱を受けて大きな線量となる。赤色骨髄はほぼ全身に分布しており、その線量は腹背入射に対しても精巣などとは異ったエネルギー依存性を示している。一方、立位の人体に対して腹背方向を 0° とし、人体水平面上の入射角度(0)に対する臓器・組織線量の角度依存性を図3に示す。表面にある乳房や精巣は非常に大きな角度依存性を有するが、深

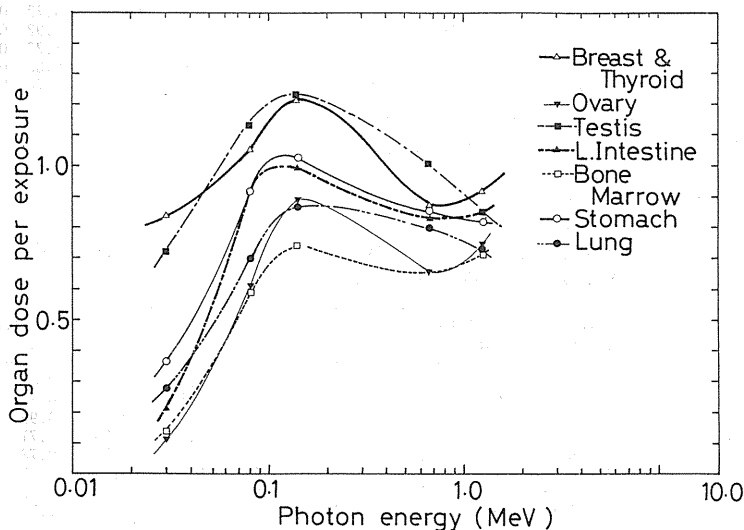


図2. 臓器線量のエネルギー依存性

部にある臓器・組織ではあまり大きな依存性はみられなかった。

表1に実験結果の一例をまとめた。表で平均とあるのは $0 = 0^\circ, 45^\circ, 135^\circ$ および 180° についての測定値を単純に平均して算出したものである。等方的な被曝では平均が利用できる。

(2) ファントム計算で求めた主な臓器・組織の線量を実験値と比較した(表2)。30 keVでの2、3の例外を除き、計算と実験値とは20%以内でよく一致している。計算と実験値の不一致は臓器・組織の位置のちがいに依存しているので、今後さらに検討していく問題として残された。

(3) 年齢別臓器・組織線量を知るため、今後、標準日本人の体位から年齢別標準ファントムを作成し、線量計算をすゝめていきたい。

(4) 内部被曝線量については本報告書で述べなかったが、これについては最近のICRP-29³⁾やMIRD⁴⁾関係の論文などが常に適用できる体制をつくるのが先決である。

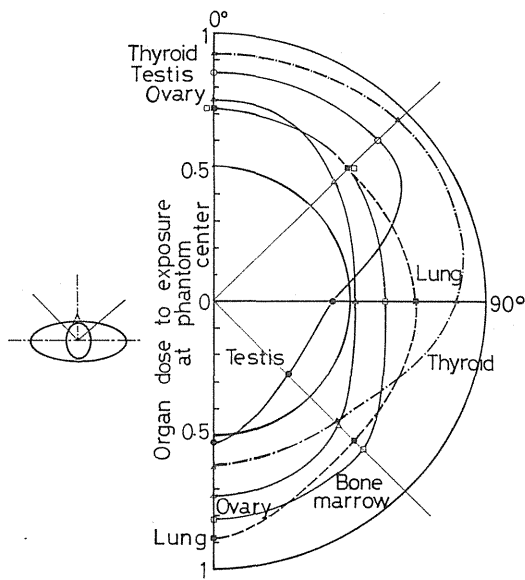


図3. 臓器線量の角度依存性

表1. 実験によって得た臓器・組織線量(ファントム中心での空気中の照射線量に対する比として示してある)

The ratio of organ dose to exposure in air (rad/R)

Organs	30keV X rays		80keV X rays		140keV X rays		¹³⁷ Cs gamma rays		⁶⁰ Co gamma rays	
	0°	Aver.	0°	Aver.	0°	Aver.	0°	Aver.	0°	Aver.
Testes	0.72	0.28	1.13	0.52	1.23	0.64	1.00	0.64	0.85	0.59
Ovaries	0.11	0.06	0.61	0.43	0.89	0.61	0.65	0.57	0.75	0.63
Breasts	0.82	0.40	1.06	0.68	1.21	0.76	0.87	0.65	0.93	0.76
Bone marrow	0.14	0.13	0.58	0.53	0.74	0.70	0.66	0.66	0.71	0.71
Lungs	0.28	0.23	0.70	0.63	0.87	0.79	0.80	0.73	0.72	0.75
Thyroids	0.84	0.43	1.04	0.76	1.23	0.90	0.63	0.69	0.92	0.82
Salivary glands	0.19	0.36	0.59	0.66	0.65	0.78	0.86	0.66	0.72	0.80
Stomach	0.37	0.23	0.92	0.68	1.03	0.79	0.82	0.68	0.82	0.80
Liver	0.34	0.25	0.80	0.69	0.98	0.81	0.83	0.68	0.76	0.81
Upper large intestine	0.13	0.08	0.92	0.65	0.99	0.79	0.83	0.70	0.85	0.75
Bladder and Rectum	0.21	0.12	0.59	0.44	0.82	0.62	0.66	0.56	0.73	0.62

0° : Anterior-posterior, Aver. : Isotropic exposure

表2. 実験値と計算値との比較(ファントム中心の空気中の照射線量に対する臓器線量の比で示してある。)

Organ or Tissue	30 keV		80 keV		140 keV		¹³⁷ Cs		⁶⁰ Co	
	Exp.	Cal.	Exp.	Cal.	Exp.	Cal.	Exp.	Cal.	Exp.	Cal.
Testes	0.72	0.85	1.13	1.30	1.23	1.26	1.00	0.98	0.85	0.95
Ovary	0.11	0.13	0.61	0.58	0.89	0.60	0.65	0.60	0.75	0.64
Breast	0.82	0.80	1.06	1.22	1.21	1.17	0.87	0.95	0.93	0.93
Bone marrow	0.14	0.22	0.58	0.61	0.74	0.61	0.66	0.60	0.71	0.65
Lung	0.28	0.27	0.70	0.86	0.87	0.87	0.80	0.75	0.72	0.76
Thyroid	0.84	0.57	1.04	1.24	1.23	1.20	0.87	0.93	0.92	0.90
Stomach	0.37	0.35	0.92	0.98	1.03	0.98	0.86	0.81	0.82	0.81
Liver	0.34	0.43	0.80	1.03	0.98	1.02	0.82	0.81	0.76	0.82
Upper large intestine	0.13	0.22	0.92	0.66	0.99	0.79	0.83	0.69	0.85	0.72

(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訳) 1977.
- 2) W. S. Snyder, M. R. Ford, G. G. Warner
and H. L. Fisher, Jr, Estimates of
absorbed fractions for monoener-
getic photon sources uniformly
distributed in various organs of
a heterogeneous phantom, *J. Nucl.*
Med. Supplement No. 3, 7-52, 1969.
- 3) ICRP-29、放射性核種の環境への放出：
人に対する線量の算定、(日本アイソトープ
協会訳) 1978.
- 4) 山口寛、西沢かな枝、丸山隆司、千葉美津恵、
福久健二郎、橋詰雅：日本人のMIRD表の
作表プログラム、*保健物理*、18、43~48、
1983.

3-3 線量算出における主要核データの測定ならびに評価

物理研究部 喜多尾憲助

Evaluation and Measurements of Nuclear Data for Estimation of Organ and Tissue Dose

Division of Physics

Kensuke KITAO

(目的と要約)

核燃料サイクルに関連して人間環境に放出される、あるいは放出される可能性のある放射性核種の種類は、きわめて多く、数百種に及ぶ。これらの核種に起因する外部被曝及び内部被曝の吸収線量を推定する場合、核データは重要な基礎量であり、その値の正確さは、線量推定の正確さを左右する。

本研究では、上の核種の核データ、すなわち、崩壊当たりの γ 線放出強度、 β 線放出強度、特性X線の放出強度、内部転換電子の放出強度、ならびにそれらのエネルギー、あるいは半減期などについて信頼性の高いデータを得ることにある。

このため、以下の仕事を行なった。

1. 既に発表されているデータ(特に γ 線及び β 線の放出強度)について精度の現状を調査した。
2. いくつかの核種については、データの評価を行なった。
3. γ 線スペクトロメトリにおいて、校正線源として使われる放射性核種の γ 線強度について、現状を調査した。
4. 評価済み核データを用いて、約200核種に対して、照射線量率定数 Γ_D を計算した。
5. 又、精度不十分な核種について、実験的測定を行なうべく、測定系の整備を進めた。

(核データの調査 — 1. γ 線及び β 線の放出強度)

米国データ・プロジェクトが維持している評価済み核構造データ・ファイル(ENSDF)をもとに、放射性核種が放出する γ 線及び β 線の放出強度の精度を調べた。第1図に、 γ 線放出強度と、その相対誤差の相関を示す。放出強度が大きくなれば、それだけ測定における計数の統計精度も増すはずである

が、現状では大部分が相対誤差1%を割ることはなく、放出強度の大きい γ 線に対して、3%前後、弱い γ 線では3%から十数%となっている。たとえば、 ^{198}Au は ^{197}Au の中性子放射能化によって作り出されるものであり、中性子フルエンスの測定に標準的に使われているため、約1%とかなり良い精度が達成されている。又、 ^{85}Kr の γ 線も良い精度で測定されているが、 ^{81}Kr はきわめて悪い(～100%)。

一方、 β 線の放出強度については、 β 線放出核種のすべてにわたって測定されているわけではない。放射性崩壊にもなり γ 線と、それと競争する内部転換電子のデータから組立てられる崩壊図式から、 β 線のエネルギーと強度がきめられて行くことが多い。

第2図は、こうした β 線の強度の数値が現状でどの程度の信頼性をもっているかを示すため、ENSDFから143核種の全 β 線(total β)の強度の誤差を分類してみたものである。それによると1～6%の不確かさを示すものが、全体の50%強を占めているが、これは、すでに指摘したように、 β 線の強度が γ 線の強度の測定値に依存するところが大きいことを反映している。又、第1表に、核燃料サイクルに関連する主な核分裂生成物核種及び核反応生成物における全 β 線の放出強度の誤差及びもつとも大きい放出率を示す γ 線の放出強度とその誤差をまとめてある。

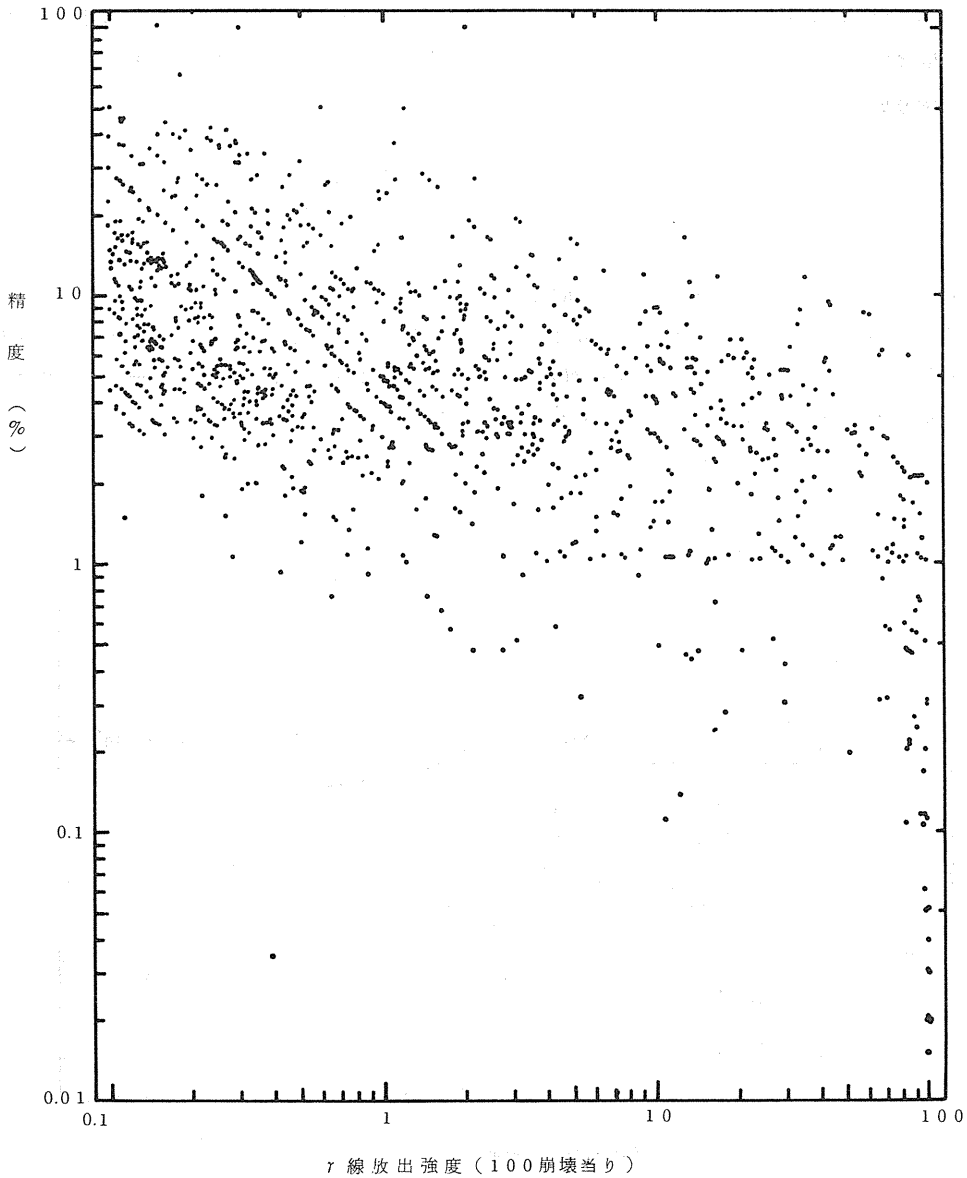
(核データの調査 — 2. 核データの評価)

精度の高い核データは、信頼性の高い測定によって実現されるものであるが、現実には、そう簡単ではない。もともと核データは原子核構造の究明のために測定されるものであるから、環境放射能の立場

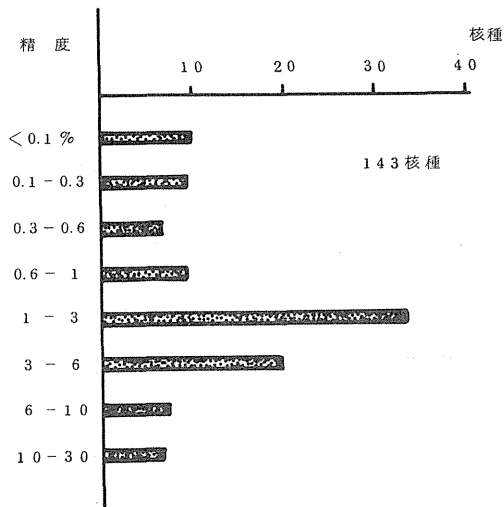
から、重要だと思われる核種であっても、測定が十分に行き届いているとはいえないものもある。また測定がむづかしく、どうしても十分な精度が得られないものもある。又、多くの研究者によって測定されているが、その測定値が観測者の示している誤差を越えて分散することも珍らしいことではない。このような状況のなかから、測定値を整理し、核物理理論、統計的手法をもとに信頼性の高いデータを

得る作業が「評価 evaluation」とよばれ、その作業から得られた核データを評価済み核データという。

このような作業は、原子力利用に関連して各国レベルで発展して来たが、現在では国際協力によって行なわれている。放射性崩壊に関する評価済み核データ集の頂点に立つのが、全米核データ・プロジェクトが維持している評価済み核構造データ・ファイ



第1図 測定されたガンマ線の放出強度の信頼度(約200核種)



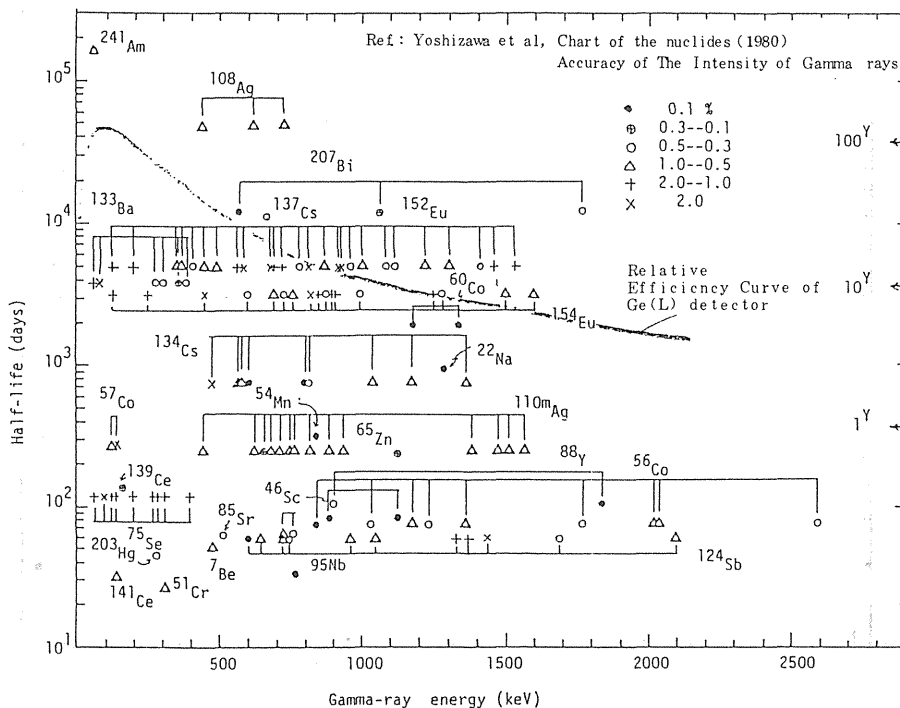
第2図 全ベータ線 (total β) 放出強度の信頼度

ル (Evaluated Nuclear Structure Data File, ENSDF) である。このファイルは4年毎にファイルの更新を目標にしており、その結果は Nuclear Data Sheets 誌で発表されている。

わが国では日本原子力研究所核データセンタが中心となつて、その作業の1部 (質量数 $A=119\sim 130$ の核種) を分担している。筆者も、質量数 $A=121$ 、122、127、128 の核種に対する評価作業に参加し、 $A=121$ 及び127の核種では、本特別研究に関連して、 β^- 放出核である ^{121}Ag 、 ^{121}Cd 、 ^{121}In 、 ^{127}Ag 、 ^{127}Cd 、 ^{127}In の崩壊データを評価した。(γ 線検出器校正用標準線源の核データ)

放射性核種の放射能の間接的測定法である γ 線スペクトロメトリによる測定では、検出器の固有検出効率と立体角の校正を行なうため、入手しやすく、しかもその γ 線のエネルギー値と放出率が良い精度で決められている核種について、正しく校正された、それら核種の線源が必要である。

ゲルマニウム検出器などの場合には、固有検出効率が γ 線のエネルギーとともに大きく変るため、エネルギーのちがう γ 線を放出する線源をいくつか用意する必要がある。 γ 線のエネルギーの範囲は数+ KeVから2 MeVまでを、カバーし、しかも長寿命であることが望ましい。



第3図 ガンマ線標準用核種の availability を示すグラフ

第1表 核燃料サイクルに関連する主要核種の全 β 強度と最も強い強度の γ 線の強度の誤差

核種	崩壊 様式	半減期		全 β 強度の 誤差(%)	最も強い γ 線の 放出強度(per 100 decay)	誤差(%)
Activation Products						
Gases						
N 13	B+	9.97 m		0.01		
N 16	B+	7.12 s		3.0	69.0	2.9
Ar 41	B-	1.83 h		0.03	99.160	0.02
Solids						
Cr 51	EC	27.70 d			9.83	1.4
Mn 54	EC	312.5 d			99.9760	0.002
Mn 56	B-	2.579 h		1.3	98.9	0.30
Co 58	B+	70.80 d		0.33	99.4	0.30
Co 60	B-	5.271 y		0.02	99.9824	0.0005
Fe 59	B-	44.529 d		1.5	56.1	2.1
Fission Products						
Gases						
Kr 83m	IT	1.83 h			5.42	3.0
Kr 85m	B-	4.48 h		0.76	75.5	1.2
Kr 85	B-	10.72 y		0.015	2.33	0.4
Kr 87	B-	76.3 m		3.0	49.5	3.2
Kr 88	B-	2.84 h		5.0	34.6	4.6
Xe133m	IT	2.19 d			10.3	2.9
Xe133	B-	5.245 d		0.15	37.1	1.1
Xe135m	IT	15.29 m			81.2	0.6
Xe135	B-	9.09 h		0.11	89.9	0.1
Xe138	B-	14.17 m		9.	31.5	4.1
Solid						
Rb 88	B-	17.8 m		1.6	21.4	6.1
Sr 89	B-	50.5 d		0.001		
Y 90	B-	64.0 h		0.003		
Y 91	B-	58.51 d		0.3	0.3	10.
Tel29	B-	69.6 m		1.0	15.6	11.
Tel131	B-	25.0 m		1.7	68.9	2.9
Tel131m	B-	30.0 h		1.9	38.6	2.8
Tel133	B-	12.45 m		2.3	70.8	1.0
I 131	B-	8.04 d		1.0	81.2	1.5
I 133	B-	20.8 d		1.8	86.3	2.1
I 135	B-	6.61 h		1.9	28.6	3.5
Cs134	B-	2.062 y		0.6	97.6	0.31
Cs136	B-	13.1 d		4.0	100.	3.
Cs137	B-	30.17 y		0.5	89.9*	0.44
Cs138	B-	32.2 h		0.02	76.3	2.1
Ba140	B-	12.789 d		6.0	24.39	0.86
La140	B-	40.22 h		0.8	95.4	0.084
Ce144	B-	284.3 d		1.9	10.8	6.5
Pr144	B-	17.28 m		0.13	1.48	4.1

* Ba137's γ -rays

第2表 評価済み核データをもとにした照射線量率定数 (Γ_s ; $s = 10 \text{ keV}$)

NUCLIDE	DECAY MODE	HALF-LIFE		EXPOSURE RATE	
				CONSTANT (ERROR)	(R.MSQ/CI/H)
BE 7	EC	0.533E+02	D	0.2851E-01	(2.2)
C 11	B+	0.204E+02	M	0.5880E+00	(2.0)
N 13	B+	0.997E+01	M	0.5883E+00	(2.0)
O 15	B+	0.122E+03	S	0.5887E+00	(2.0)
F 18	B+	0.110E+03	M	0.5711E+00	(2.0)
NA 22	B+	0.260E+01	Y	0.1187E+01	(1.5)
NA 24	B-	0.150E+02	H	0.1824E+01	(1.5)
MG 27	B-	0.946E+01	M	0.4914E+00	(1.7)
MG 28	B-	0.209E+02	H	0.7641E+00	(2.0)
AL 26	B+	0.716E+01	Y	0.1347E+01	(1.5)
AL 28	B-	0.224E+01	M	0.8393E+00	(2.0)
CL 38	B-	0.372E+02	M	0.6813E+00	(1.8)
AR 41	B-	0.183E+01	H	0.6590E+00	(2.0)
K 42	B-	0.124E+02	H	0.1350E+00	(3.4)
K 43	B-	0.226E+02	H	0.5539E+00	(1.6)
CA 41	EC	0.140E+01	Y	0.	(0.)
CA 47	B-	0.454E+01	D	0.5500E+00	(3.0)
SC 44	B+	0.393E+01	H	0.1173E+01	(1.4)
SC 46	B-	0.838E+02	D	0.1085E+01	(1.5)
SC 47	B-	0.335E+01	D	0.5336E-01	(3.6)
TI 44	EC	0.473E+02	Y	0.6547E-01	(1.9)
V 48	EC	0.160E+02	D	0.1555E+01	(1.2)
CR 51	EC	0.277E+02	D	0.1771E-01	(2.5)
MN 52	EC	0.559E+01	D	0.1840E+01	(1.3)
MN 52	IT	0.211E+02	M	0.3777E-02	(3.5)
MN 52	B+	0.211E+02	M	0.1277E+01	(1.7)
MN 54	EC	0.312E+03	D	0.4652E+00	(2.0)
MN 56	B-	0.258E+01	H	0.8559E+00	(1.6)
FE 52	B+	0.827E+01	H	0.4143E+00	(2.5)
FE 55	EC	0.270E+01	Y	0.	(0.)
FE 59	B-	0.445E+02	D	0.6219E+00	(2.0)
FE 61	B-	0.598E+01	M	0.7160E+00	(2.9)
CO 57	EC	0.271E+03	D	0.9535E-01	(1.5)
CO 58	B+	0.708E+02	D	0.5467E+00	(1.7)
CO 60	IT	0.105E+02	M	0.7322E-03	(2.0)
CO 60	B-	0.105E+02	M	0.1697E-02	(2.2)
CO 60	B-	0.527E+01	Y	0.1295E+01	(1.5)
CO 61	B-	0.165E+01	H	0.4772E-01	(4.7)
CO 62	B-	0.139E+02	M	0.1367E+01	(1.3)
NI 59	EC	0.750E+01	Y	0.	(0.)
NI 65	B-	0.252E+01	H	0.2784E+00	(2.9)
CU 60	EC	0.232E+02	M	0.1968E+01	(1.9)
CU 61	B+	0.341E+01	H	0.4669E+00	(3.8)
CU 62	B+	0.974E+01	M	0.5764E+00	(2.0)
CU 64	B+	0.127E+02	H	0.1087E+00	(2.2)
CU 67	B-	0.619E+02	H	0.5750E-01	(1.9)
ZN 62	EC	0.926E+01	H	0.2560E+00	(4.6)
ZN 63	B+	0.381E+02	M	0.6216E+00	(1.9)
ZN 65	EC	0.244E+03	D	0.3091E+00	(2.0)
ZN 69	IT	0.138E+02	H	0.2397E+00	(2.1)
GA 66	B+	0.940E+01	H	0.1160E+01	(1.1)
GA 67	EC	0.783E+02	H	0.7915E-01	(1.7)
GA 68	B+	0.680E+02	M	0.5453E+00	(3.8)
GA 72	B-	0.141E+02	H	0.1337E+01	(1.1)

第2表 (つづき)

NUCLIDE	DECAY MODE	HALF-LIFE		EXPOSURE RATE CONSTANT (ERROR) (R. MSQ/CI/H)
GE 68	EC	0.238E+03	D	0.4637E-01(3.3)
GE 77	B-	0.113E+02	H	0.5731E+00(1.0)
AS 72	EC	0.260E+02	H	0.9906E+00(1.5)
AS 73	EC	0.803E+02	D	0.1022E+00(5.4)
AS 74	B+	0.178E+02	D	0.3941E+00(2.2)
AS 74	B-	0.178E+02	D	0.5646E-01(5.5)
AS 76	B-	0.263E+02	H	0.2344E+00(3.1)
AS 77	B-	0.388E+02	H	0.4693E-02(15.4)
SE 73	EC	0.715E+01	H	0.8466E+00(1.2)
SE 75	EC	0.120E+03	D	0.6587E+00(3.2)
SE 81	IT	0.573E+02	M	0.2818E+00(4.6)
SE 81	B-	0.185E+02	M	0.5050E-02(1.0)
SE 83	B-	0.225E+02	M	0.1279E+01(1.3)
BR 77	EC	0.560E+02	H	0.5382E+00(3.0)
BR 82	B-	0.353E+02	H	0.1449E+01(0.9)
BR 82	IT	0.613E+01	M	0.2612E+00(4.3)
BR 82	B-	0.610E+01	M	0.8734E-03(2.0)
BR 83	B-	0.239E+01	H	0.3968E-02(30.8)
BR 84	B-	0.318E+02	M	0.8176E+00(4.2)
KR 79	B+	0.350E+02	H	0.4493E+00(3.7)
KR 81	IT	0.130E+02	S	0.2376E+00(1.2)
KR 81	EC	0.210E+01	Y	0.3157E+00(4.2)
KR 83	IT	0.183E+01	H	0.8391E-01(3.9)
KR 85	IT	0.448E+01	H	0.4475E-01(3.4)
KR 85	B-	0.107E+02	Y	0.1274E-02(3.1)
KR 85	B-	0.443E+01	H	0.6519E-01(2.0)
KR 87	B-	0.763E+02	M	0.3781E+00(2.4)
KR 88	B-	0.284E+01	H	0.9267E+00(2.3)
KR 89	B-	0.317E+01	M	0.8335E+00(1.4)
RB 81	EC	0.458E+01	H	0.6459E+00(1.8)
RB 81	IT	0.320E+02	M	0.2048E+00(2.6)
RB 82	B+	0.620E+01	H	0.1828E+01(1.9)
RB 83	EC	0.862E+02	D	0.7505E+00(2.8)
RB 84	B+	0.328E+02	D	0.7222E+00(2.1)
RB 86	B-	0.187E+02	D	0.5053E-01(2.2)
RB 88	B-	0.178E+02	M	0.2967E+00(4.2)
RB 89	B-	0.152E+02	M	0.1019E+01(4.2)
SR 81	EC	0.255E+02	M	0.8011E+00(1.3)
SR 83	B+	0.324E+02	H	0.6292E+00(3.8)
SR 85	EC	0.648E+02	D	0.5674E+00(1.5)
SR 87	IT	0.280E+01	H	0.2248E+00(1.8)
SR 89	B-	0.505E+02	D	0.1001E-03(2.0)
SR 91	B-	0.950E+01	H	0.3801E+00(2.3)
SR 92	B-	0.271E+01	H	0.6798E+00(11.5)
Y 83	EC	0.706E+01	M	0.7871E+00(1.9)
Y 86	B+	0.147E+02	H	0.2048E+01(0.9)
Y 86	B+	0.480E+02	M	0.1492E-01(5.9)
Y 86	IT	0.480E+02	M	0.1148E+00(2.2)
Y 87	EC	0.803E+02	H	0.5109E+00(1.9)
Y 88	B+	0.107E+03	D	0.1577E+01(1.4)
Y 90	IT	0.319E+01	H	0.3779E+00(1.5)
Y 91	B-	0.585E+02	D	0.1888E-02(10.2)
Y 91	IT	0.497E+02	M	0.3163E+00(2.0)
Y 92	B-	0.354E+01	H	0.1338E+00(7.1)

第2表 (つづき)

NUCLIDE	DFCAY MODE	HALF-LIFE		EXPOSURE RATE CONSTANT(ERROR) (R.MSQ/CI/H)
Y 93	B-	0.101E+02	H	0.4269E-01(2.7)
ZR 86	EC	0.165E+02	H	0.5920E+00(3.8)
ZR 88	EC	0.834E+02	D	0.4588E+00(2.0)
ZR 89	B+	0.784E+02	H	0.8192E+00(1.5)
ZR 95	B-	0.640E+02	D	0.4173E+00(1.6)
ZR 97	B-	0.169E+02	H	0.9505E-01(3.5)
NB 88	EC	0.143E+02	M	0.2430E+01(1.0)
NB 88	EC	0.780E+01	M	0.2082E+01(2.6)
NB 89	B+	0.122E+03	M	0.7644E+00(1.5)
NB 89	B+	0.660E+02	M	0.1151E+01(5.6)
NB 90	B+	0.146E+02	H	0.2123E+01(2.1)
NB 93	IT	0.136E+02	Y	0.3204E-01(3.5)
NB 94	B-	0.203E+01	Y	0.8818E+00(1.5)
NB 94	B-	0.626E+01	M	0.2317E-02(20.9)
NB 94	IT	0.626E+01	M	0.1274E+00(3.4)
NB 95	IT	0.866E+02	H	0.1621E+00(2.7)
NB 95	B-	0.351E+02	D	0.4314E+00(2.0)
NB 97	B-	0.721E+02	M	0.3717E+00(2.1)
NB 97	IT	0.600E+02	S	0.4153E+00(2.0)
MO 90	B+	0.567E+01	H	0.5771E+00(2.0)
MO 93	EC	0.350E+01	Y	0.1859E+00(3.4)
MO 99	B-	0.660E+02	H	0.9176E-01(1.3)
TC 99	IT	0.602E+01	H	0.7724E-01(1.9)
TC101	B-	0.142E+02	M	0.1873E+00(5.8)
RU 97	EC	0.290E+01	D	0.2859E+00(2.0)
RU103	B-	0.393E+02	D	0.2836E+00(1.9)
RU105	B-	0.444E+01	H	0.4399E+00(2.3)
RH103	IT	0.561E+02	M	0.1481E-01(3.6)
RH105	IT	0.450E+02	S	0.9231E-01(2.6)
RH105	B-	0.354E+02	H	0.4383E-01(2.0)
PD103	EC	0.170E+02	D	0.1338E+00(3.0)
PD109	B-	0.134E+02	H	0.5646E-01(2.7)
AG108	EC	0.127E+03	Y	0.1030E+01(1.2)
AG108	IT	0.127E+03	Y	0.5247E-02(25.6)
AG108	B-	0.237E+01	M	0.6341E-02(9.9)
AG108	EC	0.237E+01	M	0.6424E-02(5.3)
AG110	IT	0.250E+03	D	0.1089E-02(1.7)
AG110	B-	0.250E+03	D	0.1502E+01(0.9)
AG110	EC	0.246E+02	S	0.2084E-03(21.0)
AG110	B-	0.246E+02	S	0.1690E-01(5.5)
AG111	B-	0.745E+01	D	0.1483E-01(5.6)
AG112	B-	0.312E+01	H	0.3332E+00(1.0)
CD109	EC	0.404E+03	D	0.1634E+00(2.5)
CD115	B-	0.535E+02	H	0.1382E+00(4.3)
CD115	B-	0.446E+02	D	0.1134E-01(2.8)
IN111	EC	0.283E+01	D	0.3220E+00(1.4)
IN112	B+	0.144E+02	M	0.1866E+00(1.5)
IN113	IT	0.166E+01	H	0.1771E+00(1.8)
IN114	EC	0.495E+02	D	0.3593E-01(7.4)
IN114	IT	0.495E+02	D	0.5954E-01(2.7)
IN115	IT	0.430E+01	H	0.1335E+00(1.9)
IN116	B-	0.541E+02	M	0.1266E+01(1.6)
SN117	IT	0.136E+02	D	0.1479E+00(1.7)
SN113	EC	0.115E+03	D	0.9821E-01(2.6)
SN119	IT	0.293E+03	D	0.5575E-01(2.2)

第2表 (つづき)

NUCLIDE	DECAY MODE	HALF-LIFE	EXPOSURE RATE	
			CONSTANT(ERROR)	(R.MSQ/CI/H)
SN123	B-	0.129E+03	D	0.3484E-02(16.8)
SN125	B-	0.964E+01	D	0.1620E+00(12.0)
SN126	B-	0.100E+01	Y	0.6560E-01(3.7)
SB117	EC	0.280E+01	H	0.1800E+00(2.0)
SB122	EC	0.270E+01	D	0.6558E-02(5.9)
SB122	B-	0.270E+01	D	0.2479E+00(1.9)
SB124	B-	0.602E+02	D	0.9547E+00(1.2)
SB125	B-	0.277E+01	Y	0.2871E+00(1.7)
SB126	IT	0.190E+02	M	0. (0.)
SB126	B-	0.124E+02	D	0.1608E+01(0.8)
SB126	B-	0.190E+02	M	0.8844E+00(3.9)
SB127	B-	0.385E+01	D	0.3926E+00(1.5)
SB129	B-	0.432E+01	M	0.7938E+00(1.7)
SB130	B-	0.400E+02	M	0.1798E+01(2.1)
SB130	B-	0.630E+01	M	0.1481E+01(8.9)
SB131	B-	0.230E+02	M	0.9074E+00(4.1)
TE121	IT	0.154E+03	D	0.1269E+00(2.0)
TE121	EC	0.154E+03	D	0.3296E-01(6.4)
TE121	EC	0.170E+02	D	0.4034E+00(2.1)
TE125	IT	0.580E+02	D	0.1210E+00(2.5)
TE127	IT	0.109E+03	D	0.3683E-01(2.7)
TE127	B-	0.935E+01	H	0.2654E-02(1.8)
TE129	IT	0.336E+02	D	0.2899E-01(6.6)
TE129	B-	0.336E+02	D	0.1558E-01(15.7)
TE129	B-	0.696E+02	M	0.4574E-01(4.6)
TE131	IT	0.300E+02	M	0.1355E-01(5.5)
TE131	B-	0.250E+02	M	0.2316E+00(0.9)
TE131	B-	0.300E+02	H	0.7652E+00(1.3)
TE132	B-	0.782E+02	M	0.1803E+00(2.3)
TE133	IT	0.554E+02	M	0.1540E-01(17.0)
TE133	B-	0.125E+02	M	0.5016E+00(2.1)
TE133	B-	0.554E+02	M	0.1234E+01(1.6)
TE134	B-	0.418E+02	M	0.5178E+00(1.8)
I 123	EC	0.132E+02	H	0.1603E+00(1.7)
I 124	B+	0.418E+01	D	0.6295E+00(3.3)
I 125	EC	0.601E+02	D	0.1456E+00(2.5)
I 126	EC	0.130E+02	D	0.2056E+00(5.0)
I 126	B-	0.130E+02	D	0.8772E-01(7.9)
I 129	B-	0.157E+01	Y	0.6443E-01(2.0)
I 130	IT	0.900E+01	M	0.2460E-01(3.5)
I 130	B-	0.124E+02	H	0.1210E+01(1.5)
I 130	B-	0.900E+01	M	0.6020E-01(1.8)
I 131	B-	0.804E+01	D	0.2198E+00(2.0)
I 132	IT	0.836E+02	M	0.1470E+00(1.8)
I 132	B-	0.230E+01	H	0.1252E+01(1.2)
I 132	B-	0.836E+02	M	0.1755E+00(2.2)
I 133	B-	0.208E+02	H	0.3428E+00(2.3)
I 134	B-	0.526E+02	M	0.1417E+01(1.1)
I 135	B-	0.661E+01	H	0.7950E+00(1.4)
XE127	EC	0.364E+02	D	0.2167E+00(1.5)
XE129	IT	0.800E+01	D	0.1181E+00(2.0)
XE131	IT	0.119E+02	D	0.4837E-01(2.2)
XE133	IT	0.219E+01	D	0.6156E-01(1.9)
XE133	B-	0.525E+01	D	0.5121E-01(1.5)

第2表 (つづき)

NUCLIDE	DECAY MODE	HALF-LIFE		EXPOSURE RATE
				CONSTANT(ERROR) (R.MSQ/CI/H)
XE135	B-	0.909E+01	H	0.1379E+00(1.8)
XE135	IT	0.153E+02	M	0.2581E+00(2.0)
XE137	B-	0.383E+01	M	0.9136E-01(6.3)
XE138	B-	0.142E+02	M	0.5394E+00(1.7)
CS129	EC	0.321E+02	H	0.2319E+00(2.8)
CS130	EC	0.299E+02	M	0.3176E+00(1.7)
CS131	EC	0.969E+01	D	0.6372E-01(2.1)
CS132	B+	0.648E+01	D	0.4494E+00(1.7)
CS132	B-	0.648E+01	D	0.6470E-02(6.4)
CS134	IT	0.290E+01	H	0.3942E-01(1.4)
CS134	B-	0.206E+01	Y	0.8790E+00(1.2)
CS136	B-	0.131E+02	D	0.1189E+01(2.1)
CS138	B-	0.322E+02	M	0.1161E+01(1.6)
CS139	B-	0.940E+01	M	0.1174E+00(17.7)
BA131	IT	0.146E+02	M	0.6383E-01(6.0)
BA131	EC	0.118E+02	D	0.3143E+00(4.0)
BA133	EC	0.107E+02	Y	0.2979E+00(1.2)
BA133	IT	0.389E+02	H	0.7504E-01(1.8)
BA135	IT	0.287E+02	H	0.6341E-01(2.2)
BA139	B-	0.827E+02	M	0.2285E-01(2.0)
BA140	B-	0.127E+02	D	0.1196E+00(1.5)
BA137	IT	0.255E+01	M	0.3450E+00(2.1)
BA141	B-	0.183E+02	M	0.4409E+00(2.4)
BA142	B-	0.107E+02	M	0.5719E+00(3.8)
LA130	EC	0.870E+01	M	0.1176E+01(0.9)
LA131	B+	0.590E+02	M	0.2672E+00(5.0)
LA132	B+	0.480E+01	H	0.1065E+01(2.2)
LA140	B-	0.403E+02	H	0.1171E+01(1.3)
LA141	B-	0.393E+01	H	0.1884E-01(5.5)
LA142	B-	0.927E+02	M	0.1253E+01(2.8)
CE131	B+	0.100E+02	M	0.4327E+00(0.4)
CE139	EC	0.138E+03	D	0.1219E+00(1.6)
CE141	B-	0.325E+02	D	0.4420E-01(1.8)
CE143	B-	0.330E+02	H	0.1808E+00(2.7)
CE144	B-	0.284E+03	D	0.1408E-01(3.7)
PR142	B-	0.191E+02	H	0.2847E-01(13.7)
PR144	B-	0.173E+02	M	0.1553E-01(3.3)
ND147	B-	0.110E+02	D	0.9056E-01(3.0)
ND149	B-	0.173E+01	H	0.2143E+00(2.8)
PM145	EC	0.177E+02	Y	0.4310E-01(2.3)
PM148	B-	0.537E+01	D	0.3003E+00(1.9)
PM148	IT	0.413E+02	D	0.1995E-02(7.1)
PM148	B-	0.413E+02	D	0.1121E+01(1.0)
PM149	B-	0.531E+02	H	0.4442E-02(10.9)
PM151	B-	0.284E+02	H	0.1744E+00(1.7)
SM151	B-	0.900E+02	Y	(0.)
SM153	B-	0.467E+02	H	0.4477E-01(2.0)
EU152	EC	0.133E+02	Y	0.4920E+00(0.9)
EU152	B-	0.133E+02	Y	0.1422E+00(1.2)
EU152	EC	0.932E+01	H	0.1561E+00(6.7)
EU152	B-	0.932E+01	H	0.1432E-01(7.2)
EU154	B-	0.860E+01	Y	0.6527E+00(1.6)
EU155	B-	0.496E+01	Y	0.3386E-01(3.4)
EU156	B-	0.152E+02	D	0.6736E+00(1.6)

第2表 (つづき)

NUCLIDE	DECAY MODE	HALF-LIFE		EXPOSURE RATE
				CONSTANT(ERROR) (R.MSQ/CI/H)
IR192	B-	0.740E+02	D	0.4442E+00(1.1)
IR192	EC	0.740E+02	D	0.1736E-01(1.9)
IR194	B-	0.191E+02	H	0.4485E-01(9.2)
PT195	IT	0.402E+01	D	0.3605E-01(2.7)
PT197	B-	0.200E+02	H	0.1357E-01(2.8)
AU195	EC	0.183E+03	D	0.3083E-01(2.4)
AU198	B-	0.270E+01	D	0.2439E+00(1.9)
AU199	B-	0.314E+01	D	0.1594E+00(1.6)
HG197	EC	0.641E+02	H	0.3296E-01(3.1)
HG203	B-	0.466E+02	D	0.1806E+00(1.7)
TL201	EC	0.304E+01	D	0.4691E+00(1.9)
TL207	B-	0.477E+01	M	0.1188E-02(16.8)
TL208	B-	0.307E+01	M	0.1549E+01(1.6)
PB203	EC	0.520E+02	H	0.4890E+00(1.5)
PB210	B-	0.223E+02	Y	0.1884E+00(2.0)
PB210	B-	0.233E+02	Y	0.1493E+00(1.4)
PB211	B-	0.361E+02	M	0.2895E-01(16.7)
PB212	B-	0.106E+02	H	0.1920E+00(1.5)
PB214	B-	0.268E+02	M	0.2250E+00(1.4)
BI206	EC	0.624E+01	D	0.2150E+01(0.8)
BI207	EC	0.380E+02	Y	0.1122E+01(1.3)
BI212	A	0.605E+02	M	0.7108E-01(2.0)
BI212	B-	0.605E+02	M	0.9650E-01(2.0)
BI213	A	0.456E+02	M	0.2378E-03(23.2)
BI213	B-	0.456E+02	M	0.8824E-01(7.4)
BI214	B-	0.199E+02	M	0.6973E+00(1.1)
RN220	A	0.556E+02	S	0.3166E-03(40.1)
RA224	A	0.366E+01	D	0.7727E-02(18.6)
RA225	B-	0.148E+02	D	0.9509E-01(1.8)
RA226	A	0.160E+04	Y	0.8544E-02(1.5)
AC227	B-	0.218E+02	Y	0.2018E-02(2.0)
AC228	B-	0.613E+01	H	0.6795E+00(2.1)
TH228	A	0.191E+01	Y	0.5677E-01(2.0)
TH231	B-	0.255E+02	H	0.4800E+00(2.0)
TH232	A	0.140E+01	Y	0.4900E-01(2.0)
PA231	A	0.325E+01	Y	0.2615E+00(1.9)
PA233	B-	0.270E+02	D	0.3363E+00(1.5)
U 232	A	0.717E+02	Y	0.6527E-01(2.0)
U 233	A	0.159E+01	Y	0.3260E-01(2.0)
U 235	A	0.710E+01	Y	0.2244E+00(1.5)
U 237	B-	0.675E+01	D	0.3279E+00(1.7)
U 238	A	0.447E+01	Y	0.4502E-01(2.0)
U 240	B-	0.141E+02	H	0.1979E+00(2.0)
NP233	B-	0.212E+01	D	0.4556E+00(1.9)
NP239	B-	0.236E+01	D	0.3333E+00(1.6)
PU238	A	0.878E+02	Y	0.5448E-01(2.0)
PU239	A	0.244E+01	Y	0.2067E-01(2.0)
PU240	A	0.654E+04	Y	0.5166E-01(2.0)
AM241	A	0.433E+01	Y	0.1412E+00(2.3)
AM242	B+	0.160E+02	H	0.5987E-01(1.9)
CM242	A	0.163E+03	D	0.4806E-01(2.0)
CM244	A	0.181E+02	Y	0.4427E-01(2.0)
CF252	A	0.264E+01	Y	0.2117E-01(2.2)

最新のデータから、 γ 線強度標準として提案されている核種の半減期と放出 γ 線のエネルギーとその誤差を調べた。その結果を第3図にまとめてある。これらの核種では、放出 γ 線の強度はほぼ1%以下の誤差をもっていることを示している。⁴⁾

(照射線量率定数)

評価済み核データを利用して照射線量率定数を計算した。照射線量率定数は、空間内の任意の点において、それから任意の距離にある光子放出核種の点状源から放出される光子の照射線量を与える量である。したがってそれは、光子を放出する放射性核種の危険度に対する評価値となるべきものであって、原子力施設における放射線被曝の推定、安全設計の目安の基礎、として重要な役割を果たす。

この量の詳しい定義などは、本特研の中間報告の89~92頁で説明されている⁵⁾のでここで再び繰り返さないが、その計算結果は、同じデータファイルを使用していることで統一性がとれていること、誤差評価を行なっているため、従来発表されている定数の値より、信頼性は高いものと思われる。第2表に計算された照射線量率定数をかかげる。

なお、ICRU(国際放射線単位測定委員会)では、この照射線量率定数を空気カーマ率定数置きかえるよう勧告している。われわれは、両定数の定義を検討し、照射線量が、吸収線量を求めるためのステップにすぎないとすれば、このICRUの勧告には問題があることを指摘した。⁶⁾

しかし、いずれにせよ線量評価では、低エネルギーの放射線の効果を無視することは出来ず、L-Xrayなど、これまで、照射線量率定数の計画で無視されて来たような低いエネルギーの光子も考えておかなければならない。今回の計算では、これらの点を十分考慮したつもりである。

(測定系の整備)

放射性崩壊の核データの信頼性は、 γ 線か β 線の放出強度の精密な測定、そしてまた正確な崩壊図式を基礎にしている。測定の精度の低いガンマ線放出強度の測定、及び崩壊パラメータの測定、崩壊図式の確立などを目標にして予算要求を行なった。認められた費用によって、測定データの収集の効率化、

多次元パラメータ測定が可能になったので、現在データ読み出しのプログラム作成などを行なっている。(研究発表)

- 1) Tamura T., Matumoto Z., Hashizume A., Tendow Y., Miyano K., Ohya S., Kitao K., and Kanbe M., *Nuclear Data Sheets*, **26**, 385, 1979.
- 2) Hashizume A., Tendow Y., Kitao K., Knbe M., and Tamura T., : *Nuclear Data Sheets*, **35**, 118, 1982.
- 3) Kitao K., Kanbe M., and Matumoto Z., : *Nuclear Data Sheets*, **38**, 191, 1983.
- 4) 喜多尾憲助：核データ、第10回放射線環境セミナー「環境放射性物質に関する最近の分析測定法とその将来」、千葉 1982.12.9-10.
- 5) 喜多尾憲助：特別研究「原子力施設等に起因する環境放射線被曝に関する調査研究」、NIRS M-36, 89-93, 1981.
- 6) 白貝彰宏、喜多尾憲助、山口勇吉：空気カーマ率定数とその使用について、第20回理工学における同位元素研究発表会、東京、1983.

4 低レベル環境放射線モニタリングに関する調査研究 (概要)

Research and Development of Monitoring Method in the Low Level Radiation Environment

本グループの研究は、上記課題に対し特に大気中の、モニタリングに関連する事項について行った。空間放射線と放射性気体のモニタリングに関する2小課題を含む。

第1の小課題は、空間放射線モニタリングについてのものであり、2方面から検討を加えた。空間放射線の適切かつ有効なモニタリングには、環境条件による改変部分の内容を知ることが必要であることから、重点をそこに置いて研究を行った。

気象条件等による空間放射線レベルの変動の大きさがモニタリングに与える影響を考慮し、環境条件が我々の観測する空間放射線量にどのように係るかを調べた。種々の気象量と空間放射線量との間のつながりを示した。

我々の観測する空間放射線には直接線と散乱線が含まれる。地形等の環境条件によるこれらの割合等への影響内容を見るために、主要な計算手段であるモンテカルロ法を使った散乱フォトンの計算の諸法について数値実験による比較検討を行った。計算に要する時間と使えるエネルギー範囲から適当な方法を選んでいる。

第2の小課題は、大気中の放射性気体のモニタリングに関することである。この小課題では放射性気体(トリチウム、クリプトン)の直接的なサンプリング、計測の手法を検討している。

最近急速に注目されているトリチウムについて、人間への直接的ならびに間接的影響を見て行く際その化学形を知ることが必要である。本研究では、水蒸気、水素、有機形物質の3種を測り得て、装置の移動等からも、レベル上からも通常の環境で使用可能な装置を研究、開発した。開発上の基礎データを得ているばかりではなく、実際に使用してみてその性能が本来の目的に合致することを確かめている。実

測したデータをもとに現在のレベルとその変動についても検討を加えている。

長半減期のクリプトン-85の測定手法は、従来複雑で長時間を要するものが用いられていた。クリプトン-85レベルの簡易、迅速測定法が開発されれば、環境レベルの把握、一時的、局地的な測定も容易になり、益するところ大である。本研究は、クリプトンの分離、精製に要する時間を大巾に短縮する手法を開発する目的で、検出部の基礎研究を液体シンチレーション・スペクトロメータについて行って来た。

4-1 気象条件と空間放射線変動との関連

環境衛生研究部 藤高和信、阿部史朗

Meteorological Dependence of External Radiation in the Environment

Division of Environmental Health

Kazunobu FUJITAKA and Siro ABE

(緒言)

原子力施設から放出される放射線及び放射性物質をモニターした結果を解釈するにあたり、そのレベルの変動が真に施設寄与であることを判定するためには自然界にもともと存在するバックグラウンドのレベルを弁別しなければならない。そのためにはバックグラウンド放射線の挙動について予め情報を持つことが不可欠である。バックグラウンド・レベルの地理分布に関しては別途にデータが収集されており、大地の地質的性格と関連づけて全体像がまとめられている。バックグラウンド・レベルの時間変動の方は、大気中に浮遊する放射性物質が降水などの気象要素によって濃縮されたり除去されたりすることに主たる原因がある。ここで降水は一過性の現象、つまり再現性がなく一回一回が独立した事象であるが、その他の気象要素、例えば気温、太陽放射、大気安定度、風速、湿度などは平均的には規則性があり、それぞれの地域特有の日変化、年変化のパターンを持つ。

降雨の初期に空間放射線レベルが一時的に上昇することはよく知られている。しかし、どれだけの増加がどれだけの時間継続するのか、またその大きさや長さは降雨の量ないし時間変化にどのように関連しているのかは依然としてはっきりしていない。降水に伴ったバックグラウンド放射線レベルの変動は一過性の現象と規則的な現象の重畳されたものであるから雨などに関するケーススタディと、大気運動などに関する統計的研究の両方が必要とされる。前特研では統計的に平均した挙動を中心に議論した。その回帰解析で明らかにされたいろいろな気象要素

の性質の中には本質的なものが含まれているはずであるが、前回は雨についても単純な平均値を用いたため降水に関連した全体像の把握には至っていなかった。今特研では特に大気放射能と雨の関係に注目し、そのメカニズムの解明を目指した。

(データ)

放医研においては気温、降水、風速、風向の4つの気象パラメータ、および空間ガンマ線レベル、大気中浮遊塵によるベータ線・ガンマ線レベルの連続測定を行っている。一方、京都大学原子炉実験所においても気温、湿度、太陽放射、降水、風速および空間ガンマ線レベル、大気中浮遊塵によるアルファ線レベル、同ベータ線・ガンマ線レベルの連続測定を行っている。後者のデータは1974年から1976年にかけて25カ月分が既に解析されている。前者のデータは1975年以後のものが用意されており、その一部が解析に用いられた。

(全体像の考察)

空間放射線レベルの変動に関連した事象をまとめて模式的に示したのが図1である。大地にはウラン系列の自然放射性核種があるから、その壊変生成物たるラドンが大気中へ放出される。ラドンはいろいろな大気運動によって上方へ運ばれ、かつRaA、RaB、RaC、などに壊変していく。ただし、積乱雲を伴うような大規模な鉛直対流については定量的な情報はほとんど無いと言ってよい。こうして大気中に拡がったラドン娘核種はレインアウト、ウォッシュアウトという2つの代表的なメカニズムによって再び地表へ戻ってくる。これによって地表付近の空間放射線レベルは変動することになる。そのレベル

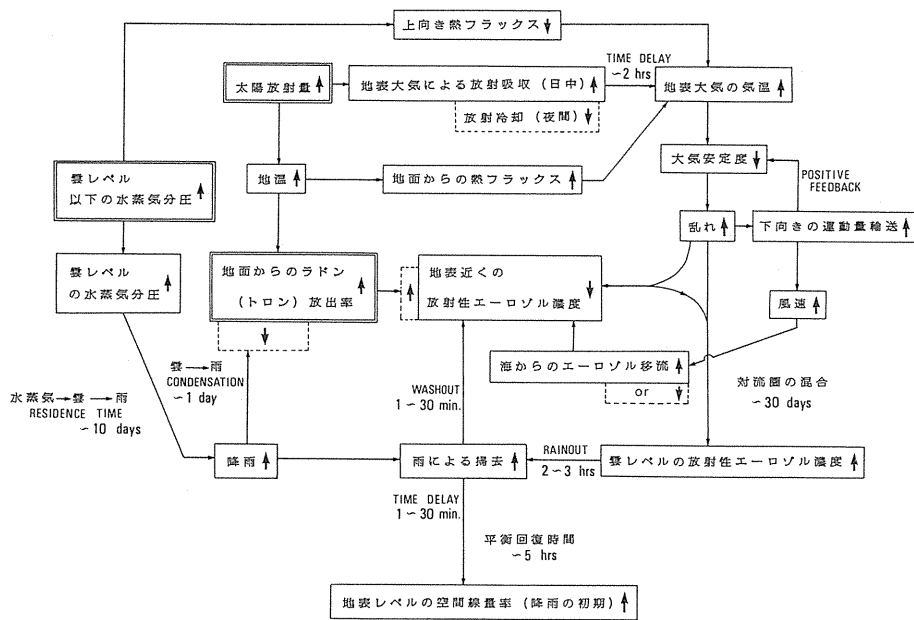


図 1 降雨ともなる空間放射線レベルの変動

変動に直接影響を与えるものは降水であるが、それ以前の過程においても間接的な影響要因が3つある。1つは太陽放射の変動である。具体的には昼と夜、夏と冬、晴れと曇りの差が挙げられる。2番目は大地からの放射性核種の放出率の変動である。これは大地の地質の性格に依存する。3番目は大気中の水蒸気分圧の変動である。これらのいずれかが上昇しても空間放射線レベルは一時的に上昇する。

(1) 太陽放射の上昇 地表大気は太陽放射のうち可視光から赤外線の領域のエネルギーを吸収して地表大気の気温を上昇させる(逆に夜は放射冷却が起きる)。地表付近の気温の上昇は大気安定度を低下させるため、風速が大きくなったり渦拡散が促進されて地表から供給されるラドン娘核種は雲レベルまで上方輸送される。これがレインアウトにつながる。

大気の乱れによるラドン娘核種の上方輸送は、逆に地表付近の濃度を下げることになる。ここで注意すべきなのは、この鉛直混合とは別に卓越風(海陸風、季節風)による水平方向の移流もあることである。この水平方向の流れのパターン解析については

1982年より気象ファクシミリを導入してデータの蓄積を開始した。

(2) ラドン放出率の上昇 地面からのラドン放出率の増大は地表レベルの濃度を増大させる上に、大気鉛直混合によって雲レベルの濃度も増大させる。これがさらにレインアウトにつながる。

(3) 水蒸気分圧の上昇 雲より低いレベルで水蒸気分圧が上昇すると地面から出る上向きの熱フラックスをそこに留めさせる働きをする。これは気温を保つ効果を生じ、大気安定度に影響を与える。もちろん雲レベルの水蒸気分圧の上昇は降雨を引き起こす。

[降雨に関連した現象とその解析] 雲レベルにまで上昇したラドン娘核種は雨滴核のまわりに凝集し、レインアウトによって掃去される。このレインアウトは激しい雨より軽い雨の方が効果的である。それは軽い雨の方が雨滴の表面積が大きく、かつ浮遊時間が長いためである。この場合雨滴の中では長寿命核種の割合が増す。一方、雨滴が浮遊塵をたたき落とすことによってウォッシュアウトによる掃去が起きる。ウォッシュアウトは断面積の大きい方が有利だ

から雨滴が大きいほど、また激しい雨の方が効果的である。レインアウトとウォッシュアウトを相互に比較すると、雲の高さでは圧倒的にレインアウトが効くと報告されているが、地表付近についてははっきりした報告がない。いずれにせよレインアウトもウォッシュアウトも上空のラドン娘核種を掃去するのであるから、地表にそれらの核種が沈積してその空間放射線レベルが上昇することになる。

このように気象に関連した空間放射線レベルの変動は複雑な相関系を持つため、全体としてのシステム解析を要する。各要素間の時定数がまだ全てはわかっていないので現在は数値シミュレーションよりもmorphologicalな解析の方が有益である。そこで地表付近のデータを基礎として降雨に関連した現象論的解析を行い、幾つかの知見を得た。惑星波という26カ月周期の変動を考慮すると2年以上の連続データがあることが望ましいと考え、前特研でも統計解析に用いた京大原子炉実験所の25カ月にわたるアナログ連続データを主に解析した。以下に述べることは1つの注目する事象ごとに全期間にわたる全データを検討して得たものであり、合計22回以上にのぼるデータ観察の結果である。図例として挙げられたものは多くの根拠のうちの1部に過ぎない。

(1) 降雨の始めに大気放射能が低下するらしい。

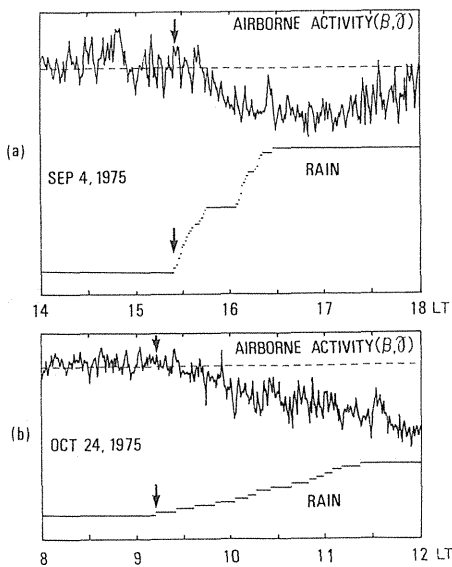


図 2

図2(a、b)はその顕著な例である。ここに降雨積算量と大気浮遊塵のベータ線・ガンマ線レベルが任意スケールで地方時に対して並べてある。この大気放射能レベルの低下は夜間よりも日中の雨で目立つようである。図2(a、b)は日中の例である。一方図3(a、b)は夕方以後の降雨の例であるが、それに伴った大気放射能のレベル低下は認められない。この降雨に伴う大気放射能レベルの変動は常にこれらの図例ほど顕著というわけではないが、定性的な傾向は確認された。

(2) 降雨時に地表付近の空間放射線レベルが上昇することはよく知られている。図4(a、b)はその典型的な例である。特に降雨開始時に空間放射線レベルがそれに呼応するように上昇することがわかる。しかし、注意深い観察によって、降雨があっても空間放射線レベルがほとんど変化しない場合もあることがわかった。図5(a、b)がその例である。そのような場合は一般に風速が大きいことがわかった。図6(a、b)は降雨に対する空間放射線レベルの変動を、風速の大きい場合と小さい場合で比較したものである。この例で明らかのように、降雨の規模は同程度であっても風速が大きいと空間放射線レベルの上昇は小さく、逆に風速が小さいとレベルの上昇は大きい。

前特研で明らかにされたように、統計的には風速

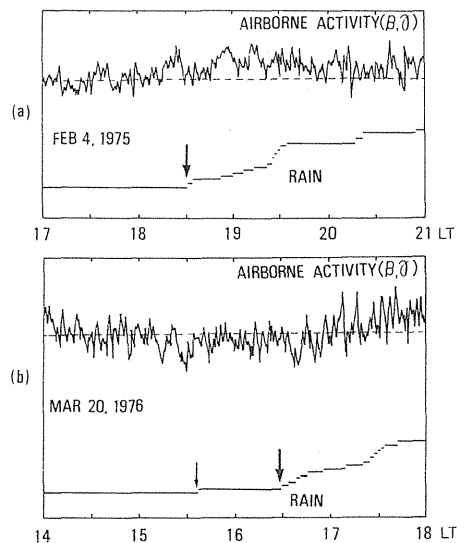


図 3

の大きいのは日中であり、風速の小さいのは夜間である。これは大気安定度の変動に起因する。すると平均的に見れば日中より夜間の方が降雨による空間放射線レベルの上昇は目立つということになる。但し、この差は個々の降雨でも常に有意に認められるわけではなかった。

(1)、(2)の結果を合わせ考えると、降雨に伴う空間放射線レベルの上昇は、地表付近にある程度まで大気放射能濃度が高まった時に初めて影響が目立つということになる。少量の降雨で容易に掃去されてしまう程度の放射能濃度（日中、または風速の大きい時）では影響は小さいことを示している。この解析結果は地表付近ではウォッシュアウトがレインアウトより優勢であることを意味しているのかも知れない。しかし今のところ少数ながらレインアウトの影響を暗示する例も見つかっている。

図7(a、b)においては明らかに降雨開始以前から空間放射線レベルの上昇が認められる。ここで用いた降雨データは通常の転倒ます型の雨量計による計測結果であり、毎時5mm以上の降雨量がないと記録されない。即ち、図7(a、b)を説明するには、その降雨計に記録される時刻以前から毎時5mm未満の微量の降雨（霧雨など）があったと考えるのが合理的である。その様な細かい雨は一般にウォッシュアウトを引き起こすには効率が悪く、

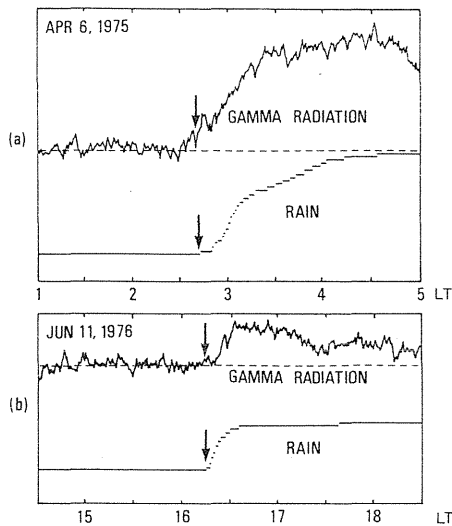


図 4

むしろレインアウトのメカニズムによって影響をもたらすと推察される。この仮説を証明するための解析はまだ不十分である。今後、微量の降雨を検知できる高感度雨量計を用いて詳しい解析をすることが望まれる。同時に定性的な説明だけでなくなるべく早く定量化を進めることが必要である。

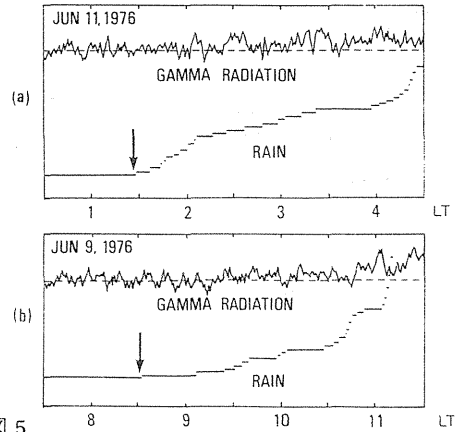


図 5

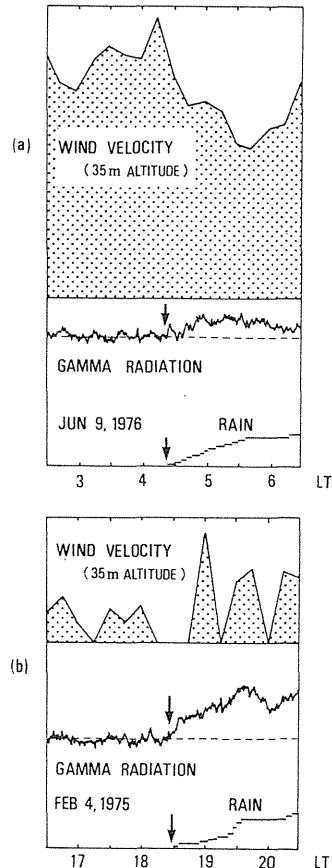
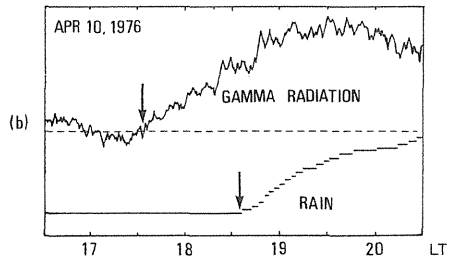
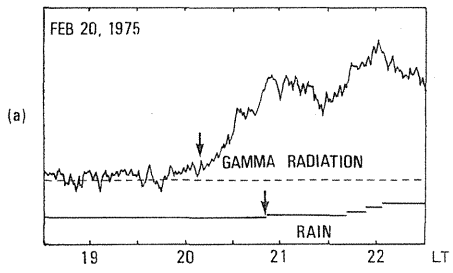


図 6



☒ 7

4-2 環境における散乱フォトンの計算法の比較

環境衛生研究部 阿部史朗、藤元憲三

Comparison of Computational Methods Simulating Photon Scattering Process in the Environment

Division of Environmental Health

Shiro ABE and Kenzo FUJIMOTO

モンテカルロ法は解析的には取扱えない複雑なフォトンの輸送をシミュレートするのに有効であり、種々の分野で用いられている。我々はこのモンテカルロ法を環境中のフォトンの諸特性を解析定量するため用いることを試み、まずその基礎過程、特に散乱フォトンのエネルギー変化および散乱角を求める計算法の検討を行った。

散乱フォトンのエネルギー変化を求めるには直接的にはコンプトン散乱微分断面積に対するクライナー仁科の式を用いればよいが計算に時間がかかりすぎる。これに代わる方法で環境中のフォトンに適用できそうな方法 (B. Carlson, M. J. Berger, W. Bruce and H. Johns および H. Kahn の4著者の方法) を選び、使用できる限界、計算に必要な時間を求めた。検討したエネルギーは10 KeVから4 MeVの範囲の21点である。

各エネルギーに対する各計算法のクライナー仁科の散乱微分断面積への近似の程度を調べるため計算された散乱角のヒストグラムを求めた。モンテカルロ法で用いられる手順に従い各計算法の近似の程度を正確に求めるには多数回乱数を発生させねばならず時間がかかる。ところが今回のように基礎の単一過程を扱う場合には、有限回の計算で無限回の乱数発生計算に対応できる手法がある。その手法を用いて近似の良否を判定した。

また対象とする各計算法の計算実行時間の長短を調べるために、乱数を発生させる計算を各方法について多数回くり返し、散乱角と散乱エネルギーの1組を求めるのに要する平均計算時間を求めた。結果を表に示した。

B. Carlson の方法は表に示された適用エネルギー範囲外ではクライナー仁科の散乱微分断面積の値と比べると前方散乱の確率が大きく後方散乱の確率が小さい。M. J. Berger と W. Bruce and H. Johns の2方法は適用エネルギー範囲外では逆に前方散乱の確率が小さく後方散乱の確率が大きい。またこの2方法は著者らが記述している適用可能エネルギー範囲内においても、計算された散乱角の余弦がマイナス1以下と不合理な値を示す領域がある。但し、W. Bruce and H. Johns の方法は著者らが示した適用エネルギー上限値1.28 MeVより高い2 MeVまで適用できることがわかった。H. Kahnの方法には4つの独立な方法が含まれ、それらは3つの棄却法と1つの合成棄却法である。これら4方法はすべてクライナー仁科の散乱微分断面積の値と全エネルギー範囲において等しくなるように作られている。

表中の平均計算時間は、対象となるフォトンのエネルギーに応じ値が変化するものがあるので、レンジで示しているものもある。表に示されている通り、一般に使用コンピュータにより計算時間は異なる。B. Carlsonの方法は計算時間が他と比べ短い。H. Kahnの方法は、対象とするフォトンのエネルギーや含まれる4法のいずれであるかによって異なった値を示すが、概して計算時間が長くかかる。

どの方法を用いて計算するかは、適用エネルギー範囲と使用コンピュータによる計算時間とを考慮して選択しなければならない。我々の目的に合致する計算法としてはH. Kahnの中的合成棄却法が最良と考えられる。

4 種 の 計 算 法 の 比 較

計 算 法	散乱微分断面積の値が全散乱断面積の5%の誤差内におさまるエネルギー範囲	1 回 の 平 均 計 算 時 間		計算上不合理な値が出現するエネルギー領域
		TOSBAC-3400	IBM-5100	
B. Carlson	800 keV ~ 2 MeV	$1.3 \sim 1.6 \times 10^{-3}$ 秒	1.6 ~ 2.2 秒	な し
M. J. Berger	100 keV ~ 600 keV 1.5 MeV ~ 10 MeV	6.3×10^{-3} 秒	1.5 ~ 1.7 秒	1 MeV 以下
W. Bruce and H. Johns	30 keV ~ 2 MeV	4.6×10^{-3} 秒	1.6 秒	37 keV 以下
H. Kahn (4つの方法)	全エネルギー領域	$1.9 \sim 9.5 \times 10^{-3}$ 秒	1.6 ~ 12.2 秒	な し

4-3 大気中トリチウムの化学形別測定法

環境衛生研究部 岩倉哲男、井上義和、田中霧子

Differential Determination of Chemical Species Concentration of Atmospheric Tritium

Division of Environmental Health

Tetsuo IWAKURA, Yoshikazu

INOUE and Kiriko TANAKA

(緒 言)

原子力施設の中で核燃料再処理施設、核融合炉施設、 ^3H 製造施設、重水炉型発電所などからは、比較的多量のトリチウムが空気中に放出されるが、その化学形としては、水蒸気 (HTO)、水素 (HT)、有機形 (主に CH_3T) の三種が考えられる。化学形に応じて放射線防護上の濃度制限値が異りまた放出後の環境挙動も異なるので、被曝線量を評価する上で化学形別に大気 ^3H を測定する必要がある。そのためまず上記 3 種 (HTO、HT、 CH_3T) の ^3H を分別捕集し、環境レベルの数倍程度の濃度以上なら測定可能な量を採取するための小型、簡易大気トリチウムサンプラーを試作し、種々の基本性能を検討するとともに、実際に研究用重水炉の排気中の ^3H の化学形の同定と定量を試みた。これらの成果を踏まえて、一般環境において 1 カ月以上の長期間自動的に大気中の ^3H を化学形別かつ環境レベル濃度を測定するに十分な量を採取する装置を開発し、環境の大気 HTO、HT 濃度に関するデータを集積した。

4-3-1. 小型・簡易化学形別大気トリチウムサンプラー

(原理と構造)

Fig. 1 に示す通り、(i)一定流量に調節しながら、ポンプでサンプラーに吸引した空気を、コールドトラップとモレキュラシーブ 4 A を詰めた吸着カラム 1 に通し HTO を完全に捕集する。(ii)小形の電解セルで水素を発生させ、これをキャリアとして添加した後、室温下でパラジウム触媒カラム 2 を通して HT を酸化し水の形で触媒上に吸着させ捕集する。(iii)メタンキャリアを添加した後、 420°C に加熱し

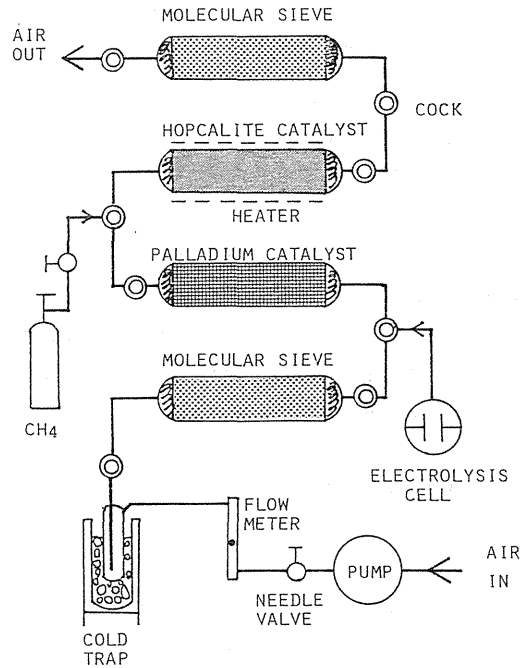


図 1

たホプカライト (MnO_2 50%、 CuO 30%、 Co_2O_3 15%、 Ag_2O 5%) 触媒カラム 3 を通して CH_3T を酸化し後続のモレキュラシーブ 4 A 吸着カラムに水の形で吸着捕集する。吸着カラムに水の形で捕集した各化学形の ^3H は、加熱下で真空脱水してコールドトラップに回収後、液体シンチレーション法で放射能測定を行い、 ^3H の空気中濃度を算出する。

(試験結果)

(i)水素酸化触媒は、 PdCl_2 塩酸溶液をモレキュラシーブ 4 A に添加し、乾燥後 500°C 加熱下の水

素気流中で活性化して調製した。この Pd 触媒の水素酸化能について試験した結果、60g を用い水素濃度を 0.04~0.38%、空気流量率を 0.5~4.0 l/min の範囲で変化させた場合、ほぼ 100% を示した。

(ii)パラジウム触媒に吸着した HTO は、500℃ 加熱下で真空脱水することにより、コールドトラップに 95~96% 回収された。残留する HTO は、³H を含まない水を吸着、脱水することにより定量的に回収された。(iii)既知量のメタンを含む空気をメタン酸化触媒のホブカライト 50g に通した結果、反応温度 410℃ 以上では、流量率 2 l/min 以下の時酸化率は 100% であったが 2 l/min 以上の流量率域では、流量率の増大に伴い低下した。³H のこの触媒への吸着率は低く 1% で、後続のモレキュラシーブ 4A 吸着カラムから 99% の HTO が回収された。(分析感度の評価)

本法による空気中 ³H の最低検出可能濃度 Dd (pCi/m³) は $Dd = 2.1\sqrt{B}/VE\sqrt{T}$ … (式 1) で求め得る。今この式に採取空気量 $V = 1.0\text{m}^3$ 、測定器の計数効率 $E = 0.25$ (cpm/dpm)、B. G 計数率 $B = 15$ cpm を代入すると $Dd = 3.3$ pCi/m³ となる。この値は、現在の環境レベル HT 約 2 pCi/m³、HTO 0.2~2 pCi/m³ の約 2 倍であり、本法を環境レベルに適用するには、サンプラーを大型化し空気採取量を増すか、高感度測定器を用いる必要があるが、³H 放出源近くの空気中濃度の測定には小型で簡単のため使い易い装置である。

(応用例)

ジョージア工科大学の研究用重水炉 (GTRR) のダクト排気中の ³H を分析した結果、(i) ³H の 99% 以上が HTO の形で存在した。(ii)熱出力 1MW の場合には、0 MW (shut down) の場合に比べ、³H が HTO で 4 倍、HT で 2 倍、CH₃T で 2 倍高濃度であった。(iii)ダクト中の ³H 濃度は、環境レベルに比べ HTO で 10⁶、HT で 10²、CH₃T で 10²⁻³ 倍高かった。

4-3-2. 長期、自動化学形別トリチウムサンプラー (原理と構造)

各化学形の ³H に対する捕集原理は、前記小型、簡易型トリチウムサンプラーと同じである。現在の

一般環境大気中の ³H 濃度変動を解析するに十分な精度で測定するためには、採取空気量を簡易型の場合に比べ 5-10 倍とする必要があることおよび本所と茨城県東海村の原子力施設付近の 2 カ所で大気中の ³H 濃度を同時観測しその結果を比較する計画であるため遠隔地に設置することを考慮し構造上以下の通り変更、改造を施した。i) 1 週単位で 5 週連続自動採取を行い得るよう HTO、HT 採取用カラムを 5 組装荷した。ii) 今週のカラムから次週のカラムへの流路切換えを自動化した。また iii) 空気流量率の測定に関して、簡易型では浮子式フロメータを用いており空気採取量評価の精度が 10% 以上と悪かったが、本法では質量流量制御装置を用いており空気流量率の自動制御とその精度は 1% と大巾に向上し、³H の空気中濃度値に対する不正確さの要因の 1 つが無くなった。iv) パラジウム触媒上で、HT を捕集する前にモレキュラシーブ (M・S) カラムにより HTO は完全に捕集・除去されねばならない。また大容量低バックグラウンド液体シンチレーション計測器を用いて環境レベルの HTO 濃度を精度良く測定するためには水蒸気を水として 50g 採取する必要がある。これらの条件と M・S の吸湿能最大 20 重量% と日本の冬期における絶対湿度約 5 g/m³ を考慮すると、空気流量率 1 l/min で 1 週間空気を採取する時空気採取全量は 10m³ であるのでこの中の水分は約 50g となりこの全量を M・S に吸着捕集するには M・S を 50/0.2 = 250g 必要とする。従って M・S カラムの容量を 300g と簡易型に比し約 5 倍とし、Back up のため計 2 本直列に連結した。しかし、v) 夏期には、絶対湿度が冬期の数倍の約 25 g/m³ となるため、測定に必要な水量 50g を捕集するためには空気採取量は 2 m³ で良いはずである。そのためには空気流量率を 0.2 l/min で十分である。しかし、流量率を下げるに比例して流量率測定精度が低下することおよび後続の HT 酸化触媒の酸化能を 100% に保つに必要な水素キャリアガス添加濃度以下限値 (約 0.1%) があることと HT 酸化率を H₂ 酸化率から精度良く求めるためにはパラジウムカラムの重量の再現性 (±100mg) から酸化水として数 g の水を回収する

必要がある。今水素キャリア濃度を空気の 0.1 % とし 1 週間のサンプリングで 5 g 以上の酸化水を回収するとすれば、空気流量率は 0.6 2 l/min 以上でなければならない。したがってこの場合、絶対湿度 25 g/m³ の夏期には 1 週間で 155 g の湿分を捕集しなければならない。これだけの湿分を捕集するには 300 g の M・S カラム 2 本を用いても不十分である。この問題を解決するため本法では、M・S カラムの前端に電子冷却素子を応用した小型の市販の除湿器を装着し湿分の大半を捕集し、後続の M・S カラムの負担を軽くした。vi) 空气中 HT 濃度の分析精度は、空気採取量、³H の放射能および触媒水素酸化率の決定に伴う誤差の影響を受ける。この中で最も重要な因子が水素酸化率の決定である。パラジウム触媒は毎回酸化水を回収後活性化するが、自然環境下の野外では気温の変化が激しくまた繰返し使用による性能劣下のため実験室で確認されたように常に 100 % の酸化率が保証されるとは限らない。したがって酸化率の決定のために水素キャリアの添加総量を高精度で決定する必要がある。このためサンプラーでは水素供給装置として小型の水電気分解装置を装着しており、電解電流は定電流回路電源により十分な精度で長期間一定値が維持される。vii) この電解電流値および質量流量計の出力は、任意の時間間隔で記録計にデジタルまたはアナログ記録することができ、時間積分することにより高精度で空気採取量、水素添加量を知ることができる。viii) 長期間無人下で自動サンプリングが実施されるので安全には十分な考慮が払われねばならない。サンプリング中水素が極く低流量率(～1 ml/min)で供給されているが万一故障等によりポンプが停止したり、連結管がはずれたりした場合は水素濃度が爆発限界である 4 % を越える恐れがあり危険である。爆発防止対策として本装置ではラインの空気流量率が設定値以下になった場合は自動的に電解電源を切り水素発生を停止しかつポンプの電源も止めてサンプリングを停止し同時に警報を発し続けるしくみになっている。警報発生流量率は通常 50 ml/min に設定している。ix) カラムを取り付けるラインの数(チャンネル数)は 5 週分連続採取可能とするため 5 である。

一週間タイマとプログラム回路機能により 1 つのチャンネルについての採取期間は最短 15 分から最長 1 週間の任意時間の設定が可能である。また任意の曜日、任意のチャンネルから開始でき、電磁弁により自動的にチャンネルの切り換えが行なわれる。カラムの交換は、サンプリングを停止することなくまたワンタッチジョイントを用いているので迅速、簡単に行うことができる。x) 運搬の容易さと野外での使用に要求される耐久性に配慮し、筐体の寸法は巾 800 × 奥行 400 × 高 1,000 mm とした。材質はステンレス鋼板で、両側面に取手が、底部にストッパー付キャスターが付いている。

(試験結果)

実験室での試験装置による各種予備試験の結果を踏まえて業者に発注し完成したのが図 2 に示す長期、自動化学形別サンプラーである。動作原理を図中の

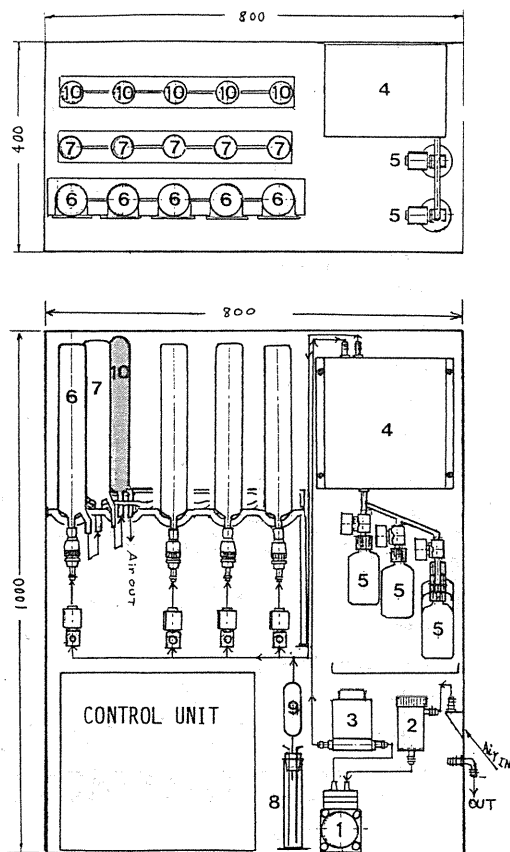


図 2

構成物品番号により述べる。ポンプ(1)により空気取入口から吸引された野外の空気は、グラスウールを詰めたダスト除去フィルター(2)を通過した後、質量流量計により一定流量率に設定され除湿器に導かれる。ここで空气中湿分 (HTO) の大半を凝集し下のポリ容器(5)に貯留する。残った湿分は後続のモレキュラシーブ #4A300 g 入りカラム(6)で完全に捕集する。その後念のためモレキュラシーブ #3A300 g 入りカラム(7)を通し完全に HTO を除去後、水素発生器(8)より一定流量率に制御されかつ吸湿剤カラム(9)を経た乾燥水素を空気の流れに混入する。水素発生器中の水は、 ^3H を極く微量しか含んでいないので HT 分析に影響しない。次にパラジウム触媒 100 g 入りカラム(10)を通過し HT は添加した H_2 とともに酸化水として触媒中に吸着捕集される。以上の方法により昭和 57 年夏より約 1 年間断続的に本所構内において試験運転および空気中の ^3H 採取・測定を実施した。その結果発生した問題点は次の通りである。除湿器により凝集した湿分は水として下に落下しゆるい勾配のついた透明プラスチック

製分配管で各ポリ容器に分配されるが、当初ポリ容器内は気密のため上部の水がポリ容器入口にとりつけた電磁バルブの細孔を通過しなかった。そこでポリ容器の肩なりにピンホールを設け針をつき刺し空気圧の逃し口を作った。このピンホールを通った空気は細いビニール管により空気ラインに戻す方法を採用した。この結果、長期間にわたり除湿器で採取された湿分が順次途中で留まることなく各ポリ容器に分配捕集された。モレキュラシーブ #4A と #3A は昭和 ユノックス製のものをを用いたが、購入時に吸着している水分の ^3H 濃度が高濃度であり、単に 450°C - 3 時間の真空脱水のみでは残留 ^3H を除去できず、そのままでは大気 ^3H 分析には供し得ないことが分った。そのため ^3H を含まない水 (B・G 水) で何度か洗浄し回収水の ^3H が十分低濃度であることを確認した後分析に供した。

(測定結果)

本所養訓棟横に位置するプレハブ内に本装置を設置し昭和 57 年 11 月 1 日より大気中 HTO、HT 濃度の定常分析を開始した。その結果を図 3 に示す。

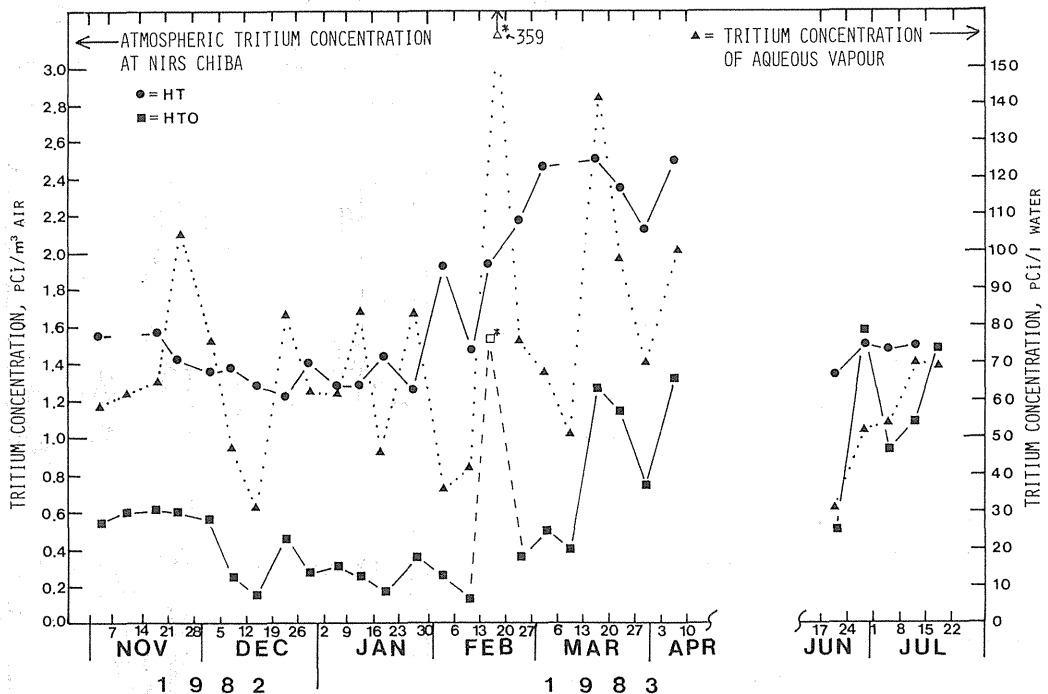


図 3

昭和58年4月中旬より6月中旬まで一時中止しその後再開している。図より以下のことが分った。

i) 大気中の湿分の ^3H 濃度(▲印)は、一部の例外を除き $30\sim 100\text{ pCi}/\ell\ \text{H}_2\text{O}$ の範囲にある。この濃度は、同じ期間の月間降水中の ^3H 濃度 $20\sim 46\text{ pCi}/\ell\ \text{H}_2\text{O}$ に比し $1.5\sim 2$ 倍高いが、高感度の液体シンチレーション計数器 ALOKA LB1 を用いても精度良く測定するのが困難になるほどフォールアウトレベルが下がっていることを示している。大気中湿分の ^3H 濃度が異常に高い値($359\text{ pCi}/\ell$)が昭和58年2月14日～20日の採取空気より検出されたが、これはすぐ近くのRI棟より2月15日に放出されたHTOの影響である。空気中のHTO濃度(■印)で表わすと昭和57年11月から昭和58年2月の期間は $0.2\sim 0.6\text{ pCi}/\text{m}^3\ \text{AIR}$ であるのに比し3月中旬以後7月の期間は $0.4\sim 1.6\text{ pCi}/\text{m}^3\ \text{AIR}$ と数倍高くなっている。これは絶対湿度が冬に比し春から夏にかけて数倍高くなること

の反映である。一方大気中のHT濃度(●印)は、昭和58年2月～4月の期間を除くと昭和57年11月から翌年7月まで $1.2\sim 1.6\text{ pCi}/\text{m}^3$ の極めて一定値を示しこの水準が現在の平常値と考えられ、この濃度は、夏期のHTO濃度とほぼ同じ水準である。では昭和58年2月中旬より4月中旬の少くとも約2カ月間の長期間約平常レベルの2倍近い $2.2\sim 2.5\text{ pCi}/\text{m}^3$ の水準が続いた現象はどのように説明できるか。一つの解釈は、地球上のどこかで単期間大量の元素状 ^3H (T_2)が放出され、地球的拡散を経て日本に達したと解釈される。この解釈の真偽は、日本および世界の大気 ^3H 測定機関のデータを照会することにより確認されよう。以上のサンプリング経験により本トリチウムサンプラーが十分仕様通りの性能を有することが判明した。

(研究発表)

INOUE, Y., KAHN, B. and CARTER M.W.:
Hoken Butsuri, 18, 119-127 (1983)

4-4 大気中⁸⁵Krの簡易迅速測定法

環境衛生研究部 岩倉哲男、井上義和

Simple and Rapid Method of Measuring Atmospheric ⁸⁵Kr

Division of Environmental Health

Tetsuo IWAKURA and Yoshikazu INOUE

(緒 言)

前特研において、空気中クリプトンの分離精製装置、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタを開発試作するとともに、クリプトンのトルエン、キシレンに対する溶解法、⁸⁵Krの液体シンチレーション計数における最適条件、校正法(絶対測定法)に関する基礎的データを得、測定法を確立した。この手法は、精度の高い測定が可能であるが、精製に時間を要し、モニタリングのための手法としては迅速性に問題がある。今回は、クリプトンを大気中からの分離精製に要する時間を1/2~1/3程度に大巾に短縮し、粗分離の状態、他の空気成分が混入した状態でも測定できる手法につき、検討した。

(検討と考察)

(1) シンチレータの考察

検出器としては、空気成分の残留が考えられ、これらが液体シンチレータに可溶でないため、他の固体シンチレータ(プラスチックシンチレータ)を用いる必要がある。測定装置としては、液体シンチレーションカウンタをそのまま用いるのが最も望ましいので、プラスチック・シンチレータを液体シンチレーションカウンタのバイアルに準じた形状とする必要がある。すなわち、中空で壁の薄い円筒容器状とする。⁸⁵Krの空気中最大飛程は約2m、平均飛程で約40cmであり、容量100ml程度の円筒状シンチレータ(45mmφ×70mm高さ)でも十分高い効率で測定可能である。壁厚は、プラスチックシンチレータ中の⁸⁵Krのβ線の最大飛程(約0.24mm)あればよい。これらの考察に基づいて、いくつかのプラスチックシンチレータを試作した。

(i) プラスチックシンチレータのブロックから、

旋盤で円筒容器状に削り出し、サンドペーパー、歯みがき粉で表面を仕上げる。この場合、工作中にクラックが入り易く、また工作中的強度の点で、壁厚を2mm以下にすることは困難である。

(ii) プラスチック・シンチレータ約3gを酢酸エチル90%+酢酸アミル10%の混合溶液100mlに溶解する。この溶解を少量づつ20mlの低カリガラス液体シンチレータ用バイアルに入れ、バイアルをゆっくり回転させることにより、バイアル内壁面に薄いプラスチックシンチレータの膜を附着させる。操作を繰返すことにより膜を厚くすることが可能である。このシンチレータは、製作は比較的容易で、検出器としての取扱いも簡単であるが、a) シンチレータが薄く(~10μ)、発光量が少ない、b) 膜厚が均一になりにくい、c) 経時的な性能の劣化や、膜の剝離が起き易い、などの欠点がある。

(2) 波形選別回路によるα放射能の除去

粗精製のクリプトン試料については、不純物として混入する大気成分中に含まれる⁸⁵Kr以外の放射性核種、とくにラドンとその娘核種から放出されるα線によるバックグラウンドの計数を選別除去する必要がある。

一般に、シンチレータ内における発光の減衰時間は、放射線の線質によって異なり、β線(電子)とα線とではα線の発光の減衰時間がずっと長い。この波形の差を利用し、入力パルスの波形を選別することにより、β線とα線のパルスを分別する手法が有効である。具体的な回路構成はFig 1に示す通りであり、すべてCANBERRA社のモジュールを用いた。また、Fig 1右側に各モジュールにおけるパルスの時間関係を示した。波形選別器のメリット値M

は、 α パルス β パルスの時間ピークの半値巾 t_a, t_b と分離度(ピークの時間差) T を用い、

$$M_{a,b} = T / (t_a + t_b)$$

で表わされるが、理論的考察からは、 $M_{a,b} = 1.5$ 以上ではほぼ完全な β パルスと α パルスの分離が可能である。一般のプラスチックシンチレータでは、 $0.1 \text{ MeV} \sim 7 \text{ MeV}$ の電子に対し、 $0.8 < M_{a,b} < 2.5$ であり、仮に 0.8 と仮定すると β 線を 100%

計数できる時間バイアスの設定下で α パルスの除去比は約 $15 : 1$ (混入率 $1/15$)と推定される。本回路の構成に当っては予算の都合上、検出部を除外せざるを得なかったため、除去比の実測データを得るに至らなかった。今後の課題として研究を進める予定である。

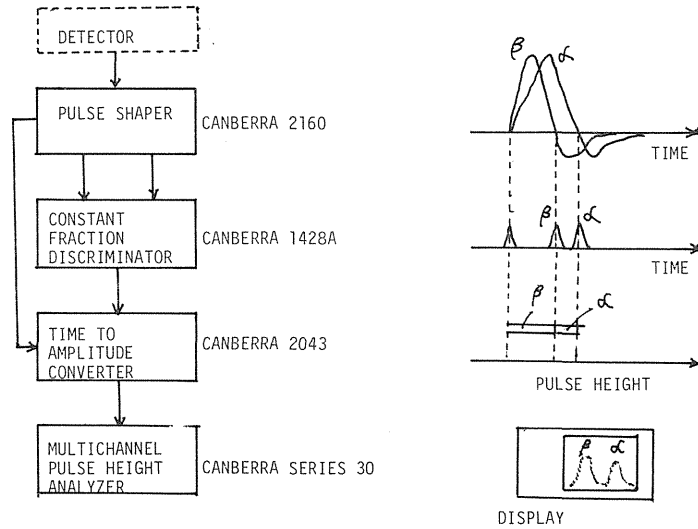


Fig. 1 Block diagram and time relationships of electronics for pulse shape discrimination.