

第12回放医研環境セミナー報文集

放射性核種の化学形が 被曝線量評価に及ぼす影響



放射線医学総合研究所



890000149

放射線医学総合研究所

放射性核種の化学形が 被曝線量評価に及ぼす影響

開会のあいさつ

放医研環境セミナーも回を重ねまして本年度は、12回ということになります。また日本保健物理学会との共催も7回目となりました。年々テーマも変わっておりますが、質の向上がはかられ、本セミナーも世の中の役に立っているものと自負しております。これも、放医研の中で準備委員会をつくって、テーマを選定し講演者をお願いしていますが、そうした委員の方々の努力の賜であらうと思っております。

環境放射能の問題が我が国で、実際上の問題として取り上げられましたのは、何と申しまして昭和29年3月の第五福竜丸の被曝事件と、それと同時に起りましたビキニの原爆マグロの騒動であったかと思えます。広島、長崎の原爆あるいは、放射線の医学利用など、放射線という言葉は、割合馴染の深いものとなっておりますが、私の記憶では、第五福竜丸事件の時に急性放射能症という言葉が都築先生が使われたと思えますが、その時、放射能という言葉が広まったと思えます。それから海洋汚染、水産物の汚染だとかフォールアウトの問題が出てきました。そのようなことから、日本の環境放射能研究がいろいろな方面で立派な業績をあげ、私が毎年出席しております国連科学委員会でも日本の環境放射能研究のレベルは非常に高いと見られております。

今回、取り上げましたテーマは非常に限られた形のものになっておりますが、最終的には環境放射能レベルを把握し、人体への影響へと進んでいくことが重要だと思っております。その中でも人の線量評価が非常に大切なことは言うまでもありません。それに影響するファクターには、いろいろなものがございまして、その中で今回は化学形を取り上げました。専門家の方々のご講演、ディスカッションを通じまして、線量評価に迫って行く道が明らかにされれば幸いだと思っております。

昨日は、科学技術庁主催で放射能調査研究成果発表会が行われまして、私、冒頭の挨拶でこの講堂は、大変古く、寒くお感じになる方もございましょうが、どうか皆様方のホットなディスカッションで気温を上げて下さいと申し上げました。本日もホットなディスカッションは歓迎するところでございまして、良い成果が出ますよう皆様のご協力をお願いいたします。

放射線医学総合研究所長

熊取敏之

共催学会のあいさつ

本日は本来ならば日本保健物理学会の吉沢会長がご挨拶される所ですが、丁度 ICRP の委員会出席のために海外出張中ですので、副会長の私が代ってご挨拶させていただきます。

日本保健物理学会が、この伝統ある放医研環境セミナーの共催学会にさせていただいていることにつきまして大変光栄に存じております。第6回から共催させていただいています。

この放医研環境セミナーは今回で十二回目を迎えられましたが、環境における放射線防護に係わる重要なテーマのもとに、継続して毎年このセミナーを開催され、さらにその成果を報文集として刊行されるなど、この分野の発展に大きな足跡を残してこられた放医研の関係者の方々に敬意を表するものであります。

御存知のように、ICRP はその Publication 26 において、線量制限体系を勧告しておりますが、これを放射線防護の実施面において担保するためには、まず被曝線量評価を確実に行うことが基本的に大切なことと考えます。そのために保健物理の各分野で多くの努力がなされておりますが、特に内部被曝に対する線量評価については関係するパラメータが極めて多いため、評価上のむずかしさが伴っております。

今回、このセミナーにおいては、内部被曝線量評価に対して極めて重要な役割を演じる放射性核種の化学形を取りあげて、環境から人体に及ぶ広い観点からまた系統的に、化学形が線量評価に及ぼす影響について、専門の方々の講演および討論の機会をもたれたことは大変有意義なものと存じます。

この二日間のセミナーを通じまして、放射性核種の化学形がどのように、またどの程度に影響を及ぼすのか、ということをはっきりと明らかにしてゆくための今後の方向付けが得られますよう、このセミナーからみれば多い成果を期待するものであります。簡単でございますが、以上ご挨拶と致します。ありがとうございました。

昭和59年12月6日

日本保健物理学会副会長
福田 整 司

序にかえて

原子力施設から放出される放射性核種は、環境中において天然の安定同位元素と異なる物理・化学形で存在することがあり、更に時間経過に伴って化学形が変化する場合もある。従って、放射性核種の環境から人体に至る移行過程における挙動や、人体に攝取された後の体内における代謝は複雑な様相を呈するが、放射性核種の化学形態別にみた挙動の相違については未だ不詳の点が多い。

原子炉事故の折りに環境への放出が予想されている放射性ヨウ素は、仮想事故時の人の放射線被曝評価上で注目されているが、ヨウ素の大気から葉菜、また土から根菜等への移行の様相、海水から海藻等への移行・濃縮、また食品の加工・調理中の除染率も化学形によってかなり異なることが示されつつある。原子炉施設から海へ放出される低レベル液体放射性廃棄物に含まれるコバルト-60の海産生物への移行に関しては、無機形のコバルトが魚の皮膚や貝殻等に吸着され易いのに対して、有機形のコバルトは、肝臓や筋肉に移行・蓄積されやすい事が示されている。また、人間が攝取したばあいの吸収率や体内残留率も化学形によって左右される事が、動物実験結果から判明しつつある。

この度の第12回環境セミナーは、放射線衛生的な見地から重要な放射性核種について、元素の違いのみでなく化学形にもとづく環境での挙動、農水産物への生物濃縮、調理加工中の変化、人間が攝取した折の吸収率と体内移行速度などの生理、生化学的機能への影響を検討した。これらの新知見を導入して、環境放射能による人体被曝線量計算モデルの精度向上を図るとともに、これに関連する学問水準向上を効果的に推進することを目指したものであった。したがって、本書もこの目的に活用されることを願う次第である。

第12回放医研環境セミナー準備委員会
委員長 佐伯誠道

目 次

開会のあいさつ	熊取 敏之	i
共催学会あいさつ	福田 整司	ii
序にかえて	佐伯 誠道	iii

I 環境における元素の存在形態と形態別分析定量法

1 大 気

1.1 総論	高島 良正	5
1.2 大気中のヨウ素	成富 満夫	18
1.3 大気中の超ウラン元素	大和 愛司	24

2 土 壤

2.1 総論	茅野 充男	31
2.2 土壌中における放射性核種の移動におよぼす化学形の影響	内田 滋夫	42
2.3 土壌中のヨウ素の化学形態	結田 康一	46

3 海 水

3.1 総論	半田 暢彦	55
3.2 外洋中での鉛直分布からみた人工放射性核種の形態変化	長屋 裕	66
3.3 放射性核種の化学形に関する二、三の問題	平野 茂樹	69

II 環境での元素の移行に及ぼす元素の化学形の影響

1 農作物への移行

1.1 総論	大桃洋一郎	77
1.2 放射性物質の農作物への移行に及ぼす化学形の影響	小林 宏信	88

2 海洋生物への移行

2.1 総論	小柳 卓	95
2.2 放射性物質の生物濃縮	鈴木 讓	105
2.3 濃縮係数の変動要因としての放射性核種の化学形	本田 嘉秀	108

Ⅲ 人体での元素の移行と代謝に及ぼす元素の化学形の影響

1 総論	岡林 弘之	117
2 放射性核種の人体代謝モデルにおける化学形などの考慮	河村日佐男	130
3 生体に摂取された存在形の ⁶⁵ Zn, ¹²⁵ Iの胃腸管吸収について	内山 正史	136
4 調理操作による食品中のヨウ素の除去効果について	住谷みさ子	141
5 生体試料中の微量元素の分析にかかわるいくつかの問題点	森田 昌敏	145

Ⅳ 総合討論—元素の化学形が人体被曝線量評価に及ぼす影響

はじめに	座 長	佐伯 誠道	161
海洋中の物質循環と元素の形態変化	指定発言者	猿橋 勝子	161
被曝線量評価の見地から		伊沢 正実	163
攝取された放射性核種の化学形の差異によるリスクの大きさの違い—Pu-239の例		小林 定喜	166
人体被曝線量評価に及ぼす元素の化学形の影響		丸山 隆司	167
放射性ルテニウム研究に関連して		渡利 一夫	171
指定発言で提起された問題点		佐伯 誠道	173
土壌における放射性核種の移行について	発 言 者	池田 長生	173
海洋における放射性核種の移行について		市川 龍資	175
農作物への放射性核種の移行について		熊沢喜久雄	176
海洋生物への放射性核種の移行について		上田 泰司	176
食品の放射性核種について		河村 正一	177
人体の放射性核種について		滝沢 行雄/本田 嘉秀	178
評価のための計算モデル		熊沢蕃/丸山隆司/小林定喜/滝沢行雄	179
被曝評価精度向上の研究推進		福田 整司	181
むすび		佐伯 誠道	182

Ⅴ 付録：セミナー概要

	佐伯誠道/小柳卓/大桃洋一郎	187
座長一覧		190
事務局一覧		191

Contents

Opening address	T. Kumatori
The joint sponsor's address	S. Fukuda
Editorial note	M. Saiki
I. Physical and chemical forms of the elements in the environment and analytical methods of them.	
1.1 Atmosphere (review)	Y. Takashima
1.2 Iodine in the atmosphere	M. Naritomi
1.3 Transuranium elements in the atmosphere	A. Yamato
2.1 Soil (review)	M. Chino
2.2 Effect of chemical forms on the movement of radionuclides in soil	S. Uchida
2.3 Chemical forms of iodine in soil	K. Yuita
3.1 Seawater (review)	N. Handa
3.2 Physico-chemical forms of artificial radionuclides estimated from their vertical distribution patterns	Y. Nagaya
3.3 Some problems on the chemical forms of radionuclides in seawater	S. Hirano
II. Effect of chemical forms on the movement of radionuclides in the environment	
1.1 Transfer to crops (review)	Y. Ohmomo
1.2 On the effects of physical and chemical forms of radionuclides existing in the environment upon the movement to crops	H. Kobayashi
2.1 Transfer to marine organisms (review)	T. Koyanagi

- 2.2 Bioaccumulation of radionuclides Y. Suzuki
- 2.3 Mechanisms of bioaccumulation of radionuclides by marine organisms in relation to their physico-chemical forms Y. Honda

III. Effect of chemical forms on the movement and metabolism of the elements in human body

- 1.1 Human body (review) H. Okabayashi
- 1.2 Considerations for chemical form of radionuclides and elements in metabolic parameters in man H. Kawamura
- 1.3 Gastro intestinal absorption of ^{65}Zn and ^{125}I incorporated into biological materials M. Uchiyama
- 1.4 Removal of radioiodine from leafy vegetables and algae by cooking M. Sumiya
- 1.5 Some problems on the analysis of trace elements in biological materials M. Morita

IV. Panel discussion — Problems on radiation dose assessments under the influence of chemical forms of radionuclides —

Chairman : M. Saiki

Panelist : K. Saruhashi
M. Izawa
S. Kobayashi
T. Maruyama
K. Watari

Commentator : N. Ikeda
R. Ichikawa
K. Kumazawa
T. Ueda
S. Kawamura
Y. Takizawa
Y. Honda
S. Kumazawa
S. Fukuda

V. Annex — Review on the Seminar —

M. Saiki

(Reprinted from Isotope News)

T. Koyanagi/Y. Ohmomo

List of chairpersons
Secretariat

I 環境における元素の存在形態と 形態別分析定量法

Physical and Chemical Forms of the Element in
the Environment and Analytical Methods of Them

1 大 気

- | | |
|----------------|------|
| 1.1 総 論 | 高島良正 |
| 1.2 大気中のヨウ素 | 成富満夫 |
| 1.3 大気中の超ウラン元素 | 大和愛司 |

1.1 総論

高島良正*

Atmosphere (review)

Yoshimasa Takashima

Department of Chemistry, Faculty of Science,

Kyushu University

Abstract

The atmosphere are made up three main elements, nitrogen, oxygen and argon, and minor other elements and compounds. The ratios of these constituents are almost constant up to 60 km from the earth surface showing the average molecular weight of 29. The atmosphere also contains water vapor in amounts varying from 0.02 to 4% by weight. Recently, a number of compounds that are considered as contaminants are introduced into the atmosphere mainly by human activity. Such constituents include sulfur oxides, nitrogen oxides, carbon oxides, hologens, and halocarbons. In addition to these compounds, a number of natural and artificial radionuclides are present in the atmosphere.

However the chemical forms of these radionuclides are not fully known. We classified these nuclides into three groups i. e., 1) radionuclides entrapped in aerosols, 2) radon and its daughters and 3) gaseous radionuclides with no daughters.

Analytical techniques for almost all non-radioactive contaminants in the atmosphere are well established in connection with pollution analysis. In these cases, gas

* 九州大学理学部

chromatography is often applied. On the contrary, analytical techniques for most radioactive contaminants are still under investigation. Therefore, there is no authorized or generalized method for them.

In the present review, I described analytical techniques of aerosol trapped nuclides, radon xenon-133, krypton-85, carbon-14 and tritium, with emphasis on simple and accurate techniques. And the results obtained in our laboratory are also shown together with analytical techniques.

はじめに

大気の主成分は体積比で約4：1の窒素と酸素とからなり、地球をとり囲んでいる。大気は対流や気象条件によって地球上を大きく移動することができる。従って大気中の微量成分まで考えに入れると大気の組成は地域による大きな偏りがみられる。大気中の元素の組成については未知なものも多いが、本稿では大気中に存在する一般化学物質と放射性物質について述べ、かついくつかの放射性物質についてはその形態別分析法について述べる。

1. 気圏の構造

気圏は Fig. 1 に示すように地表面に近い所から対流圏、成層圏、中間圏より構成される。地球をとり巻く大気は、その90%が対流圏に、10%が成層圏より上部に存在している。空気は高度と共に希薄になるが、平均分子量は60km程度まで地上空気の29に極めて近く大部分が窒素と酸素からなる。酸素分子 (O_2) は太陽光中の175~125nmの光を吸収し、酸素原子 (O) に分解する。この酸素原子は相互に衝突して元の O_2 にもどったり、大気中の他の O_2 と衝突してオゾン (O_3) になったりする。この O_3 も太陽光中の200~300nmの光を吸収し、その結果 O_2 と O に分解する。このようなオゾンの生成消滅反応が繰り返され、結局は平衡状態となり、成層圏内にオゾン層が形づくられる。

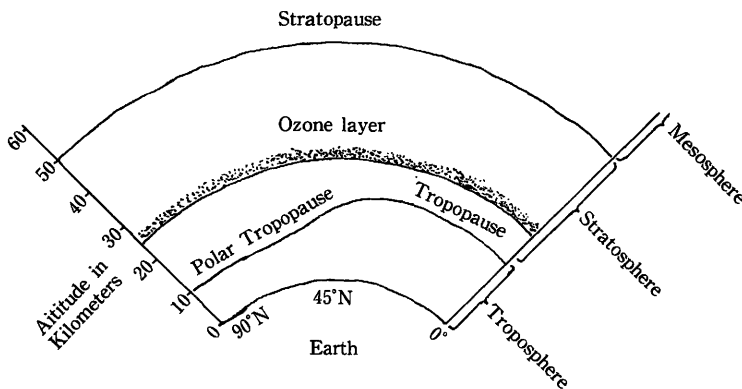


Fig. 1 The structure of the atmosphere

2. 大気の平均組成

Table 1 に大気の平均組成を体積比，重量比，全重量で示している¹⁾。表からわかるように大気は窒素，酸素の他体積で 0.93% のアルゴン，0.03% の二酸化炭素を含み，さらにネオン等いくつかの気体の微量成分も存在する。この他にも地域的に濃度変動の著しい水蒸気とか，人間活動に基づく大気汚染物質が含まれている。

Table 1 The Average Composition of The Atmosphere

Gas	Composition by volume (ppm)	Composition by weight (ppm)	Total mass ($\times 10^{20}$ g)
N ₂	780,900	755,100	38.648
O ₂	209,500	231,500	11.841
Ar	9,300	12,800	0.655
CO ₂	300	460	0.0233
Ne	18	12.5	0.000636
He	5.2	0.72	0.000037
CH ₄	1.5	0.9	0.000043
Kr	1	2.9	0.000146
N ₂ O	0.5	0.8	0.000040
H ₂	0.5	0.03	0.000002
O ₃ [*]	0.4	0.6	0.000031
Xe	0.08	0.36	0.000018

^{*}Variable, increases with height.

3. 大気の変動成分と大気汚染

水蒸気は大気中で濃度変動の最も大きい正常な成分である。世界的にみれば 0.02~4% (重量) でこれは 0.3~50g/m³ に相当する。日本では大体 0.3~2% (4~25g/m³) で変動している。水蒸気の存在量は主として温度に依存し，気候条件を調節する上で重要な役割を演じている。

大気汚染物質としては主として石油，石炭の燃焼からくる硫黄酸化物 (SO₂, SO₃)，窒素酸化物 (NO, NO₂)，炭素酸化物 (CO, CO₂) がある。SO₃ は硫酸ミストとして知られている。NO_x は強力な紫外線の下，炭化水素と作用し，光化学オキシダントをつくる。CO₂ は大気中の濃度が次第に増加し，将来地球の温室効果に寄与するものとして憂慮される。

またリン灰石の焙焼などの工業排気ガスとしてハロゲン (F₂, Br₂, I₂) がある。雨水中の濃度は Br₂ 0.002~0.03mg/ℓ，I₂ 0.0002~0.002mg/ℓ 程度であるといわれる。

一方濃度的には低い，成層圏のオゾン層を破壊するということで問題になるものにハロカー

ボン化合物²⁾がある。これらは通常フロン化合物と呼ばれ、四塩化炭素 CCl₄ の Cl を一つずつ F で置換する毎にフロン11 (CCl₃F), フロン12 (CCl₂F₂), フロン13 (CClF₃), フロン14 (CF₄) というように名付けられている。これらの化合物はみな化学的に極めて安定で対流圏から成層圏へ拡散する。現在の大気中の存在量は 10⁻¹²~10⁻¹⁰V/V であるが、冷媒や噴射剤等として広く用いられているので将来の濃度上昇が懸念される。

この他煙草の煙などからくるベンツピレン (C₂₀H₁₂) 等; 微量のいろいろな揮発性有機化合物も大気中に存在する。

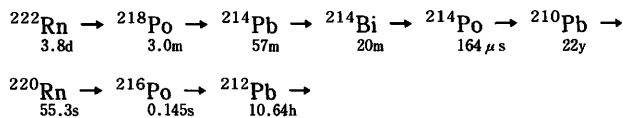
4. 大気中に存在する放射性核種

(a) エアロゾルに取込まれた核種

エアロゾルというのは粉塵 (dust, fume), 有機性微粒炭化物 (smoke), 液体の霧 (mist) などの総称である。大気中に生成した放射性核種は殆んどすべてエアロゾルに捕捉され浮遊する。従って元来液体や固体状の放射性核種も大気中に存在することができる。エアロゾルに捕捉された放射性核種の化学形はまちまちで不明な点が多いが一般に 0.01~10 μm のエアロゾルに良く捕捉されるといわれている。

(b) ラドンおよびそれらの娘核種

ラドンは気体であるから大気中に容易に拡散し、その拡散された場所で次のような壊変系列により放射性の娘核種を生成する。

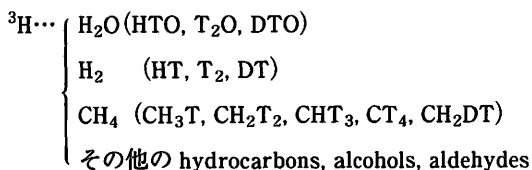


(c) 気体状核種で放射性娘核種を生成しないもの

1. ⁴¹Ar, ⁸⁵Kr, ¹³³Xe 等の希ガス放射性核種
2. ¹²⁹I, ¹³¹I 等を含む揮発性有機化合物 (CH₃I)
3. ³H, ¹⁴C 等を含む気体状の化合物

この中で ¹⁴C や ³H は特に気体状の化合物を作り易く、大気中で次のような化学形で存在する。

¹⁴C...CO₂, CO, CH₄, その他の hydrocarbons



5. 大気中に存在する元素の形態別分析法

(a) 大気汚染物質の分析

硫黄や窒素の酸化物等、大気汚染物質は殆んどガスクロマトグラフ分離-ECD (electron capture detector) により分析される。この10年位の間に公害分析法として精力的に研究され分析法も確立されている。それによれば ppb レベルの汚染物質が化学形別に比較的容易に定量分析される。

(b) エアロゾルに取込まれた核種の分析

大気中に浮遊する放射性核種は、通常エアサンプラーの濾紙上に空気中の塵埃を捕集して放射能を測定する。この塵埃(エアロゾル)を粒度別に捕集するには、しばしが Fig. 2 に示すような Andersen のハイポリウムエアサンプラーが用いられる。この図ではエアロゾルの粒度とそ

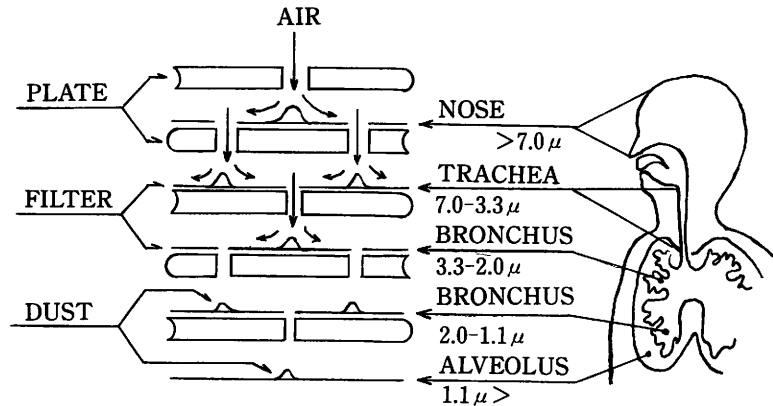


Fig. 2 Constitution and size distribution of the Andersen air sampler

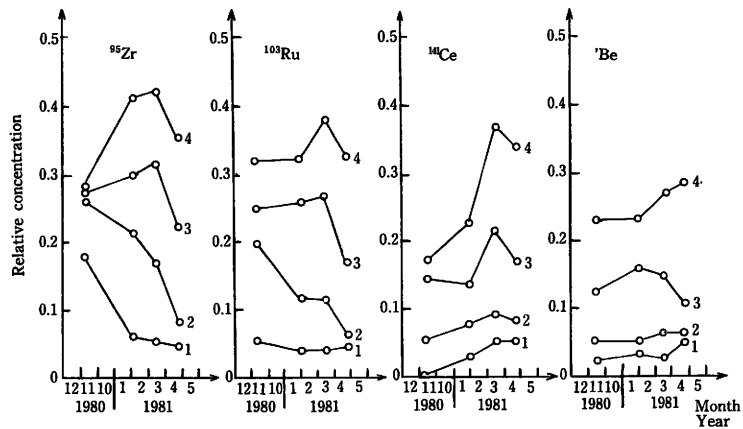


Fig. 3 Variations of the relative concentration of ^{95}Zr , ^{103}Ru , ^{141}Ce and ^7Be in each stage. The relative concentration was calculated as if the activity in back-up filter were unity. (1) $7.0 \mu\text{m} <$, (2) $3.3-7.0 \mu\text{m}$, (3) $2.0-3.3 \mu\text{m}$, (4) $1.1-2.0 \mu\text{m}$

これらの沈着する人体の部位も併せて示されている。

このサンプラーを用いて1980年の第26回中国核実験の後数ヶ月間の大気中の放射性核種を分析した。その結果を Fig. 3 に示す³⁾。この図からわかるように放射性核種はいずれの場合も粒子の小さい方に集まっている。またそれぞれの核種は違った落ち方をしていることがわかる。天然の宇宙線誘導放射性核種である ^7Be は時間的変動があまりみられないが、核実験に起因する人工放射性核種は時間と共に大きな変動をしている。 ^{141}Ce は他の核種と比べて遅く日本に到達している。

(c) ^{222}Rn および ^{220}Rn の分析

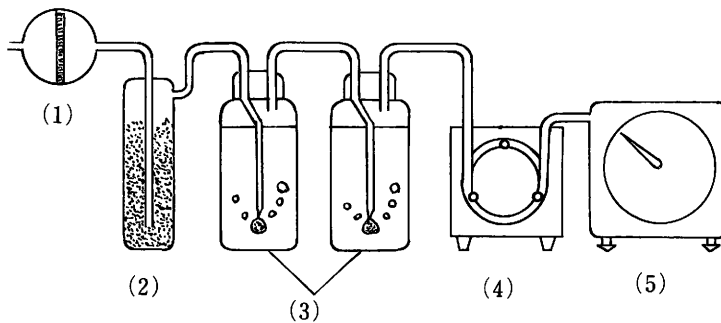
ラドンは放射能温泉の問題と関連しているので水の中のラドンの分析例^{4,5)}は多いが、大気中のラドンの分析法については例が少ない。従来から行われている方法には電離箱法、 $\text{ZnS}(\text{Ag})$ シンチレーション法、 $\text{Ge}(\text{Li})$ 半導体を用いる方法などがある。

電離箱法は試料空気を除湿除塵して電離箱内に導き、 α 放射能による微小電流を電気回路によって増幅し記録計で読みとる方法である⁶⁾。

ZnS 法では Lucas チャンバーとよばれる内壁に $\text{ZnS}(\text{Ag})$ シンチレータを塗布した箱内に空気を導き、 α 放射能に起因するシンチレーション光を光電子増倍管を用いて検知する⁷⁾。

$\text{Ge}(\text{Li})$ 半導体法では活性炭に Rn を吸着させ、娘核種との放射平衡が成立した後 γ 線スペクトロメトリーによって定量する⁸⁾。

これらの方法にはそれぞれ一長一短があるので、われわれは新たに野外の天然レベルのラドンを迅速簡便に測定する方法を開発した⁹⁾。それは空気中のラドンを液体シンチレータに吸収させ、液体シンチレーションカウンタで定量する方法である。この方法によるラドンの吸収には Fig. 4 に示すような装置を用いる。



- (1): Glass filter; (2): Calcium chloride;
(3): Absorption vessel; (4): Pump;
(5): Gas meter

Fig. 4 Absorption apparatus for radon

この方法で肝心なことは液体シンチレータによるラドンの吸収の諸条件であるが、それを詳細に検討した。その結果液体シンチレータ中の Rn 濃度は空気全流量の増加と共に上昇し、約 8 ℓ の通気で飽和に達することがわかった。空気の流速による影響は 0.1~1.5 ℓ/min の間で認められなかったが、流速を大きくすると液体シンチレータが蒸発しやすくなるので実試料測定においては流速を 200ml/min、空気全流量 8 ℓ とした。

実際の操作としては、初め試料空気を四フッ化ビニル製の袋（容量 100 ℓ）に採り、これを前述の吸収装置に連結する。吸収管に液体シンチレータ 100ml を採り、200ml/min で 40 分間吸収させる。吸収終了後吸収管を密栓し暗所で保存し約 4 時間経過後（ ^{222}Rn と娘核種の間放射平衡を成立させる）液体シンチレーションカウンタで測定時間を 100 分として放射能の測定を行う。 ^{220}Rn が含まれていない場合は 1 回の測定で ^{222}Rn を定量するが、 ^{220}Rn と ^{222}Rn が共存する場合は約 1 日間にわたって 4~6 回の放射能測定を行い Bunney プロット法によって両者の同時測定を行う。

Fig. 5 に福岡の野外で地上 1m の空気を 2 時間おきに 2 日間連続測定した結果を示す。 ^{222}Rn 濃度は 0.1~0.4pCi/ℓ の間で変動していることがわかる。このような時間変動があるので空気試料を直接吸収装置に導くよりも、いったん捕集袋に捕集したものを測定試料とした方がよい。

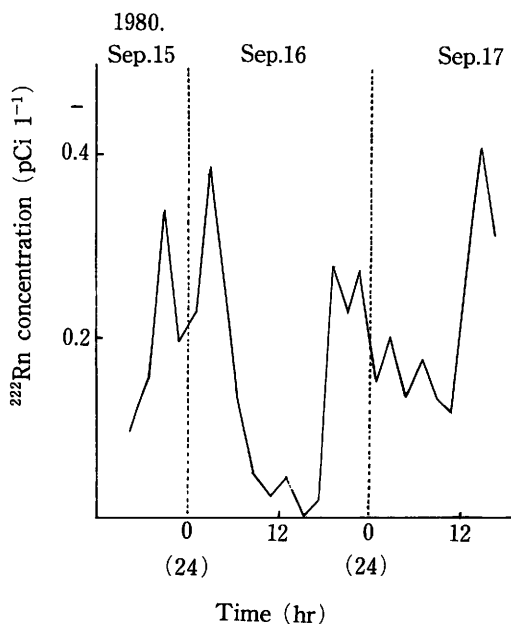


Fig. 5 Fluctuation of ^{222}Rn concentration in air

ラドンの娘核種には前述のように正イオンと中性原子があるが、それは負のポテンシャルを加えて芯線に捕集される分とそうでない分にわけて別々に測定することができる。

(d) ^{133}Xe 及び ^{85}Kr の分析

キセノンやクリプトンの同位体の測定例は極めて少ない。しかし近年原子力開発に伴って大量のキセノンやクリプトンの同位体が大気中に放出されるようになったので環境でのそれらの同位体測定が重要な問題となってきた。ここでは野外でそれらの同位体を比較的簡単に補集測定する方法について述べる。キセノンやクリプトンの同位体には種々あるが半減期を考慮すると ^{133}Xe (5.3d) と ^{85}Kr (10.6y) がとくに重要な核種である。Table 1 に示すように Xe や Kr は大気の極微量成分であるから、それらの気体を純粋に分離するのは容易ではない。Fig. 6 はその補集分離を可能にした装置のブロックダイヤグラムである¹⁰⁾。

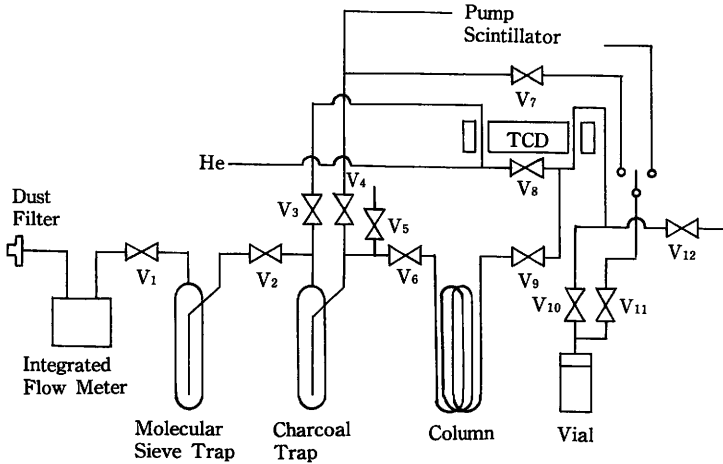


Fig. 6 Block diagram of the apparatus for isolations of xenon and krypton from air.

この装置は次のように操作する。

- ① 分離操作に先立って各トラップ管を含む全系を加熱し真空ポンプで排気する。
- ② モレキュラシーブトラップは常温、活性炭トラップは液体窒素温度に冷却し、真空ポンプで空気を引く。これにより水蒸気、 CO_2 はモレキュラシーブトラップへ Kr 及び Xe は O_2 、 N_2 と共に活性炭トラップへ捕集される。
- ③ 積算流量計の目盛りを読み、500 l になったら吸引を止める。
- ④ 活性炭トラップの液体窒素浴をドライアイス浴に変え、He ガスを60分間流して酸素、窒素の大部分を取除く。He の流速は 1ml/min に調節する。
- ⑤ 分離カラムを液体窒素浴に浸し、活性炭トラップを加温し、He ガスを流して活性炭カラ

ム中の Kr, Xe 等のガスを分離カラムへ移す。

⑥ 分離カラムの液体窒素浴を取去り, 手早くドライアイスで -43°C に冷却したエチレングリコール浴に変える。この時点からストップウォッチで時間を測定する。時間経過と共に Fig. 7 に示すように Kr が分離溶出する。

⑦ Kr 溶出の約 5 分前にバイアルを液体窒素に冷却し Kr をバイアル中に移す。

⑧ バイアルに 20ml のシンチレータ溶液を添加して液体シンチレーション測定試料とする。

⑨ Xe が存在する場合はその後分離カラムを 90°C に加温し, Xe を溶出させ, Kr と同様に液体シンチレーションカウンターで測定する。

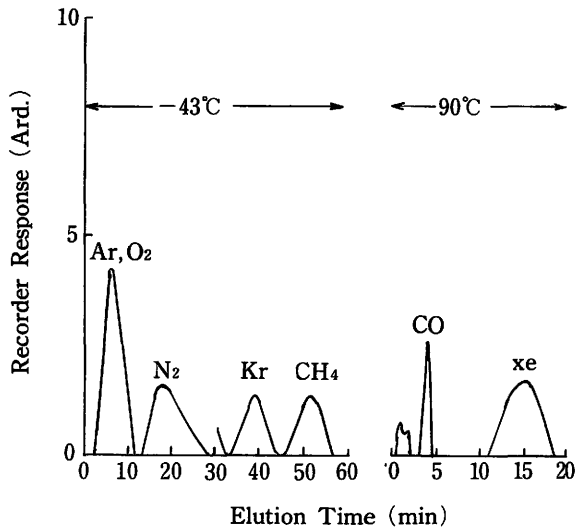


Fig. 7 Elution chromatogram

このようにして分離測定した ^{85}Kr 濃度を Table 2 に示す。日本における現在の大気中の ^{85}Kr 濃度は約 $21\text{pCi}/\text{m}^3$ である。大気中の ^{133}Xe 濃度も測定されたが液体シンチレーションカウンターのバックグラウンド計数値と有意の差は認められず, ^{133}Xe は検出できなかった。

(e) ^{14}C の分析

大気中の ^{14}C は CO_2 , CO , CH_4 等の化学形で存在すると CO_2 以外のものは CO_2 に比べて存在量が無視できる程少ないので, 通常大気中の ^{14}C の分析と言えば CO_2 についてのみ行われている。しかしメタンガスを発生するような環境下では CH_4 中の ^{14}C の分析も必要になるが, そのような場合は CH_4 を酸化燃焼してまず CO_2 の形にした後常法によって測定される。大気中の ^{14}C の通常の分析法は次の四つのステップからなっている。すなわち① CO_2 の捕集, ② CO_2 の再生, ③ 測定する化学形への CO_2 の変換, ④ 測定 である。 CO_2 の捕集は KOH 溶液に吸収させた

Table 2 ^{85}Kr concentration in the atmosphere in Kyushu

Location	Sampling Date	Concentration of ^{85}Kr (pc l / m ³)
Hakozaki, Fukuoka	Jan. 30, 1981	20.3±1.3
	Feb. 19, 1981	21.3±1.2
	Mar. 17, 1981	21.8±1.3
	Apr. 3, 1981	20.5±1.2
	Jul. 14, 1981	21.9±1.2
	Aug. 7, 1981	21.1±1.3
	Nov. 4, 1981	22.5±2.7
	Dec. 9, 1981	21.1±1.2
	Jan. 19, 1982	21.5±1.1
	Jan. 21, 1982	21.7±0.9
	Feb. 18, 1982	23.0±1.2
	Feb. 19, 1982	21.7±1.0
	Hato Cape, Saga Pref.	Nov. 30, 1980
Jan. 25, 1981		19.6±1.4
Dec. 12, 1981		21.3±1.3
Des. 13, 1981		21.4±1.4
Genkai, Saga Pref.	Dec. 13, 1981	22.5±1.4
	Des. 14, 1981	20.2±1.2
Karatsu, Saga Pref.	Dec. 14, 1981	21.5±1.2
Sakurajima, Kagoshima Pref.	Jan. 26, 1982	21.3±0.6

後 BaCl_2 を加えて BaCO_2 として集める方法や、 CO_2 を直接モレキュラシーブに吸着させる方法がある。後者の場合水分も同時に吸収して妨害するので、上層大気のような水分の少ない場合に良く利用される。 CO_2 の再生は BaCO_3 の場合は H_3PO_4 を加えて行い、モレキュラシーブの場合は加熱して CO_2 を発生させる。測定する化学形への変換は、ガスカウンター用としては CO_2 をそのまま用いることもできるが、普通は C_2H_2 や CH_4 にする。液体シンチレーションカウンターを用いる場合は CO_2 を CH_3OH とか C_6H_6 など有機液体シンチレータに可溶性にする。測定法としては ^{14}C の軟ベータ線を測るためガスカウンターか液体シンチレーションカウンターを用いるが、前者では気体の調製、後者では C_6H_6 等有機化合物の合成にかなりの時間と熟練が必要である。そのため近年もっと簡便に測定する方法が開発されている。1例として Fig. 8 にわれわれの研究室で作成された CO_2 の捕集装置を示す。

この装置でモレキュラシーブカラムは MS13X のモレキュラシーブを内径 50mm、長さ 700mm のステンレス製の筒につめたものである。まずこのカラムに空気を約 20 l / min の速度で流し、 CO_2 と水蒸気を同時に吸着させる。空気が 4,000 l 以内であれば破過が起こることはない。 CO_2 と水分を吸着したカラムはマントルヒータで 350°C に加熱し、乾燥した窒素ガスを 500ml / min の速度で流す。そうすれば水分はドライアイストラップに完全に捕集された CO_2 は U 字管 (内

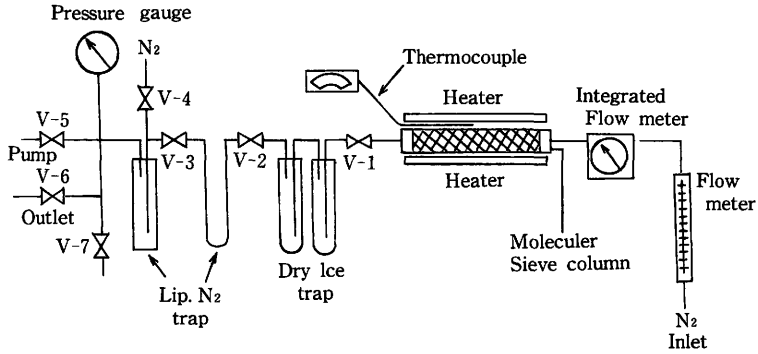


Fig. 8 Schematic representation of the apparatus for CO₂ isolation

径 15mm 長さ 50mm の銅パイプ製で中に 20~40 メッシュのシリカゲルが詰められている) に捕集される。この CO₂ は精製後, 100ml の有機シンチレーションカクテル(例えば NEN 社のシンチレーションカクテル (オキシフロア®-CO₂) に吸収させ液体シンチレーションカウンターで測定する。

(d) ³H の分析

大気中の ³H は H₂O, H₂, CH₄ の形で存在する。H₂ や CH₄ は水蒸気に比べて存在量は極めて少ないが, ³H の比放射能が極めて高いので適当な方法を用いれば十分測定可能である。Fig. 9 は初め動力炉核燃料開発事業団で大気中の H₂O, H₂ 中の ³H 分析用として開発されたものを九州大学で H₂O, H₂, CH₄ 用に改良した装置のブロック図である。

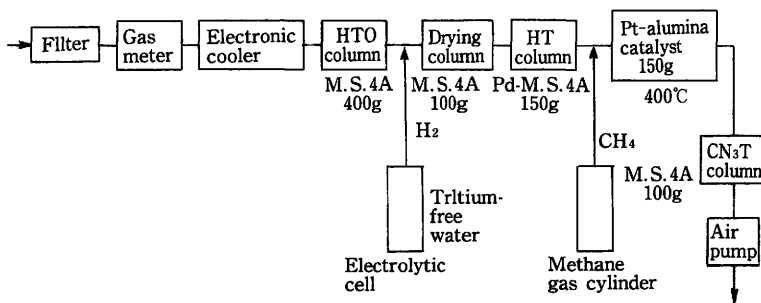


Fig. 9 Block diagram of tritium sampler

この分離装置を用い大気中の水蒸気, 水素, メタンをそれぞれ捕集し, その後液体シンチレーションカウンターで放射線測定を行う。空気は 4,000 l を 2 l / min の速度で吸引する。まず水蒸気を HTO カラムに吸収させる。水素は水の電解で発生させた H₂ キャリアを流しながら HT カラムで酸化して水の形で吸収させる。最後に残ったメタンはメタンガスキャリアを流し, 触媒酸

化してやはり水の形で CH_3T カラムに吸収させる。それぞれのカラムに吸収された水は、加熱放出させ回収する。回収された水は常法により液体シンチレーションカウンターで測定する。この方法で1983年2月から現在まで行った測定結果を Fig. 10 に示す。

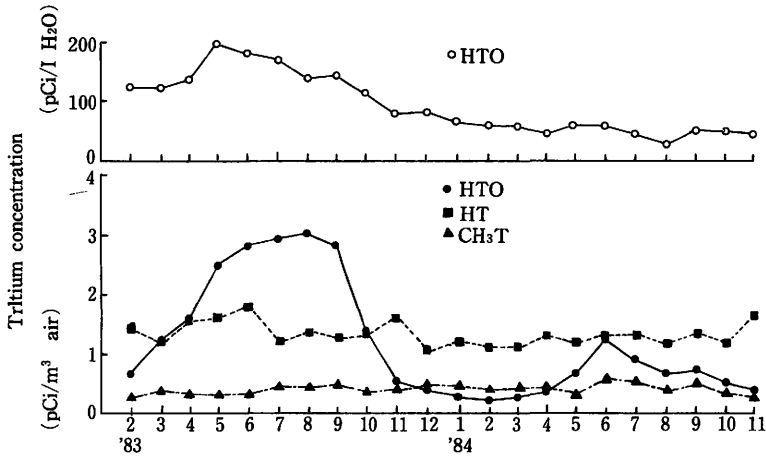


Fig.10 Tritium concentration in air at Kyushu University

HTO 濃度は $0.2 \sim 3.1 \text{ pCi/m}^3$ で夏期に高く、冬期に低いという季節変動がみられる。HT 濃度は $0.95 \sim 1.9 \text{ pCi/m}^3$ 、 CH_3T 濃度は $0.21 \sim 0.75 \text{ pCi/m}^3$ で殆んど季節変動はみられない。また HTO, HT, CH_3T を T. U. で表わすとそれぞれ ~ 60 , 10^6 , 10^4 となりそれらの起源の異なることが推察される。

おわりに

以上大気中の一般成分、放射性核種成分についての概要を述べ、放射性核種に関しては分析法についても略述した。しかし自然界には100種以上の放射性核種があるといわれており、ここで述べたものはその中のほんの一部に過ぎない。今後ともいろいろな放射性核種の分離装置、測定装置が開発され、多数の核種の精密迅速分析法の出現が望まれる。

参考文献

- 1) Mason, B., Principles of Geochemistry, 2-ed., John Wiley & Sons, Inc. New York, 1985, p. 199.
- 2) Makide, Y., Tominaga, T., & Rowland, T. S., Gas chromatographic analysis of halogenated hydrocarbons in air over Japan. *Chem. Letters*, **355**, 1979.
- 3) Momoshima, N., & Takashima, Y., Variation in radionuclide concentrations and size distribu-

- tion of radioactive particles from the Chinese nuclear weapon test of October 16, 1980, *J. Radioanal. Chem.*, **76**, 7, 1983.
- 4) 高島良正, 百島則幸, 有定裕雅, p-キシレン抽出法と液体シンチレーション計測法の組合わせによる ^{222}Rn の定量, *Radioisotope*, **27**, 504, 1984.
 - 5) 堀内公子, 村上悠紀雄, 天然水中のラドン-220のトルエン抽出法—液体シンチレーションカウンターによる新定量法, *Bunseki Kagaku*, **28**, 661, 1979.
 - 6) J. E. Pearson & G. E. Jones, Emanation of radon-220 from soils and its use as a tracer, *J. Geophys. Res.*, **70**, 5279, 1965.
 - 7) Lucas, H. F. : Improved low-level alpha-scintillation counter for radon, *Rev. Sci. Instrum.*, **28**, 680, 1957.
 - 8) International Committee for a Manual of Methods for Ambient Air Sampling and Analysis, *Method of air sampling and analysis*, 1972.
 - 9) 松岡信明, 岡村正紀, 平井英治, 白石直典, 百島則幸, 高島良正, 液体シンチレーション測定法による空気中の Rn-222 及び Rn-220 の定量, *Bunseki Kagaku*, **30**, 499, 1981.
 - 10) Okai, T. Takashima, Y. Shiraishi, N. & Matsuoka, N. : Measurement of krypton-85 in the atmosphere with a portable apparatus. *J. Radioanal. & Nucl. Chem.*, **81**, 161, 1984.

1.2 大気中のヨウ素

成 富 満 夫*

Iodine in the Atmosphere

Mitsuo Naritomi

Japan Atomic Energy Research Institute

Abstract

In this section some description is given of a sampling technique for distinguishing forms of environmental airborne radioiodine at a low concentration of $10^{-14} \mu \text{ Ci/cm}^3$, assuming the determination of ^{129}I in sample by the activation analysis technique.

Iodine forms are separated by Maypack type sampler which consisted of membrane filter for particulate iodine, Ag-plated cellulose filters for elemental iodine and charcoal cartridges for alkyl-iodide. When air is heated upstream the sampler, exchange reaction between alkyl-iodide and chloride contained in charcoal [type HC] as impurity is available effectively for the collection of alkyl-iodide form on the charcoal cartridge. It facilitates remarkably the determination of ^{129}I in samples by the activation analysis technique because iodine in the charcoal is extracted by simple chemical treatment.

ここでは、非常に低濃度となる環境雰囲気中の放射性ヨウ素を形態別に定量する際に重要になるサンプリングについて述べる。

Fig. 1 は 1,000MWe の出力の発電炉において生成する各種ヨウ素の質量、放射能及び ^{131}I と

* 日本原子力研究所

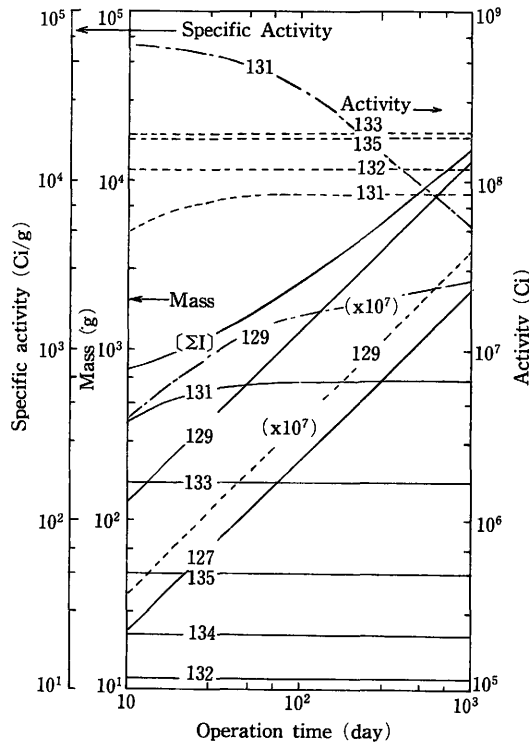


Fig. 1 Relation between Amounts of Iodine Species and Operation Period in Nuclear Reactor (1000 MWe)

^{129}I の比放射能を原子炉の運転時間に対して示したものである。定常運転状態にある発電炉では600~1,000日間の運転によって生成されるヨウ素を蓄積しているの、質量的には ^{129}I と ^{127}I によって支配されるが、放射能は ^{129}I を除いて運転時間に関係なく一定である。従って、 ^{131}I と ^{129}I の比放射能はそれぞれ $(5 \times 8) \times 10^4$ 及び $2 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$ と見做せる。

今、環境雰囲気中の測定において要請される濃度を $10^{-14} \mu\text{Ci/cm}^3$ とすると、その濃度に対応する ^{131}I と ^{129}I の質量濃度は両比放射能からそれぞれ $(1 \times 2) \times 10^{-25}$ 及び $5 \times 10^{-17} \text{g/cm}^3$ となる。両濃度とも大気中に存在する自然の安定ヨウ素の濃度 $5 \times 10^{-11} \sim 5 \times 10^{-10} \text{g/cm}^3$ と比べると著しく低い。即ち、原子力施設から放出する放射性ヨウ素は自然の安定ヨウ素によって大巾に希釈されることになり、従って、環境雰囲気において存在する放射性ヨウ素の形態も自然の安定ヨウ素の形態そのものに近いと考えられる。今のところ、自然の安定ヨウ素の存在形態を詳細に分析した報告は見当たらない。

以上示したような低濃度ヨウ素の形態別定量は直接的な分析では不可能である。従って、形態別に選択的に捕集できる捕集材をパックにしたサンプラが古くから開発され、それによって大まかな形態の識別がなされてきた。この種のサンプラについては第7回のセミナーにおいて報告²⁾した。Fig. 2は、その1例を示したもので、日本原子力研究所で実施した原子炉格納容器スプレィ

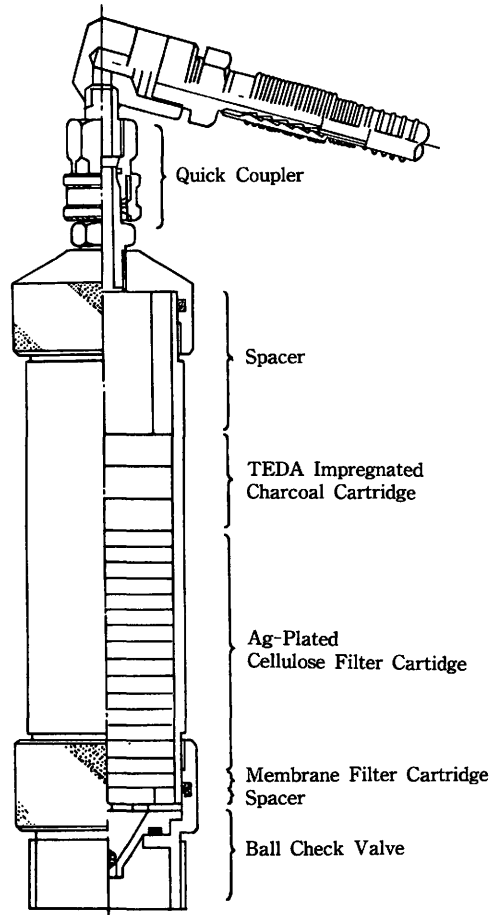


Fig. 2 Schematic Diagram of a Maypack Sampler

試験において使用したものである。

各捕集材にトラップされる ^{131}I 或いは ^{129}I の定量をそれぞれ放射能計測及び放射化分析によって実施することを前提にして、濃度 $10^{-14} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の ^{131}I 或いは ^{129}I を定量するためには少なくとも 10^3m^3 の空気をサンプリングすることが必要になる。また、この空気量は、サンプラの流量を $50 \text{l}/\text{min}$ とすると、2週間以上の長期間にわたる連続サンプリングが必要となることを示している。

Fig. 2 に示すサンプラにおいて、元素状ヨウ素 (I_2) は銀添加したフィルタに AgI の形態で効率よく捕集され、スプレイ実験のような苛酷な条件でも堅固に保持されていて脱離しないことが確認されている。しかし、有機ヨウ素を捕集するための活性炭は、雰囲気条件特に相対湿度の影響を受けて効率が低下し、その程度は長期間のサンプリングになる程顕著になることが知られている¹⁾。このような性能低下を防ぐため、活性炭に有機ヨウ素と化学反応する薬品（例えば TEDA）を 5~10wt/o 添着した捕集材が使用される。

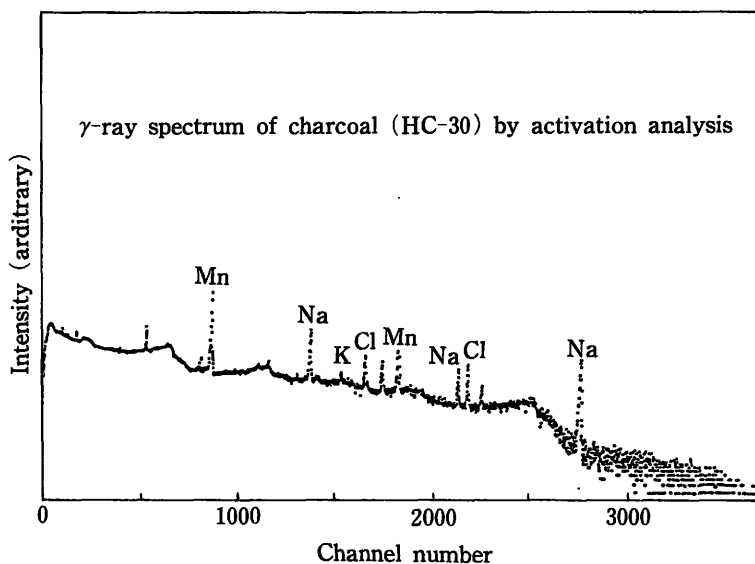


Fig. 3 γ-ray Spectrum of Charcoal (CH-30) by Activation Analysis

^{131}I の定量にはこの方法が有効である。しかし、 ^{129}I の放射化分析による定量では、活性炭を化学処理してヨウ素を抽出する操作が必要となるので、活性炭は無添着が望ましい。

活性炭は、その活性化法或いは後処理によって異なるが、種々の不純物を含んでおり、或る種の活性炭は添着しなくても有機ヨウ素捕集に高性能を示すものがある。Fig. 3は活性炭HC（ソルミコール製）を放射化して、含有する不純物のγ線スペクトルを示したものである。この活性炭にはNa, K, Mn等の金属の外にClが2ppm程度含まれている。この塩素は有機ヨウ素と(1)式

Mass spectra of off-gas from charcoal with and without CH_3I injection

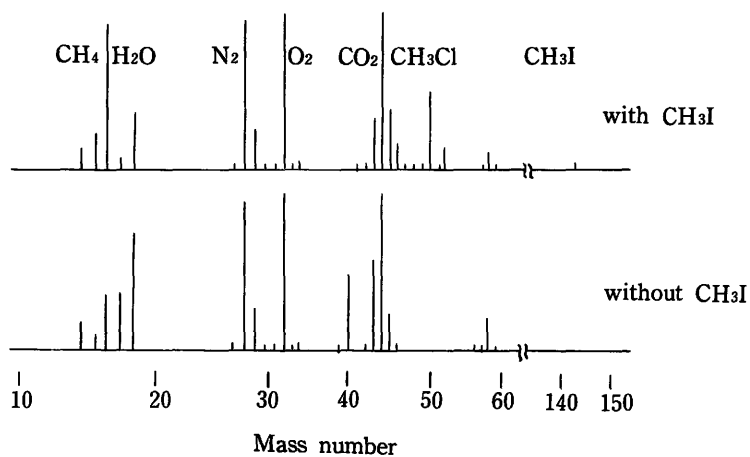
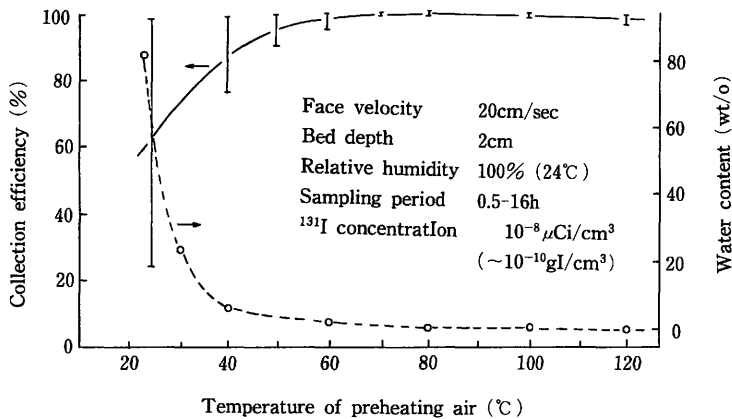


Fig. 4 Mass Spectra of Off-gas from Charcoal with and without CH_3I Injection

で示す反応をして、反応生成物である有機塩素は捕集材中を展開しながら透過するが、一方のヨウ素は不純物の塩素同様に活性炭に堅固に保持される。

$RI + Cl(活性炭) \rightarrow RCl \uparrow + I(活性炭)$ (RI アルキル基) (1) Fig. 4 は、捕集材のオフガスを質量分析してそのスペクトルを示したもので、ヨウ化メチルが捕集材中で塩化メチルに変わり、(1)式の反応の様子をよく示している。

以上述べたことは、活性炭の反応条件さえ整えれば有機ヨウ素を完全にトラップするので、無添着活性炭でも長期間のサンプリングに対して性能維持できることを示している。一般に遭遇する環境雰囲気である 25°C、相対湿度 70% の空気には約 $2 \times 10^{-5} \text{g/cm}^3$ の濃度の水分を含んでいる。この濃度は大気中の安定ヨウ素の濃度と比べても著しく高く、有機ヨウ素吸着を阻害する大きな原因になっている。従って、安定した有機ヨウ素吸着を長期間維持するためには、先づ活性炭の水蒸気吸着を排除する必要がある。



Effect of temperature of heating air on adsorbing organic iodide and water vapor in charcoal (HC-50)

Fig. 5 Effect of Temperature of Heating Air on Adsorbing Organic Iodide and Water Vapor in Charcoal

活性炭は相対湿度を 40% 以下に下げると、ほとんど水分を吸着しないことが分っている^{1,3)}。この性質を利用し、同時に不純物として塩素と有機ヨウ素の反応速度を高めるサンプリング法が開発されている。Fig. 5 は、温度 24°C、相対湿度 100% で低濃度のヨウ化メチルを含む空気を加熱してサンプリングし、ヨウ化メチルの捕集効率と水蒸気吸着量を加熱温度に対して示したものである。70°C に加熱すると、水分吸着は完全に排除されてヨウ化メチルの反応の場が持続して確保されるようになるので、捕集効率はサンプリング時間に無関係になる³⁾。

以上述べたサンプリングでは、雨天のような悪条件でもそれを配慮する必要がなくなり、極く低濃度の放射性ヨウ素でも大まかな識別ではあるが形態別に測定できる。

参考文献

- 1) 成富満夫, 福田整司, 放射線モニタリングのための浮遊ヨウ素のサンプリングについて, 空気清浄10, 79~93, 1977.
- 2) 最近の環境における放射性ヨウ素の諸問題, 第7回放医研環境セミナー, 46~67, 1979.
- 3) Naritomi, M. Yoshida Y. and Fukuda, S. : Method for Improving the Collecting Performance of Iodine Sampler under High Relative Humidity, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 10, 292~300, 1973.

1.3 大気中の超ウラン元素

大 和 愛 司*

Transuranium Elements in the Atmosphere

Aiji Yamato

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

Abstract

Concentration of $^{239, 240}\text{Pu}$ in the surface air and deposition of $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{241}Am at Tokai area have been measured since 1975. To calculate net fallout amounts of ^{241}Am , suspended from soil and ingrown amounts were taken into correction. Oxidation states of $^{239, 240}\text{Pu}$ in rain were also mentioned.

はじめに

大気中には核実験に起因する超ウラン元素 (TRU), 特に $^{239,240}\text{Pu}$ (Pu) および ^{241}Am (Am) が存在している。これらはエアロゾルまたは粒子状として大気中に浮遊し, 雨などに伴って降下 (wet fallout) および重力沈降による直接降下 (dry fallout) し着地する。さらにこれが再浮遊 (resuspension) し再び降下する現象も見られる。これらの状況を東海地区のデータを基に述べ, その化学形, 酸化状態についても言及する。

1. TRU の地表大気中濃度および降下量

地表大気を HE-40T ろ紙でろ過して四半年毎に集めた試料について Pu および比較のため ^{90}Sr を分析測定した¹⁾。その結果を年平均濃度として Table 1 に示した。Pu 濃度は1975年から

* 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所

Table 1 Annual mean concentration of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr in surface air and annual deposition of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am in Tokai.

	Annual deposition			Annual mean concentration		
	$^{239,240}\text{Pu}$ ($\mu\text{Ci}/\text{km}^2$)	^{241}Am	$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{239,240}\text{Pu}$ (aCi/m^3)	^{90}Sr (fCi/m^3)	$^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$
1975*	—	—	—	9.7	0.72	0.013
1976	—	—	—	5.0	0.45	0.011
1977	—	—	—	16	0.80	0.020
1978	—	—	—	20	1.1	0.018
1979	8.0	0.41	0.051	6.8	0.36	0.019
1980	3.8	0.26	0.068	3.0	0.13	0.023
1981	5.6	0.41	0.073	10	0.41	0.024
1982	1.3	0.15	0.115	1.8	0.085	0.021
1983	0.85	0.15	0.176	0.73	0.030	0.024

* April-December 1975

1983年の間、 $(0.73\sim 20)\times 10^{-18}\text{Ci}/\text{m}^3$ の範囲にあり、他方 ^{90}Sr は $(0.03\sim 1.1)\times 10^{-15}\text{Ci}/\text{m}^3$ であった。これらの範囲および変動傾向は文献²⁾と一致している。1981年に中国の大気圏内核実験が行なわれたため高い値を示したが³⁾、最近は減少の傾向にあることが判る。両核種の放射能比は、0.011~0.024の範囲で、平均0.019といわゆる fallout 起源であることを示している。

降下物については、dry および wet fallout を合わせて大型水盤で毎月採集し、蒸発濃縮後 Pu および Am の分析測定に供した^{4,5)}。また、これらの一部について resuspension の寄与を求めため、 SiO_2 および Al_2O_3 の定量分析も行った。Table 1 に示す観測結果は各種補正前の年間降下量であるが、Pu の降下量は $0.85\sim 8.0\mu\text{Ci}/\text{km}^2$ 、Am は $0.15\sim 0.41\mu\text{Ci}/\text{km}^2$ であった。ここでも年々降下量が減少する傾向にあって、1981年には Pu, Am とも増加が見られた。

2. 降下物の Am/Pu 放射能比

Pu に対する Am の放射能比は ^{241}Am が ^{241}Pu の β 壊変のみによって生成するので、環境中で徐々に増加することが知られており、最大約 40% に達するとされ⁶⁾、降下物が蓄積する表土では高い値が観測される⁷⁾。表に示した年間降下量の比はその最大値にくらべて小さく、0.051~0.176の範囲にあった。表中の放射能比が年々増加しているのは、resuspension および採集から測定までの間の Am の内部成長分を補正していないことによる。1978年から1980年までの月間降下量についてこれら補正を施した後の値をプロットして、Fig. 1 に示す。補正は、resuspension については周辺表土（畑土）中の Pu, Am および SiO_2 , Al_2O_3 の分析値から Pu/ SiO_2 , Am/ SiO_2 などの比を求め、これに採集降下物中の SiO_2 の値を掛けて算出した。また内部成長分は壊変-成長の式から算出した。その結果、resuspension の寄与は、観測降下量に対して、Pu で平均 5.1%、Am で平均 10.3% であった⁸⁾。この補正後の放射能比は0.005~0.21の広い範囲で変動し、平均 0.066の値が得られた。

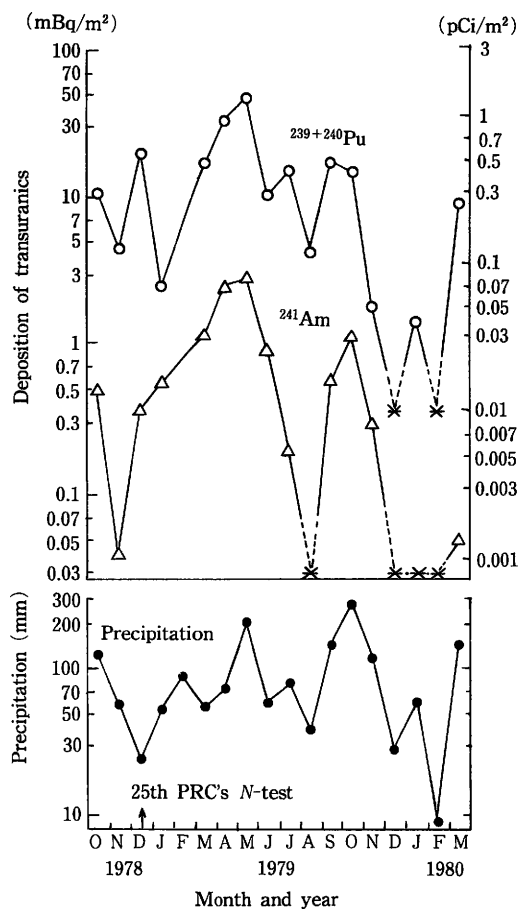


Fig. 1 Monthly deposition of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and precipitation in Tokai.

3. 大気中TRUの化学形、酸化状態の研究

大気中のTRUの化学形についての報告は少ない。Sill⁹⁾は Pu_2O_3 の形、即ちⅢ価のPuを推定した。Puの場合、全降下量の93%はwet falloutとして降下するとの報告¹⁰⁾がある。そこで、雨水中のPuの酸化状態をフッ化物沈澱法で分離測定したところ、V, VI価のPuが全体の38~89%を占めていることが判った¹¹⁾。水溶液中のPu(VI)の存在はMPCwの算定に考慮すべきとの見解¹²⁾もあり、酸化状態の決定は、その化学形の推定とともに、大気中試料のみならず重要である。また、粒径分布の測定も吸入被曝を詳細に算定する上で不可欠な因子であり、今後、これらの問題に関する研究を伸展する重要性が指摘される。

参考文献

- 1) Yamato, A: *Radioisotopes*, **30**, 104~108 1981.
- 2) Miyake, Y et al.: Proc. 6th Int. Congr. Rad. Res., ed. by S. Okada et al., pp. 940~948, Toppan

Print. Co. Tokyo, 1979.

- 3) Yamato, A: *Radioisotopes* **31**, 587~590, 1982.
- 4) Yamato, A: *J. Radioanal. Chem.* **75**, 265~273, 1982.
- 5) 大和愛司：第10回放医研環境セミナー報文集，NIRS—M—46，pp. 219~231，1982.
- 6) Krey P. W. et al. : *Transuranium Nuclides in the Environment*, pp. 671~678 IAEA, Vienna, 1976。
- 7) Yamato, A. et al.: "Migration in the Terrestrial Environment of Long-lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle" pp. 489~494 IAEA, Vienna, 1981.
- 8) Yamato, A.: *Radioisotopes*, **31**, 235~239, 1982.
- 9) Sill C. W. *Health Phys.*: **29**, 619~626, 1975.
- 10) Gavini, M. B., *Earth, Planet., Sci. Lett.*, **41**, 228~232, 1978.
- 11) 大和愛司：第8回放医研環境セミナー報文集，pp. 28~35，1980.
- 12) Larsen, R. P. et al.: *Science* **201**, 1008~1009, 1978.

2 土 壤

- | | |
|-----------------------------------|------|
| 2.1 総 論 | 茅野充男 |
| 2.2 土壤中における放射性核種の移動
に及ぼす化学形の影響 | 内田滋夫 |
| 2.3 土壤中のヨウ素の化学形態 | 結田康一 |

2.1 総論

茅野充男*

Chemical Status of Elements in Soils

Mitsuo Chino

Faculty of Agriculture The University of Tokyo

Abstract

The availability of soil elements to plants and mobility of them in soil are important when we discuss the fate of the soil elements in the Soil-Plant-Animal ecosystems. The availability and mobility of the soil elements changes according to the changes of chemical status of the elements in the soil.

In this paper, the author gave general explanation on soil structure, soil chemical composition and chemical fractionation of soil elements, and finally reviewed recent achievements obtained concerning the chemical status of soil elements and distribution of them in the soil with brief interpretation on the various methods for the determination of chemical status of soil elements.

The availability and mobility of soil elements can be estimated to some extent by the various methods introduced in this paper. As the difference in crops and environmental conditions such as precipitation, irradiation and temperature influence the availability and mobility of the elements, it is impossible to establish the generally applicable principle or method for the estimation of their availability and mobility. However, we have prepared methods, one of which can selectively be applied empir-

* 東京大学農学部

ically according to the given conditions.

はじめに

土壌圏は水圏、気圏とともに重要な環境圏である。土壌と人間の係わりの重要性は、そこが植物生育の場であることに由来する。土壌中の元素は植物に吸収され、その生育に影響するとともに、いわゆる、土壌-植物-動物（人間）という連鎖を通して人間にも影響を与える。また、土壌中を下層に移動して地下水に混入するという問題もある。このように土壌中の元素の挙動は人間の生存と重要な関係をもつ。

土壌中での元素の動き易さ（易動性）や植物への吸収され易さ（可給性）は土壌中での元素の存在形態と密接に関係する。即ち、土壌中に存在する元素には吸収され易い形態（可給態）あるいは移動し易い形態とそうでないものがある。

本章では可給態元素や元素の易動性と土壌中の元素の存在画分との関係について述べる。

1. 土壌の構成

土壌は水や大気と異なり、流動性に乏しく、殆んど攪拌、混合されることがないので、土壌中の元素は移動しにくく、滞留時間も長くなる（表1）¹⁾。移動する場合は主として水に溶解して、水を媒体として移動する。また、混合されないため、場所によって土壌の元素組成や性質は大きく異なり、元素の移動性や可給性に関しての一般的原則の確立を困難にしている。

表1 土壌中での元素の滞留時間*

元 素	滞留時間（年）
Ca, Cd, Mg, Na	75~380
Hg	500~1000
Au, Cu, Na, Pb, Se, Zn	1000~3000
化学的に安定な有機物	2800

*文献1（70~71頁）よりのまとめ

土壌を構成する物質をわけると固相、液相、気相になる。固相は土壌の主体をなすものであり、土壌全体の40~70%を占める。固相は粗粒無機質粒子（岩石の風化残滓等粒径0.002mm以上）、コロイド状無機質粒子（粘土鉱物等粒径0.002mm以下）、有機物（土壌腐植等）および生物に大別される。土壌はこれらのものがバラバラに混合されたものでなく、諸粒子が互いに結合し全体としてゆるやかな構造を形成し、機能している。液相（土壌溶液）や気相（土壌空気）は土壌粒子間の孔隙（土壌孔隙）に存在するが、孔隙中の液相と気相の割合は、乾湿によって変動する。また孔隙の径によって液相の移動性は異なるが通常の状態では液相の多くは毛管孔隙に存在するので重力による移動は少ない。しかし、水田状態では重力による下方への溶脱は多い。土壌を野外で採取すると元来の特性のいくつかは変化してしまうことも土壌中の元素研究を難しくしている。

2. 土壌中の元素の存在画分

土壌の元素組成の1例を表2にまた、土壌のRIの存在量を表3に示す。

表2 玄武岩が風化して土壌が生成する時の元素組成変化
(Navrot and Singer, 1976)
(文献1 58頁より)

元素	mg 示素/kg 玄武岩	mg 示素/kg 土壌
Al	60000	104000
Ca	61000	2600
Co	59	81
Cr	170	160
Cu	52	57
Fe	80000	103000
K	10000	4600
Mg	43000	4800
Mn	1200	1300
Na	25000	5600
Ni	200	300
P	5900	3000
Si	240000	250000
Sr	1200	36
Ti	19500	12000
Zn	95	150

表3 土壌中の放射性核種

核種	給源	土壌中の濃度 (Bq/kg)	単位面積分布 (Bq/m ²)
¹⁴ C	天然	4(1.5-6)	
¹³⁷ Cs	原子爆弾実験	63(18-90)	4500(2600-6800)
⁵⁵ Fe	〃		7100
⁴⁰ K	天然	440(0.2-1200)	
⁵⁴ Mn	原子爆弾実験	7.4	
²¹⁰ Pb	天然	75-6300*	
²¹⁰ Po	〃	8-220	
²³⁸ Pu	} 原子爆弾実験	0.007-0.07	
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu		0.05-1.4	76(44-145)
²⁴¹ Pu		16	
²²⁶ Ra	天然	30(7-180)	
⁸⁷ Rb	〃	140(20-560)	
⁹⁰ Sr	原子爆弾実験	35(20-55)	19-3000
²³⁰ Th	} 天然	100(3700-16000)*	
²³² Th		37(4-78)	
²³⁴ U		26(9-120)	
²³⁸ U		24(8-110)	

*一つの異常土壌は²³⁸Uを750-3000Bq/kg含んでいた。

土壌中の元素は固相の諸構成成分や液相、ときには気相にも含有されており、種々の存在形態が考えられる。金属イオンを例にとると図1のような存在画分が考えられる。土壌中を移動したり、植物に吸収される元素画分は土壌溶液に溶解している元素である。土壌溶液中のイオン種は単一でなく、遊離イオンや錯イオン等が存在し、各イオン間に平衡関係がある。どのようなイオン種が植物によく吸収されるかには定説はないが遊離の水溶性イオンがよく吸収されることは経験的に知られている。液中のイオンは根の表面に拡散によって到達し、また植物の吸収する水とともにマスフローによって到達する。

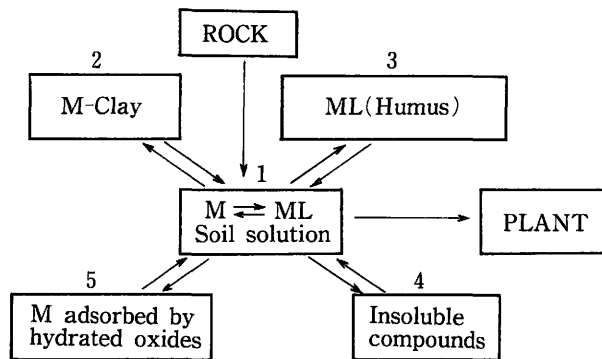


図1 土壌中における元素の存在画分 (文献2, 27頁より)

土壌溶液中のイオンが植物に吸収されたり、他へ移動したりして、濃度が減少すると、固相から、平衡関係にもとづいて補給される。従って、植物が吸収できる可給態元素としては土壌溶液中のイオンのほかに、土壌溶液にイオンを供給できる固相中の元素画分も考慮せねばならない。量的には土壌溶液中のイオンより、固相中において液中に平衡関係に従って移動する元素量の方が多い。前者の濃度の対数を可給態元素の強度因子、後者を容量因子と呼び、両者の平衡を支配する力を緩衝能といい、元素の可給性はこれらによって決定される。

固相中の元素画分としては、①粘土鉱物の陰荷電に吸着されている元素、②土壌腐植に吸着されている元素、③鉄やアルミニウムの加水酸化物に吸着されている元素、④粘土鉱物の結晶内へ強固にとりこまれて固定されている元素、⑤不溶性の塩として沈澱している元素（リン酸鉄、硫化銅、水酸化亜鉛など）その他がある。これらのうち、電気的交換平衡によって粘土や腐植に吸着されている画分が最も土壌溶液に速やかにイオンを供給しうる。表4は土壌の粘土コロイドの種類とそれらに吸着・固定されるイオンを示す。

土壌溶液中のイオンと固相の諸画分との平衡関係は種々の条件によって変る。特に、土壌のpHとEhは吸着イオンの溶出および不溶性塩の生成・溶解に大きな影響を示す。土壌溶液中に、NO₃⁻のような陰イオンの濃度が増大すると電気的中性を保つため陽イオンを粘土等から溶出することとなる。また、交換性陽イオンの添加は吸着イオンをイオン交換によって溶出する。例えば土壌への¹³⁷Csの吸着はアンモニア肥料の施与によって共存するアンモニアイオンが多くなる

と減少する。

表4 土壌コロイドの二、三の性質（ケニアの土壌の交換容量, Sanchez, 1976）

名 称	理 想 式	固 定 イ オ ン	CEC (eq. kg ⁻¹)	AEC (eq. kg ⁻¹)
モンモリロナイト	$K_2Al_10Mg_2(Si_8O_{10}(OH)_4)_3$	Ba, Cs, F, K, Rb	1.18	0.01
パーミキュライト	$K_2(Al, Fe, Mg)_6Si_8O_{20}(OH)_4$	Ba, Cs, F, K, Rb	0.85	<0.01
イライト	$K_2(Al, Fe, Mg)_4Si_8O_{20}(OH)_4$	Ba, Cs, F, K, Rb	0.19	0.03
ハロイサイト	$Al_4Si_4O_{10}(OH)_8 \cdot 4H_2O$	F	0.18	0.15
カオリナイト	$Al_4Si_4O_{10}(OH)_8$	F	0.04	0.02
アロフェン	$(Al_2O_3)_p(SiO_2)_q \cdot nH_2O$		0.51	0.17
ギプサイト	$Al(OH)_3$	P	0.05	0.05
針鉄鉱	FeO_2H	As, Cr, Mo, P, Se, V	0.04	0.04
リシオフォライト	$Mn_3O_4 \cdot nH_2O$	Ba, Co, Ni, V		
アバタイト	$Ca_5(PO_4)_3OH \cdot H_2O$	As, Ba, F, Pb		
腐 植	$C_{27-100}H_{20-80}O_{10-12}N$	Br, Cu, Hg, I, Pb, Sn, U	1.36	0.06

CEC, 陽イオン交換容量 ; AEC, 陰イオン交換容量

(文献1, 61頁より)

3. 土壌中元素の諸画分の測定法

可給態画分の測定には、土壌を何らかの方法で分画するか、土壌から元素を適当な抽出剤で抽出分離する手法が採用される。既述のように土壌は野外で採取し、実験室で処理している過程で特性の一部が変化してしまうので、このような分画・抽出に際しては出来る限り、自然状態を保つ採取法や試料前処理法を採用せねばならない。

土壌溶液の採取法は種々考案されているが、最も信頼のおける方法は土壌試料を適当な遠心管に充填し、遠心分離法によって土壌から分離されてくる液を遠心管の底部に回収する方法である。pF2.7程度の力がかかるような回転数で、一昼夜、遠心分離し、液を回収する方法を著者は用いている。回転数が変わると回収液中のイオン濃度は多少変化し、回転数が大きい程、濃度は上昇する。次節でふれるように、土壌を有機物画分、粘土画分等に物理的に分画する方法もある。また、粘土鉱物や腐植等に電氣的に吸着されている画分（これが容量因子の主要なものである）は一般に化学的な抽出剤を用いて抽出される。抽出剤としては1N酢酸アンモン液（pH4~7の一定値）、希酸（0.1N HCl等）、中性塩類液（1N CaCl₂）、キレート試薬液（EDTA液、DTPA液）等がある。キレート試薬液は重金属イオンの抽出によく利用される。抽出剤として何がよいかは実験目的によっても変る。

土壌の特性を変化させないことも必要だが、元素の測定に支障の少ない抽出液であることや抽出される元素の量の多いことも抽出剤の選択条件となる。その意味では希酸抽出法が原子吸光法での重金属の測定にはよい。とくに、希酸は多種類の元素の抽出にも利用されうという長所をもつ。しかし、石灰等、アルカリ分のあまりに多い土壌では希酸では抽出割合は低下してしまう。

そのような土壌では pH が一定で変化しにくい緩衝液（酢酸アンモン液等）がよい。土壌中に多量に元素の存在するときはいずれの抽出法でも類似の傾向を示す。

土壌の交換態画分の定量に放射性同位元素（RI）を用いる方法がある。これは一種の同位体希釈法で、目的元素の RI を土壌に添加し、均一に攪拌後、土壌の交換画分の目的元素と添加 RI との間に一定の平衡関係が達成されたと思われる時まで振盪（一般には24時間）し、土壌から何らかの方法で目的元素の一部を抽出する。抽出された液中の目的元素（S(抽出液)）と RI 量および固相に残る RI 量を求め

$$S(\text{固相}) = \frac{RI(\text{固相})}{RI(\text{抽出液})} \times S(\text{抽出液})$$

によって固相中の交換態元素量即ち S（固相）を推定するものである（E 値法）。また、A 値法、L 値法といい一定の比放射能の RI を添加し、混合後、土壌中の各種画分との間に平衡関係を成立させてから、この土壌で植物を長期間栽培し、植物中に吸収される目的元素量とその RI 量を求め、得られる比放射能から、植物が吸収しうる画分（可給態画分）の量 A 値や L 値を求めるという方法もある。即ち

$$A \text{ 値} = \frac{F(1-K)}{K} \left(\text{ここで } K = \frac{\text{植物中 RI の比放射能}}{\text{添加 RI の比放射能}}, F = \text{添加元素量} \right)$$

$$L \text{ 値} = (a_o/a_p - 1) \times \text{添加元素量} \left(\text{ここで } a_o = \text{添加 RI の比放射能}, a_p = \text{植物中 RI の比放射能} \right)$$

表 5 土壌溶液，有機物，粗粒子，微粒子中の金属の濃度*

(T. Hinkley, 1978)

金属元素	土壌溶液 ppm	有機物 ppm	粗粒子 ppm	微粒子 ppm
K	7.00	700	18,900	21,000
Rb	—	8.2	54	126
Cs	0.011	0.63	4.2	17
Ca	1.74	1130	15,000	13,800
Sr	—	15	500	410
Ba	—	39	260	930
K/Cs	630	1190	4500	1280

☆有機物は燃焼（可溶化したイオン量。有機物は全土壌の19%

粗粒子画分は懸注してデカンテーションによる残留画分（全土壌の50%）

微粒子画分は50mの篩によって篩別した篩丁画分（全土壌の29%）

（文献 3，347頁より）

で求められる。

土壌中での元素の移動性に関しては土壌固相と液相との分配係数や土壌中での元素の拡散係数から推定する方法がある。実験室内で土壌を円筒に充填して土壌カラムを作製し、その表面にイオンを置いてクロマトグラフィーのように水を展開剤として下層への移動度を調べる方法や野外実験圃場で深さ別に土壌を採取し元素の分布状態を調べたり、圃場内に土壌溶液採取用の素焼きの小型円筒を種々の深さに埋設して、深さ別に土壌液を採取して移動性を調べたり、ライシメー

ターを用いて土壌を浸透落下する液を採取し元素組成を調べることもよい。

土壌カラムをイオンが移動する状態を土層を何層かにわけ、各層をコンパートメントとして考えた、いわゆるコンパートメントモデルとしてのダイナミックシュミレーションによるイオンの移動を推定する手法も開発されている。Frissel & Reiniger は CSMP-III という言語で、土壌カラムもしくは野外圃場での ^{90}Sr および ^{137}Cs の移動状況のシュミレーションを行なっている (文献 6)。

以上に述べた種々の手法で得られている知見を以後に記す。

4. 土壌中金属元素の存在形態と分布

(a) 物理的分画による土壌諸画分中の元素——有機物画分の重要性——

土壌を水に懸濁し、適当な分散剤 (ポリリン酸等) を加えて土壌粒子を分散させ、水中での沈降速度別にもしくは篩別により粒子を粒径別に分画する方法がある。また、有機物画分は土壌を過酸化水素処理したり、燃焼して有機物を分解し、そのとき放出される元素量を求めることによって得られる。この方法で Cs, K, Ca などの諸画分 (土壌溶液, 有機物, 微粒子, 粗粒子 (50 μm 以上)) での存在量を求めた例が表 5 にある。いずれの金属元素も粗粒子と微粒子に多く、有機物は少ないが、K/Cs の比をみると有機物画分に Cs が K より富化されている。そして、土壌溶液の K/Cs 比は有機物画分に近いので、有機物画分の Cs が土壌溶液への Cs の主給源であると推測されている。Cs は土壌腐植のカルボキシル基に吸着される。Nishita は ^{238}Pu や ^{242}Cm の溶解性が土壌有機物を過酸化水素で処理すると増大することと土壌の pH をアルカリにして有機物の可溶性が増加するとやはり ^{238}Pu , ^{242}Cm の可溶性も増大することから、土壌有機物画分が溶解性を支配していると述べている。

(b) 抽出性金属元素

表 6 河川底質土壌中の Cd の化学形態と分布に及ぼす土壌 pH と Eh の影響

(Khalid, Gambrell d Patrick, 1978)

画 分	pH5.0 Eh50	pH6.5				pH8.0 Eh50
		Eh (mV)				
		-150	50	250	500	
水溶性イオン(W)	53.8	6.6	4.4	4.3	6.2	0.5
可溶性錯イオン(WC)	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	ND
交換性イオン(E)	38.9	46.9	43.0	45.4	41.1	31.1
還之性イオン(R)	1.6	3.6	3.8	3.7	8.6	5.5
DTPA 抽出性イオン(D)	3.1	11.7	10.9	11.8	18.1	16.3
残渣有機物給合画分(O)	1.0	7.4	6.6	4.6	3.5	11.0

(文献 3, 417頁より)

抽出剤を変えることにより土壤中の水溶性イオン、交換イオン、錯結合性イオンを区別して抽出するイオン形態別抽出の試みがなされている。表6は底質土壤中のCaの形態別抽出の例で、水溶性イオン(W)は水に懸濁後、0.45 μ mのフィルターで濾過した濾液中のイオン、可溶性錯イオン(WC)は水溶性イオン中Na型イオン交換樹脂を通過したもの、交換性イオン(E)は1N酢酸ソーダ抽出後抽出液を0.45 μ mのフィルターで濾過した濾液中のイオン、還元性イオン(R)というのは亜酸-亜酸アンモン液で処理して可溶化するもので、鉄やマンガン酸化物に吸着されているイオン、DTPA抽出性イオン(D)はキレート剤DTPA(pH7)で抽出されるイオンでキレート結合によって有機物に吸着されているもの、有機物結合態残部(O)はDTPAでは抽出されず、過酸化水素で有機物分解後、酢酸ソーダで抽出されるようになるイオンで強固に有機物内に含まれているものを意味する。WCはほとんどなく、EはpHに関係なく多く存在し、Wは低pHで多く、逆にDやQは高pHで多くなり、Rは小さい値で変化ない。有機物(土壤腐植)との結合態の推定にはピロリン酸ナトリウムを用いて土壤腐植を溶解する手法も用いられている。土壤中のCuとZnをH₂O, KNO₃, DTPA, HNO₃で連続的に抽出し、順に水溶態、交換態、キレート結合態、固定態にわたる試みがSilviera & Sommersによってなされ、キレート結合態と固定態が大部分であることが示されている。表7は土壤中の種々の放射性核種を水抽出性、酢酸アンモン抽出性(交換性)、不溶性にわけて測定したものである。水溶性画分は¹⁰⁶Ruと⁹⁰Srが比較的大きく、他は小さい。交換性画分は⁹⁰Srが大きく、ついで¹³⁷Csであり、他は小さい。不溶性固定画分は⁹⁰Sr以外は皆大きい。表の数値に巾があるのは土壤の種類、施肥条件、土壤pH等によって、各々の数値が変わるからである。例えば⁹⁰Srは堆肥、炭カル、石炭窒素の施与によって交換性のものは48%から80%にも増大し水溶性が減少する。逆に過リン酸石灰の施与は交換性を減少し、水溶性を増加する。

表7 各種核種の土壌中における存在状況(比率%)

	水 溶	置 換	固 定
⁹⁰ Sr	5 ~ 10	80 ~ 90	2 ~ 15
¹³⁷ Cs	0.2	30 ~ 40	50 ~ 70
¹⁰⁴ Ru	5 ~ 15	3 ~ 5	80 ~ 90
⁹¹ Y	0.5 ~ 1.5	2 ~ 5	95
¹⁴⁴ Ce	0.1 ~ 0.5	1 ~ 5	95

(文献4, 272頁)

(c) 土壌溶液中のイオンの形態

手法の発達に伴ない土壌溶液中のイオンとくに金属イオンを遊離のものと、錯イオンとにわけて測定出来るようになった。表8はその1例であるがCo, Zn, Mn, Cuのいずれも錯イオンの割合が高く、時には99%が錯イオンである。土壌溶液中の銅コンプレックスの分子量がどの程度であるかを推定する試みが限外濾過、ゲルクロマト、電気泳動法を用いてなされている。表9は底質土壌液中の銅コンプレックスを限外濾過で分子量別に分画した結果である。土壌溶液の採取法

でいくらか異なった結果が得られている。即ち、遠心法で得ると液中の銅コンプレックスは分子量500以下が47%、500~10,000が53%であり、1万以上のものは検出されなかった。熱水で抽出すると分子量1万以上が26%にもなり、500~1万の画分が減少し、1N酢酸アンモンで抽出したものでは分子量500以下が圧倒的に多い。熱水抽出液中の分子量500以下の画分と500~1万の画分を更にゲルクロマト（セファデックス G-25 と G-100）によって分画すると銅を含むいくつかのピークが各画分から得られるが、分子量500以下の画分から500以上のもののピークが認められるなど、まだ銅コンプレックスの分画はコンプレックスの安定性など手法上の問題がある。

表8 土壤溶液中イオンの
錯イオン割合（各種土壤での変動巾）

元素	土壤溶液中濃度(M)	錯イオン割合(%)
Co	<0.007~0.2	8~50
Zn	<0.03~3	28~99
Mn	<0.02~68	84~99
Cu	<0.01~0.6	89~99.8

表9 底質土壤の銅複合物の分子量別分画

(Schmiat, Wildung d Garland, 1978)

土壤液種類	分子量別分布 (%)		
	500以下	500~10,000	10,000以上
土壤間隙水	47	53	0
熱水抽出液	58	16	26
酢酸アンモン抽出液	92	8	0

(文献3, 434頁より)

(d) 同位体希釈法

A 値法やL 値法（前節）による可給態元素の測定例はいくつかある。試験に用いる植物の種類や添加元素量あるいは添加元素の化学的形態によって異なるかどうかを検討されている。土壤中のZnの可給態量をL 値法で求めたTiller と Wassermann の結果ではコムギ、ソバ、クローバー、アワ、rape、イネでの比較では多くの土壤で植物の種類、栽培期間、添加亜鉛の形態では差がないことが示された。しかし、亜鉛の添加量では違いがあることが示唆されている。一方、Wallce は ^{65}Zn あるいは ^{59}Fe を土壤に添加して、レモンとオレンジを栽培したとき体内の各RIの比放射能は常にレモンの方がオレンジより高く、植物による差のあること、DTPA などのキレート剤の添加が植物体内の比放射能を高めることなどを示し、土壤の可給態元素量が植物種や添加元素の形で変ることを示した。著者は土壤に ^{65}Zn を添加し、植物（オオムギとアブラナ）を栽培し、植物中の ^{65}Zn の比放射能と土壤の希塩酸あるいは酢酸アンモン抽出液中の比放射能を比較した。結果は表10のようになった。表からわかるようにZnの添加濃度が大きいと植物の吸収

する Zn の比放射能は酸で抽出されるものと同じで、両者が同じ画分であることを示すが、Zn の添加濃度が低いと両比放射能に大きい差があり、植物の吸収する Zn 画分と酸などで抽出される画分が異なることを示している。また、植物種によって比放射能が異なり、可給態画分は諸条件で変動することが伺われる。

表10 土壤に添加した ^{65}Zn の酢安抽出液、塩酸抽出液中の ^{65}Zn の比放射能とコムギおよびコマツナに吸収された ^{65}Zn の比放射能*の比較^(注)

(茅野, 土肥)

土壤への Zn 添加濃度 (ppm)	^{65}Zn 添加量 (nci/g 土壤)	酢安抽出液	塩酸抽出液	コムギ	コマツナ
0	60nc/g 土壤	2960	2393	1548	865
90.9	〃	535	509	—	392
272.7	〃	206	187	155	131
545.4	〃	61.1	61.8	58	66.5
1090.8	〃	55.5	65.0	45	48.5

*比放射能の単位 mci/gZn

注) 田無土壤に Zn を 0, 90.9, 272.7, 545.4, 1090.8ppm 添加し, ^{65}Zn を 60nci/g 土壤添加し, コムギまたはコマツナを栽培し, 栽培植物および酢安や塩酸抽出液中の全 Zn と ^{65}Zn を測定し比放射能を求めた。

(e) イオンの土壤下層への移動性

イオンの土壤中での移動性はイオンの土壤中での拡散係数を測定することによって推定される。平均移動距離は $\sqrt{2Dt}$ (拡散係数) となる。Zn の拡散係数は $10^{-8}\text{cm}^2/\text{s}$ 程度なので, 100日間 ($t=100$ 日) に約 5mm 程度の移動となる。

土壤カラムの表層に重金属イオンを添加し, 水などで溶出するクロマトグラフィーの結果を図 2 に示す。図 2 は Cu についてのものであるが, 移動性は溶出液によって異なる。移動性は水溶

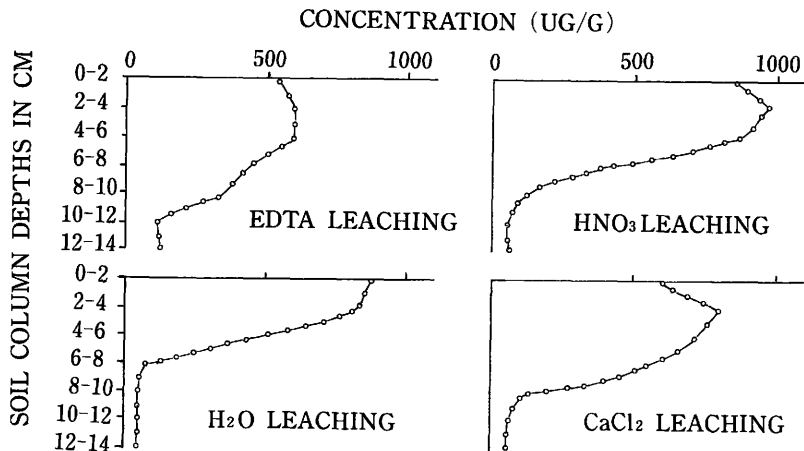


図 2 沖積土壤のカラムに添加された銅イオンの水 (H_2O), 塩溶液 (CaCl_2), キレート液 (EDTA) および酸 (HNO_3) による下層への溶脱 (Biddappa, Chino & Kumazawa, 文献 5)

出で小さく、塩溶液の溶出やキレート液の溶出でやや大きく、酸溶出で最大である。このことは、肥料が共存したり、有機物を加えると移動性が大きくなること、更に酸性雨でも移動しやすくなることを示唆する。

土壌カラム中での ^3H ^{137}Cs , ^{90}Sr ^{85}Sr , ^{45}Ca の移動性をマルチコンパートメントモデルでのシミュレーションによって推測する試みは De Witt (オランダ, ワーゲニンゲン大学) のグループによって多く行なわれている (文献 6)。

このように土壌中の元素可給態画分や移動性に関しては種々の方法により、ある程度の推測が可能となった。既述のように土壌は場所による違いが大きく、栽培される植物や降雨、日照、温度の違いも影響して、可給性や移動性に関して一般的原則や方法論は確立しえない。しかし、土壌肥科学分野の多くの研究者の努力により、土壌種別、植物種別、地域別に多数の経験が積み重ねられ、ある程度の経験や知識が Case-by-Case に提唱され、実用的なものとなりつつある。

参考文献

- 1) Bowen, H. J. M. 著, 浅見, 茅野訳: 環境無機化学, 博友社 1983
- 2) Heavy Metal Pollution in Soils, of Japan eds. Kitagishi & Yamane Japan Scientific Societies Press (学会出版センター), 1979.
- 3) Environmental Chemistry and Cycling Processes (edt. Adriano & Brisbin) Technical Information Center, U. S. Department of Energy, 1978.
- 4) 川瀬, 小林, 小山, 滝沢著: 環境と放射能, 東海大学出版会, 1971.
- 5) Biddappa, C. C. Chino., M. & Kumazawa K. : Migration of heavy metals in two Japanese soil, *Plant & Soil*, **66**, 299-316, 1982.
- 6) Frissel, M. J. & Reiniger, P. : Simulation of accumulation and leaching in soils (Simulation monograph), Wageningen Centre for Agricultural Publishing and Documentation, 1974.

2.2 土壤中における放射性核種の 移動におよぼす化学形の影響

内 田 滋 夫*

Influence of Chemical Forms on the Movement of Radionuclides in Soils

Shigeo Uchida

Laboratory for Radioecology, Nakaminato
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

In order to investigate the influence of chemical forms on the movement of radioiodine in soils, column experiments were conducted.

Each 10^{-5} meq/l of NaI and NaIO_3 solutions labeled with I-125 was introduced to the columns packed with sandy soils. Leaching patterns of I^- and IO_3^- were obtained by the measurement of the radioactivity of the effluent solutions.

The results obtained are summarized as follows: 1) About 70 to 90% of I^- in inflow solution moves as similarly as soil water through the columns. 2) The velocity of IO_3^- migration in the columns is about 2 to 10 times slower than that of I^- . 3) Chemical forms of iodine scarcely change during passing through the columns.

These observations, specifically the different residence times in root zone recognized between I^- and IO_3^- , suggest that the transfer of the element from soil to crops should be dependent upon the chemical forms. So, it is requested to know the chemical forms and the behaviors of the radionuclides in the environment in order to estimate the amounts of the nuclides ingested through crops as practically as possible.

* 放射線医学総合研究所・環境放射生態学研究部

はじめに

環境中に放出された放射性核種（以下、RIと記す。）による被曝線量評価を行う場合、種々の被曝経路が考えられる。農作物摂取による内部被曝は、重要な被曝経路の1つであり、農作物へのRIの移行経路は、大気-農作物及び土壌-農作物の2つがあるが、I-129などの長半減期核種を対象核種とした場合は、後者の移行経路が無視できなくなる¹⁾。本稿では、土壌-農作物-人体経路による被曝を想定し、土壌サイドからこの被曝経路の問題点について述べる。

1. 土壌表層での放射性核種の蓄積及び移行について

RIで農地が汚染されるケースとしては、RIが大気から水田又は畑地土壌に沈着した場合やRIが地下水や河川水等に混入し、それをかんがい水として使用する場合などが考えられる。いずれの場合でも、農地表層に添加されたRIは、降水又はかんがい水とともに土壌隙間を鉛直方向に降下してゆく。しかし、ほとんどのRIは土壌と収着・脱離反応をくり返しながらか移動する。この収着・脱離反応はRIの種類により異なるため、土壌中におけるRIの移動速度はRIの種類に

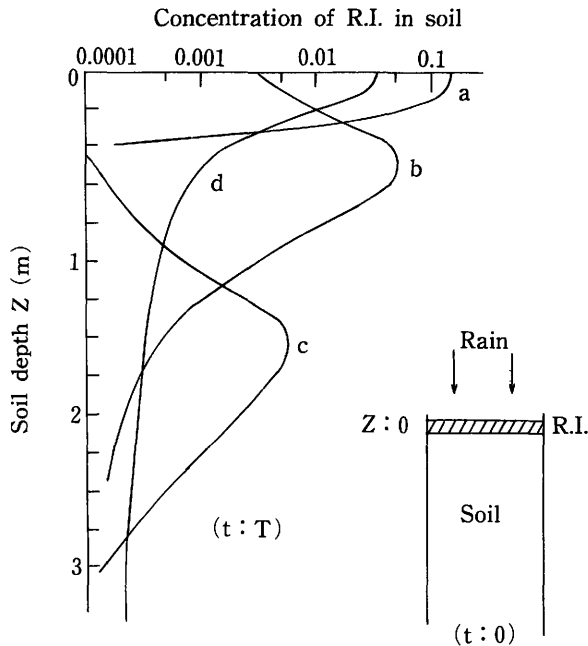


Fig. 1 Profiles of vertical distribution of radionuclides in the soil at time 'T' after radioactive contamination of the soil surface.

より異なる。Fig. 1は、土壌表層におけるRIの移動を模式的に示したものである。t=0のとき、土壌表層(z=0)に添加されたRIがT時間後に、どのような分布を示すかを表わしたものである。グラフの横軸は土壌単位体積当りに存在する相対的なRI量(t=0のときに、z=0に存在す

る RI 量を1.0とする。), 縦軸は土壤表層からの深さである。RI の種類により, その土壤中での分布は異なる。例えば, a のように土壤との取着力が強く, 土壤表層で捕捉され, 鉛直方向へあまり移動しない RI や, b や c のように, 土壤と取着・脱離反応をくり返しながら移動してゆく RI 等がある。d の場合は, 一部は土壤表層に捕捉されるが, 残りは土壤にあまり取着されずに移動してゆく RI である。

RI の土壤から農作物への移行という観点から土壤汚染を考える際, 重要なパラメータとしては, 農作物の根が分布している深さ, いわゆる根圏域内での RI 分布, 根圏域外への流出率, さらに土壤中の RI の可給総量 (植物にとって吸収可能な RI 量) 等が考えられる²⁾。これらのパラメータの値は, 土壤や RI の種類, 降水量や気温等の気象条件等により異なる。また, 同じ RI であっても, その化学形により異なる³⁾。

本稿では次節において, 放射性ヨウ素の化学形の違いによる土壤中での移動の違い⁴⁾について述べる。

2. 放射性ヨウ素の化学形の違いによる土壤中での移動の違いについて

土壤中における I^- と IO_3^- の移動パターンを Fig. 2 に示す。これは, 3 種類の砂質土壤を充填したカラムに, 化学形を I^- 又は IO_3^- に調整した水溶液を流入し, 流出パターンを求めたものである。土壤カラムの長さは 20cm, 流入液中のヨウ素濃度は 1ppb である。縦軸は流入液中のヨウ素濃度 (C_0) に対する流出液中のヨウ素濃度 (C) の比であり, 相対濃度を表わす。横軸は, 流出量 (V) をカラム内の全間隙水量 (V_0) で除した値である。Fig. 2-a は I^- の, Fig. 2-b は IO_3^- の流出パターンを示す。 I^- 及び IO_3^- の実験とも, 前記の I^- 又は IO_3^- の水溶液を一定量 ($I^- : 5V_0, IO_3^- : 10V_0$) 流入後, ヨウ素を含まない水溶液を通水し, 脱離の様相をも観察した。また, 図には示していないが, 土壤水のトレーサーとしてトリチウム水 (HTO) を用いて, 同様の実験を行った。

HTO の場合, 約 0.7~0.8 (V/V_0) で流出中に検出され始め, その後, 急激に流出液中の濃度が高くなり, $C/C_0=1.0$ に達する。しかし, I^- の場合は, 立ち上がり点や立ち上がり勾配は HTO とほぼ同じであるが, C/C_0 が 0.7~0.9 でプラトーとなり, C/C_0 が 1.0 にならない。すなわち, I^- の大部分は土壤水と同じような速度で移動するが, 一部 (総流入量の 10~30%) は土壤に強く取着して, 容易に移動しないことがわかる。一方, IO_3^- の場合は, I^- に比べると立ち上がりが遅く, その勾配もゆるやかである。これは, 土壤カラム内を IO_3^- が土壤と取着・脱離反応をくり返しながら移動するためと考えられる。このように放射性ヨウ素の土壤中での移動性は, その化学形により異なる。移動性が異なれば, 農作物の根圏域内での分布や根圏域外への流出率も異なると予想される。一方, 植物サイドから見た場合, 化学形の違いにより農作物への吸収量が異なるとの報告⁵⁾もある。このように, RI の化学形は, 土壤から農作物への RI の移行量を算定するための重要なパラメータの 1 つである。

今後, 水田及び畑地土壤中における RI, 特にヨウ素の化学形を明らかにするとともに, 化学

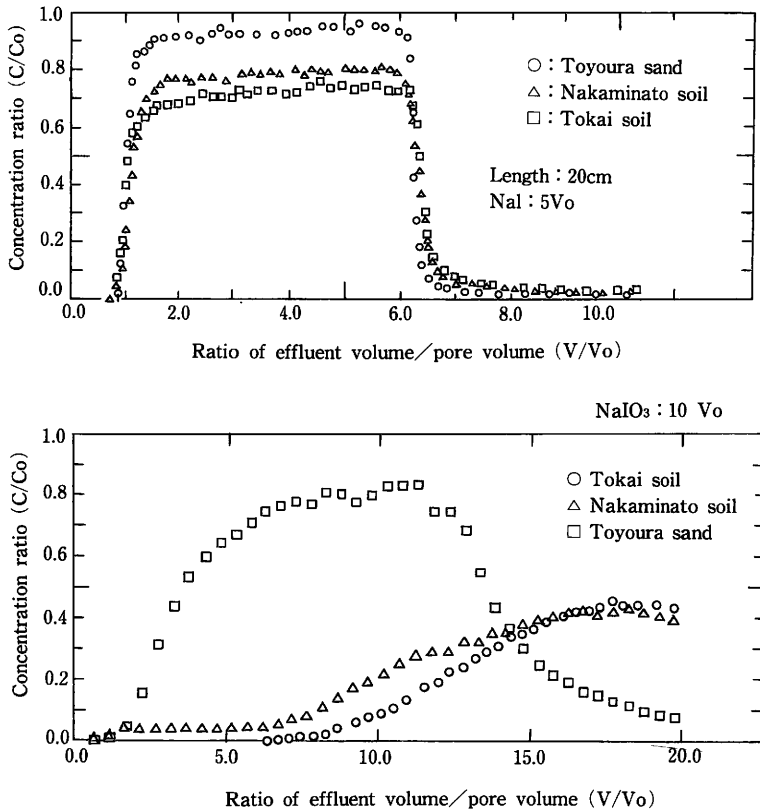


Fig. 2 Breakthrough curves of I^- and IO_3^- for 20 cm column packed with three kinds of sandy soils. Iodide solution of five times pore volume of the soil column was introduced to the column (2-a), while in case of IO_3^- (2-b), ten times pore volume was introduced.

形の違いによる土壤中での移動の違いや移行係数の違い等を究明してゆく必要がある。

参考文献

- 1) 大桃洋一郎, 内田滋夫, 住谷みさ子: I-129 の環境中における挙動と被曝評価上の問題点, 日本原子力学会誌 (投稿中).
- 2) 内田滋夫, 大桃洋一郎, 鎌田 博, 佐伯誠道: 土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル, 日本原子力学会誌, **26**, 935-941, 1984.
- 3) 関 李紀, 高橋俊之, 池田長生: 土壌中の放射性ヨウ素の形態別吸着挙動, *Radioisotopes*, **33**, 51-54, 1984.
- 4) 内田滋夫, 鎌田 博: 土壌中における放射性ヨウ素の移動 (I), 保健物理, **18**, 337-343, 1983.
- 5) Muramatsu, Y., Christoffers, D. and Ohmomo, Y. : Influence of Chemical Forms on Iodine Uptake by Plant. *J. Radiat. Res.*, **24**, 326-338, 1983.

2.3 土壌中のヨウ素の化学形態

結 田 康 一*

Chemical Forms of Iodine in Soil

Kouichi Yuita

National Institute of Agro. Environmental Sciences

Abstract

The author constructed an analytical method of iodine classified by chemical forms in the soil solution in close relation with the crop absorption or migration of iodine in soil. That is, I^- , I_2 , IO_3^- and organic iodine such as CH_3I or the like are fractionated into four fractions according to a solvent extraction method by utilizing the difference in the solubility in water and toluene or the difference in redox potential and iodines are subjected to quantitative analysis at each chemical form.

In the chemical form of iodine in the soil solution according to this method, IO_3^- was mainly present in an oxidative condition under upland field moisture, while I^- was mainly present in a reductive condition under submerging and an iodine concentration level was one ~ two points higher under submerging.

From the forgoing, the greater part of iodine is physically adsorbed with a soil solid phase in the form of I_2 and a negligible amount of iodine is present in the form of IO_3^- in the soil solution.

Under the submerging, it is estimated that the greater part of the iodine is reduced to the form of I^- and dissolved in the soil solution.

* 農林水産省農業環境技術研究所

はじめに

雨水等に伴われて土壌表層に降下した ppb レベルの低濃度ヨウ素は、湛水下の土壌を除くとそのほとんどが土壌に吸着される¹⁾。そのため、我国の土壌（水田を除く）は、大気経由で土壌に負荷された海水起源のヨウ素を長年月にわたって吸着・集積し続け、その結果として 40ppm 前後の高濃度のヨウ素を含有している¹⁾。これらの土壌ヨウ素は、通常の畑水分条件下では植物に吸収されがたいし、地下に滲透するものもわずかと考えられる¹⁾。しかし、水分や pH などの環境条件の変化によっては、土壌溶液中に著しく溶出し、可給性・移動性のヨウ素に変身する¹⁾。特に、土壌を湛水化すると 2～3 桁も溶出率が增大する¹⁾。そのため、開田や水田の基盤整備などによってこれまで畑水分状態（非湛水状態）にあった土壌が湛水化されると、土壌ヨウ素は著しく溶出率を増し、水稲はヨウ素の過剰吸収によって赤枯れ症状を呈し収量も低下する^{2),3)}。一方、土壌溶液中へ大量に溶出してきたヨウ素は、地下滲透や表面流去などによって流亡し、3～5 年もすると土壌ヨウ素含量は数 ppm 以下まで低下すると考えられる。

以上述べたごとく、土壌ヨウ素の溶出率が大きく変化する場合、当然ヨウ素の化学形態も変化すると考えられる。

本報では、著者らが試みた 1. 土壌溶液中ヨウ素の化学形態別分析法、2. 湛水および畑水分下の土壌溶液中ヨウ素の化学形態別濃度、さらに 3. 土壌・土壌溶液系でのヨウ素の化学形態と存在様式について述べたい。

1. 土壌溶液中ヨウ素の化学形態別分析法

土壌溶液中ヨウ素の化学形態として I^- , I_2 , IO_3^- のほか、 CH_3I などの有機態を想定し、これら 4 種の分画・定量法を組み立てた。この方法は、著者らの土壌溶液中ヨウ素の放射化分析法の中で用いた溶媒抽出法¹⁾をもとに、池田らの海水中放射性ヨウ素の形態別分析法⁵⁾をとり入れたもので、その概略を Fig. 1 に示す。

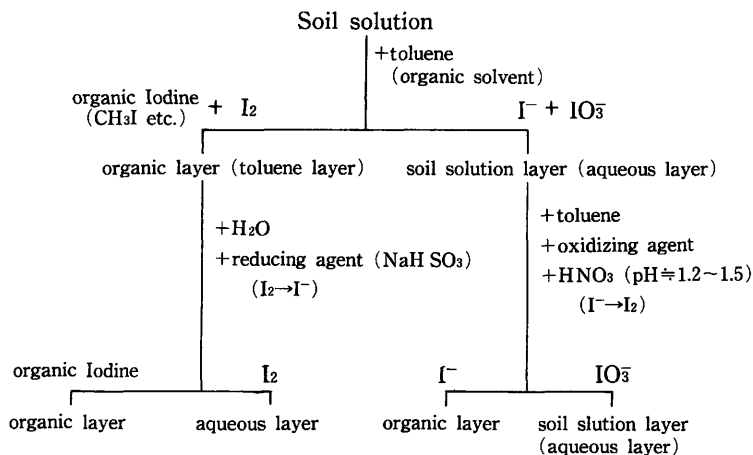


Fig. 1 Chemical Method of Analysis for the Individual Forms of Iodine in Soil Solution (Solvent Extraction Method)

具体的には、採取した土壤溶液 (30~80ml) はただちに分液漏斗 (250ml容) に入れ、これとほぼ等量のトルエンを加えて1分間振とうした。水相 (土壤溶液) に I^- と IO_3^- 、有機相 (トルエン相) に I_2 と CH_3I などの有機態ヨウ素が抽出されるので、それぞれ別の分液漏斗に移し、水相はトルエン、有機相は再留水で1回洗滌した。さらに有機相の残っている分液漏斗には有機相とほぼ等量の再留水を入れ還元剤として1M 亜硫酸水素ナトリウム溶液 1ml を加えて1分間振とう、 I_2 を I^- に還元して水相に抽出、トルエン相に残留している有機態ヨウ素と分画した。一方、 I^- と IO_3^- が存在する土壤溶液相に硝酸 (1+1) を滴下して pH を 1.2~1.5 とした。これとほぼ等量のトルエンを加えて、酸化剤として2.5% 亜硝酸ナトリウム液 1ml を加えた後1分間振とうし、 I^- を I_2 に酸化してトルエン相に抽出し、土壤溶液相に残留している IO_3^- と分画した。各画分より 0.5ml ずつ石英アンプルにとり (トルエン相も同様)、封入した。その後は、土壤溶液中ヨウ素の放射化分析法⁴⁾ に準じて、各画分中ヨウ素を定量した。

2. 畑水分および湛水条件下の土壤溶液中ヨウ素の化学形態別濃度

(1) 土壤溶液採取法

Table 1 Characteristics of the Soils Studied

Soil	Tochigi Andosols (Forest)	Fukui Brown Forest Soil (Forest)
Sampling sites	Tochigi Agricultural Experimental Station, Utsunomiya-City	Fukui Agricultural Experimental Station, Fukui-City
Horizon	A	A
Depth (cm)	0-20	0-20
pH	5.1	5.0
Moisture content (%)	11.7	6.9
Total carbon (%)	11.4	0.62
Total nitrogen (%)	0.55	0.04
C/N	20.8	15.5
Texture	Li c	Li c
Iodine content (ppm/dry soil)	26	15

Table. 1 に示す福井褐色森林土と栃木黒ボク土の2土壤を供試し、それぞれ風乾細土 200g と 150g をトールビーカーに秤取し、畑水分 (水分飽和度 60%, 再留水 87ml と 121ml 添加) と、湛水 (水分飽和度 120%, 再留水 173ml と 241ml 添加) 状態で2週間、30°C で静置した。その間ビニールカバーで密封したが、1日1回は開放し空気を入れ替えた。インキュベーション終了後、畑水分区は表層土を、湛水区は田面水および表層土を除去した後、土壤を土壤溶液採取用遠沈管に葉さじで移し、14,000rpm ($pF \approx 4.2$) で1時間遠心分離し、ろ液を集めてこれを土壤溶液とした。

(2) 結果

Table 2 Chemical Forms of Iodine in Soil Solution under Field Moisture Condition and Waterlogging Condition

Soil		Tochigi Andosols		Fukui Brown Forest Soil	
Soil moisture condition during the incubation		Water-logging	Field moisture	Water-logging	Field moisture
Concentration	I ⁻	1.26 (90.3)	0.0015 (6.5)	0.40 (83.7)	0.0033 (6.0)
ppm/soi solution	I ₂	0.001 (0.007)	0.001 (4.3)	0.002 (0.42)	0.002 (3.6)
(Percentage %)	IO ₃ ⁻	0.14 (9.7)	0.022 (93.2)	0.066 (13.8)	0.046 (83.6)
	Organic iodine	0.000 (0)	0.0004 (1.7)	0.010 (2.1)	0.004 (7.3)
	Total Iodine	1.40 (100)	0.025 (100)	0.478 (100)	0.055 (100)

土壤溶液中ヨウ素の形態別濃度ならびに存在率を Table. 2 に示す。

畑水分下では 90% 前後が IO₃⁻ の形態で、I⁻ の形態が 6% 前後、I₂ と CH₃I などの有機態ヨウ素が若干存在する。湛水下では 90% 前後が I⁻ の形態で、IO₃⁻ の形態が 10% 前後、I₂ と有機態ヨウ素の存在率はほとんど問題にならぬ位低いといえる。湛水下土壤溶液中の存在率 10% の IO₃⁻ は、濃度でみると畑水分下で 90% の存在率である IO₃⁻ よりかなり高くなっている。その理由は、土壤表面水（田面水）中の IO₃⁻ が一部混入したか遠心分離中あるいは分離後空気にくふれて I⁻ の一部が IO₃⁻ に酸化されてしまったと推定される。

3. 土壤・土壤溶液系におけるヨウ素の化学形態と存在様式

既往の研究からふれると、天正ら⁶⁾は、畑水分条件という酸化的条件下では I₂ の形態で土壤有機物と結合して不溶性の形態で存在しているが、湛水下という還元的条件下で水溶性の I⁻ の形態に還元されて土壤溶液中に溶出してくるものと推定している。ここでは土壤有機物の役割が重視されているが、具体的実験に裏づけられているわけではない。

我国の土壤中ヨウ素含量は、腐植含量の極めて低い土壤でも、逆に極めて高い土壤に劣らず高^{7,8)}いことを考えると、有機物以外の粘土鉱物等もヨウ素の吸着体として働くと推定される。Whitehead^{9),10)}は環境中の主要なヨウ素の存在形態は I⁻ と考え、I⁻ の土壤吸着実験を行うと共に、土壤中の主要吸着体と土壤中ヨウ素含量との関係を検討している。その中で、I⁻ の吸着体として土壤有機物のほか、アルミニウムや鉄の遊離酸化物が重要なことを指摘している。すなわち、pH5~6 ではアルミニウム（和水酸化物）に最も多く吸着されるが、pH5 以下になると鉄（和水酸化物）の方によく吸着される。pH6 以上だと有機物が最も主要な吸着体となるが、これはリン酸や硫酸イオンなどの陰イオンと異なる特徴だと述べている。また、カオリンやモンモリナイ

トなどの結晶性粘土鉱物はほとんど吸着しないことも明らかにしている。Whitehead の説に従うと、我国の土壤の pH がほとんど6 以下であることを考えると、有機物よりも Al や Fe の遊離酸化物の方が主要な吸着体となるわけで、腐植含量の低い土壤でもきわめて高濃度のヨウ素を含有していることと矛盾しない。Fig. 2 に土壤を湛水した直後からのヨウ素の溶出率の経時変化を示したが、このような湛水直後からの急激なヨウ素の溶出率増大は、Whitehead の説では説明できない。なお、この実験は、2・(1)の土壤溶液採取法の中の湛水土壤と同じ方法でインキュベイトしたもので、溶出率は土壤中全ヨウ素に対する土壤溶液中全ヨウ素の割合で示している。

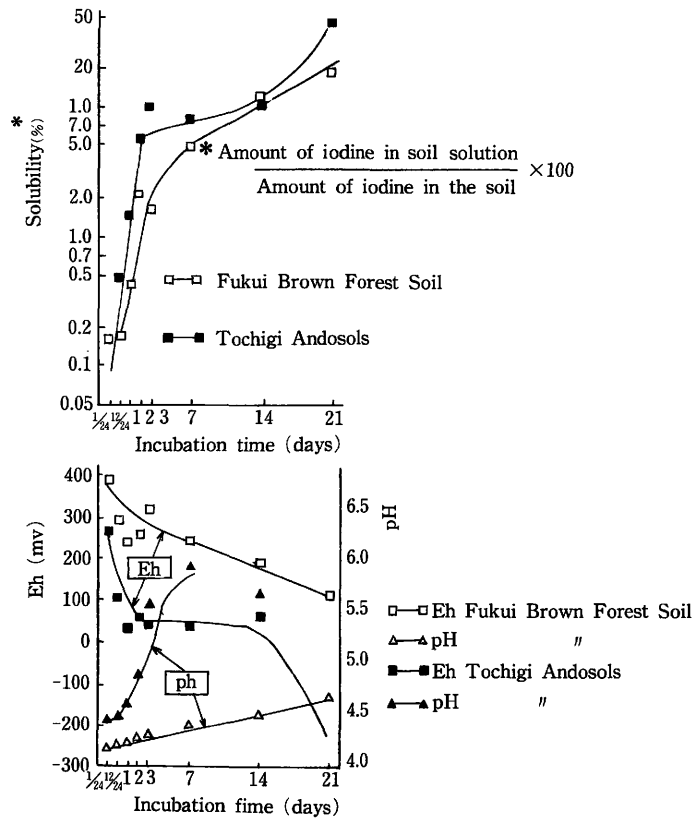


Fig. 2 Change of the Solubility of Iodine After the Waterlogging of the Soil

吸着体となるアルミニウムや鉄の遊離酸化物の溶出率はヨウ素のように湛水直後から急激に増加することはない。また、これらの遊離酸化物の正荷電の減少によるヨウ素吸着量の減少は、pH の上昇に伴って生ずるが、湛水による pH の上昇もそれほど急激かつ大巾ではないし、両者の変動パターンも異なる。Fig. 2 にみられるごとく、福井褐色森林土の場合21日間で pH4.3 から 4.8まで徐々に上昇しているが、ヨウ素の溶出率は1～2日の間に急上昇しており、パターンが異なる。Whitehead はもともとと吸着実験を主体としており、土壤中既存ヨウ素の溶出については特に取り上げていないし、ヨウ素の化学形態変化も取り上げていない。そういうわけで、White-

headの説でも湛水下での著しい溶出は説明できない。

そこで、酸化還元電位や pH の微少の変動で変化するヨウ素の化学形態を考慮して溶出率の変化を説明することを試みた。

脇道にそれるが、海水中ヨウ素の化学形態は、 IO_3^- が $30\sim 40\ \mu\text{gI}/\ell$ と比較的一定で存在量も最大で、これに次ぐ I^- は $0\sim 30\ \mu\text{gI}/\ell$ の範囲で変動し、生物作用によって還元されて生成するため、深度と共に減少するといわれている⁵⁾。 IO_3^- と I^- が主な化学形態という点では土壤溶液の場合と近似しており、海水と対比させて考えるのも興味がある。

湛水下で大量に溶出してきた I^- は、土壤固相中でいかなる形態だったのだろうか。

土壤溶液中 I_2 濃度は、畑水分、湛水分を問わずきわめて低く、また両者の差もない。標準酸化還元電位が $\text{IO}_3^- \rightarrow \text{I}_2$ 1.20volts と $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{N}_2$ 0.75volts よりかなり高く、後者が土壤湛水の初期に生ずること、また $\text{I}_2 \rightarrow \text{I}^-$ が 0.54volts であることを考慮すると、 I_2 が畑水分下でかなりのウエイトで存在すると推定される。海水中では、 I_2 は光化学的に I^- が酸化されて生成するが、揮発性で大気中に逃げやすいといわれる⁵⁾。 I_2 は水に対する溶解度が I^- や IO_3^- より著しく低い ($0.0013\text{mol}/\ell$)。その一方で、各種固相表面への物理的吸着や有機化合物との結合によって吸着されやすいといわれている。従って、海水の場合と異なり、 I_2 は大気中に揮散することなく鉄やアルミニウムの遊離酸化物を含む各種無機コロイドや腐植等の有機コロイドに物理的に吸着されて存在・蓄積していると推定した。 I^- や IO_3^- は、リン酸やフッ素イオンのように陰イオン交換以外の特殊吸着によって土壤に強固に結合するといったことはほとんどないと思われる。もし、特殊吸着が大きなウエイトを占めるとすれば、湛水化によるヨウ素の大量の溶出も起こらないであろう。湛水下で溶出してきた I^- は、 Cl^- や NO_3^- などと同様に陰イオン交換によって土壤に吸着されることになるが、ほとんどの土壤は陰イオン交換能は小さく相当部分が土壤溶液中にとどまることになる。

以上の推定結果をまとめて Fig. 3 に示した。

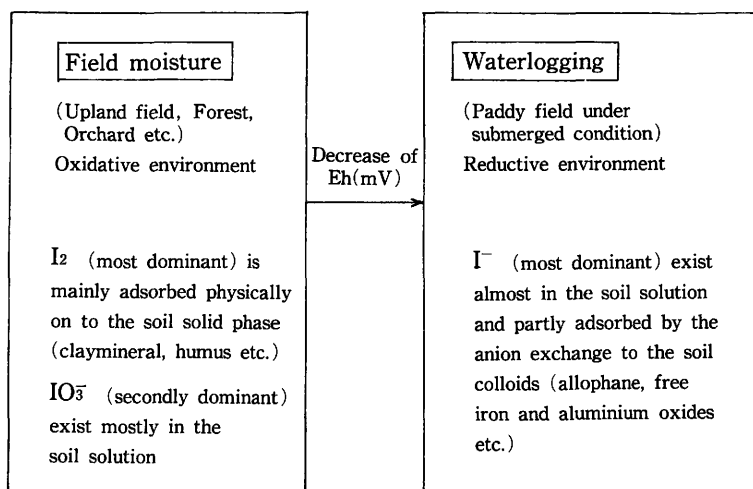


Fig. 3 Chemical Forms of Iodine in the Soil-Soil Solution System. (Presumption)

おわりに

土壤溶液中安定ヨウ素の化学形態は湛水化などの環境変化に応じてきわめて変わりやすいことを明らかにした。従って人工放射性ヨウ素の化学形態は土壤に負荷された時点では天然の安定ヨウ素と異なるかもしれないが、かなり迅速にその環境条件に適応して安定ヨウ素と同じ形態になるであろう。

土壤固相に吸着されているヨウ素の化学形態や存在様式については実験的に解明されておらず、今後の問題として残された。又、土壤溶液中ヨウ素についても、室内実験ではなく現地における土壤水を対象に、雨水（大気）－土壤水（土壤層位別）－地下水系の中で化学形態の変化を動的に把握する必要がある。

参考文献

- 1) 結田康一：放射性ヨウ素の環境から生物への移行(2), 1. 土壤から植物へ, 「最近の環境における放射性ヨウ素の諸問題」報文集, NIRS-M35, pp. 91~106, 1981.
- 2) Tensho, K. and Yeh, K. L. : Study on Iodine and Bromine in Soil-Plant System in Relation to the "Reclamation-Akagare" Disease of Lowland Rice by Means of Radioisotope-Techniques, *Radioisotopes*, **19**, 574~579, 1970.
- 3) 丹野 貢, 山森鉄郎, 井上又論, 結田康一：水稻赤枯病に関する研究, 第1報, 発生の実態について, 富山県農試報, **8**, 55~66, 1977.
- 4) 結田康一：土壤, 植物, 土壤溶液および雨水中ヨウ素, 臭素および塩素の放射化分析法, 農技研報 B, **35**, 73~111, 1983.
- 5) 池田長生：放射性ヨウ素の環境から生物への移行(2), 2-1, 海水中における物理化学的形態, 「最近の環境における放射性ヨウ素の諸問題」報文集, NIRS-M35, 107~118, 1981.
- 6) Tensho, K. and Yeh, K. L. : Radioiodine Uptake by Plant from Soil with Special Reference to Lowland Rice, *Soil Sci. and Plant Nutri.*, **16**, 30~37, 1970.
- 7) 結田康一・信沢由美子・赤部誠一・渋谷政夫・麻生未雄：三面川（新潟県）および長良川流域の土壤および植物中ヨウ素, 臭素および塩素含量, 土肥誌, **55**, 62~70, 1984.
- 8) 結田康一：本州中央部の黒ボク土壤および植物中ヨウ素, 臭素および塩素含量, **55**, 117~122, 1984.
- 9) Whitehead, D. C. : The Sorption of Iodine by Soils as Influenced by Equilibrium Conditions and Soil Properties, *J. Sci. Fd. Agric.*, **24**, 547~556, 1973.

3 海 水

- 3.1 総 論 半田暢彦
- 3.2 外洋中での鉛直分布からみた
人工放射性核種の形態変化 長屋 裕
- 3.3 放射性核種の化学形に関する二、三の問題
平野茂樹

3.1 総論

半田暢彦*

General Commentary

Nobuhiko Handa

Nagoya University

Abstract

Recent advances in the analytical methods of heavy metals in the coastal sediments and seawaters are briefly reviewed. Significance of sinking particles collected by the sediment trap experiment for the fates of heavy metals in the open ocean is also discussed.

Chemical leaching method was quickly developed and applied to the coastal marine sediments last decade and demonstrated that heavy metals mostly derived from human activities on land were distributed in sulfides, carbonates, hydroxide, organic complexes and silicate minerals of the sediments. It was found that Cu and Zn occurring in coastal sediments as their sulfides were more abundant, while Fe and Mn were more abundant in organic complex and silicate minerals. Sulfate reduction system occurring in the sediment is reportedly a most important factor to determine the speciation of heavy metals in the coastal sediments.

XAD-2 has been applied by several workers to separate organic form of heavy metals from seawaters. They found that more than 80% of V, Fe, Cd and Cu occurred in seawater as organic form. However, a series of papers heavily criticized the re-

* 名古屋大学水圏科学研究所

producibilities for the analyses of both organic and inorganic forms of the heavy metals in seawaters.

Recent development of the sediment trap experiment demonstrated that large particles with more than several hundreds micron in diameter played an important role in the vertical transport of organic and inorganic materials from the surface to deep waters. This type of the transport process is assumed to be one of the major factors determining the vertical distribution and fate of the heavy metals in marine environment.

はじめに

近年、人間活動が活潑になるにつれて、内湾あるいは沿岸域に負荷される重金属元素の量は増加の一途をたどっている。これらの元素の大部分は海水から除去されて堆積物に移行するが、その一部は溶存状態で海水中に残り、海洋生態系に影響を与える。

ここでは、堆積物及び海水における重金属元素の存在状態とその分析結果について述べるとともに、海水から堆積物への重金属元素の除去過程について言及する。

1. 堆積物における重金属元素の存在状態と分析

内湾及び沿岸域の堆積物には泥質堆積物が多く、この中に重金属元素が濃縮されている。東京湾々央水域の堆積物では、重金属元素濃度の鉛直分布が過去30—40年間の東京湾をめぐる後背地の人間活動の変動と同調していることが認められている(松本, 1983)。この事実は、陸域から負荷された重金属元素が内湾・沿岸域において活潑に除去され、それらの底泥堆積物に容易に移行していることを示唆しているものと思われる。また、間隙水の重金属元素濃度が堆積物直上の海水のそれに比して著しく小さいことは、一旦移行した重金属元素が堆積物によく固定され、続成的変化過程を通しての移動は極めて小さいことを示唆している。

内湾・沿岸域の泥質堆積物は硫化物、Fe及びMnの酸化物や水和酸化物、炭酸塩、粘土などのケイ酸塩鉱物、有機物などから構成され、重金属元素はそれぞれの構成成分とともに存在している。しかし、これらの構成成分を機械的に分別することは困難であり、いまだかつて成功した例はない。最近、これらの構成成分を化学的処理によって選択的に溶解し、重金属元素を溶出させる分別溶解法が開発されている。この方法は、もともと深海底の粘土性堆積物を陸起源の粘土鉱物と炭酸カルシウム及び鉄ならびにマンガンの酸化物とを分別するために採用された方法である(Goldberg and Arrhenins, 1958; Cronan and Garrett, 1973; Krishwanaswami, 1976)。また、河口域の堆積物への適用も考慮されつつある(Skei and Paus, 1979)。

Kitano and Sakata (1978) は名古屋港から採集した海底表層堆積物について分別溶解法を検討した。その結果、堆積物を構成する硫化物、有機物及びケイ酸塩画分はそれぞれ0.1M HCl, 30% H₂O₂ 及び HF—HNO₃—HClO₄ 処理によって溶解し、重金属元素を溶出する (Fig. 1)。この

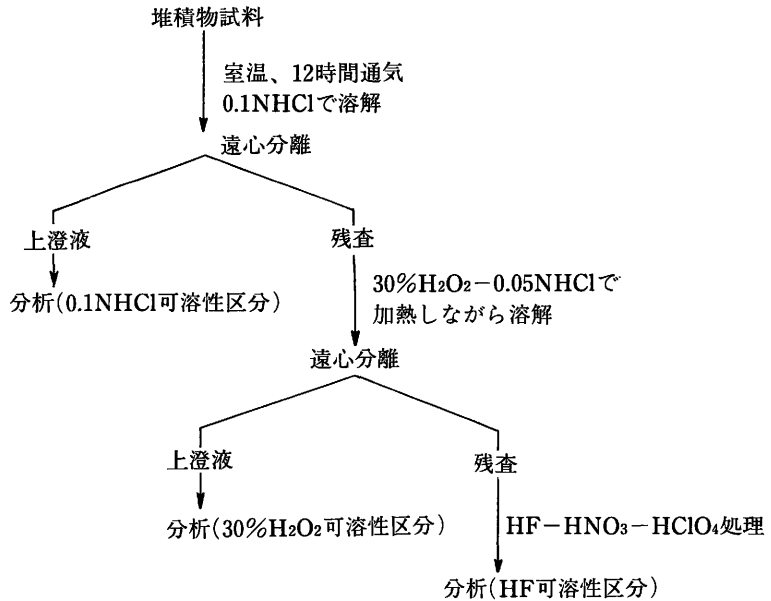


Fig. 1 分別溶解法による堆積物試料の分画

溶出液について重金属元素 (Mn, Fe, Cu, Zn) を分析し、各画分のそれらの量としている。この方法では、炭酸カルシウム画分の重金属元素は硫化物画分のそれとして計測されるが、その量が多い場合は試料を酸処理することにより炭酸塩を溶解し、ろ別後未溶解部分を酸に懸濁させ空気を吹き込みながら硫化物を溶解する方法をとる必要がある。また、粘土鉱物にはイオン交換態の重金属元素の存在が考えられる。これらは $MgCl_2$ 溶液中で試料を懸濁させ、 Mg^{2+} とイオン交換させることが出来るが、このような化学形の重金属元素の量は僅かであったため、実際の底泥試料の分析の際にはその考慮はなされていない。

得られた結果を Fig. 2 に示す。固相への分配は重金属元素によって極めて大きな特徴をもつことを示した。Cu 及び Zn の大部分は硫化物相に分配され、有機物及びケイ酸塩鉱物相への分配の少ないことが見出されたが、Fe 及び Mn はむしろケイ酸塩鉱物への分配が大きく、有機物相にもかなりの量の Fe あるいは Mn の存在を認めた。これはこれらの重金属元素の硫化物の溶解度の差によって決るものと思われる。すなわち、CuS 及び ZnS の溶解度積はそれぞれ $10^{-36.1}$ および $10^{-24.7}$ に対して、MnS の溶解度積は $10^{-13.5}$ であると報告されている (Stumm and Morgan, 1981)。

第 2 の重要な点は溶解度の小さい硫化物ほど河口附近に堆積し、その大きな硫化物を与える元素は河口域から沖合に向かって水平方向の移動をする点である。このような可動性が堆積物におけるその重金属元素濃度の水平方向の変動を生じさせない原因になっているものと思われる。

第 3 には河口域における硫酸還元系の駆動と重金属元素の硫化物の形成である。内湾・沿岸では海水中の硫酸イオンの還元による硫化水素の形成が硫化物の生成を助長し、その結果堆積物に

における重金属元素の濃縮をひきおこしている。

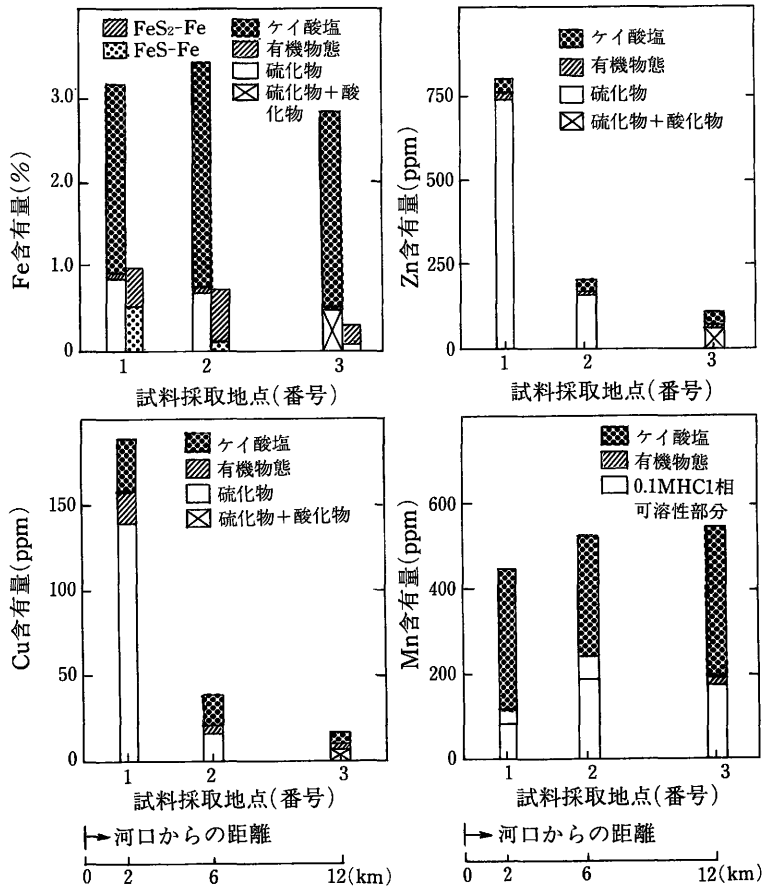


Fig. 2 銅, マンガンの分配 (Kitano and Sakata, 1978)

名古屋港内堆積物と同様の現象が東京湾々央水域においても観察されている (Fig. 3)。松本・横田 (1977) はこの試料と同一の堆積物柱状試料について重金属元素を分析し、その濃度の極大値を与える層の年代を1972年頃とするとともに、1900年頃から徐々に増加した重金属元素濃度は人間活動の活潑化に由来するものとしている。したがって、後背地の人間活動によってこの水域に負荷されたCu及びZn (化学系としては遊離イオン及び酸化物ならびに水和酸化物が最も可能性が大きい) のほとんどが硫化物として堆積物に固定されているものと思われる。これに対して、Fe及びMnの場合は各画分のそれらの濃度に鉛直変化が認められない。したがって、Cu及びZnと同様に人間活動によって水域に負荷されるFe及びMnがあったとしても、それらは内湾・沿岸域の堆積物に固定される割合はきわめて小さいことが示唆される。

名古屋湾内及び東京湾々央水域とは異なり、酸化的環境にある大阪湾や湖沼の堆積物では硫化物の形成が小さい。これらの環境では重金属元素は酸化物及び水和酸化物として存在する割合が

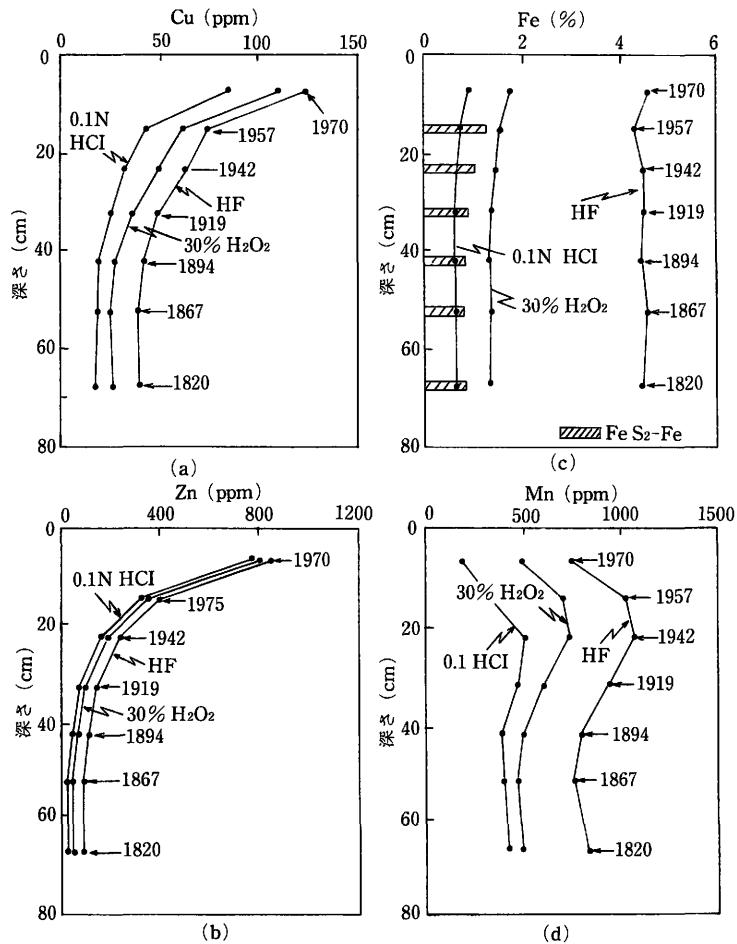


Fig. 3 東京湾々央水域から採集した堆積物柱状試料中の硫化物、有機物及びケイ酸塩鉱物画分への銅、亜鉛、鉄及びマンガンの分配 (Kitano et al., 1980)。図中の数字は各層の ^{210}Pb 年代である。

高い。したがって、堆積物を HCl 又は CH_3COOH で処理後、 H_2O_2 処理をする前に $1\text{M NH}_2\text{OH}$ — 0.1N HCl 処理をすることにより酸化物及び水和酸化物形の重金属元素を分離することが出来る (Kitano et al., 1981)。したがって、堆積物に分別溶解法を適用するに至っては目的とする元素の化学的性質とともに、海洋観測を通して堆積物の形成環境 (堆積環境) を知っておく必要がある。

2. 海水における重金属元素の存在状態と分析

海水に溶解している重金属元素は有機物との相互作用の結果、有機金属錯体を形成している。このような有機重金属錯体の存在は海水中での微量元素の化学形の分化 (Stumm and Brauner, 1975)、赤潮の発生 (Martin and Martin, 1973) および海産藻類及び動物プランクトン生長に対

する重金属元素阻害の緩和 (Sunda and Guillard, 1976) などによって示唆されてきている。

海水中に存在する低分子量の有機配位子としては遊離アミノ酸、有機酸及び脂肪酸などが典型的な物質として挙げられる。これらの濃度は一般に 10^{-8} M 以下であるが、大気-海洋境界面附近では有機物の濃縮過程があり ($>10^{-5}$ M)、有機重金属錯体の形成があると考えられている。

海水中に溶存する高分子有機物 (分子量: $5 \times 10^2 - 10^6$) も重要で、現在最も有効な溶存有機配位子と考えられている。しかし、その化学構造は解明されていない。この事が海水中における重金属元素の存在状態を不明確にしている大きな原因と云える。

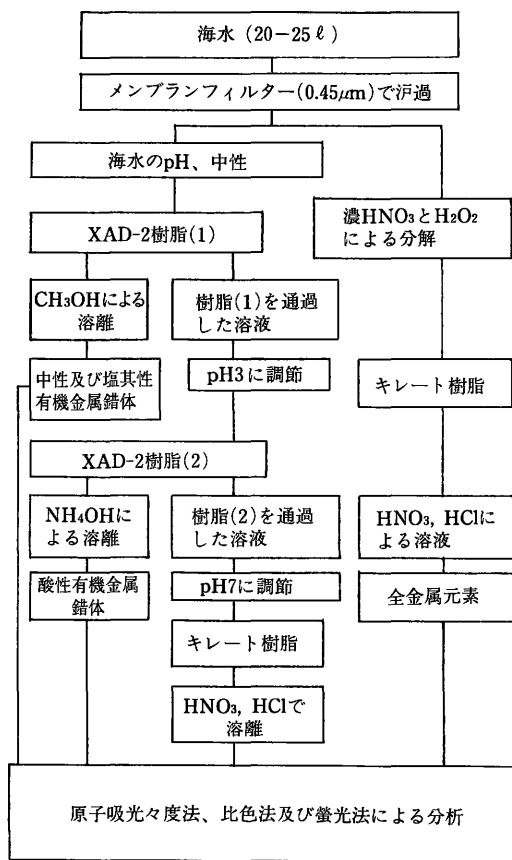


Fig. 4 海水からの有機金属錯体の抽出分離法 (Sugimura et al., 1978)

Sugimura et al., (1978) は海水の微量金属元素の化学形についての分離分析法を開発し、13種の金属元素について全量に対する各化学形の割合を報告している。分離法を Fig. 4 に示す。その概略は pH 8 または 3 に調節した海水をそれぞれ XAD-2 樹脂に適し、有機金属錯体を吸着させる。前者を中性・塩基性有機金属錯体、後者を酸性有機金属錯体と呼ぶ。これらの錯体はそれぞれメタノールおよび水酸化アンモニウム溶液で溶離し、溶離液の金属元素を原子吸光法により測定する。別に測定した海水の金属元素と比較し、金属元素の各錯体への分配を算出する。西部北

太平洋海域から採集した海水試料についての分析結果を Table 1 及び Fig. 5 に示す。

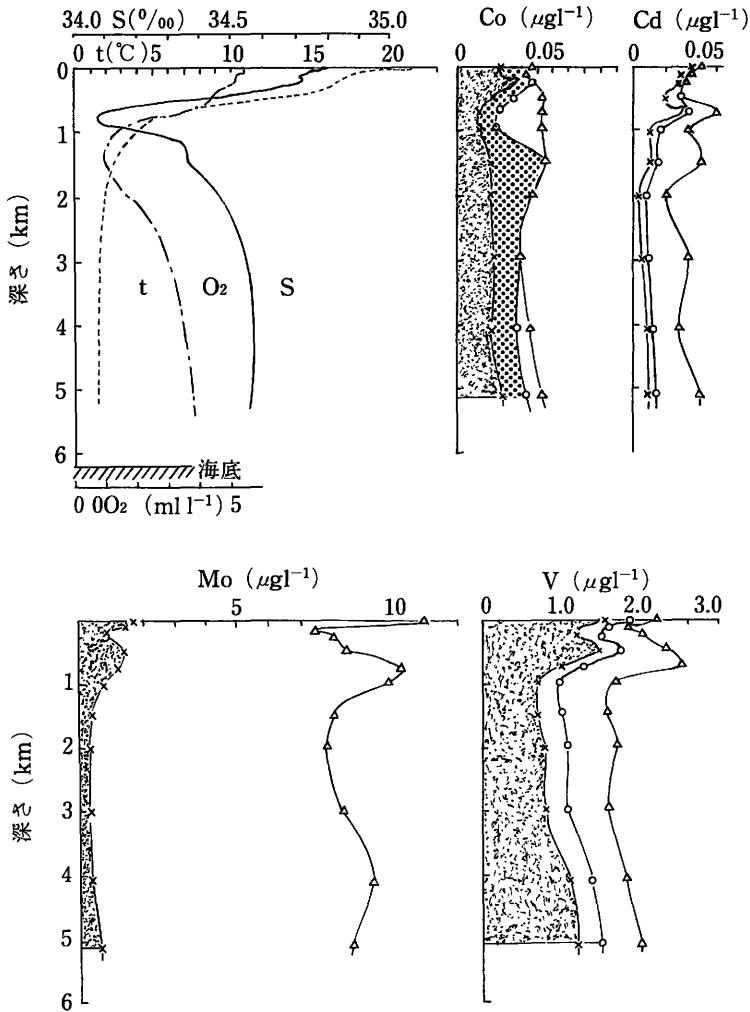


Fig. 5 西部北太平洋 (29°53'N, 146°49'E) における Cd, Co, Mo, V, 塩分, 水温及び溶存酸素の鉛直分布

得られた結果をまとめると, (1)海水に溶存する V, Fe, Cd, Cu では, 各々の溶存態金属元素の 80% 以上が有機物との錯体として存在しており, その値は深さによらずほぼ一定である, (2) Co と Pb は, 表層附近では大部分が有機態であるが, 深層水ではその 50-60% が無機態にかわる, (3) Al, Ni, Zn, Ag, Mo および Li では, 溶存態金属元素の 30% 以下が有機態として存在するにすぎない, (4) Se は 45% までが有機態として存在している, と報告している。Sugiura et al., (1978) は海水中の溶存有機鉄についてさらに詳細な研究をしている。

最近, Mackey (1982) は XAD-1 樹脂を用いて海水からの有機金属錯体の抽出を詳細に検討

Table 1 海水に溶存する金属元素の全量に対する有機錯体を形成している金属元素との割合

元素	試料数	濃液範囲 ($\mu\text{g}/\text{l}$)	全量に対する有機態の割合(%)		
			中性及び塩 基性画分(1)	酸性画分(2)	(1)+(2)の全量 に対する割合
A l	8	0.8 ~ 1.3	4~20	2~11	7~ 30
V	8	1.5 ~ 2.8	60~79	11~20	80~ 89
F e	8	1.2 ~ 3.5	4~14	79~90	93~ 97
C o	8	0.03~ 0.08	75~95	5~10	81~100
N i	8	1.6 ~ 1.8	6~ 9	2~ 3	8~ 12
C u	8	0.8 ~ 0.9	75~84	6~ 9	83~ 90
Z n	8	3.5 ~ 5.9	3~26	5~23	15~ 34
S e	7	0.07~ 0.08	17~33	10~12	27~ 45
M o	8	5.7 ~10.9	12~16	1~ 2	14~ 17
A g	3	0.07	14	1	15
C d	8	0.03~ 0.09	53~70	28~43	96~100
P b	7	0.04~ 0.07	50~86	14~50	100
U	6	3.3 ~ 3.5	1	15	16

(Sigimura et al, 1978)

した結果、理論値よりは充分低い量の試料を用いた場合でも有機金属錯体の XAD-1 樹脂への吸着は再現性を示さなかったと報告している。そして、吸着がきわめて微量であるため、この樹脂の使用によって海水中の金属元素の化学形の解析は適当ではないとしている。

海水中の金属元素の化学形については過去数年間に大きな進歩があったように感じられたが、それらの結果を信ずるには近年やや慎重さを要するようである。これは一重に化学的実体についての情報が全くない状況で化学を論じようとする所に原因があるものと思われる。したがって、当面は溶存有機物の化学に関する情報を蓄積することが最も大切なことと結論される。

3. 海水から重金属元素の除去過程

海水に負荷される重金属元素は遊離のイオン、有機錯体及び粒子の構成成分などの化学形をもっている。遊離イオン及び有機錯体の大部分は植物プランクトン粒子に移行する。ケイ酸塩粒子を含めてこれらの粒子の挙動は内湾・沿岸及び外洋における重金属元素の分布に大きな影響を与えている。

内湾・沿岸域では陸起源の大型粒子が存在し、この粒子の沈降により化学物質の鉛直輸送が活発におこなわれているものと思われるが、外洋域では状況が全く異なる。

放射性核種の鉛直分布から見積られる懸濁粒子の沈降速度は $0.1-1\text{m 日}^{-1}$ であり (Sackett,

1978), きわめて小さい。したがって, 懸濁粒子の沈降による重金属元素の鉛直輸送量は大きいものとは云えない。ところが, 近年内湾・沿岸域から外洋域においてセジメントトラップ実験が盛んに実施されている。この方法で得られる重金属元素の鉛直輸送量は懸濁粒子の沈降によるものの数倍に達しており, 重金属元素の鉛直輸送に対する沈降粒子 (セジメントトラップ実験で捕集される大型粒子) の役割の大きいことが示唆される。

Osterberg et al. (1963) はオレゴン州沿岸の 2,800m 深の海底から採集したなまこの一種に短半減期の ^{95}Zr , ^{141}Ce などの存在を見出した。したがって, 彼等は表層水から深海底に向ってのきわめて迅速な化学物質の鉛直輸送系の存在を示唆した。同様なことは, Honjo (1980) によっても示されている。すなわち, 炭酸カルシウム補償深度以深の層から採集した沈降粒子にも保存状態のよい有孔虫, 円石藻の炭酸カルシウム殻が存在することを見出している。

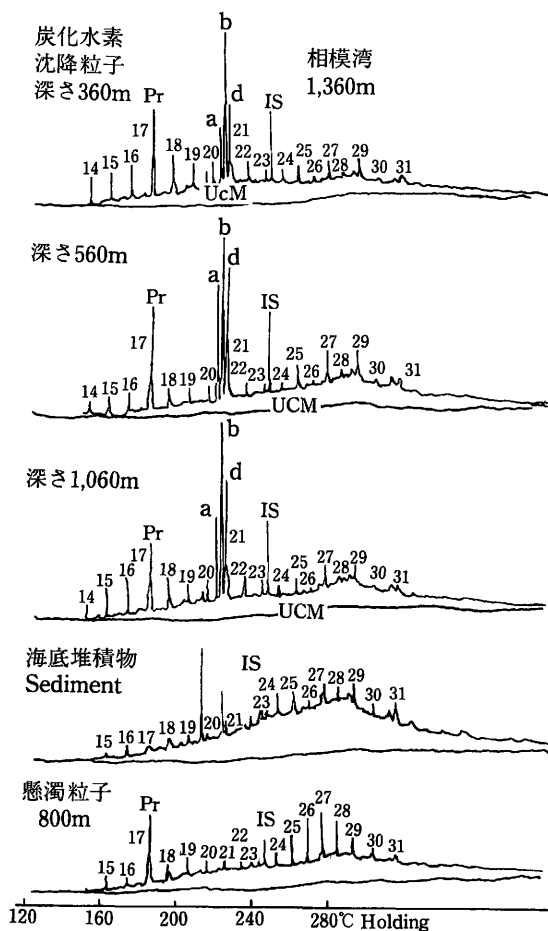


Fig. 6 相模湾から採集した沈降粒子, 堆積物および懸濁粒子の炭化水素のガスクロマトグラム

Handa and Matsueda (1984) は北太平洋および南極海においてセジメントトラップ実験を実施し、沈降粒子の有機物組成を検討したが、一例として得られた沈降粒子、懸濁粒子及び堆積物の炭化水素組成を Fig. 6 に示す。沈降粒子の炭化水素組成は深さによってほとんど差異は認められなかったが、堆積物や懸濁粒子の炭化水素組成とは大きく違っていた。特に、微生物学的に不安定な a, b 及び d (C_{25} の不飽和炭化水素) の存在は沈降粒子が堆積物及び懸濁粒子に比してより新鮮な物質であることを示した (半田・松枝, 1985)。

海洋環境における沈降粒子の沈降速度を知ることは大変興味深い。従来、その具体的な数字を示した報告はなかったが、時系列型と時間固定型セジメントトラップ系を同時に使用することにより、沈降粒子の現場での沈降速度を算定することに成功した (半田・松枝, 1985)。そして、その値は $80-1,900 \text{ m 日}^{-1}$ の範囲にあり、植物プランクトン粒子の沈降速度 ($1-2 \text{ m 日}^{-1}$) に比して大変大きな値であることが見出されている。

以上の結果をまとめると、海洋の表層水では光合成活動により植物プランクトン粒子が形成され、これが集められて大型粒子を生成し、沈降速度を増す。この大型粒子が表層水から深層水への有機物及び放射性核種を含めた化学物質の輸送の担体となり、またその鉛直流束の増加をうながす原因になっているものと理解される。

重金属元素の鉛直輸送に対する大型粒子の関わりはやや複雑である。すなわち、Cd, Zn, Ni 及び Cu などのように中・表層水にて栄養塩の再生と挙動を共にする重金属元素と Al 及び Cs などのように鉛直流束が深さとともに増加する金属元素とがある。何れも、大型粒子によって海洋の表層水から中・深層水へ迅速に鉛直輸送される点は同じであるが、それに付随する挙動が異なる。

海水中の溶存態 Cd の鉛直分布は PO_4^{3-} のそれと極めてよい相関がある (Fig. 7)。外洋における PO_4^{3-} は深さとともに増加し、深さ 1km 前後で極大値を示す。これは表層水の植物プランクトン粒子に取り込まれた PO_4^{3-} が粒子の沈降にともなって有機物が分解され、再び PO_4^{3-} を生成することによると理解されている。Fig. 7 の結果は海水における Cd の挙動が PO_4^{3-} のそれと同様に植物プランクトンの生成・分解・移動によって規定されていることを示している。Zn, Ni 及び Cu の挙動も Cd のそれと同じと理解される。

Fig. 7

海洋における Al 及び Cs の挙動は Cd などの元素のそれとやや異なっている。セジメントトラップ実験による Al 及び Cs の鉛直流束及び沈降粒子におけるそれらの濃度の鉛直変化などから、Al あるいは Cs を豊富に含む懸濁微粒子が大型粒子によって吸着されることが海水中の Al 及び Cs の挙動を決める主要因であると報告されている (Bruland, 1980)。

海洋水における重金属元素の挙動については現在のところそれほど十分な測定結果をもっているわけではない。この種のデータが蓄積された時、有機物のデータをも参考にして、海水中における重金属元素及び放射性核種の挙動についてより詳細かつ適確な理解が出来るものと思われる。

4. おわりに

内湾・沿岸域から外洋を通して、重金属元素の挙動に関連してその分析法を述べてきた。重金属元素分析の化学的方法は原子吸光分光法を用いているので従来と大きな差異はない。ただ、最近の海洋化学は海洋環境に対する人間活動の影響を知るため、何をどのように分析すればよいかの点についてはかなりの発展をみたと云える。

3.2 外洋中での鉛直分布からみた人工 放射性核種の形態変化

長 屋 裕*

Physico-chemical Forms of Artificial Radionuclides
Estimated from Their Vertical Distribution Patterns

Yutaka Nagaya

Division of Marine Radioecology
Laboratory for Radioecology, NAKAMINATO
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

The vertical distribution patterns of artificial radionuclides, ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{239,240}\text{Pu}$, in the ocean demonstrate the effect of physicochemical form and its change of the radionuclides in their vertical transport .

^{137}Cs , and ^{90}Sr , in upper layer of the sea show a vertical distribution similar to that of fallout tritium and imply that the nuclides are in "dissolved" form in sea water.

On the other hand, in deeper layer ^{137}Cs , and ^{90}Sr cotents show a rather uniform distribution throughout the whole water column. This distribution pattern in deep layer indicates rapid removal of a small part of the radionuclides from upper layer in "particulate" form and subsequent dissociation in deep layer.

$^{239,240}\text{Pu}$ concentration show remarkable subsurface maximum which are believed to be formed by association of the nuclide with biogenetic particles in surface water and its release in subsurface layer. The approximately uniform distribution of $^{239,240}\text{Pu}$ in deep layer also suggests the transport and dissociation of particulate pluto-

* 放射線医学総合研究所那珂湊支所・海洋放射生態学研究部

nium in deep sea.

放射性降下物として海洋表面に入った人工放射性核種は、次第に下層へと移動して行くが、種々の攪乱要因の多い沿岸に比べ、水深の大きい外洋での鉛直移動は、かなり広い範囲にわたって類似した傾向を示すことが多い。

もし人工放射性核種が海水中で完全に溶存している場合には、その鉛直分布は海水の混合速度によって決定される。第1図¹⁾に見られるように、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の濃度は表面数百メートル層ではほぼ均一で、それ以深では深度の増加にともなって急激に濃度が低下している。このような分布はトリチウムのそれと類似し、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の密度躍層を通過しての鉛直移動が非常におそいことを示している。換言すれば ^{137}Cs 、 ^{90}Sr は「溶存」しているということである。

しかるに1,500~2,000m以深の深層では、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 濃度は表面の1/10~1/100の値に過ぎないが、普遍的に存在している。このような分布は ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の一部が粒子状となって急速に沈降し、また沈降しつつ解離したために形成されたと考えるのが妥当であろう。

一方 $^{239,240}\text{Pu}$ の鉛直分布は第2図¹⁾に示すように ^{137}Cs 、 ^{90}Sr とはかなり異なっていて、500~1,000m深に顕著な極大層が存在する。極大層以深での濃度低下は ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の場合ほど著るしくなくて、深層での濃度レベルは表面でのそれと大差ない。このような鉛直分布が成立する

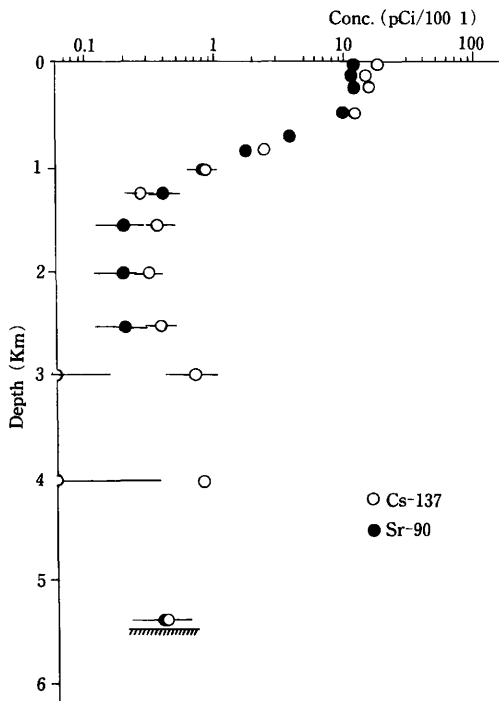


Fig. 1 ^{137}Cs と ^{90}Sr の鉛直分布の例
(中部北太平洋)

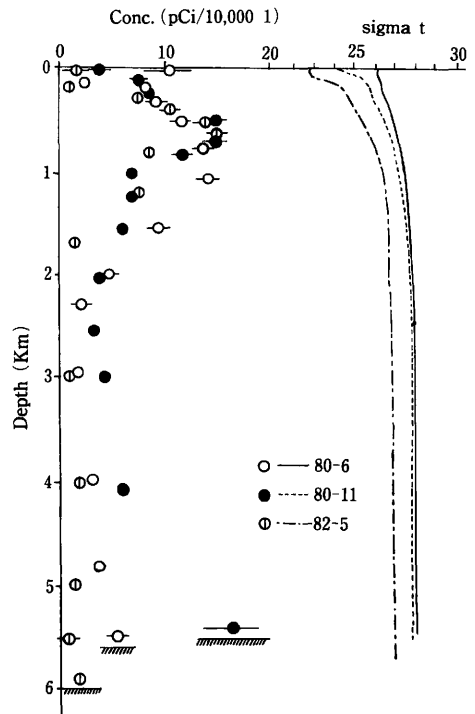


Fig. 2 $^{239,240}\text{Pu}$ の鉛直分布の例
(中部北太平洋)

原因としてはプルトニウムが表面付近で生物活動に由来する粒子にとり込まれて沈降し、中層で放出されるためであると考えられている^{2),3)}。深層中での普般的存在は¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr同様、中層で解離しなかった粒子の沈降によるものであろう。粒子状の人工放射性核種の沈降はセジメント・トラップによる観測でも確認されている⁴⁾。

このように人工放射性核種の鉛直移動に際しては、溶存状から粒子状へ、また粒子状から溶存状への物理化学的形狀の変化がおこっており、また同時に化学的形狀の変化もおこっていると考えられる。これらの変化をより詳細に検討することが望ましい。

参考文献

- 2) Nagaya, Y., and Nakamura K. : ^{239,240}Pu, ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr in the Central North Pacific. *J. Oceanogr. Soc. Japan*, **40**, 416–424, 1984.
- 2) Fowler, S. W., Vallestra, S., LaRosa, J. and Fukai, R. : Vertical transport of particulate-associated plutonium and americium in the upper water column of the Northeast Pacific. *Deep-Sea Res.*, **30**, 1221–1233, 1983.
- 3) Sholkovitz, E. R. : The geochemistry of plutonium in fresh and marine water environment. *Earth-Sci. Rev.*, **19**, 95–161 1983.
- 4) Livingston, H. D., and Anderson R. F. : Large particulate transport of plutonium and other fallout radionuclides to the deep ocean. *Nature*, **303**, 228–231, 1983.

3.3 放射性核種の化学形に関する 二、三の問題

平野茂樹*

Comment on the Chemical Forms of Radionuclides

Shigeki Hirano

Division of Marine Radioecology
Laboratory for Radioecology, NAKAMINATO
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

There are several points to be discussed when a radioactive isotope is to be discharged into seawater. If an element can take several chemical forms in seawater, radioisotopes of the element might be present in different chemical states from natural stable isotopes. Therefore, accumulation of the radioactive isotope by human beings through marine foods might be different from that of the stable isotopes. The chemical forms of a radioactive element was discussed in comparison with that of the stable isotope.

はじめに

海水中の放射性元素の動きを天然の安定同位体の動きと較べた場合に生じる二、三の問題について簡単に述べる。まず、海洋に放出される放射性元素は Mass としては非常に小さい事、また、しばしば元から存在している安定同位体とは異なる物理化学的形態であって、両者が物理化学的平衡状態になるまでかなり時間を要する場合がある事、そして核種に固有の半減期で異なる核種に壊変する事が注意すべき点であろうと考えられる。従って、半減期の短い核種では安定元素と平衡

* 放射線医学総合研究所・海洋放射生態学研究部

になる前に放出された大部分が減衰してしまう。このような核種については安定同位体について得られたデータから海産生物による核種の濃縮係数を求めるのは大きな誤差の原因になり得る。また、比較的半減期の長い放射性核種であっても放出されてからしばらくの間は天然の安定元素とは異なる物理化学的挙動を取る場合がある。これらの問題についてコバルト-60とヨウ素-125を用いて行った実験の結果について述べる。

1. コバルト-60とアミノ酸錯体

コバルトは生物に必須の元素であるので放射性コバルトもいずれはそのサイクルに組み込まれるはずであるが、放出直後は反応速度の早い平衡に支配されると考えられるので、一例として数種のアミノ酸とCo(II)の安定度定数を求めて海水中に存在が予想される化学種を計算して表1に示す¹⁾。海水中には数 μg 前後の各種アミノ酸が存在している事が知られているので表1の計算に用いたアミノ酸の濃度 $10^{-7}\sim 10^{-9}\text{mol/l}$ は妥当なものである。Co(II)-アミノ酸錯体の生成する量はそれほど多くない事が表からわかる。しかしながら、最近我々が行った別の実験では ^{60}Co が2価のイオンで海水に放出されてもその一部が3価に変化する事が観察された。3価のコバルトは2価よりも錯体の安定度が増すので生成するアミノ酸錯体の割合も多くなる事が予想される。

Table 1 Abundance ratio (%) of ^{60}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^{-4}	10^{-3}mol l^{-1}	10^{-9}mol l^{-1}
Co-phenylalanine	$3.0 \times 10^{-2}\%$	$4.1 \times 10^{-3}\%$	$4.3 \times 10^{-4}\%$
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

次に安定元素の化学形とその濃度が放射性同位体の海水中の挙動に影響を及ぼす例としてヨウ素-125について得られた実験の結果について述べる(表2)²⁾。試薬特級で調製した人工海水に安定ヨウ素を I^- と IO_3^- イオンの二つの形でそれぞれ濃度を変え、同時に一つの化学形のヨウ素-125をトレーサーとして添加し、この中で海産魚を飼育してヨウ素-125の取り込み排出を観察した。表2には $^{125}\text{I}^-$ イオンをスパイクした場合の結果を示している。すなわち、安定 I^- イオンの増加と共に ^{125}I の排出半減期が増し、結果として濃縮係数が低くなった。 $^{125}\text{IO}_3^-$ をスパイクした場合の結果は表2には示してないが、安定 IO_3^- および I^- イオンの影響はほとんどなく濃縮係数はほぼ1であった。この実験の結果放射性ヨウ素の海産魚による濃縮については I^-

Table 2 Data obtained for the accumulation and loss of radioactive and stable iodide by Dorome in the artificial seawater which contained $^{125}\text{I}^-$ as tracer and various amount of iodide and / or iodate ion

Aquarium number	Stable iodine concentration ($\mu\text{gI/l}$)		Effective half-life (d)		Biological half-life of iodine (d)	Calculated CF		
	I^-	IO_3^-	$^{125}\text{I}^-$	$^{131}\text{I}^-$		$^{125}\text{I}^-$	$^{131}\text{I}^-$	$^{129}\text{I}^-$
	I	0	60	14.0	5.6	18.3	267	116
II	20	40	12.4	5.3	15.6	120	56	150
III	40	20	10.0	4.8	12.0	102	53	120
IV	60	0	8.6	4.5	10.0	83	47	95

イオンの化学形が良く吸収蓄積され、また同じ化学形の安定ヨウ素の海水中の濃度の変動が濃縮係数を大きく変化させる事もわかった。これに対し、 IO_3^- の化学形は濃縮係数も小さく、安定同位体の濃度の影響も小さい事がわかった。従って、放射性ヨウ素の海産魚による濃縮は安定ヨウ素のうちの I^- イオン形の濃度の影響が大きいため海水中のこの量の変化を把握しておく事が重要となって来た。

参考文献

- 1) Hirano S. and Koyanagi T. : *J. Oceanogr. Soc. Japan*, **37**, 145, 1981.
- 2) Hirano, S. Matsuba M. and Koyanagi T. : *Radioisotopes*, **32**, 353, 1983.

Ⅱ 環境での元素の移行に及ぼす 元素の化学形の影響

Effect of Chemical Forms on the Movement
of Radionuclides in the Environment

1 農作物への移行

- | | | |
|-----|-----------------------------|-------|
| 1.1 | 総論 | 大桃洋一郎 |
| 1.2 | 放射線物質の農作物への移行に
及ぼす化学形の影響 | 小林 宏信 |

1.1 総論

大桃 洋一郎*

Transfer to crops (review)

Yoichiro Ohmomo

Division of Radioecology
Laboratory for Radioecology, Nakaminato
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

Radionuclides discharged into atmosphere and/or terrestrial environment enter into edible parts of the crops by direct deposition, translocation from the leaves and root uptake. Solubility of the nuclides is one of the important chemical properties especially related to foliar uptake.

The experiment on the leachability of ^{137}Cs and ^{60}Co in pine needle litter collected in the vicinity of power plant was briefly introduced. Deposition velocity of gaseous elemental iodine and methyl iodide onto plant leaves, and uptake rates of iodide and iodate by Komatsuna vegetable were presented. Experiments on translocation of ^{60}Co from contaminated leaf to radish root, aging effect of ^{65}Zn in soil and migration of radionuclides from culture solution to rice plant and vegetables, conducted by the project research members of NIRS, were also introduced.

化学形に対する認識の仕方は、専門分野により異なる。ここでは、大気中あるいは土壌中の放射性物質の存在形態によって、農作物への移行量がどのように、どれ位変化するかについて述べ

* 放射線医学総合研究所・環境放射生態学研究部

る。

大気中に放出された放射性物質の農作物への移行経路は deposition (沈着) と root uptake (経根吸収) に大別される。deposition は、また dry deposition と wet deposition に分けられる。可食部への移行という観点からは、可食部への direct deposition と一旦葉面への沈着したあと可食部へ運ばれる場合 (translocation) とに分けられる。particle として直接可食部に沈着固定される場合、特に ^{90}Sr と ^{137}Cs の米への直接沈着については、コメントの説明にゆずるとして、ここではその他の核種の葉面沈着と translocation 並びに経根吸収について概説することにする。

なお、大気中において雨にとけ、作物表面に沈着する場合と、一旦 dry deposition として葉面沈着したあと、雨、霧、露などにとけて吸収される場合とは、同等に取扱うこととする。

1. 葉面の構成

植物の葉は、表皮によって保護され、水分の蒸発を防いでいる。この表皮の外側に外皮があり、この外皮は脂肪酸やワックス様の物質から構成されている。イオンや分子はこの外皮を通過することができる。外皮を通してのイオンや分子の体内への拡散は、葉がぬれている時に促進される。その理由のひとつは、水の存在で外皮がのびるからであると説明されている¹⁾。このことは、放射性物質が粒子状で葉面沈着したあと、葉面からの吸収に天候が密接に関与していることを示唆している。

2. 作物体内の物質輸送システムと核種

作物体内の物質輸送システムには2種類がある。Xylem system と phloem system である。前者は、水や栄養塩を根から地上部へ輸送するシステムである。後者は、炭水化物、アミノ酸あるいは無機塩類を作物全体に分配するシステムである。ヨウ素、リン、硫黄などはこの phloem system で運ばれ、アルカリ土類金属元素、セリウム、ルテニウム、プルトニウムなどは、phloem system の膜を通過しにくいいため、xylem system でしか輸送されないとされている¹⁾。しかしアルカリ土類金属元素の中でもマグネシウムは、phloem system で運ばれることが知られている。一般にリン酸と結合して沈澱をつくりやすい元素は phloem system では輸送されず、専ら xylem system でしか運ばれない傾向がある²⁾。従って、放射性ヨウ素は、一旦葉から吸収されると、作物全体に運ばれる可能性があるが、マグネシウムを除くアルカリ土類金属元素、セリウム、ルテニウム、プルトニウムなどは、水溶性となって葉面からとり込まれても、その部位にとどまり、他の器官には運ばれにくいことになる。なお、コバルト、マンガン、亜鉛、鉄などは、phloem system でも若干運ばれるが、その程度は、セシウムやヨウ素に比べれば、はるかに低いことが実験的に証明されている¹⁾。

ここで、葉面吸収と translocation に関する実験の一例を紹介しておく。柳沢ら³⁾はハツカ大根の葉の1枚に $^{60}\text{CoCl}_2$ を塗布し、24時間後の各部位への転流を調べた。Fig. 1 にその結果を示す。Fig. 1 の黒塗りの一葉に $^{60}\text{CoCl}_2$ を塗布した。() 内の数字は塗布してから24時間後に洗浄

した時に除染された percentage を，その他の数字は塗布直後の ^{60}Co を100とした時に各器官に検出された ^{60}Co の percentage を示す。24時間で，塗布した ^{60}Co の数%が他器官に転流しているが，48時間および72時間後の転流率もほとんど変わらなかったという。これは葉の表面が乾燥したためである。葉表面が乾燥しないようにした時に，果してどれ位転流するかは興味ある問題である。

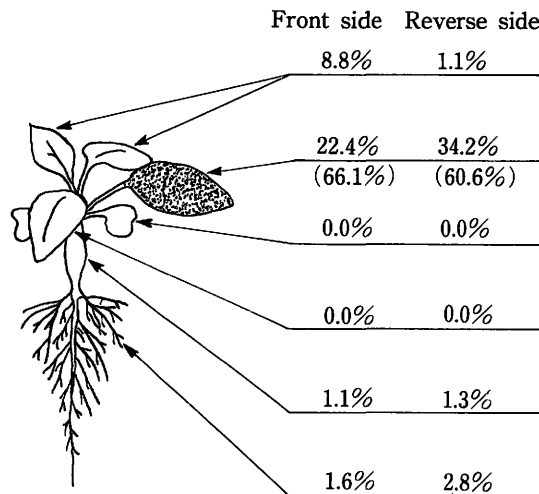


Fig. 1 Translocation of ^{60}Co from a leaf to the other parts of radish.

() : Removed

(By Yanagisawa et al.)³⁾

3. 葉面吸収に関与する因子としての interception coefficient

上述した様に，葉の表面の湿じゅん度は葉面吸収に関与する重要な因子であるが，interception coefficient もまた重要な因子のひとつである。この係数は，上から降ってくる放射性物質が，植物によって，どれ位さえぎられるかを表わすものであり，作物の栽培密度や生育状況と密接な関係がある。春まきの作物は大抵6～7月頃に生育の Maximum に到達するので，この時期に interception coefficient も Maximum になる。なお phloem system で移送されにくい核種は，転流の可能性が極めて少ない訳で，可食部に直接沈着したものだけが人体に摂取される可能性がある。このような核種では収かく直前の沈着が最も効果がある。何故ならば，沈着してから収かくまでの期間が長ければ長い程 weathering による除染の可能性が高くなり，反対に沈着から収かくまでの期間が短かい程 weathering による除染の可能性が低くなるからである。

4. 葉面吸収に関与する因子としての核種の溶解度

葉面沈着した放射性核種が葉面から吸収されるか否かはその溶解度にかかっている。渡部ら⁴⁾は，敦賀原子力発電所周辺で採取した松葉からの ^{60}Co ， ^{137}Cs および ^{54}Mn の脱離について実測

した。その結果を Table 1 に示す。表中 R は機械的な水洗により松葉から脱離した activity を、H はその水洗では松葉から脱離しなかった、いわば残留 activity を示す。注意しなければならないのは、脱離した activity 即水溶性ではないということである。表には示されていないが、水洗により脱離した画分を、membrane filter で濾過すると、大部分 (90% 程度) が filter 上に残り、濾液中に見出されるのは、上記 3 核種のいずれについても、10% 以下であったことを報告している。

Table 1 Duplicate measurements of the contribution of readily removable radionuclide and hardly removable radionuclide to the radioactive contamination of pine needles.

Sampling location	(pci/ kg dry)					
	^{137}Cs		^{54}Mn		^{60}Co	
	R*	H**	R	H	R	H
D	169	110	40	46	51	41
	277	26	63	4	101	4
E	223	48	30	6	20	4
	204	79	19	9	29	8
F	511	221	15	5	11	8
	316	170	17	9	20	11

*Readily removable radionuclide
 **Hardly removable radionuclide

(By Watabe et al.)⁴⁾

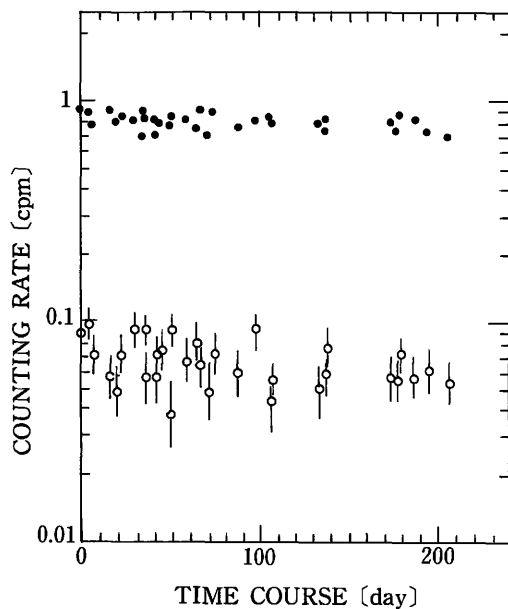


Fig. 2 Loss of ^{137}Cs (solid circle) and ^{60}Co (open circle) from 100 g-dry of dead leaves due to leaching by simulated rainfall.

Note : Bars present counting errors.

(By Watabe et al.)⁵⁾

渡部ら⁵⁾はまた松の落葉を風乾後粉碎し、これを円筒状の容器につめ、200日間に渉って、年間降雨量 1,500mm に相当する水を滴下し、松葉に残る activity を観測した。その結果を Fig. 2 に示す。図中黒丸は ¹³⁷Cs, 白抜丸印は ⁶⁰Co を示す。全体として、松葉に残留する ¹³⁷Cs および ⁶⁰Co の量が若干減少する傾向を示している。減少分は、水溶性の部分と見做すことができるが、その割合は極めて少なかった。この場合、材料として松の落葉を用いているので、すでに水に可溶性の部分降雨などで洗い流されている可能性があり、fresh deposition の可溶性画分の割合を示すものではないが、貴重なデータであると考えられる。

5. ガス状ヨウ素の化学形と葉面沈着

ガス状ヨウ素の葉面沈着についてはすでに第7回放医研環境セミナーでとり上げているので、ここではごく簡単にふれるにとどめる。ガス状ヨウ素の葉面沈着率はその化学形態によって大きくことなることは、すでに明らかにされている。この葉面沈着率は、単位時間に畑又は水田の単位面積当りに生育している作物全体に付着したヨウ素の量 (Bq/cm²・sec) と、大気中のヨウ素の平均濃度 (Bq/cm³) との比 V_g (cm/sec) として表わされることが多いが、Hoffman は⁶⁾、単位時間に作物の単位重量当りに沈着したヨウ素の量との比 V_d (cm²/g・sec) をとった方が実用的であると主張しており、この V_d を normalized deposition velocity と名づけている。両者の dimension から明らかであるように、V_d の値に作物の栽培密度 (g/cm²) を乗ずれば、V_g の値が得られる。Hoffman は、V_d から V_g への換算 (又はその逆) に、栽培密度の平均値として 1kg/m² を採用している。Table 2 にヨウ素の化学形態別の V_d と V_g の値を示す。なお本表では、V_d と V_g がそれぞれ m³/hg・sec および m/sec で表示されている。筆者らは⁷⁾、ムラサキツユクサへの I₂ および CH₃I の移行について検討し、I₂ は気孔からとり込まれるほか葉の表面に沈着すること、CH₃I は専ら気孔からとり込まれることを認めている。なお Adams ら⁸⁾ は、I₂ の牧草への移行について詳細な研究を行ない、この移行が気孔の開閉と直接関係があり、またその気孔の開閉が湿度と特に密接に関連していることを報告している。

Table 2 Deposition velocities for various iodine compounds

Form	Normarized dry deposition velocity (m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹)	Dry deposition velocity (ms ⁻¹)
Elemental iodine	0.1	1 × 10 ⁻²
HOI	5 × 10 ⁻³	5 × 10 ⁻⁴
CH ₃ I	3 × 10 ⁻⁵	3 × 10 ⁻⁶
Particulate iodine	1 × 10 ⁻²	1 × 10 ⁻³

(By Hoffman) ⁶⁾

このように、化学形態のちがいにより、葉面吸収される時の経路や沈着率に大きなちがいが認められる。

6. 経根吸収と化学形

内田らは⁹⁾、経根吸収経路から農作物可食部に移行する放射性物質の量を計算するための計算モデルについて解説している。それによれば、代表的な計算モデルが3種あるという。そのモデルを以下に示す。

計算モデル

- (1) $C_{\text{plant}} = TF \cdot C_{\text{soil}}$
- (2) $C_{\text{plant}} = (TF)' \cdot C'_{\text{soil}}$
- (3) $C_{\text{plant}} = F \cdot S \cdot (Pt/Pep) \cdot TC \cdot Ct/L(O + \rho Kd)$

C_{plant}	: 農作物（可食部）単位重量当りの RI 量 (Bq/g)
TF	: 移行係数 (Transfer factor) (—)
C'_{soil}	: 土壤単重量位当りの可給態 RI 量 (Bq/g)
$(TF)'$: (可給態) 移行係数 (—)
Pt	: 年間単位表面積当りの農作物生産量 (g/cm ² /y)
Pep	: 年間単位表面積当りの可食部生産量 (g/cm ² /y)
TC	: (農作物単位重量当りの) 蒸散係数 (m ² /g)
F	: 農作物中における RI の可食部への移行率 (—)
S	: 選択 (吸収) 係数 (—)
Ct	: 土壤単位表面積当りの RI 量 (Bq/cm ²)
L	: 土壤の深さ (根圏域の深さ) (cm)
O	: 土壤水分量 (m ³ /cm ³)
ρ	: 土壤密度 (g/cm ³)
Kd	: 分配係数 (m ² /g)

(By Uchida et al.)⁹⁾

(1)式は移行係数「TF」を用いる方法である。TF は播種から収穫期までの期間に、作物可食部に著積された放射性核種濃度 (Bq/g) と、土壤中の放射性核種濃度 (Bq/g) の比として定義される。本式は、単純であるだけに実用的とみられるが、放射性核種の土壤中での化学形態等の変動要因は考慮されていない。

第2式の $(TF)'$ の値は、TF とは異なり、分母の値として、作物に利用される形態としての可給態の値がとられている。(1)式の場合のように TF 値の設定に、単位土壤中の着目核種の全量を

とるのでなく、可給態をとっているという点で、RIの存在形態が考慮されているということが出来る。ここで問題となるのは、可給態測定法が2~3の元素を除いて確立されていないということ、及び土壤に負荷されたRIのAging効果について十分な知見が得られていないことである。本間ら¹⁰⁾は、土壤に⁶⁵Znを添加し、そのAging効果と可給態抽出剤の選定に関する実験を行なった。土壤に含まれる亜鉛については、これまでかなり研究が進められてきており、その可給態の抽出剤として、MgCl₂、0.1NHCl、EDTAおよびDTPA溶液などが推奨されてきている。しかしMgCl₂は塩溶液、0.1NHClは酸溶液、EDTAおよびDTPAなどはキレート剤であって、相互に化学的性質がことなるので、土壤中の同じ画分の亜鉛を抽出するとは考え難い。本間らは、上記4抽出剤の中ではDTPA抽出剤が可給態抽出剤として最も安定していることを報告している。また本間らは、田無火山灰土壤と那珂川沖積土壤に⁶⁵ZnCl₂を添加し、実験室内に放置した。その後ある時間間隔ごとに土壤の一定量を採取してDTPAで抽出し、抽出液中の⁶⁵Zn/Zn比放射能を測定した。その比放射能値の経日変化からAging効果を見ていく。結果の一例をFig. 3に示した。この図から明らかである様に、⁶⁵Zn添加後数十日の間は、比放射能値が急激に低下するが、その後はゆるやかに推移すること、しかしその比放射能値は全分解液中のそれより常に高い。この実験結果から、⁶⁵Zn添加後数十日のうちに、土壤中での存在形態が変化すること、しかし、

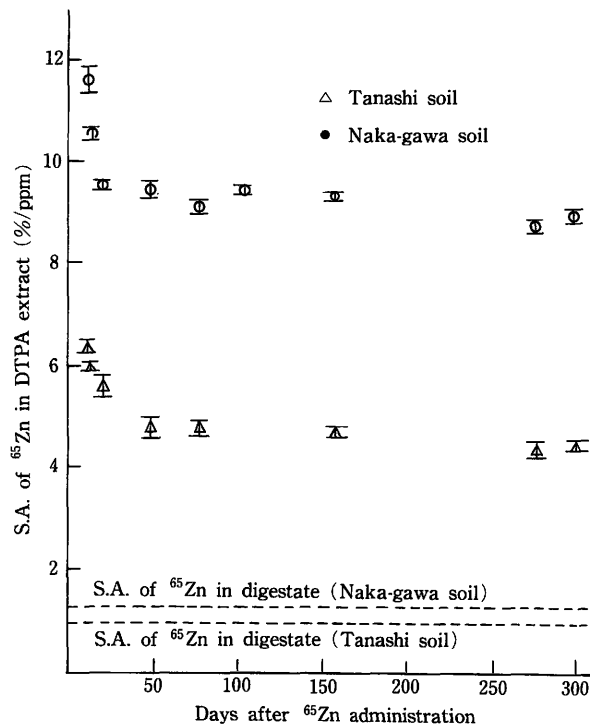


Fig. 3 Variations of S. A. of ⁶⁵Zn in DTPA extract as a function of time.

(By Honma et al.)¹⁰⁾

変化したとしてもその形態は可給態であることが推測された。今後放射性核種の土壌から作物への移行量を(2式)によって推定するためには、その Aging 効果と可給態測定法をあらかじめ設定しておくことが必要であること、そしてそのためにはかなりの時間をかけて地道に研究を進めてゆかねばならないことがわかった。

(3)式は Dorp¹¹⁾らが提出している計算式である。この計算式は、作物が RI を吸収する場合、土壌溶液中に含まれている RI を土壌溶液と共に吸収するという仮定のもとに組み立てられている。この式で作物への移行量に影響を及ぼす土壌間差は Kd によって補正するようになっている。式の上では、作物間差は水分蒸散係数 (TC) に、RI と水のどちらを優先的に吸収するかは、選択吸収係数 (S) として組み込まれている。RI の化学形のちがいは、直接式の中に組み込まれてはいないが、Kd や S に間接的に反映されている、あるいは反映させることができると考えられる。ここで化学形と経根吸収量との関係について検討した研究の一例を紹介する。村松らは¹²⁾水耕法でコマツナを栽培し、この水耕液に $^{131}\text{I}^-$ および $^{131}\text{IO}_3^-$ を添加して24時間後の吸収量の差をみた。その結果を Fig. 4 に示す。図において横軸の数字は実験に用いたコマツナの日齢を示

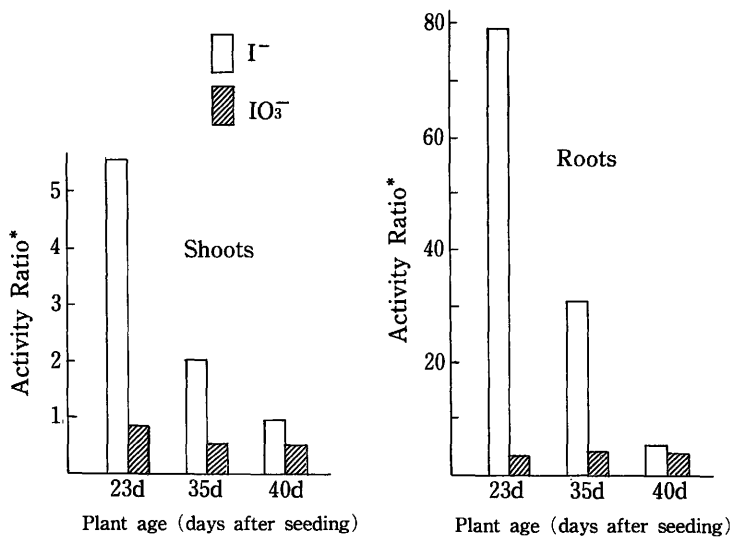


Fig. 4 One day uptake of iodide and iodate by Komatsuna, *Brassica Rapa var. pervidis*, of different growth stage.

(By Muramatsu et al.)¹²⁾

す。たて軸にはコマツナと水耕液の activity ratio をとった。日齢の若いコマツナ程吸収量が大きく、また I⁻ の方が IO₃⁻ より吸収され易いことがわかる。Fig. 5 に $^{131}\text{I}^-$ および $^{131}\text{IO}_3^-$ を含む水耕液でコマツナを1週間栽培した時の吸収量の日変化を示した。I⁻ も IO₃⁻ もほぼ直線的に吸収量がふえているが、I⁻ の勾配の方が IO₃⁻ のそれよりも大きい。この図でみるかぎり、IO₃⁻ もわずかずつであるが吸収されるように見える。Fig. 6 に水耕液中の IO₃⁻ の化学形態の

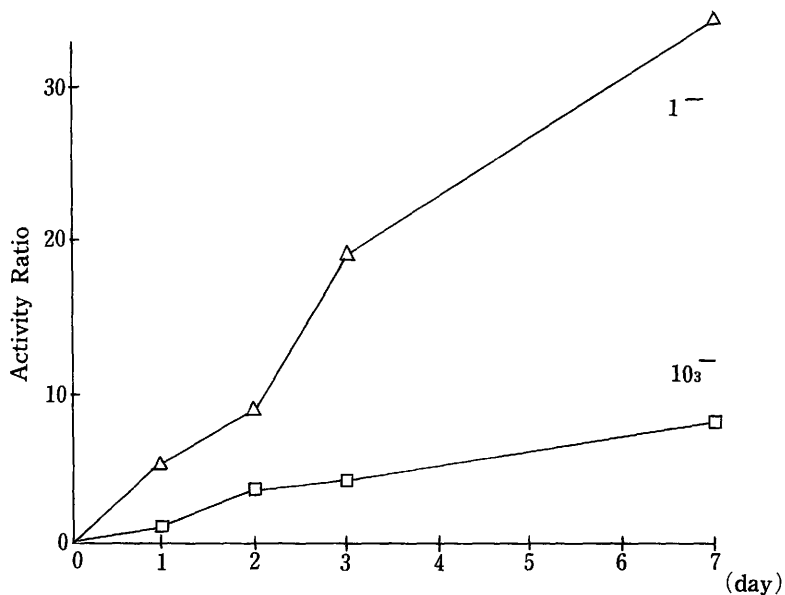


Fig. 5 Accumulation of iodine (iodide and iodate) in shoots of *Komastuna*, *Brassica Rapa* var. *pervidis*, as a function of time. (By Muramatsu et al.)¹²⁾

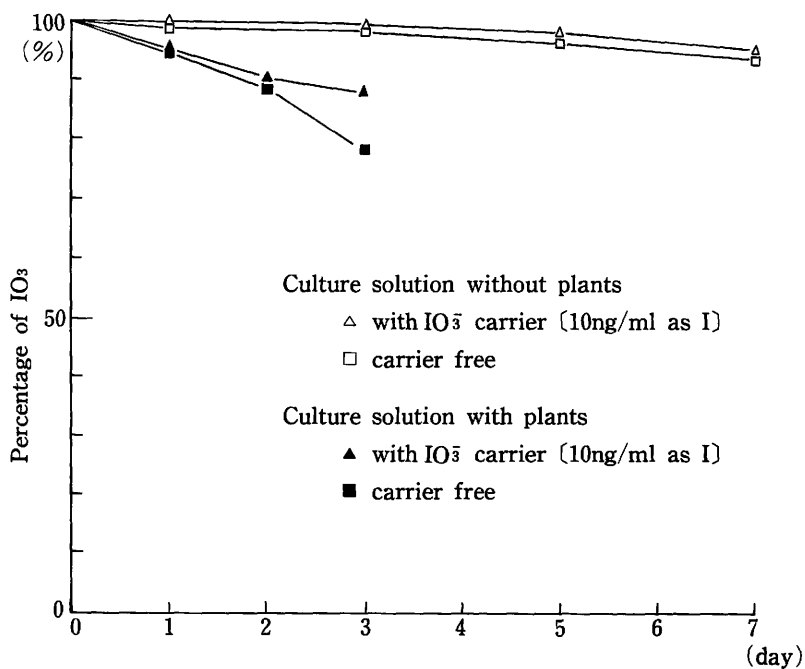


Fig. 6 Transformation of iodate to iodide in the solution with and without plant, and also with and without stable iodine carrier. (By Muramatsu et al.)¹²⁾

変化を示した。白抜きは作物がない場合、黒丸は作物がある場合、△印はキャリアーに添加した時、□印はキャリアーを添加しなかった場合のそれぞれの化学形態変化を示す。作物の根存在下では IO_3^- から I^- への変化が顕著に認められる。Fig. 4, 5 からは IO_3^- も吸収されるように見えたが、 IO_3^- から変化した I^- が吸収されたと見做すこともできる。最後に吸収される時の化学形態を知る方法のひとつとして、住谷らが行なった実験の一例を紹介しておく。

住谷らは¹³⁾、水耕栽培で一定の大きさまでサターン種のトマトを栽培しておき、RI を添加した水耕液に移植直後に水耕液面から 10cm のところで茎を切りはなし、切口から出てくる溢泌液を採取した。住谷らは、水耕液中 RI 濃度と溢泌液中 RI 濃度との関係を明らかにする目的で溢泌液を採取したのであるが、本法を利用することにより、吸収される時の化学形態を知ることができると考えられる。

参考文献

- 1) Muller, H., Eisfeld, K., Matthies, M. and Prohl, G. : Foliar uptake of radionuclides, Proc. of seminar on the transfer of radioactive materials in the terrestrial environment subsequent to an accidental release to atmosphere, 153—160, 1983.
- 2) Chino, M. : Personal information, 1984.
- 3) Yanagisawa, K. and Uchida, S. : Movement of Radio and Stable Elements in Soil-Agricultural Product-Man Pathway (7) Uptake-Transport of Radionuclides from Leaves—1, 日本放射線影響学会第27回大会, 千葉, 1984.
- 4) Watabe T. and Kamada H. : Airborne Radionuclides onto Pine Needle Collected in the Vicinity of the Nuclear Power Plant, *J. Radiat. Res.*, **25**, 140—149, 1984.
- 5) Watabe, T. and Kamada, H. : Transfer of Radionuclides through Soil-Plant Pathway. *J. Radiat. Res.*, **25**, 274—282, 1984.
- 6) Hoffman, F. O. ; A reassessment of the deposition velocity in the prediction of the environmental transport of radioiodine from air to milk. *Health Phys.*, **32**, 437—441, 1976.
- 7) Nakamura, Y. and Ohmomo, Y. : Transfer of Gaseous Iodine to Tradescantia, *J. Radiat. Res.*, **25**, 251—259, 1984.
- 8) Adams D. R. and Voilleqe P. G. ; Effect of stomatal opening on the transfer of I-131 from air to grass. *Health Phys*, **21**, 771—775, 1971.
- 9) 内田滋夫, 大桃洋一郎, 鎌田 博, 佐伯誠道 ; 土壌から農作物への放射性核種の移行に関する計算モデル, 日本原子力学会誌, **26**, 935—941, 1984.
- 10) Honma Y. and Ohmomo Y. : Chimiical States of Stable Zn and Aging Effect of ⁶⁵Zn in the Soil. *J. Radiat. Res.*, (in press) 1985.
- 11) Van Dorp F., Eleveld R. and Frissel M. J. : A new approach for soil-plant transfer calculations. IAEA Publication **STI/PUB/522**, 399—406, 1979.

- 12) Muramatsu Y., Christoffers D. and Ohmomo Y.: Influence of Chemical Forms on Iodine Uptake by Plant. *J. Radiat. Res.*, **24**, 326—338, 1983.
- 13) Sumiya M., Uchida S. and Yanagisawa K. : Movement of Radio and Stable Elements in Soil-Agricultural Product-Man Pathway (6) Transfer of Radionuclide to Agricultural Products by Root Uptake (III). 日本放射線影響学会第27回大会, 千葉, 1984.

1.2 放射性物質の農作物への 移行に及ぼす化学形の影響

小林 宏 信*

On the Effects of Physical and Chemical Forms of Radionuclides Existing
In Environment upon the Movement to Crops

Hironobu Kobayashi

National Institute of Agro-Environmental Sciences

Abstract

In general, the contamination of crops with radionuclides released in the environment, especially in the atmosphere, is known to occur mainly in two pathways, i. e., direct pathway; the atmosphere to the crops and indirect pathway ; the atmosphere to the plants via agricultural soils.

The relative proportions of the direct and indirect contaminations depend upon the deposition rates and the available amounts existing in the soils of the radionuclides during growing periods of the crops, respectively.

However, the quantitative relationships between the physical and chemical forms in the environment and the behavior to the crops of the radionuclides have not been examined in detail to date in relation to the contamination pathways.

Among the biologically hazardous man-made radionuclides, the following ones are considered to be very important from the angles of their behavior as affected by their forms in the pathways, the plant morphological and nutrio-physiological characteristics, and the types, and physicochemical properties of the soils, in addition to

* 農林水産省農業環境技術研究所

the meteorological and agricultural conditions including the soil management, fertilizer application, crop cultivation, etc.

In connection with the movement via direct pathway, such radionuclides as ^{131}I , ^{14}C , ^3H , etc., released in the atmosphere, after transformation into gaseous or vaporized substances with passage of time, enter easily in parts the crops through their aerial parts by adhesion and photosynthesis. Some radionuclides, for instance, ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{131}I , etc., dissolved in rain-water during their deposition, enter partly the crops after adhesion to their above-ground parts. Solid radioactive materials such as airborne dusts and particulates are taken up partly by the crops after entrapment in their flowers, leaves and stems.

In relation to the behavior via indirect pathway, the available (i. e., water soluble and ion exchangeable) amounts of the radionuclides such as long half-lived ^{90}Sr , ^{137}Cs , etc., and if necessary, moderate half-lived ^{144}Ce , ^{106}Ru , ^{55}Fe , ^{55}Mn , etc., and short half-lived ^{89}Sr , ^{131}I , and ^{140}Ba present in the plow soil layers during the crop growing periods after deposition on the soil's surface are very important.

Therefore, in order to solve the radiocontamination problems of the crops with the above-mentioned radionuclides in the environment from the quantitative aspects of their balance sheets in the agro-ecosystems, it is necessary to investigate their physical and chemical forms and their amounts in these forms, which contribute as absolute amounts to the contamination of the crops, in the atmosphere as well as in the agricultural soils in more detail.

はじめに

環境中、特に大気中に放出された放射性物質の農作物への移行経路は、一般に、大気→農作物の直接経路と大気→土壌→農作物の間接経路の2主要経路よりなることが知られている¹⁻⁷⁾。これらの経路から農作物への放射性物質の移行割合、すなわち放射能汚染に対する寄与率は、Table 1 と Fig. 1 に示した ^{90}Sr の解析事例からも明らかのように、農作物の生育期間中における大気からの降下率（直接汚染量）と降下後土壌中に保持され、しかも農作物の吸収しうる形態—可給態と呼ぶ—で存在している量（間接汚染量）により左右される。

しかしながら、これらの放射性物質の物理・化学的形態と農作物への経路別の移行量について定量的な研究は詳細に行なわれてこなかった。

1. 農作物の汚染として重要な放射性核種

生物学的に重要視されている人工放射性核種として、 ^{90}Sr 、 ^{131}I 、 ^{137}Cs などを筆頭に ^3H 、 ^{14}C 、

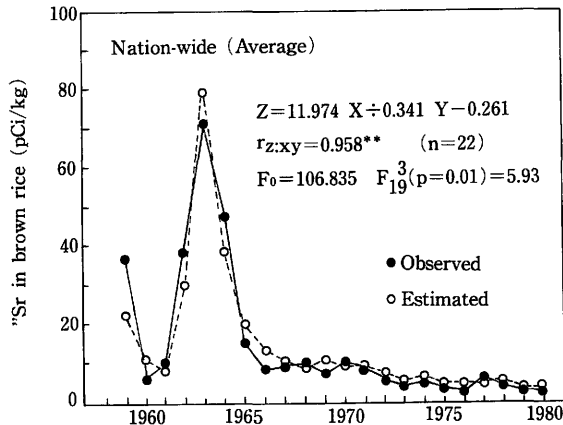


Fig. 1 Annual estimation of ^{90}Sr in brown rice via direct and indirect pathways.

Table 1 Simple, multiple and partial correlation to ^{90}Sr in brown rice with ^{90}Sr deposition rate and ^{90}Sr in paddy soil.

Name of sampling site	Number of samples n	Simple correlation coefficient			Multiple correlation coefficient	Partial correlation coefficient		Regression equation
		r_{xy}	r_{yz}	r_{xz}		$r_{xz \cdot y}$	$r_{yz \cdot x}$	
Sapporo, Hokkaido	22	0.478*	0.630**	0.896***	0.925**	0.872***	0.518**	$Z = 7.503X + 0.358Y - 3.192$
Akita, Akita	22	0.492*	0.455*	0.928***	0.928**	0.909***	-0.033	$Z = 11.004X - 0.006Y + 8.294$
Sendai, Miyagi	21	0.396	0.475*	0.877***	0.887**	0.851***	0.292	$Z = 13.082X + 0.558Y - 4.326$
Tachikawa, Tokyo	16	0.319	0.344	0.988***	0.888**	0.989***	0.197	$Z = 15.987X + 0.111Y + 2.662$
Habikino, Osaka	20	0.508*	0.651**	0.909***	0.936**	0.885***	0.530*	$Z = 10.375X + 0.388Y + 0.656$
Tsukushino, Fukuoka	22	0.671***	0.737***	0.924***	0.937**	0.857***	0.412	$Z = 20.822X + 0.368Y - 0.669$
Nation wide (I)	123	0.412***	0.440***	0.892***	0.896**	0.868**	0.178*	$Z = 11.696X + 0.136Y + 3.710$
Nation wide (II)	22	0.559***	0.632***	0.951***	0.958**	0.929***	0.393	$Z = 11.974X + 0.341Y - 0.261$

Correlation coefficients with signs *** and ** are significant at the levels of $p = 0.05$, 0.01 and 0.001 , respectively. $Z = ^{90}\text{Sr}$ in brown rice (pCi/kg).

$X = ^{90}\text{Sr}$ deposition rate during the period from the maximum tillering stage to the middle stage of ripening (nCi/m^2).

$Y =$ exchangeable ^{90}Sr in the plow layer soil at the harvest time (nCi/m^2).

Nation wide (I) and (II); Calculation was made using the individual and the yearly average data, respectively.

^{55}Mn , ^{55}Fe , ^{89}Sr , ^{140}Ba , ^{144}Ce , ^{106}Ru などが挙げられるが、気象条件や土壌管理、施肥、栽培などの農業条件のほか、放射性核種の各経路における形態別の挙動、農作物の形状と栄養生理的特性及び土壌のタイプ、種類、理化学的性質などを考慮すると、次の核種が重要であると思われる。

2. 直接経路により移行する主要核種

大気中に放出された ^{131}I , ^{14}C , ^3H などは、時間と経過に伴い、 $\text{CH}_3^{131}\text{I}$, $^{131}\text{I}_2$, $^{14}\text{CO}_2$, ^3HOH など気体や気化状に形態変化をうけて、一部は農作物の地上部に付着したりまた光合成により容易に農作物に移行し、降下時雨水に溶解した ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{131}I などは農作物の地上部に付着したのち、それらの一部は体内に取り込まれる。浮遊塵や粒子状の固体放射性物質は農作物の花部、莖葉部などで捕捉されて一部は体内に移行する⁵⁾。

3. 間接経路により移行する主要核種

地表に降下し、農耕地土壌に取り込まれた放射性核種のうち、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs などの長半減期核種が特に重要視されており、また ^{144}Ce 、 ^{106}Ru 、 ^{55}Fe 、 ^{55}Mn などや ^{89}Sr 、 ^{131}I 、 ^{140}Ba などの中・短半減期核種も場合によっては考慮する必要がある。これらの核種の土壌中における存在形態は、水溶性、置換態及び固定の3形態に大別されているが、特に前二者は作土における場合には可給態として重要であり、その存在量は作土中の粘土鉱物の種類と量、腐植の質と量、土壌の pH と酸化還元電位などにより支配される⁸⁻⁹⁾。また農作物からみれば、これら可給態量と吸収量との関係を明らかにする必要がある。

おわりに

以上、放射性物質の農作物への移行に及ぼす化学形の影響について経路別の概説したが、環境中に放出された放射性核種による農作物の汚染問題を農業生態系における核種の収支の面から定量的に解明するためには、農作物汚染に対して絶対量として影響を与える放射性核種の大気および農耕地土壌中に存在する物理・化学的形態とそれらの存在量を詳細に検討することが必要である。

参考文献

- 1) Schuffelen, A. C.: On the radioactive contamination of soils and crops, Agricultural and Public Health Aspects of Radioactive Contamination in Normal and Emergency Situations, FAO Atomic Energy Series. No. 5, pp. 67~91, 1964.
- 2) FAO : Radioactive contamination of Soils and crops. Radioactive Materials in Food and Agriculture, FAO Atomic Energy Series, No. 2, pp. 35~65, 1960.
- 3) 日本化学会編：陸上生物と放射性物質，「放射性物質」環境汚染物質シリーズ，pp. 119~127，丸善1977.
- 4) 小林宏信：放射性物質の植物による吸収，放射性物質による陸圏の汚染と線量推定の諸問題，第6回放医研環境セミナー，pp. 135~153，放医研，1979.
- 5) 大桃洋一郎：大気から植物への放射性物質の移行（吸着）「環境放射能」，pp. 110~116，ソフトサイエンス社，1984.
- 6) 小林宏信：放射性物質の植物による吸収，「環境放射能」，pp. 189~199，ソフトサイエンス社，1984.
- 7) 小林宏信，駒村美佐子，津村昭人：農業環境における人工放射性核種の挙動に関する解析的研究——放射能汚染調査資料の解析による ^{90}Sr の挙動——，農技研報 B. 36, pp. 115~170, 1984.

- 8) 津村昭人, 駒村美佐子, 小林宏信: 土壤及び土壤-植物系における放射性ストロンチウムとセシウムの挙動に関する研究, 農技研報 B. 36, 57~113, 1984年.
- 9) 本間美文, 茅野充男: 土壤中における放射性核種の存在形態, 「環境放射能」, pp. 170~177, ソフトサイエンス社, 1984.

2 海洋生物への移行

- | | |
|--------------------------------|------|
| 2.1 総論 | 小柳 卓 |
| 2.2 放射性物質の生物濃縮 | 鈴木 讓 |
| 2.3 濃縮係数の変動要因としての
放射性核種の化学形 | 本田嘉秀 |

2.1 総論

小柳卓*

Transfer to Marine Organisms (review)

Taku Koyanagi

Division of Marine Radioecology
Laboratory for Radioecology, Nakaminato
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

The difference of behavior between radionuclides and their stable isotopes in marine ecosystems due to their different chemical forms frequently causes the large fluctuations of concentration factor which is one of the most important parameters to predict the concentration of radionuclides in marine organisms for estimating the internal radiation exposure to men through the consumption of seafoods.

The complicated behavior of organic or inorganic complexed forms of fission products or corrosion products, such as radoruthenium or radiocobalt has been studied on various marine organisms and seawater and their different biological availabilities have been pointed out with the different specific activities of these nuclides between organisms and seawater suggesting the limitation of applicabilities of concentration factors calculated from the results of stable element analysis for radionuclides.

The oxidation state of elements also affects their transfer from seawater to marine organisms and it has been reported that the concentration factor of radioiodide by

* 放射線医学総合研究所・海洋放射生態学研究所

fish is an order of magnitude higher than that of radioiodate.

Although the diversities of concentration factors are not always explained only by the effect of chemical forms of radionuclides, their multiplied effects with other environmental or biological factors on the transfer of radionuclides in marine ecosystems should be clarified with further detailed investigations to minimize the uncertainties in dose assessment caused by the fluctuations of transfer parameters.

はじめに

種々の汚染源から環境に放出された放射性核種が、どのような形態で海洋に導入され、いかなる存在形態をとるかを示すことは、海洋生態系における放射性核種の移行を解析し、海洋環境経由の人体の放射線被曝量を評価する上で、きわめて重要かつ不可欠の検討課題とされている。特に、放出放射性核種の多くは元来海洋に存在している元素とは異った形態で海水中に導入されるため、その物理・化学的および生物学的挙動が対応する安定同位元素あるいは同族元素と必ずしも一致しないことが、しばしば問題点の一つとされている。なかでも海洋生態系における放射性核種の移行に関して重要な役割を果たしている海産生物は、それ自身、放射性核種を濃縮することによって放射能汚染水産食品の摂取による人体の放射線内部被曝に寄与するばかりでなく、その生物活動によって放射性核種、あるいは安定微量元素の存在形態ならびにその変化に対してきわめて重要な影響を及ぼしていることがよく知られている。

海洋放射能に由来する人体の放射線内部被曝量を評価するに当たって重要なパラメーターの一つとして用いられる濃縮係数は、海産生物中の放射性核種（又は安定元素）の濃度を海水中の放射性核種（又は安定元素）の濃度で割った値として示され、定常状態の下での海産生物の究極的な汚染レベルを推定するための係数として定義されている。しかしながら実際には、フィールドでの観測でも、あるいは室内での実験でも得られる濃縮係数の値には同一核種、同一生物種といえども可成りの変動巾があり、実用面への適用に際して採用すべき値の選択が常に問題となる所である。これは、濃縮係数の値を支配する要因が水質、pH、温度という様に環境条件に由来する外的なもの、生物種や成長段階、雌雄差など生物自体に起因する内的なものがあるほか、ランダムな個体差なども加わって複雑な様相を取るためであることが知られており、それらが相互に関与する結果生ずる現象であって、単一の要因のみを取り上げて検討することは決して現実的ではないと考えられる。しかしながら、ここでは本セミナーの主題にかんがみ、いわば外的要因の一つである放射性核種、あるいは安定元素の化学形が、生物濃縮に対しいかなる影響を及ぼすかを中心に考慮することとする。

海洋における放射性核種および安定微量元素の存在形態

海水中の元素の形態については、すでに前のセッションで充分論じられているので、ここでは簡単にふれるにとどめる。Table 1 はかつて D. E. Robertson¹⁾ が示した表の引用で元素の存在形態

Table 1 Possible physico-chemical forms of radionuclides and trace elements in the ocean.¹⁾

True Solution (真生溶液) <0.001 microns	1) Simple Hydrated Ions 2) Inorganic Complex Ions 3) Organic Chelates 4) Molecules and Polymeric Species 5) Ion Pairs
Colloidal (コロイド) 0.001-0.1 microns	1) Mineral Substances 2) Hydrolysis and Precipitation Products 3) Biopolymers and Detritus
Particulate (粒子) 0.1-50 microns	1) Organic Particles a) Plankton b) Detritus c) Bacteria and Microorganisms 2) Inorganic Particles a) Mineral Substances b) Precipitated and Coagulated Particles

を粒子の大きさから、真生溶液、コロイド、および粒子の三つに大別している。化学形と言う用語から逸脱する例もあるかと思われるが、アルカリ又はアルカリ土類金属に属するセシウム、ストロンチウムなどが比較的単純な水和イオンとして存在する事が知られているのに対し、亜鉛や鉄、銅、あるいは銀や水銀など多くの遷移金属元素が、海水中の無機、有機のリガンドと結合して錯体や高分子物質の形態をとり、溶存、あるいはコロイドなどの形で存在し、生物への移行に際しても種々の影響をもたらすことが知られている。但し溶存とコロイド状との間の差別は場合によっては必ずしも容易でなく、その存在割合の決定にはなお検討の余地が残されている。最後に粒子状(0.1~50ミクロン)のものには、有機態と無機態のものがあり、前者にはプランクトンやデトリタス、バクテリア等が、後者には、陸圏由来の鉱物質や再懸濁した底質などが含まれる。深海水中の粒子状物質中では、有機物と無機物の存在割合が1:1であると言う様な古い報告もみられるが、最近のサンプリング法あるいは分析法によれば、粒子状で存在すると思われる元素は以前に考えられていたよりもずっと少なく、特に鉄などは、0.5ミクロン<の粒子状での存在割合は従来の説より1/10も少ないとされている。例えば0.5ミクロンのメンブレンフィルターで濾過しても、Ni, Cu, Zn, Co, Sb, U, Cs, Sr, Scなどは殆んど捕まらない、たゞ Slowey と Hood²⁾ はメキシコ湾の海水を0.45ミクロンのフィルターで濾過して、Cuは30%、MnとZnは約10%は0.45ミクロン以上の粒子と結合していたと報告している。

Table 2 は主な核分裂生成物の海水中での存在形態を示したもので、かつて Greendale と Ballou³⁾ は Zr-Nb, Ru, Ce などはその大部分が粒子状で存在すると推定したが、その後 Silker⁴⁾ は大量のサンプルを用いて検討し、0.3ミクロン以上の粒子として存在する割合を、表にみられる様にかなり低く見積っている。但し、これらは外洋水の例であって沿岸海水中では懸濁物や生

Table 2 Comparison of present physical states of radioelements in oceanic waters with data of Greendale and Ballou.¹⁾

Radioelement	Percent Particulate in Seawater	
	Present Oceanic Waters (Silker, 1969)	Greendale and Ballou 1954 Laboratory Simulation
Zirconium-Niobium	1-13 (8)*	96-100
Ruthenium	1-3 (2)	95
Cerium	1-54 (21)	94
Cesium	1	23

* Average value in parentheses

物活動の影響が大きいために外洋水とはかなり様子が異なり、例えばハンフォードやウインズケールの原子力施設から沿岸に放出された放射性核種の場合の様に Zr-Nb, Ru, Ce などがデトリタスやプランクトンへの濃縮がいちぢるしいため、主として溶存すると考えられる Cs とはかなり違った生物濃縮現象を示すと言う報告⁵⁾などはよく知られるところである。

放射性核種の形態別生物濃縮

Table 3 は主な核分裂生成物の安定同位体について海水中の濃度と存在形態を示したものであるが、例えば Ru では陽イオン、陰イオン、中性種等の化学種のほか粒子状での存在も推定される。使用済み核燃料再処理工場からの排出に関して放射性ルテニウムはニトロシルルテニウム錯塩の形で放出が予想されることから、それら種々の錯体の形に調整した RI のほか、さらに、電気泳動等の手段によって陽イオン、陰イオンあるいは中性種に分離した RI を用いたトレーサー実験による化学形の影響の検討例がいくつか報告されている。Fig. 1⁶⁾ および 2⁷⁾ にその結果を示したが、イオン種によって濃縮係数に最高50倍近い差を招く可能性が示唆されている。Sr および Cs についてはその存在形態が比較的単純で濃度変動の巾も小さい点から問題が少ないが、Ru

Table 3 Concentrations and Physico-chemical States of Trace Elements with Fission Product counterparts in open oceanic waters.¹⁾

Element	Abundance ($\mu\text{g/l}$)	Principle Species
Ruthenium	4-7 ($\times 10^{-4}$)	Anionic, Cationic, Neutral, Particulate
Cesium	0.28	Cs ⁺
Strontium	8000	Sr ⁺² , SrSO ₄
Niobium	0-0.005 (filtered) 0.01-0.1 (unfiltered)	Nb (Colloidal hydroxide)
Zirconium	0.01-0.04	?
Cerium	8.5-42 ($\times 10^{-4}$)	Ce ⁺⁴ , Ce ⁺³ , Colloidal, Particulate
Europium	0.95-1.4 ($\times 10^{-4}$)	Eu ⁺³ , Colloidal, Particulate

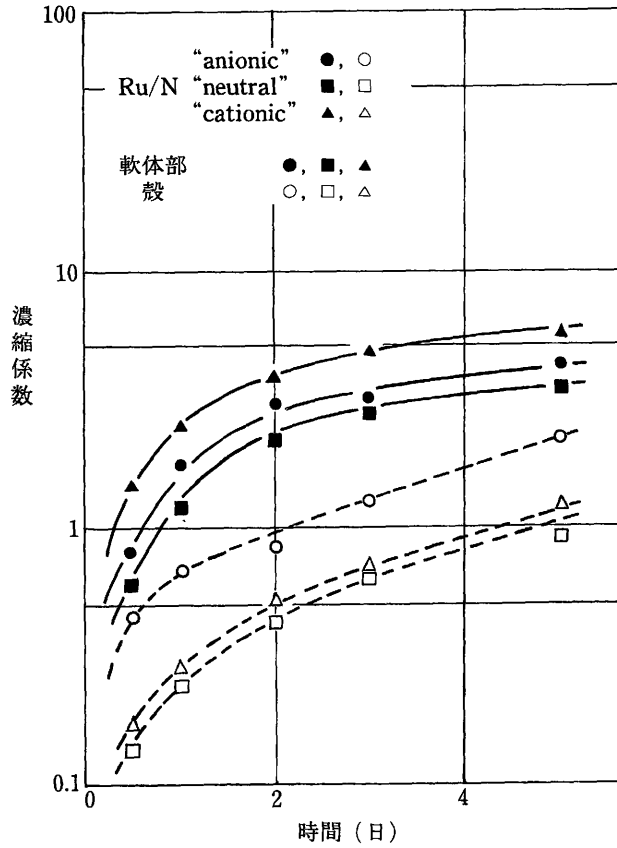


Fig. 1. Uptake of electrodialytically separated anionic, cationic and neutral fractions of ^{106}Ru nitrosyl-nitrato complexes by shell and soft tissue of mussels.⁶⁾

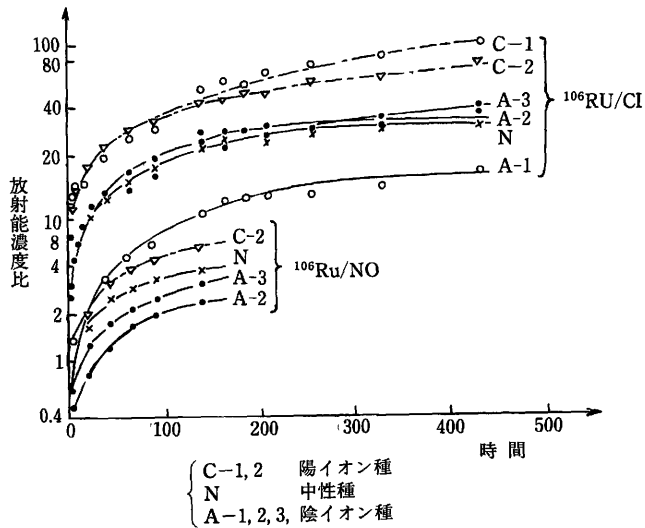


Fig. 2. Uptake of ^{106}Ru chloro complex species ($^{106}\text{Ru}/\text{Cl}$) and ^{106}Ru nitrosyl-nitrato species ($^{106}\text{Ru}/\text{NO}$) by *Fucus virsoides*.⁷⁾

やCe, Zr やNbなどは、その海水中濃度が低い上に、沿岸水と外洋水との間の濃度差も大きく、形態的にも均一に分布するとは考え難い。

更に分析法自体にもまだ不十分な点が残されているとする意見も見られ、信頼に値する定量値はきわめて乏しい現状である。化学形の問題も確かに重要であるが、その濃度分布や挙動の解析に³応えうるデータの蓄積が望まれる。

次に誘導放射性核種に対応する安定同位元素の海水中濃度と、その主たる存在形態を Table 4¹⁾に示した。半減期2.4年の⁵⁵Fe や45日の⁵⁹Fe, 71日の⁵⁸Co や5.2年の⁶⁰Co, 312.5日の⁵⁴Mn,

Table 4 Concentrations and physico-chemical states of trace elements with activation product counterparts in open oceanic waters.¹⁾

Element	Abundance* ($\mu\text{g/l}$)	Principle species
Iron	1-20 (5)	Fe (OH) ₃ , Colloidal, Fe chelated, Fe (OH) ₂ ⁺
Cobalt	0.005-0.5 (0.03)	Co ⁺² , CoSO ₄
Manganese	0.01-0.88 (open sea)	Mn ⁺² , MnSO ₄
Zinc	1-10 (4)	Zn ⁺² , ZnOH ⁺ , Zn chelated
Nickel	0.5-3 (1)	Ni ⁺² , NiSO ₄
Chromium	0.01-0.8	Cr ⁺⁶ , Cr ⁺³
Scandium	0.0001-0.001	Sc ⁺³ , Colloidal, Particulate
Europium	0.95-1.4 ($\times 10^{-4}$)	Eu ⁺³ , Colloidal, Particulate
Tantalum	0.002	?
Silver	0.002-0.04 (0.01)	AgCl ₂ ⁻ , AgCl ₃ ⁻⁻

* Average values in parenthesis

244日の⁶⁵Zn など、いづれもフォールアウト中でもまた、原子炉廃液中でも重要な地位を占める主要放射性核種であるばかりでなく、それらの安定同位体の多くが生物にとって必須元素であって、通常大きな生物濃縮係数を示す点からも重要視されるものである。特にそれら遷移金属元素の存在形は、表にも見られる様に、溶存、コロイド、粒子状と非常に複雑であり、新たに導入される放射性核種とでは生物体への可給性が異なることが知られている。Table 5¹⁾に見られる様にCo, Zn およびCsの比放射性を(1)サンマ、(2)ハダカイワシ、(3)トンガリハダカ属、(4)サクラエビ属、そして(5)ハダカホテイについて海水の比放射性と比較すると、Csではほぼ1前後の値を示すのに対し、Coでは100、Znでは300にも達し、放射性核種の方が、安定同位体にくらべると生物に取り込まれやすい形態であったためと説明されている。

たとえばFeの場合、Dayies (1967)⁸⁾は海藻への⁵⁵Feの取り込みをしらべ、新しく生成されたばかりの水酸化鉄は海藻の表面に速やかに吸着するが、海水中で時間が経過したのちの水和鉄は反応性を失ない、海藻にはすぐには取り込まれないことを観察している。したがって彼は、新たに表面海水に降下した放射性鉄の方が、新鮮な水酸化鉄の形となって、従来より存在した非放射性の鉄よりも優先的に海藻表面に吸着し、さらにそれが食物連鎖を経由してプランクトンや魚、貝などに順次移行するであろうと推定している。そうした観点からみると、Table 6¹⁾に示した

Table 5 Comparison of specific activities of ^{60}Co , ^{65}Zn and ^{137}Cs in surface sea water and in marine organisms.¹⁾

海水	比放射能 (dpm/gram of element)	
$^{60}\text{Co}-\text{Co}$	1×10^4	
$^{63}\text{Zn}-\text{Zn}$	$< 1 \times 10^2$	
$^{137}\text{Cs}-\text{Cs}$	4×10^6	
	比放射能 (dpm/gram of element)	生物の比放射能 海水の比放射能
1. <i>Colalabis saira</i> (サンマ)		
$^{60}\text{Co}-\text{Co}$	$\sim 1 \times 10^6$	~ 100
$^{63}\text{Zn}-\text{Zn}$	$\sim 1 \times 10^4$	> 100
$^{137}\text{Cs}-\text{Cs}$	$\sim 6 \times 10^6$	~ 1.5
2. <i>Diaphus theta</i> (ハダカイワシ属)		
$^{60}\text{Co}-\text{Co}$	4×10^5	40
$^{63}\text{Zn}-\text{Zn}$	3.4×10^4	> 340
$^{137}\text{Cs}-\text{Cs}$	$\sim 4 \times 10^6$	~ 1
3. <i>Lampanyctus ritteri</i> (トンガリハダカ属)		
$^{60}\text{Co}-\text{Co}$	$\sim 4 \times 10^5$	~ 40
$^{63}\text{Zn}-\text{Zn}$	$\sim 6 \times 10^3$	> 60
$^{137}\text{Cs}-\text{Cs}$	2×10^6	0.5
4. <i>Sergestes similis</i> (サクラエビ属)		
$^{60}\text{Co}-\text{Co}$	1×10^6	100
$^{65}\text{Zn}-\text{Zn}$	3×10^4	> 300
5. <i>Tactostoma macrurus</i> (ハダカホテイ)		
$^{60}\text{Co}-\text{Co}$	$\sim 7 \times 10^5$	~ 70
$^{63}\text{Zn}-\text{Zn}$	$\sim 2 \times 10^3$	> 20

Table 6 Specific activity of ^{55}Fe (nCi/mg Fe) in three species of Salmon.¹⁾

Species	Number individuals	Specific activity
Chinook (predaceous)	4	1.2
Pink	2	7.7
Coho	6	11.8
Chum	1	15.1
Sockeye (filter-feeder)	2	15.4

様に同じサケの仲間でも肉食性のマスノスケ Chinook よりも、カラフトマス Pink, ギンザケ Coho, シャケ Chum, ベニザケ Sockeye という様にフィルターフィーダーになるにつれて比放射能の高いプランクトンの影響を受けて魚の比放射能も高くなっていることがわかる。ただし放射性鉄も十分に長い時間経過したのちには安定鉄と等しい形態に変化すると考えられるところから、どの時点で生物が取り込むかによっては鉄の形態別生物濃縮が観察されない可能性もあるこ

とに注意しなければならない。

^{65}Zn に関しても、先に示した通り安定 Zn の存在形態としては Zn^{+2} , ZnOH^+ , Zn キレートなどの形が推定されているのに対しあらたに導入される放射性 Zn は、必ずしもすべての形態の安定 Zn と直ちに置換されるとは限らず、その間における生物への可給性の違いによって違った生物濃縮が起ると説明されている。Table 6 でみる限り ^{65}Zn の方が安定 Zn よりも生物によって取り込まれ易いことが示唆されており、一旦生物体内での代謝過程を経由した Zn の方が可給性が低いと考えられているが、逆の観察例もあって単純ではないものと推定される。

^{60}Co の場合は、その安定同位体が沿岸海水中では大部分有機態で存在するとする説があることから、もっぱら有機態、無機態の間の比較に焦点をあてた検討例が多い。たびたび引用される例であるが、Table 7⁹⁾ に見られる様に生物、底質をふくめ、無機態を代表するイオニックな Co と、有機態を代表するシアノコバラミンの形の Co とでは最も著しい場合には約33倍程度の差があることを示している。単純な見方をすれば、吸収されやすいのは有機態 Co で貝の軟体部に

Table 7 Discrimination factors for marine organisms and sediments and fresh water phytoplankton for organic and ionic cobalt in water.⁹⁾

試料	取り込み率 (有機コバルト/イオン状コバルト)
海水植物プランクトン	15
海水動物プランクトン	15
アルテミア (<i>Artemia</i>)	15
カニ (幼生)	5
貝, 軟体部 (<i>Donax</i>)	4
海底付着生物	4
遠海長尾類 (甲殻類)	0.9
沿岸海底堆積物	0.5
ウミザリガニ (ぬけがら)	0.5
ウミザリガニ (全体)	0.4
淡水植物プランクトン	0.2
貝がら (<i>Donax</i>)	0.03

よく取り込まれ、貝殻への無機態の Co の移行は主として物理的な表面吸着によるものであろうと推定できるが、この場合にも実験条件や生物種などの違いによっては逆の結果も報告されており、また有機態 Co のすべてをシアノコバラミンの挙動からのみ論ずることに問題がある。たゞ、前にも述べた通り、沿岸海水中で有機態での存在が推定される元素はかなり多く、無機態で海洋に放出された放射性核種がそれら安定同位体と同様の有機態へ変化する過程、あるいは時間的な相互作用などは、次にのべる食物連鎖移行との関連においても十分な検討を要する課題であろう。

生物が放射性核種を海水から直接取り込むか、食物連鎖を経由して取り込むかについての議論もまた核種や生物の違いによっていろいろとわかれるところである。室内実験やフィールドサー

ベいの結果から、いずれの取り込み経路が優先するかはお、よそ推定がついてはいるが、ここでも単に取り込みがエラや体表などの上皮細胞を経由した海水からの直接吸収か、餌を通しての消化管吸収によるかの違いだけでなく、海水中と餌料中とでは放射性核種の化学形が異っている可能性についての考慮が必要であり、それがそれぞれの経路での吸収率あるいは移行率に差をもたらすことも充分考えられる。

Table VIII¹⁰⁾ は Pentreath らによる検討結果で、ヒラメによる ⁵⁹Fe の保持率は餌の形が殿粉であっても標識したゴカイであっても負荷量のおよそ 30% と違わないにも拘らず、前者では投与した ⁵⁹Fe の大部分が消化管に残留しているのにくらべ、後者の場合におよそ 80% が魚体に吸収

Table 8 Percentage distribution and absorption of radionuclides by plaice, *Pleuronectes platessa*.¹⁰⁾

Organ	⁶⁵ Zn			⁵⁴ Mn			⁵⁸ Co			⁵⁹ Fe		
	Gelatine	Starch	Nereis	Gelatine	Starch	Nereis	Gelatine	Starch	Nereis	Gelatine	Starch	Nereis
Liver	2.4	3.9	1.6	13.4	9.2	7.4	0.7	1.8	0.7	2.1	1.2	1.2
Kidney	1.8	2.2	0.8	2.0	2.0	1.5	0.5	1.2	0.2	0.9	0.4	0.8
Gut	44.9	32.1	17.2	34.4	41.8	17.5	11.2	9.8	48.1	82.1	88.7	20.1
Gill	1.7	1.2	0.9	5.7	2.8	4.3	0.4	0.5	0.3	0.4	0.1	0.4
Rest	46.1	60.6	79.6	44.5	44.2	69.3	87.1	86.8	50.7	14.6	9.6	77.6
% retention	72.0	71.2	35.7	14.0	44.9	40.3	25.8	71.9	3.5	15.5	34.6	32.0

され体内に蓄積したと見なされている。すなわち取り込み経路は同じであってもこれだけ吸収率が異なるのは、それぞれの餌料中での ⁵⁹Fe の化学形が違っているためと解釈されている。この様な例は ⁶⁰Co など他の放射性核種でも観測されており、化学形の差が、移行率に影響するばかりでなく生物体内における臓器組織分布にも差異をもたらすことに注意を拂う必要がある。

放射性核種の食物連鎖移行に対する化学形の影響をヨウ素についてしらべた例がある。ヨウ素の海水中における存在形はヨウ素イオン (IO₃⁻) が主体で、沿岸海水の場合には生物の関与もあってヨウ化物イオン (I⁻) の形でも存在することが知られているが、放射性ヨウ素の魚への取り込みは I⁻ の形の方が IO₃⁻ の形よりも 10 倍高いという報告例がある^{11),12)}。海藻への取り込みにおいても同様の傾向が観察されるが、海藻から魚へ移行したのちの代謝過程においては生物学的半減期等、代謝速度に多少の差は見られるものの、体内分布や生体成分との結合などに関しては有意な差がみられず、一旦生体内に取り込まれたのちのヨウ素の挙動には、化学形の影響はあまり大きくないことが示唆されている。

おわりに

放射性核種の形態別生物濃縮に関する問題は単に化学形についての検討のみでは説明しきれないことをいくつかの例をあげて紹介したが、たとえば濃縮係数の変動に対する寄与は、化学形のみについて見ればせいぜい 2 倍程度の範囲であり、核種によっては 10²~10⁴ の変動巾を示す濃縮

係数の変動要因として放射性核種の化学形だけですべてを説明し得ないことも明らかである。しかしながら各種要因にもとづく相乗効果に対して果す化学形の役割の重要性が決して無視できないものであることもまた明らかであり、さらに厳密な意味における化学形の影響についての詳細な検討が是非必要と考える。

参考文献

- 1) Robertson, D. E.: Influence of the Physico- chemical Forms of Radionuclides and Stable Trace Elements in Seawater in Relation to Uptake by the Marine Biosphere, "Marine Radioecology", OECD NEA, pp. 21- 93, 1971.
- 2) Slowey, J. F. and Hood, D. W.: Copper, manganese and zinc concentrations in Gulf of Mexico waters, *Geochim. Cosmochim. Acta* **35**, 121- 138, 1971.
- 3) Greendale, A. E. and Ballou, N. E.: Physical state of fission product elements following vaporization in distilled water. USNRDL- 436, U. S. Naval Radiological Defence Laboratory, San Francisco, Calif., 1954.
- 4) Silker, W.B.: Unpublished data. Battelle Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1971.
- 5) Osterberg, C., Percy W. G. and Cur, Jr., H.: Radioactivity and its relationship to oceanic food chains. *J. of Mar. Res.*, **22**, 1964.
- 6) Keckes, S., Pucar, N. and Marazovic, L.: Accumulation of Electrodealytically Separated Physico- chemical Forms of ^{106}Ru by Mussels., *Int. J. Oceanol. Limnol.*, **1**, 246- 253, 1971.
- 7) Ishikawa, M. and Pucar, Z.: Continuous Electrophoretic Separation of ^{106}Ru Species in Sea Water and Uptake of the Separated Fractions by Sea Algae. *J. Radioanal. Chem.*, **14**, 53- 61, 1973.
- 8) Davies, A. G.: Studies of the accumulation of a radio- iron by a marine diatom. In *Radioecological Concentration Processes*, pp. 983- 991, 1967.
- 9) Lowman, F. G. and Ting, R. Y.: The state of cobalt in seawater and its uptake by marine organisms and sediments, In "Radioactive Contamination of the Marine Environment". IAEA, **STI/PUB/313**, pp. 369- 384, 1973.
- 10) Pentreath, R. J.: Radiobiological studies with marine fish. In *Design of Radiotracer Experiments in Marine Biological Systems*. IAEA Technical Report Series No. **167**, pp. 137- 170, 1975.
- 11) Fromm, P. O.: Some aspects of radioiodine metabolism in marine teleosts, *Bull. Inst. Oceanogr.*, Monaco, **64**, no. 1329, 12p., 1965.
- 12) Hirano, S., Ishii, T., Nakamura, R., Matsuba, M. and Koyanagi, T.: Chemical forms of radioactive iodine in seawater and its effects upon marine organisms. *Radioisotopes*, **32**, 319- 322, 1983.

2.2 放射性物質の生物濃縮

鈴木 讓*

Bioconcentration of Radionuclides

Yuzuru Suzuki

Division of Marine Radioecology,
Laboratory for Radioecology, Nakaminato
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

When marine algae were held in the filtrated sea water contaminated by inorganic ^{60}Co , radioactive organic component in sea water increased with time, and about 70% of the total radiocobalt in sea water changed from inorganic to organic form at the 8th day from start of the experiment. This radioactive organic component was estimated to be a kind of polysaccharides with molecular weight of about 1,400 from the results of gel chromatography and spectrophotometry.

In general, it is considered that such organic materials in sea water contribute largely to accumulation of radionuclides by marine organisms.

海水中に放出された放射性物質は動植物プランクトンをはじめ沿岸に棲息するほとんどの海洋生物によって大なり小なり濃縮される。また、これらの生物中の放射性物質は食物連鎖を通して他の生物へ移行し、あるいは生物の死と共に海洋バクテリア等によって分解される。沿岸では生物相が豊富であるため、これらの分解産物も当然多くなり、植物体由来の酸性多糖や、動物体由来のタンパク質、ペプチド、アミノ酸、酸性ムコ多糖との結合体や錯体など多種類に亘っている。これらの分解産物の一部は再び生物によって利用され糖やタンパク質に合成され一部は

* 放射線医学総合研究所・海洋放射生態学研究部

可溶性有機態として海水中に存在する、いわゆる有機物生産サイクルの存在が指摘されている¹⁾。²⁾。従って放射性物質が仮に無機形で海水中に放出されても全てが無機形のまま濃縮されるとは限らず、時間の経過と共に有機化されてゆくものも多いと思われる。例えば、海水中にアオサと無機態⁶⁰Coを添加すると、キレックス樹脂に捕集されない成分は経時的に増加し、8日目には海水中に溶存する⁶⁰Coのほぼ70%がキレックスカラムを通過するようになった。この成分を集めてゲルロカ(セファデックス G-25)すると分子量1,400程度の多糖類と思われる物質であることがわかった。つまり、このことはアオサから海水中へ溶け出た有機態物質と⁶⁰Coが結合し、最初に添加した無機態から有機態へその化学が変化したものと解釈できる。更にこの有機態⁶⁰Coの他の生物への可給性を実験的に求めるためにあらためてこの有機態⁶⁰Coをトレーサーとして海水に添加し、アワビによる⁶⁰Coのとり込みを観察したところ無機態⁶⁰Coに比べて濃縮係数は1/5、ほとんど同分子量のシアノコバラミン-⁵⁷Coに比べるとほぼ1/100にとどまった³⁾。同じ有機態Coで、しかも分子量も同じであっても生物への可給性は大きく異なる例である。

海洋において無機の溶解性塩類を利用して有機化合物とするのは主として植物であるが、海藻類は海洋の物質代謝の上から見るとその力はわずかなもので殆んどすべての海洋生物は直接又は間接に植物プランクトンである珪藻類、鞭毛藻類などによってその栄養を行なっている。珪藻の一種である沿岸性の *Chaetoceros gracilis* を250万 cell/ml程度に生やした海水中に¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn, ⁶⁵Zn, ⁶⁰Coを無機態として添加すると *chaetoceros* は海水中のRI比で⁵⁴Mn>⁶⁰Co>⁶⁵Zn>¹³⁷Csの順に濃縮する。この汚染されたプランクトンを集めpH8.3のトリス-酢酸バッファ15mlと共にホモジナイズしG-75によるゲルロカを行なうと⁵⁴Mn, ⁶⁰Co, ⁶⁵Znは高低2つの分子量の物質と結合し、¹³⁷Csは低分子画分だけに認められた⁴⁾。このことは海水中の無機のRIの一部が植物プランクトンのとり込みという過程を通して有機化されたものと考えられる。またこの植物プランクトンは二枚貝や、その他の無脊椎動物、稚魚などに直接摂餌され、橈脚類、端脚類などの動物プランクトンの食餌となり、これらもまた他の生物の食餌となるように放射性物質は分解、吸収、合成などをくり返しながら形を変えて濃縮されてゆくものと考えられる。生物濃縮には主として二つの経路が考えられている。一つは直接海水からエラや体表を通して体内にとり込む経路であり、もう一つは餌料生物を通しての消化管吸収の経路である。前者は量的評価は別としても無機態のものも、また生物分解産物の可溶性有機態(前述)の放射性物質も含まれる。後者は特別のものを除いてほぼ有機態と考えてよいだろう。⁶⁰Co, ⁶⁵Zn, ⁵⁴Mnなどの核種は魚類、軟体類共に主とし餌料生物を通して放射性物質を蓄積している^{5)~7)}。一般に核種にもよるが放射性物質の生物濃縮にはこのように有機態の放射性物質が大きくかかわっているものと考えられる。

参考文献

- 1) 小久保清治：海洋化学，水産学全集第11巻，恒星社厚生閣，東京，1965。
- 2) 杉浦吉雄：海洋と化学，海洋開発シリーズ第8巻，共立出版，東京，1970。
- 3) 中原元和：日本放射線影響学会第27回大会講演要旨集，千葉，1984。

- 4) 鈴木讓：日本水産学会春季大会講演要旨集，東京，1985.
- 5) Suzuki, Y. : *Bull. Japan. Soc. Sci. Fish.*, 45, 1979.
- 6) Nakamura R. : *ibid*, 48, 1982.
- 7) 中村良一：日本水産学会秋季大会講演要旨集，仙台，1984.

2.3 濃縮係数の変動要因としての 放射性核種の化学形

本田 嘉 秀*

Mechanisms of Bioaccumulation of Radionuclides by Marine Organisms
in Relation to Their Physico-Chemical Forms.

Yoshihide Honda
Faculty of Science and Technology
Kinki University

Abstract

The mechanisms of bioaccumulation of radionuclides by marine organisms in relation to their physico-chemical forms were briefly reviewed.

The mechanisms of bioaccumulation are classified grossly into adsorption and absorption, respectively. Adsorption is used often in the chemical sense, however, both attachment and adhesion in the physical sense are also important in some cases such as the concentration of particulate forms by seaweeds.

On the other hand, absorption is used mostly in the physiological sense. This mechanism is related to biological membrane transport with or without specific carriers. The active carrier transport is well-known in the concentration of some biological essential cations. The transport with flow, i. e., solvent drag is main mode of concentration of water-soluble and fine particulate matter through gills.

The importance of radionuclide metabolisms in marine organisms is also emphasized in relation to metal-binding compounds such as metallothionein and so on.

* 近畿大学理工学部

はじめに

環境の放射能汚染に起因する被曝線量の推定のための重要なパラメータの一つとして、放射性核種の濃縮係数があげられるが、環境試料生物として水産生物を考えた場合、環境水中の放射性核種濃度と生物体中濃度が、いずれもほぼ一定になった平衡状態における両者の比、すなわち究極状態における生物体中濃度/環境水中濃度の比が濃縮係数と定義されている。しかし、生物体中濃度および環境水中濃度ともに、いろいろな要因によって変動するため、両者の比もまたそれに伴って変動する。これらの変動要因として、生物自身に起因する生物学的因子（生物の体重、年齢、性別、生殖、食性など）とともに外的環境因子（環境水の塩類組成、pH、水温、元素濃度と存在形態など）があげられ、放射性核種の化学形又は存在形態は、考慮すべき環境因子の一つとして、注目されている。

環境放射能安全の点から着目されている放射性核種（核分裂生成物および誘導放射性核種）について、その化学形が種々の海産生物に対する可給性、すなわち取り込み速度、体内代謝と分布および排出速度などを含めて濃縮係数にいかなる影響を及ぼすかについては、小柳氏および鈴木氏から報告されたので、ここでは海洋生物による生物濃縮のメカニズムとの関連について考察してみることにする。

1. 海洋生物による生物濃縮のメカニズム

生物濃縮とは、環境生態系で直接、間接に接触する物質が生体との相互作用により、生体に取り込まれ、そこで物質が偏在する現象と理解して、Table 1 に示すようなメカニズムが考えられる。

Table 1 Mechanisms of Bioaccumulation of Chemicals (Elements)
by Marine Organisms

A. Adsorption
Chemical sense, (physical sense: Attachment, Adhesion, etc.)
B. Absorption
Physiological sense (Membrane transport)
(1) With carrier
(a) Facilitated diffusion (Passive transport)
(b) Active carrier transport (Active transport)
(2) Without carrier
(a) Lipotrophic substances
(b) Transport with flow (Solvent drag)
C. Metabolism
physiological sense
(1) Chemically unmodified
(2) Chemically modified
(Biological transformation: Metallothionein, etc.)

すなわち、外界（環境水界など）と接する生物体の表面への「吸着」と体液（血液）および組織内への「吸収」であり、それらはさらに細かく分類される。

まず、「吸着」は化学吸着と物理吸着に分けられる。それらは、元素の性質と被吸着体表面の物理的および化学的性質とに依存しているが、溶性無機イオン形の吸着とともに非溶性の場合の物理的吸着（付着粘着なども含めて）は無視できない。

「吸収」は生理学的な意味合いを持っており、生体膜（細胞膜）における物質輸送と考えることができる。

これは、

(1) 担体による場合： 担体とよばれる特異タンパク質と結合して生体膜輸送が行われるもので、(a) 仲介拡散は濃度勾配に従う受動輸送で、エネルギーを必要としないが、(b) 能動輸送は濃度勾配に逆らうもので、そのためにはエネルギーを必要とする。各種の陽イオンの輸送において、この能動輸送の機構が存在することが知られている。

(2) 担体によらない場合： 狭い意味での膜透過であり、(a) 親脂性物質は、生体膜の脂質層を通して移行する。(b) 流れによる輸送は、生体膜に存在する多数の間隙や細孔を通じて、水溶性および微粒子の難脂溶性化合物が水の流れとともに透過するもので、魚の呼吸に伴うエラからの取り込みなどがこれにあたる。

2. 生体膜の構造

前節の生物濃縮メカニズムに関連して、生体膜の特異的機能としての化学反応や輸送能さらにはエネルギー変換能などは、そこに存在するタンパク質の機能によるもので、生体膜の基本構造、すなわちリン脂質などの極性脂質が二分子層を作り、そこに膜タンパク質が浮んでいるという流動モザイクモデル¹⁾²⁾ (Fig.1) と密接に関係している。

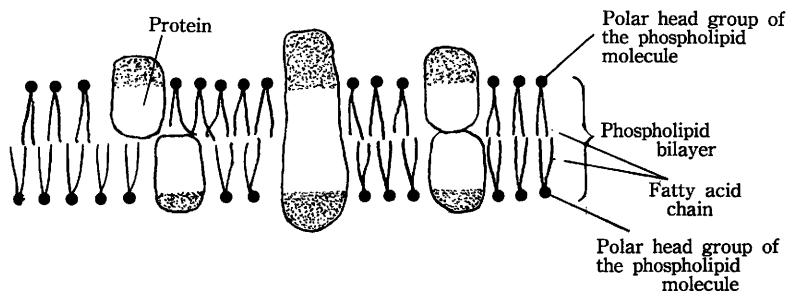


Fig.1 Fluid Mosaic Model of the Structure of Cell Membranes²⁾

放射性核種の生物移行とその代謝において、生体膜タンパク質をはじめ、いろいろな生理活性成分との相互作用を明らかにすることが必要である。

おわりに

生物濃縮のメカニズムは、上述のように多様であるが、濃縮される元素に着目すれば、化学的な変換がない場合とある場合に大別される。このことは、取り込み後の代謝過程においても同様である。近時、生体内における金属元素を含む特異な低分子量タンパク質（分子量は、6000～7000といわれている）として、メタロチオネインが注目されているが、海洋生物による放射性核種の移行、濃縮における化学的変換としてメタロチオネインの役割とともにいろいろな生理活性成分との相互作用について、今後の研究の発展が期待される。

参考文献

- 1) Singer, S. J. and Nicolson, G. L. : The Fluid Mosaic Model of the Structure of Cell Membranes, *Science*, **175**, 720–731, 1972.
- 2) 荒木忠雄, 宇津木和夫, 柴岡弘郎, 清水 磧, 吉田 治 共著: 現代生物学図説, 2. 生体膜, 10–15, 培風館, 1979.

Ⅲ 人体での元素の移行と代謝に及ぼす 元素の化学形の影響

Effect of Chemical Forms on the Movement and
Metabolism of the Elements in Human Body

1 人 体

- | | |
|--|-------|
| 1.1 総 論 | 岡林 弘之 |
| 1.2 放射性核種の人体代謝モデルに
おける化学形などの考慮 | 河村日佐男 |
| 1.3 生体に摂取された存在形の ^{65}Zn ,
^{125}I の胃腸管吸収について | 内山 正史 |
| 1.4 調理操作による食品中のヨウ素
の除去効果について | 住谷みさ子 |
| 1.5 生体試料中の微量元素の分析に
かかわるいくつかの問題点 | 森田 昌敏 |

1 総論

岡 林 弘 之*

Human Body (review)

Hiroyuki Okabayashi

Division of Environmental Health
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

The behavior of radioactive elements in the organisms are largely depend on the chemical forms of these elements when they enter into the body. For example, tritium administered by ingestion as organic compounds were more highly incorporated into the tissues of rat than tritiated water.

The whole-body retention of ^{58}Co -cyanocobalamine was considerably higher than that of $^{60}\text{CoCl}_2$ in rats of all age groups and the younger rat showed higher retention of both $^{60}\text{CoCl}_2$ and ^{58}Co -cyanocobalamine than the adult rat. Moreover, it is reported that intestinal absorption and body retention in rats of ^{60}Co incorporated into seaweed, chlorella and freshwater fish are very high compared with that of $^{60}\text{CoCl}_2$ mixed with the non-radioactive materials.

The important properties of transuranic elements are their marked tendency to hydrolyze and to form complex ions under physiological conditions. These phenomena are of great importance with regard to the biological behavior of transuranic elements.

* 放射線医学総合研究所・環境衛生研究部

From the analytical results of animal experiments and autopsy samples it has been assumed that the behavior of actinide elements in human bodies are very different due to their existed state and the route of intake.

As stated above, retention, distribution and excretion of radioactive elements in the organisms are very affected by their physicochemical states, coexisted materials, route of intake and ages of organisms. Therefore, the investigation of these field must be more developed.

1. はじめに

放射性元素が人体内にとりこまれる場合に、その元素の化学形によって体内での移行・代謝が非常にかわることが知られている。ここでいう化学形とは、その放射性元素が環境中に存在する場合の存在状態であり、放射性元素が元素の状態か、イオンになっているか、化合物であればどんな形の化合物かということなどが考えられる。然し人体内での挙動に影響を与える因子としては、化学形のほかに放射性元素をとりにこむ際の共存物質、とりこみの経路、人体内に含まれている安定同位体の量などがある。

このように多くの因子に支配されて放射性元素が人体内で移行・代謝されるのであるが、現在までの調査・研究の段階は、特定の放射性元素による人体実験が僅かに行われたほかは、事故により放射性物質をとりにこんだ人の追跡調査が行われているだけで、実験室で得られる放射性物質を実験動物に投与し、その結果から人体内での挙動を推定する方法が大勢を占めている。これら多数の発表されたデータの中から、いくつかの放射性元素についてその生物体内分布・挙動についてのべる。なお環境中には天然の放射性元素、自然の核反応によって生成する放射性元素が存在するが、ここでは人工放射性元素についてのべることにする。

2. 放射性元素の生体挙動に与える化学形の影響

2.1 トリチウム

トリチウムは天然に起る核反応によって自然界に存在しているほか、核爆発実験、原子力施設からの漏出あるいは核燃料再処理の際に環境中に放出されるが、核融合の関係で特に注目されている核種である。

ICRP Pub. 30¹⁾ではトリチウム水と元素状トリチウムについての ALI, DAC の値が勧告されているが、有機化合物の形になったトリチウムについては、生体内の挙動がトリチウム水とは異なるであろうと推定しているにとどまっている。

武田等が有機化合物の形のトリチウムとトリチウム水をラットに経口摂取させた後の、トリチウムの臓器内分布・残留割合を発表している^{2,3)}。それによると、臓器間の差、有機化合物の種類による相異はあるが、どの臓器においても、有機化合物の形で投与された時のトリチウムは、トリチウム水を投与した時よりもラット臓器内のとりこみ量が多く、かつ臓器内残留時間が長く

なった。これはラットの消化管内における有機化合物の分解・吸収の状況を示すものと思われるが、環境中に放出されたトリチウムがヒトにとりこまれる時に、何如なる化学形になっているかを知ることは、体内での移行・代謝を推定する上で重要である。

2.2 放射性コバルト

放射性コバルトは原子力施設からの放出が懸念されている。Coは元来生体に対しては必須元素で、シアノコバラミン（ビタミンB₁₂）として生体内に存在しているほか、頭足類⁴、シャコ貝⁵、リョウブ⁶などにはかなり多量のCoが蓄積されていることが知られている。

環境中に存在するCoを生物体が摂取する場合に、化学形の相異、とりこみの際の共存物質によって体内でのCoの沈着・残留時間が異なることが報告されている。

西村等の研究⁷)によれば、シアノコバラミンの形にした⁵⁸Coと無機の形の⁶⁰CoCl₂を成熟ラットに経口投与した時に、シアノコバラミンの形の⁵⁸Coは無機の形の⁶⁰Coにくらべて体内残留が多く、⁵⁸Coは投与3日後に投与量の約50%が残留し、21日後になお35%が残留していたのに対して、⁶⁰Coの体内残留は3日後に投与量の約0.3%にまで減少し、21日後には0.07%が残留するのみであった。またこれら2種の化合物を成熟ラットの静脈内に注射投与した時には、⁵⁸Coは投与1日後に投与量の93%が残留し21日後でもなお57%が残留していた。これに対して⁶⁰Coは1日後に投与量の18%が残留し、21日後には2%が残留していた。

成熟ラットに⁶⁰CoCl₂と⁵⁸Coシアノコバラミンを静脈内に注射し、21日後の主要臓器中⁶⁰Coと⁵⁸Coの分布を測定すると、⁶⁰Coは全身残留量の26%が肝臓、13%が腎臓であったが、⁵⁸Coの場合は12%が肝臓、44%が腎臓に分布していた。また⁵⁸Coシアノコバラミンを成熟ラットに経口投与21日後には、全身残留量の39%が腎臓に、15%が肝臓に分布し、放射性コバルトの摂取経路・化学形の相異による体内残留と分布のちがいが明かにされた。

生後7日・14日・21日および成熟ラットに⁵⁸Coシアノコバラミンと⁶⁰CoCl₂を経口摂取させたところ全身の残留は生後7日と14日のラットは、両物質に対して明らかな差を示さなかったが⁵⁸Coシアノコバラミンは生後7日・14日のラットの体内残留が最も大きく次いで成熟ラットで、生後21日のラットの体内残留は最も少なかった。

また⁶⁰CoCl₂は若いラット程成熟ラットにくらべて体内残留割合が大きく、生長の程度によって消化管からの放射性コバルト吸収に差が認められた。

次に放射性コバルトが生物体内にとりこまれる場合に、共存物質による体内残留の相異をしらべた稲葉等の報告^{8,9})がある。すなわち、⁶⁰CoCl₂を添化した海水中で1週間生育させたあおさをラットに経口投与した場合⁸)には、⁶⁰CoCl₂と無汚染のあおさの混合物を同様にラットに経口投与した時にくらべて体内残存量が多く、投与1日後には投与量の約10%程度にまで減少したが、それ以後はあまり減少せず1週間後には約8%が残留していたが、無汚染あおさに混合して投与した⁶⁰CoCl₂は投与後急速に減少し、7日後には投与量の0.1%が残留するのみであった。また⁶⁰CoCl₂を添加した水で飼育したメダカをすりつぶしてラットに経口投与した場合⁹)には、無汚

染のメダカをすりつぶしたものに $^{60}\text{CoCl}_2$ を混合したものをラットに経口投与した時よりも、ラット体内の残留が多く、特に $^{60}\text{CoCl}_2$ を含む水中で長期間飼育したメダカを投与した時ほど、ラット体内における ^{60}Co の残留量が多くなった。このように一度生物体にとりこまれた ^{60}Co は、哺乳動物の消化管から吸収され易い形になっているものと考えられる。

一方 $^{60}\text{CoCl}_2$, $^{54}\text{MnCl}_2$, $^{59}\text{FeCl}_3$, $^{65}\text{ZnCl}_2$ をそれぞれ含んだ水で生育させたクロレラをラットに経口投与した時のラット体内残留結果が稲葉等によって発表¹⁰⁾ されている。

それによると、 $^{60}\text{CoCl}_2$ を含んだ水中で生育したクロレラを投与した場合には、あおさ、メダカの場合と同様に無汚染のクロレラと $^{60}\text{CoCl}_2$ を混合したものを投与した時に比べて、その体内残留量は多く、投与9日後に10倍以上の残留率の差が認められた。然し他の3核種では、それらの核種を含んだ水中で生育したクロレラを投与した時と無汚染クロレラにそれらの核種を混合したものを投与した時とは、体内残留割合に殆んど差が認められなかった。

生物体に親和性があり、Coと同族の元素であるFeがCoと異った挙動を示したことは興味深い。

$^{60}\text{CoCl}_2$ をヒトの静脈内注射と経口の経路から投与して全身残留を測定した結果が報告されている¹¹⁾。それによると、全身残留割合は当然静脈内注射の時の方が圧倒的に多くなるが、投与数日後には、両経路とも似かよった残留の形を示すことが観察された。また空腹時に $^{60}\text{CoCl}_2$ を経口摂取したヒトと、普通に食事をしているヒトの ^{60}Co の吸収割合は殆んど変らなかったが空腹時に12mgの安定コバルトと一緒に $^{60}\text{CoCl}_2$ を摂取した時には、消化管からの ^{60}Co 吸収増加が認められた。

また事故によって $^{60}\text{CoCl}_2$ 粉塵を吸入したヒトの ^{60}Co 全身残留量が約10カ月にわたって測定され、その残留式が算出された¹²⁾。この残留式と、ヒトの静脈内に $^{60}\text{CoCl}_2$ を注射して1000日以上全身残留量の計測をつづけた場合の残留式（この式はICRP Pub. 30¹⁾ にコバルトの全身残留式として引用されている）を示すと次の通りである。

$^{60}\text{CoCl}_2$ 粉塵を吸入した場合

$$R(t) = 0.57e^{-0.693t/3.1} + 0.22e^{-0.693t/23.9} + 0.20e^{-0.693t/326}$$

$^{60}\text{CoCl}_2$ を静脈に注射した場合

$$R(t) = 0.5e^{-0.693t/0.5} + 0.3e^{-0.693t/6} + 0.1e^{-0.693t/60} + 0.1e^{-0.693t/800}$$

摂取経路・観測期間が異なるので、半減期などにちがいが見られるが、摂取後比較的早い時期の全身残留割合は同じような数値を示した。

以上のように環境中に放出されて動植物にとりこまれた放射性コバルトは生物体との親和性が大きく、体内残留時間も比較的長いので環境中の放射性コバルト量の常時観測が必要である。

2.3 放射性ルテニウム

放射性ルテニウムは核燃料再処理の際に生成される。ルテニウムは色々の原子価をとり得るために、環境・生体内での挙動が非常に複雑である。再処理の際に生成される。ニトロシルルテニ

ウム (^{106}Ru) の三種類の錯体を、ラットに経口投与した時の、体内残留に関する榎本等の報告¹³⁾がある。クロロ錯体とニトラト錯体は同じような体内残留の形を示したが、ニトロ錯体は両者と若干異った残留割合を示し、ニトロシルルテニウム錯体の消化管吸収は、いずれも小さいことがわかった。また排泄は糞が尿にくらべて圧倒的に大きかった。

山縣等の実験^{14,15)}で、ヒトがニトロシルルテニウム (^{103}Ru) クロロ錯体で汚染したハマグリを経口摂取した時、およびニトロシルルテニウムクロロ錯体 (^{103}Ru) と塩化ルテニウム (^{103}Ru) を経口摂取した時の ^{103}Ru の排泄が測定された。

いずれの場合にも摂取後3日間に投与量の約95%の ^{103}Ru が糞中に排泄され、尿への排泄は0.7%程度で、ニトロシルルテニウムのヒトの消化管からの吸収は摂取量の4~5%と考えられる。この値はICRP Pub. 30¹⁾で勧告されている f_1 と同じ値である。

2.4 超ウラン元素

超ウラン元素は、環境中の絶対量は少ないが、大部分の元素が α 線放出核種であり、人体内にとりこまれた場合には主に骨と肝臓に沈着し然もその生体内半減期の長いものが多いために危険視されている。

更に超ウラン元素は種々の酸化状態をとり、またこれら元素の陽イオンが生理学的水素イオン濃度においては、加水分解して重合体・粒子状物質を形成し、それがこれら核種の表面吸着性・食細胞とりこみなどに影響を与えるために、環境ならびに生物体内での挙動が非常に複雑である。

2.4.1 ネプチニウム：Npは最初に作り出された人工超ウラン元素である。核爆発実験によっても生成されるが、その量が少いためにあまり注目されなかったが、核燃料再処理廃棄物の長期貯蔵の際の環境への漏出に関連して関心がもたれている¹⁶⁾。

Npの生物体内挙動についてSullivan等の動物実験の結果^{17,18)}が報告されている。5価の酸化状態にした ^{237}Np ・ ^{235}Np ・ ^{239}Np の硝酸塩を夫々成熟マウス・ラットに経口投与して消化管からの吸収を測定したところ¹⁷⁾、体重kg当り0.013 μg ~0.000022 μg を投与した時に総吸収割合が投与量の0.06~0.05%であったのに対して、kg当り43mg, 21.7mgを投与した場合には、総吸収割合が夫々2.74%, 1.5%まで増加した。また体重kg当り5mgの ^{237}Np を、絶食させた時、および $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ と一緒にラットに経口摂取させた時の消化管吸収¹⁸⁾は、絶食させた時に若干の吸収割合増加の傾向が見られたが、 $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ をNpと一緒に投与した場合には、Npの全吸収割合が約8%にまで増加した。このようにNpの消化管吸収が数%程度まで増加した例が観察されたが、これらの場合はいずれもNpの投与量が体重kg当り5mg以上という大量であり、そのために消化管に損傷を起し、そのために吸収量が増大したと考えられている。

環境中のNpの量を考えれば、これらの実験結果について体重kg当り少い投与量の時の吸収割合を採用するのが妥当であり、ICRP pub. 30¹⁾で勧告されているNpに対する f_1 の値0.01は大きすぎ、0.005とするのが適当であろうといわれている¹⁶⁾。然しNpの硝酸塩を生後1~2日のラットに経口投与した時の消化管からの吸収¹⁷⁾は、成熟ラットの場合とは逆に、投与質量の少

ない時の方が大きな吸収割合を示し、また全吸収割合は成熟ラットの場合よりも大きかった。このように生長時期の相異による吸収割合の変化、Feなどの共存物質が吸収割合に与える変化などについては、更に検討することが必要である。

2.4.2 プルトニウム：Puは骨親和性元素であり、生体内半減期の長いこと、 α 線放出同位体が多いことなどから非常に危険な元素と考えられ、種々の経路から動物体内にとりこまれたものについて、その分布・排泄などに関して多数の実験結果が発表されている。1972年頃までのデータがICRP Pub. 19¹⁹⁾にまとめられているが、動物種・摂取経路・摂取したPuの化学形によって夫々沈着場所とその割合、排泄のパターン、体内残留時間などについて色々の数値が発表されている。

すなわち、酸化物を吸入した場合には、沈着量の大部分が肺に残留し、徐々に他の臓器に移行するが、骨格の残留割合は肝臓にくらべて大きく、かつ糞への排泄が尿中排泄よりも多い。可溶性化合物（硝酸塩・クエン酸錯体）の吸入実験の場合には、勿論肺の沈着量が多いが、吸入後の経過日数による他臓器への移行割合が酸化物の場合よりも大きく、骨格への移行割合が肝臓へのそれよりも大きい。

また排泄は糞への排泄量が尿への排泄量よりも多い。

消化管からのPuの吸収割合は非常に小さく、酸化物では $2.5 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4}\%$ 、可溶性化合物でも $1.3 \times 10^{-3} \sim 1.9\%$ という値が発表されている。

静脈内へ可溶性化合物を注射した場合には、肝臓への移行が主であるが、注射後の経過時間とともに骨格の量が増加する。排泄の形は糞排泄が尿排泄よりも多いが、尿排泄が糞排泄を上廻る例も発表されている。

このようにPuの生物体内における主要沈着場所は肝臓と骨格であり、ICRP Pub. 30¹⁾では、血液中に入ったPuの45%は肝臓に、45%は骨格に沈着し、夫々の場所における生物学的半減期は40年、100年と推定している。

硝酸プルトニウムのエアロゾルをラットに1回吸入させた時の、主要臓器中Pu濃度の全身沈着量に対する割合は図1に示す通り^{20,21)}で、肝臓中濃度は一時増加した後減少したが、脾臓・生殖器の割合は時間経過と共に増加するのが注目される。屍残部中の割合が増加しているのは、Puの骨格移行を示すものと推定される。

脾臓は造血器官であり、鉄の含有量が多く、血液中に入ったPuは鉄輸送蛋白であるトランスフェリンと結合することが知られており^{22,23)}、脾臓中のPu濃度増加がトランスフェリンとの結合を示すものと考え、脾臓中のPu濃度も見逃すことができないと思う。

またこの吸入実験の際の排泄は、約80日の観察期間を通して、糞排泄が尿排泄を上廻った²⁴⁾。

Pu同位体には半減期の異ったものが多く、²³⁶Pu (2.85年)、²³⁹Pu (2.41×10^4 年)、²⁴²Pu (3.67×10^5 年)、²⁴⁴Pu (8.05×10^7 年)を、²⁴⁴Puを除いておおよそ、体重当たり等しい放射能になるようにしたクエン酸錯体をマウスの静脈内に注射して臓器内分布をしらべた結果が結告されている²⁵⁾。それによると、肝臓では各同位体とも同じような残留割合を示したが、他の臓器では²³⁶Pu

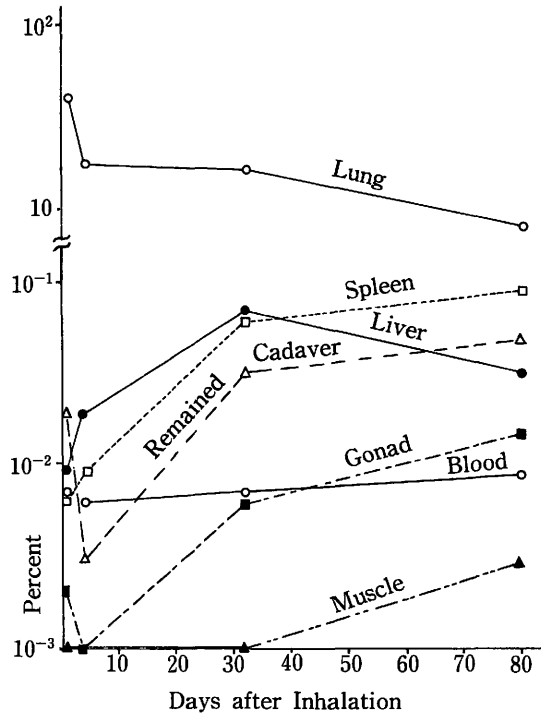


Fig. 1 Percent per gram of tissue of total Pu intake.

と ^{239}Pu が比較的同じ挙動を示し、また ^{242}Pu と ^{244}Pu が似た残留割合を示した。肝臓・腎臓・大腿骨以外の臓器で、 ^{242}Pu と ^{244}Pu が ^{236}Pu ・ ^{239}Pu よりも大きな残留量を示したのは、 ^{242}Pu ・ ^{244}Pu の半減期が長いので、同じ放射能にした場合には質量が大きくなり、注射した場合に移行した臓器内で重合し、不溶性のコロイド粒子を形成したために残留量が多くなったと推定している。

また J. E. Ballou 等²⁶⁾ は ^{238}Pu と ^{239}Pu のクエン酸錯体をラットの静脈内に注射して毒性の比較を行っているが、放射能を等しくした場合には、体重減少・血液学的あるいは組織病理学的観察の結果、 ^{239}Pu の方が毒性が大きいことを報告している。これは ^{238}Pu の半減期が短いために、等しい放射能にした場合にはその投与質量が ^{239}Pu の 270 分の 1 になるので、ラット体内での移行・沈着が異なるためと考えられている。然し 2.5% 程度の放射能の ^{238}Pu を含んだ ^{239}Pu ・ ^{240}Pu 硝酸塩のエアロゾルをラットに 1 回吸入させた時のラット肺内における ^{239}Pu ・ ^{240}Pu の割合は表 1 の通りで、約 80 日の観測期間中殆んど変化がなかった。この場合のラット体内の Pu 総沈着量は体重 kg 当り 1~5 μCi 程度で、J. E. Ballou 等の実験でも体重 kg 当り 4 μCi を投与した時には ^{238}Pu と ^{239}Pu の体内分布には殆んど差が認められず、投与した質量によって Pu の体内挙動が変化することが明かである。

Table 1 Activity ratios of ^{238}Pu to sum of $^{238}\text{Pu} + ^{239,240}\text{Pu}$

Days aft. inhala.	No. of rats	$^{238}\text{Pu}/^{238}\text{Pu} + ^{239,240}\text{Pu}$ (%)
0	5	2.55 ± 0.03
1	2	2.58 ± 0.06
4	3	2.52 ± 0.06
14	4	2.53 ± 0.03
32	5	2.48 ± 0.07
80	4	2.55 ± 0.10

人体内の Pu の移行・代謝あるいは蓄積については、autopsy 試料の測定結果^{21,28~30)}、事故により Pu をとりこんだヒトの調査結果^{31,32)}、あるいは死期の予想された人の静脈内に Pu を注射した後の臓器内分布・排泄の結果³³⁾などが多数報告されている。autopsy 試料中に検出された Pu は核爆発実験由来のものと考えられるので化学形は酸化物で取りこみ経路は吸入によるものが主であると思われるが、J. F. McInroy²⁹⁾等のまとめた臓器濃度と、標準人臓器重量から臓器分布の割合を算出すると、肝臓中の蓄積量が全身量の 70%、骨格が 15%、肺が 10% 程度となり、Pu の酸化物を吸入させた動物実験の結果とはかなり異った割合を示している。

ヒトの静脈内にクエン酸錯体を注射した場合³³⁾には、投与量の 66% が骨格に、23% が肝臓に移行蓄積し、動物実験の結果と比較的よく合った結果を示している。また静脈内に注射したヒトの排泄物中 Pu は、注射後 1 日は尿中排泄が糞中排泄を上廻ったが、以後約 3 週間は糞中排泄が尿中排泄よりも多くなり、それ以後は再び尿中排泄が糞中排泄よりも多くなった。動物実験の結果でも可溶性 Pu を静脈内に注射した場合には尿中排泄が糞中排泄よりも多くなる場合が報告されているが、我々が硝酸 Pu のエアロゾルを 1 回ラットに吸入させた時には、約 80 日の観察期間中常に糞中排泄が尿中排泄よりも多かった²⁴⁾。

また 1 例ではあるがトレーサー量の硝酸 Pu を扱った人の排泄物中 Pu 測定の結果²⁴⁾では、尿中排泄のピークが糞中排泄ピークの 3 日後に現われ、糞への排泄量はおおむね尿中排泄量よりも多く平均して 2 倍の値を示した。

このように Pu の人体内分布・排泄は、化学形・質量・摂取経路などの因子によって非常に変化が多く、必ずしも動物実験の結果と一致しない場合もあるので、さらに調査・研究をつづけることが必要である。

2.4.3 アメリシウム：Am には 28 の同位体が知られている^{34,35)}が、生物体への影響が考慮されているのは、核爆発実験によって生成した ^{241}Pu が β 崩壊してできた ^{241}Am である。 ^{241}Am は 432 年の物理的半減期をもち、 α 線を放出し、人体内では Pu と同様に、主として骨と肝臓に沈着すると考えられ、ICRP Pub. 30¹⁾では吸入の際の分類は W, f_1 は 5×10^{-4} という値を勧告し、血中に入った Am が骨格と肝臓に移行する割合は Pu と同じであると仮定されている。

種々の ^{241}Am 化合物をラット・犬の静脈内に注射した結果を ICRP Pub. 19¹⁹⁾ から抜き出してみると表 2 の通りである。

Table 2 Distribution of Am compounds after intravenous injection

Compound	Animal	Days	% of dose retained in				
			Skeleton	Liver	Spleen	Lung	Kidney
241 AmCl ₃	Rat	4	31	38	0.3	0.3	2.7
		48	45	12	0.4	0.5	2.5
241 Am(NO ₃) ₃	Rat	6	20	57	3	4	1
		43	28	22	4	—	—
241 Am (III) citrate	Rat	6	26	32	0.08	0.1	1.8
		43	26	1.7	0.09	—	0.7
241 Am (III) citrate	Dog	1 ~ 22	29	49	0.03	0.35	0.65
		401 ~ 448	48	18	0.07	0.39	1.21

化合物の種類によって多少異った沈着割合を示しているが、骨格と肝臓への移行・沈着が顕著で、取りこみ後の時間経過と共に骨格の蓄積割合が増加し、肝臓中の割合が減少している。

また粒度の異った ²⁴¹AmO₂ のエアロゾルを犬に吸入させた後の ²⁴¹Am の臓器内分布が J. A. Mewhinny 等によって報告されている³⁶⁾。その結果の一部を示すと表 3 の通りである。臓器内分布は勿論肺の割合が最大であるが、肺から他の臓器への移行・沈着および排泄される速度は monodisperse 粒子では粒径の小さいものほど早く、その沈着部位は骨格と肝臓であった。polydisperse 粒子では、その挙動は粒子径の小さいものに似た結果が示されている。

Table 3 Tissue distribution of ²⁴¹Am following inhalation of monodisperse or polydisperse aerosol of ²⁴¹AmO₂ by the beagle dog

Aerosol	Tissue	Sacrifice Time (day after inhalation)				
		8	32	64	256	730
0.75 μm AMAD (mono)	lung	49.5	22.5	12.3	4.9	2.1
	liver	23.5	34	36	32	22.5
	skeleton	16.5	25.5	27.3	28.5	24
	kidney	1.3	0.8	1.2	0.9	0.4
1.5 μm AMAD (mono)	lung	85.5	39	21	8.6	1.7
	liver	4.7	20.5	25.3	39.5	22.7
	skeleton	2.8	20.5	11	23.3	25.3
	kidney	0.3	1.0	0.6	1.3	0.6
3.0 μm AMAD (mono)	lung	75.5	38.5	33	9.4	1.7
	liver	4.9	14.2	16	26.5	28
	skeleton	3.5	9.0	9.1	17.5	20
	kidney	0.4	2.4	0.7	1.1	0.9
1.8 μm AMAD (poly)	lung	74.5	46	27.7	6.0	2.1
	liver	11.5	26.5	28.7	38	43
	skeleton	6.7	11.2	23.3	25.5	30
	kidney	0.6	0.5	0.8	0.5	0.9

事故により可溶性の ^{241}Am をとりこんだヒトについて5年以上にわたって追跡調査した結果が報告されている³⁷⁾。

この事故の場合には傷口からのとりこみと吸入によるとりこみが一緒になったものであるが、推定された臓器負荷量は被曝3日後に $26\mu\text{Ci}$ であった肺負荷量が、3年後に検出限界以下となったのに対して、骨格負荷量は3日後の $13\mu\text{Ci}$ が3年後になお $6.2\mu\text{Ci}$ 残留しており、また肝臓負荷量は被曝3日後に $38\mu\text{Ci}$ であったものが2年後に検出限界にまで減少したが、3年後には $0.1\mu\text{Ci}$ 、4年後には $0.25\mu\text{Ci}$ まで増加している。肺からの除去は比較的早いですが、肺から除去された ^{241}Am が骨格に沈着し、かなり長期間残留していることがわかる。また肝臓負荷量が増加したのは DTPA 投与を中止したためと考えられているが、ヒトの場合も動物の場合のように骨格と肝臓が主な沈着臓器と考えられる。

またこの事故例の場合の排泄は、DTPA 投与の影響があるが被曝直後から5年間の観察期間を通して、被曝2日、3日後を除いて尿への排泄が糞への排泄よりも多くなっている。これに対して ^{241}Am を含んだトレーサー量の硝酸 Pu を扱ったヒトの尿と糞への ^{241}Am 排泄量を測定した結果³⁸⁾、糞中には平均して尿中排泄量の約2倍が検出された。これは環境中に存在する ^{241}Am が核爆発実験由来のものであるから比較的不溶性の形になっており、また ^{241}Am のとりこみが吸入のほか飲食物経由のものもかなり存在することを示すものであろう。

現在環境中に存在する ^{241}Am はその生成過程から $^{239,240}\text{Pu}$ と共存している。 ^{241}Am はその放出する 60KeV の γ 線を生体外から検出することができるので、 $^{239,240}\text{Pu}$ の体内量特に肺沈着量を推定する場合に、共存する ^{241}Am の放出する γ 線の計測値から推定する方法がとられている。然しこの方法は Am と Pu が生体内で同じ挙動をとることを前提として実施し得る方法である。われわれが ^{241}Am を含む $^{239,240}\text{Pu}$ 硝酸塩のエアロゾルを1回ラットに吸入させた時のラット肺内における ^{241}Am と $^{239,240}\text{Pu}$ の量を測定比較したところ表4のような結果が得られた²⁷⁾。吸入後の時間経過とともに $^{239,240}\text{Pu}$ に対する ^{241}Am の割合が減少し、 ^{241}Am が $^{239,240}\text{Pu}$ よりも早くラットの肺から除去されたことがわかった。このように Am は ICRP Pub. 30¹⁾でも指摘しているように、生体内で Pu と異った挙動をとることが明かである。従って ^{241}Am から放出される 60KeV の γ 線の計測値から共存する $^{239,240}\text{Pu}$ の量を推定する場合には、両核種の割合・摂取後の時間経過などを明かにしないと、体内量の推定を誤るおそれがある。

Table 4 Activity ratios of ^{241}Am to sum of $^{239,240}\text{Pu} + ^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$

Days aft. inhala.	No. of rats	$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu} + ^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$ (%)
0	5	11.84 ± 0.27
1	2	11.94 ± 0.17
4	3	11.64 ± 0.24
14	4	11.00 ± 0.40
32	5	9.46 ± 1.18
80	4	8.40 ± 0.64

ICRP Pub. 30¹⁾では、体内で生ずる娘核種およびそれにつづく壊変生成物は、吸入あるいは経口摂取された親核種と一緒に残留し同じような挙動をとると假定しているが、AmとPuは必ずしも同じ挙動をしない。そして核爆発実験によって放射能量で^{239,240}Puの約10倍程度環境中に放出された²⁴¹Puはβ線放出核種であるが、その娘核種の²⁴¹Amはα線放出核種であり、線質係数の相異を考えると、両核種の生体内挙動は、線量評価の場合に注意する必要がある。

3. おわりに

ごく限られた人工放射性元素についてその化学形を中心にして生物体内の挙動をのべてきたが、生物体内の元素の挙動については、動物種の相異³⁹⁾、放射性元素の生物体内における不均一分布⁴⁰⁾、とりこみの際の共存物質による沈着量の相異⁴¹⁾、さらに哺乳期に経口投与された放射性核種の全身残留が成熟期の場合と異なること⁴²⁾などの点について多くの実験がおこなわれており、また生体内の安定同位体量も放射性元素の体内挙動に大きな役割を果すものと思われる。これらの点については、まだ不確定の要素が多く、更に動物実験・autopsy 試料の分析などを通してこれらの要因に関する調査・研究がおこなわれなければならない。

参考文献

- 1) ICRP : Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. ICRP Pub. 30, part 1, 1979.
- 2) 武田 洋：有機結合形トリチウムから生体構成分子への取り込み。第9回放射医研環境セミナー「環境と人体におけるトリチウム研究の諸問題」報文集，201～212，1981。
- 3) Takeda, H. : Comparative Metabolism of Tritium in Rat after Single Ingestion of Some Tritiated Organic Compounds versus Tritiated Water. *J. Radiat. Res.* 23, 345-357, 1982.
- 4) 中原 元和：頭足類のCo濃縮。第8回放射医研環境セミナー「海洋における生物濃縮と、それに影響をおよぼす因子」報文集，pp. 193～206，1980。
- 5) 吉田 勝彦：ホワイトビーチ周辺海域における海産生物放射能調査—特にシャコガイの⁶⁰Co濃度について—。第18回放射能調査研究成果論文抄録集，pp. 115～118，1976。
- 6) 山縣 登：重金属の生物濃縮。化学と工業，31，957～960，1978。
- 7) Nishimura, Y., Inaba, J. and Ichikawa, R. : Whole-body Retention of ⁶⁰CoCl₂, ⁵⁸Co-Cyanocobamin in Young and Adult Rats. *J. Radiat. Res.* 17, 240-246, 1976.
- 8) Inaba, J., Nishimura, Y. and Ichikawa, R.: Whole-body Retention of ⁶⁰Co Incorporated into a Seaweed in Rats. *J. Radiat. Res.*, 20, 121-125, 1979.
- 9) Inaba, J., Nishimura, Y., Kimura, K. and Ichikawa, R.: Whole-body Retention and Tissue Distribution of ⁶⁰Co in Rats after Oral Administration of Freshwater Fish Contaminated with ⁶⁰Co. *Health Physics*, 43, 247-250, 1982.
- 10) Inaba, J., Nishimura Y., and Ichikawa, R. : Comparative Metabolism of ⁵⁴Mn, ⁵⁹Fe, ⁶⁰Co and

- ^{65}Zn Incorporated into Chlorella and in Inorganic Form in Rats. *Health Physics*, **39**, 611-617, 1980.
- 11) Smith, T., Edmonds, C. F. and Barnaby, C. F.: Absorption and Retention of Cobalt in Man by Whole-body Counting. *Health Physics*, **22**, 359-367, 1972.
 - 12) Uchiyama, M., Shiraishi, Y. and Akiba, S.: Kinetics of Inhaled ^{54}Mn and ^{60}Co after an Accidental Human Exposure. Proceedings of the Nineteenth Annual Hanford Life Sciences Symposium at Richland, Washington, October 22-24, 1979.
 - 13) Enomoto, Y., Watari, K. and Ichikawa, R.: Studies on the Metabolism of Some Chemical Species of Radium in the Rat, I, Early Fate of Ingested Radium. *J. Radiat. Res.* **13**, 193-198, 1972.
 - 14) Yamagata, N., Iwashima, K., Iinuma, T. A., Watari K. and Nagai, T.: Uptake and Retention Experiments of Radium in Man 1. *Health Physics*, **16**, 159-166, 1969.
 - 15) 山縣 登: ヒトにおけるルテニウムの代謝. 化学の領域, **28**, 398~404, 1974.
 - 16) Cohen, B. L.: Effects of Recent Neptunium Studies on High Level Waste Hazard Assessments. *Health Physics*, **44**, 567-569, 1983.
 - 17) Sullivan, M. F., Miller, B. M. and Ryan, J. L.: The Effect of Mass on the Gastrointestinal Absorption of Plutonium and Neptunium. *Radiation Research*, **94**, 199-209, 1983.
 - 18) Sullivan, M. F., Ruemmler, P. S. and Ryan, F. L.: Influence of Fasting or Administration of Ferric-nitrate on the Gastrointestinal Absorption of Neptunium by Rats. Proceedings of the Seventh International Congress of Radiation Research, Amsterdam, July 3 - 8, E 5 -15, 1984.
 - 19) ICRP: The Metabolism of Compounds of Plutonium and other Actinides. ICRP Pub. **19**, 1972.
 - 20) Okabayashi, H.: Distribution of Plutonium in the Rats following Inhalation of Submicron Plutonium Nitrate Aerosols. *J. Radiat. Res.* **20**, 106-120, 1979.
 - 21) 岡林 弘之: 吸入されたプルトニウムの生物体内における挙動に関する研究. 米子医学雑誌, **31**, 209-229, 1980.
 - 22) Boocock, G. and Popplewell, D. S.: Distribution of Plutonium in Serum Proteins following Intravenous Injection into Rats. *Nature*, **203**, 282-283, 1965.
 - 23) W. J. Bair: Toxicology of Plutonium. *Advances in Radiation Biology* **4**, 255-315, 1974.
 - 24) 岡林 弘之: プルトニウムの排泄に関する研究. 米子医学雑誌, **32**, 283~287, 1981.
 - 25) Guilmette, R. A., Lindenbaum, A., Friedman, A., Sullivan, J., Moretti, E. and Russell, J. J.: Influence of Injected Mass of Plutonium of its Biological Distribution. *Health Physics*, **35**, 529-536, 1978.
 - 26) Ballou, J. E., Thompson, R. C., Clarke, W. J. and Palotay, J. L.: Comparative Toxicity of Plutonium-238 and Plutonium-239 in the Rat. *Health Physics*, **13**, 1087-1092, 1967.
 - 27) Okabayashi, H.: Differential Movement of Plutonium and Americium in Lungs of Rats follow-

- ing the Inhalation of Submicron Plutonium Nitrate Aerosol. *J. Radiat Res.*, **21**, 111-117, 1980.
- 28) Takizawa, Y. and Sugai, R.: Plutonium-239, Strontium-90 and Cesium-137 Concentration in Human Organs of the Japanese. *Arch. Environ. Health*, **23**, 446-450, 1971.
- 29) McNroy, J. F., Campbell, E. E., Moss, W. D., Tietjen, G. L., Eutsler, B. C. and Boyd, H. A.: Plutonium in Autopsy Tissue; A Revision and Updating of Data Reported in LA-4875. *Health Physics*, **37**, 1-136, 1979.
- 30) 河村日佐男, 田中義一郎: 環境中 Pu-239の人体への移行, 日本原子力学会誌, **22**, 519-529, 1980.
- 31) Lagerquist, C. R., Putzier, E. and Piltingsrud, C. W.: Bio-assay A. and Body Counter Results for the first 2 years following an Acute Plutonium Exposure. *Health Physics*, **13**, 965-972, 1967.
- 32) Voelz, G. L., Hempelmann, L. H., Lawrence J. N. P. and Moss W. D.: A 32-year Medical follow-up of Manhattan Project Plutonium Workers. *Health Physics*, **37**, 445-485, 1979.
- 33) Langham, W. H., Bassett, S. H., Harris, P. S. and Carter, R. E.: Distribution and Excretion of Plutonium Administered Intravenously to Man. *Health Physics*, **38**, 1031-1060, 1980.
- 34) Lederer, C. M. and Shirley, V. S., Ed.: Table of Isotopes (7th ed.) John Wiley & Sons, New York, 1978.
- 35) 岡林 弘之: 環境中の超ウラン元素. 日本原子力学会誌, **25**, 776-782, 1983.
- 36) Mewhinney, J. A., Griffith, W. C. and Muggenburg, B. A.: The Influence of Aerosol Size on Retention and Translocation of ^{241}Am following Inhalation of $^{241}\text{AmO}_2$ by Beagles. *Health Physics*, **42**, 611-627, 1982.
- 37) Robinson, B., Heid, K. R., Aldridge, T. L. and Glenn, R. D.: 1976 Hanford Americium Exposure Incident; Organ Burden and Radiation Dose Estimates. *Health Physics*, **45**, 911-921, 1983.
- 38) 岡林 弘之: 一般人の主要臓器中 ^{239}Pu ・ ^{240}Pu ・ ^{241}Am の蓄積分布. 昭和56年度文部省科学研究費・総合研究 (A) “長寿命放射性核種の放射生物学的挙動とその被ばく線量評価に関する研究” 報告書. 8-10, 1982.
- 39) Winter, R. and Seidel, A.: The Influence of an Iron-sorbitol-citrate Complex on the Deposition of Monomeric ^{239}Pu in Four Rodent Species. *Health Physics*, **40**, 100-104, 1981.
- 40) Morgan, A., Black, A., Moores, S. R. and Lambert, B. E.: Retention of ^{239}Pu in the Mouse Lung and Estimation of Consequent Dose following Inhalation of Sized $^{239}\text{PuO}_2$. *Radiation Research*, **99**, 272-284, 1984.
- 41) Cooper, J. R. and Harrison, J. D.: The Influence of Phytate and Citrate on the Gastrointestinal Uptake of Plutonium by Rats. *Health Physics*, **46**, 693-695, 1984.
- 42) 稲葉 次郎: 環境放射能による体内被曝の研究と問題点. 日本原子力学会誌, **24**, 348-354, 1982.

2 放射性核種の人体代謝モデル における化学形などの考慮

河村日佐男*

Consideration for chemical form of radionuclides and elements in metabolic parameters in man

Hisao Kawamura

Division of Radioecology
Laboratory for Radioecology, Nakaminato
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

From the standpoint of radiation protection of the public, some of the ICRP assumption on parameters in metabolic models for radionuclides or elements in Reference man were mentioned with reference to chemical and physical forms. Recent data on metabolic parameters were reviewed with an emphasis on the application of human data in the light of need for realistic dose estimation. Gastrointestinal absorption coefficient, f_1 of actinides, particularly of plutonium, fractional deposition of radioiodine in the thyroid gland in Reference Japanese Man as well as fractional deposition and biological half life of plutonium in relevant tissues were of special topics. Transfer factor of strontium from the diet to human bone in the Japanese was also pointed out and significance of racial difference as well as variance with age in the metabolism of elements was stressed. Accumulation of human data concerning these aspects was recognised to be urgent, especially in Japanese.

* 放射線医学総合研究所・環境放射生態学研究部

はじめに

放射性核種の環境から人体への移行は次の3局面に分けて取り扱われることが多い。(1)

イ. 放出源

ロ. 環境または生態系における移行

ハ. 人体による取り込みと線量算定

これまで、環境および生態系の各セクターにおける、あるいはセクター間の放射性核種の取着、移動、生物への移行・濃縮に及ぼす化学形の持つ役割につき論じられてきた。放射性核種は最終的に人体に取り込まれて、器官・組織に放射線のエネルギーを与える。稀これに線量制限の概念を加えて、環境放射能による人体の被曝線量の評価が行なわれる。全体は、放出源・線源情報、環境・生態系情報および人体情報から構成される。放射性核種の化学形あるいはもう少し広くとらえるなら存在状態は、線源情報のひとつと考えられる。

1. 放射性核種の人による摂取、代謝および残留^{りゅう}に及ぼす化学形・存在状態の影響

経口摂取において放射性物質の化学的性質の相異が関与する生物学的過程は第一に胃腸管からの吸収である。吸入の場合は、放射性物質の物理的性質（粒子のAMAD）および化学的性質はそれぞれ呼吸器各部への沈着とそこからのクリアランスに影響する。いったん体液・血液中に取り込まれた放射性核種は、各器官・組織に移行・沈着し残留する。組織内分布もまた Microdosimetry の観点から問題となる（骨中のアルファ放出核種など）。

2. ICRP Publication 30の代謝モデルと化学形

線量制限体系における化学形の考慮の一例として、ICRP Publication 30に採用された代謝モデルのパラメータをいくつかの元素について表1に示す。(2) これらはいくまでも職業環境における作業員（主として欧米人）の防護を目的として設定されているものである。

経口摂取と吸入における放射性物質の化省形の影響について Publication 30は、旧勧告 Publication 2と比較するとはるかに具体的に記載している。(3) 胃腸管からの吸収割合 f_1 の値の設定には、フォールアウト核種などの人体におけるデータを利用されているが⁴ (Sr, Cs, I その他)、多くの元素については動物での値に基いている (Ce, Pu, Am その他)。Sr の一般的化合物の f_1 は0.3, Cs, I の化合物の f_1 はすべて1としている。硝酸 Pu および酸化 Pu ・水酸化 Pu の f_1 の値は、それぞれ 1×10^{-4} および 1×10^{-5} と解釈される。

3. 一般環境における元素の人体代謝と化学形

一般環境における公衆の被曝線量の推定・評価の観点からは、Publication 30の設定値をそのまま用いることには無理があるので、より現実に近い代謝パラメータが要求されている。(4,5)

Pu の血液から組織への沈着割合は、人体器官・組織の ²³⁹Pu 分析データ (McInroy らによる

表1 放射性核種の作業者による摂取における化学形などの考慮

(ICRP Publication 30より抜萃)

元素名 質量数	経口摂取		吸入		体内分布と残留		
	化合物	胃腸管吸収率	化合物	吸入クラス	組織	沈着率	生物学的 半減期
Sr 80,81,83, 85m,85, 87m,89 90,91,92	水溶性塩類	0.3	SrCl ₂ など	D	ちみつ骨	*	†
	SrTiO ₃	0.01 (人)	SrTiO ₃	Y	骨 梁		
I 129,130, 131,132, 132m,133, 134,135	通常のヨウ素化 合物すべて	1 (人)	ヨウ素化合物 すべて	D	甲状腺	0.3	120日
					→ その他の組織	有機態	
					→ 移行コンパ ー トメント	無機態	0.9
					→ 糞中排泄	0.1	
Cs 125,127 129,130 131,132 134,134m 135,135m 136,137 138	CsCl を含むセ シウム化合物す べて	1 (人)	セシウム化合 物すべて	D	組織コンパ ー トメント 1	0.1	2日
					組織コンパ ー トメント 2	0.9	110日
Ce 134,135 137,137m 139,141 143,144	セリウム化合物 すべて	3×10 ⁻⁴ (動物)	酸化物,水酸 化物,フッ化 物 その他のセリ ウム化合的	Y	肝臓	0.6	3500日 (9.6年)
					脾臓	0.05	
				W	骨	0.2	
					その他の組織	0.15	
Pu 234,235 236,237 238,239 240,241 242,243 244,245	酸化物,水酸化 物	10 ⁻⁵	PuO ₂	Y	肝臓	0.45	40年
					骨	0.45	100年
	その他の通常の プルトニウム化 合物すべて	10 ⁻⁴	その他のプ ルトニウム化 合物すべて	W	精巢	3.5×10 ⁻⁴	永久 残留
					卵巣	1.1×10 ⁻⁴	
Am 237,238 239,240 241,242m,242,243 244m,244,245 246m,246	アメリシウム化 合物すべて	5×10 ⁻⁴	酸化物を含む アメリシウム 化合物すべて	W	肝 臓	0.45	40年
					骨	0.45	100年
					精 巢	3.5×10 ⁻⁴	永久 残留

*、†)ICRP Publication 20 参照

169例) を考慮するとかなり修正する必要がある⁶⁾。それによれば、骨 70%、肝臓 30%、脾臓 1%、肺 0.2%、排泄 0.8% である。また、肝臓における Pu の生物学的半減期は、McInroy らによる米国一般人集団より得られま剖検試料の ^{239,240}Pu データから、表 1 の 40 年よりかなり短いことが示唆されている⁷⁾。

Pu の人における f_1 のラフな推定が試みられた。異なる集団に関するフォールアウト Pu の吸入および経口摂取による取り込み量と、体内負荷量とをそれぞれ比較することによって、食物に含まれる Pu の胃腸管吸収率を求めたもので、 $f_1 = (8 - 9) \times 10^{-4}$ という推定値が得られた⁸⁾。これはラップランドのトナカイ肉常食者集団と南フィンランドの通常の集団を対象としたもので、推定の基礎となった試料数が小さいため確からしさについては何も言えないが、ICRP の硝酸 Pu に対する設定値 1×10^{-4} よりは大きい。植物性食品の常成分であるフィチン酸の存在でラットにおける Pu の胃腸管吸収率が顕著に増加する (約 1×10^{-3})⁷⁾。

これらの報告は、いずれも天然の有機物と結合または共存する Pu の f_1 に関する情報を与えている。動植物体に取り込まれた Pu の価数は有機物と結合し易い 4 価と考える根拠があるが、胃腸管吸収率は Pu の価数 (主として 4 価と 6 価) にかかわらずほぼ同一の値を示すことがすでにわかっている¹⁾。

英国の NRPB は公衆に対する被曝線量評価のため、アクチノイドの f_1 を設定している。それによると、Pu, Am, Cm については成人で 5×10^{-5} 、0~12 歳で 5×10^{-3} 、新生児で 1×10^{-2} となることが仮定されている。Np の f_1 の値は、3 年令群に対してそれぞれ 1×10^{-3} 、 5×10^{-3} 、および 1×10^{-2} である¹⁰⁾。これらの値を用いて、英国北部 Sellafield の住民に対する再処理施設起源のアクチノイドからの海産食品経路による実効線量当量が推定されている。

ICRP のヨウ素代謝モデルは、日本人に対しては作業者といえども適用できないことがよく知られるようになってきた。標準日本人における経口摂取された放射性ヨウ素の甲状腺への沈着割合および甲状腺における生物学的半減期の値は ICRP 標準人のそれと比較すればかなり小さいことが明らかとなった (それぞれ 0.15 および 35 日)。^{4,11,12)} 日本人の日常の安定ヨウ素摂取量 (1 日あたり 500~1000 μg) は、欧米人の標準 200 μg に較べて大きいこと、⁴⁾ 甲状腺で合成されたモノおよびジォードチロシンの脱ヨウ素化で生ずる遊離ヨウ素が再利用されないことがその原因であることがわかっている¹³⁾。

Sr の食餌から人骨への移行率 Transfer factor は、代謝的挙動の類似した Ca を基準とする Observed ratio で表わされる。安定 Sr 分析によれば、日本人における値は 0.12 で、欧米人に対する値 0.25 より明らかに小さい。現行のいわゆる C.F. 法による被曝線量評価のもとでは、^{3,14)} 日常食経路の ⁹⁰Sr による骨線量寄与は約 2 分の 1 としなければならないであろう。

おわりに

吸入および経口摂取による放射性物質の人体への取り込みと代謝に関するデータの蓄積が重要である。ICRP の線量制限体系の日本人への適用に関しては、わが国の現実に則した代謝パラメー

タの確立が急務であるとともに、多くの課題が残されていることを指摘したい。そのなかには、年齢の影響その他が含まれており、研究の方法論として放射性核種の分析測定と安定体分析とを組み合わせた解析が有効であると考える。

参考文献

- 1) 河村日佐男, 田中義一郎: 環境中の Pu-239 の人体への移行. 日本原子力学会誌, **22**, 519~529, 1980.
- 2) ICRP Publication 30, Part 1, Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, *Annal. ICRP*, **2** (3/4), 1979.
- 3) ICRP Publication 2, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation, Pergamon Press, Oxford, 1960.
- 4) Tanaka, G., Kawamura, H. and Nakahara, Y.: Reference Japanese Man I. Mass of organs and other characteristics of normal Japanese. *Health Phys.* **36**, 333-346, 1979.
- 5) International Commission on Radiological Protection, Statement from the 1983 Washington Meeting of the ICRP, *Annal. ICRP* **14** (1), i-vii, 1984.
- 6) Thomas, R. G., Healy, J.W. and McInroy, J.F., Plutonium partitioning among internal organs, *Health Phys.* **46**, 839-844, 1984.
- 7) Taylor, D.M.: The retention of plutonium and americium in liver: an interspecies comparison, "Radiation-Risk-Protection", Compacts Vol. 1 of the 6th International Congress of the International Radiation Protection Association, May 7-12, Berlin (West), pp. 431-433, 1984.
- 8) Mussalo-Rauhamaa, H., Jaakkola, T., Miettinen, J.K. and Laiho, K.: Plutonium in Finnish-Lapps-an estimate of the gastrointestinal absorption of plutonium by man based on a comparison of the plutonium content of Lapps and Southern Finns. *Health Phys.* **46**, 549-559, 1984.
- 9) Cooper, J.R. and Harrison, J.D., The influence of phytate and citrate on the gastrointestinal uptake of plutonium by rats. *Health Phys.* **46**, 693-695, 1984.
- 10) Harrison, J.D. and David, A.J.: The gastrointestinal absorption of transuranium elements in animals and the implications for man, "Radiation-Risk-Protection", Compacts Vol. 1 of the 6th International Congress of the International Radiation Protection Association, May 7-12, Berlin(West), pp.427-430, 1984.
- 11) 田中義一郎: Reference Japanese の設定. 日本原子力学会誌, **19**, 674~679, 1977.
- 12) Unhiyama, M., Tanaka, G. and Akiba, S., Radioiodine retention by 2 Japanese male adults after a single oral dose. *J. Radiat. Res.* **23**, 358-370, 1982.
- 13) 甲斐倫明, 日本人の甲状腺における放射性ヨウ素の生物学的半減期に関わる考察. 保健物理, **18**, 3-10, 1986.

- 14) ICRP Publication 29, Radionuclides Release into the Environment: Assessment of Doses to Man, *Annal. ICRP* 2 (2), 1979.

3 生体に摂取された存在形の ^{65}Zn , ^{125}I の胃腸管吸収について

内山正史*

Gastrointestinal Absorption of Zinc-65 and Iodine-125 Incorporated into
Biological Material.

Masafumi Uchiyama

Safety Analysis Unit
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

The gastrointestinal absorption of zinc-65 by man after a continuous intake of oyster or Rocky mountain white fish contaminated accidentally by zinc-65, have been a little or about 3 times higher than that of carrier-free zinc-65 (ZnCl_2) given by ICRP. While, the gastrointestinal absorption of zinc-65 by rat after a single administration of that incorporated into the edible parts of sea clam, the liver or the muscle of young yellowtail was less than, equal to or more than that in the chloride in this order. It might be concluded that zinc-65 incorporated into biological material in some cases is absorbed easier than the chloride and stable zinc in the material works depressingly on the gastrointestinal absorption.

A fraction of iodine-125 found outside dialysis membrane increased with time when a sequential digestion with enzymes *in vitro* was applied to iodine-125 incorporated into biological material. The order of gastrointestinal absorption of iodine-125 incorporated into these samples by rat has a tendency to agree with that for the dialyzable fraction in the *in vitro* digestion.

* 放射線医学総合研究所・総括安全解析研究官付

Experiments would be required to find a general rule between the internal radiation dose from oral intake of radioecologically polluted food by man and its chemical or biochemical forms. For this purpose, a reliable method *in vitro* should be developed to estimate the radionuclide metabolism because of a shortage of manpower to devote this problem. Socio-economical and educational parameters are also important to estimate the dose because they are related to food intake.

はじめに

環境に放出された放射性核種は、物理、化学的に生物に付着・侵透する。また生物的機構で濃縮される場合もある。この生物が食用生物（食品）であるとヒトがこれを経口的に摂取して放射線による内部被曝を受ける。

放射線による職業人の内部被曝を制限する基準として ICRP は放射性物質の年摂取限度とその基礎となった代謝データを示している。このデータは職業環境で遭遇する比較的単純な化学形をもつ放射性物質を少数のヒトあるいは動物に投与して得た数値で構成されている¹⁾。

一般公衆の内部被曝線量を推定する場合に放射性物質の食品中での存在状態は複雑であり、その消化管吸収率を初めとする代謝も ICRP30 の数値と当然異なり、個人差による数値の幅もあることに配慮すべきである。

放射性物質の消化管吸収率について、存在形が及ぼす影響を放射性亜鉛と放射性ヨウ素について述べる。

1. 魚貝類に取り込まれた ^{65}Zn の消化管吸収率

亜鉛は RNA ase をはじめとする多数の酵素の活性化に必須の元素である。亜鉛は、またインシュリンの例のように酵素の構成成分に組み込まれる場合もある。その欠乏と疾病、生育の必要量等の栄養学的知見は多い。フィチン酸等の錯形成化合物の存在、多量の非放射性同位元素（安定 Zn）ならびに生理学的、化学的に類縁の元素の共存が放射性亜鉛の消化管吸収を抑制する側に作用することも知られている。

しかし食品としての存在形の ^{65}Zn について、消化管吸収率との関連からその内部被曝への影響を観察した例は稀である。

ハンフォードの原子炉冷却水の河川放出で生じた一般公衆の ^{65}Zn 体内蓄積について、内部被曝による障害発生の可能性を検討するために同河の流域と河口に生息する水生生物の摂取実験がおこなわれた。

安定 Zn が多量に共存すると ^{65}Zn の消化管吸収率は低下するのが一般的な現象である。カキは高い安定 Zn 濃度であるにもかかわらず、この一般則に適合しない。すなわち ^{65}Zn を蓄積したカキを連続摂取して生じた ^{65}Zn の全身蓄積量は ICRP2²⁾ で示された安定 Zn の共存しない ^{65}Zn の経口摂取で得た消化管吸収率を用いておこなった推定量より若干高かった³⁾。一方、淡

水魚である Rocky Mountain White fish の安定 Zn 濃度はカキの約1/1000である。これを連続摂取して到達した ^{65}Zn 蓄積量から推定した消化管吸収率は ICRP2 の3倍以上である⁴⁾。カキに存在する ^{65}Zn を摂取した場合よりも高い ^{65}Zn の消化管吸収率であった⁴⁾。

生物に取り込まれた ^{65}Zn の存在状態では、消化管吸収率が $^{65}\text{ZnCl}_2$ 水溶液の吸収率より大きくなる。その修飾される程度は安定 Zn の共存量に逆比例するといえる。

しかし、生物体に取り込まれる ^{65}Zn は、 ZnCl_2 よりも消化管吸収率が高いという一般論は必ずしも常に成立するわけではない。

Table 2 Gastrointestinal absorption of iodine-125 incorporated into various plant and animal material

Material	Gastrointestinal absorption, %
^{-1}I	1.00 ± 0.03
Harigane	0.32 ± 0.11
Aosa	0.71 ± 0.05
Hijiki	0.71 ± 0.04
Tsunomata	0.31 ± 0.08
Soybean plant	0.63 ± 0.06
Kotamagai	0.67 ± 0.07
$^{-1}\text{I}^*$	1.00 ± 0.03
^{-1}I mixed with milk	0.95 ± 0.33

Footnote : * is the control for the absorption of I-125 incorporated into soybean plant and kotamagai.

ラットに経口投与した ^{65}Zn の消化管吸収率について、次に結果を得た⁵⁾。コタマガイに取り込まれた ^{65}Zn は、 $^{65}\text{ZnCl}_2$ よりも消化管吸収率が低い。ハマチに取り込まれた ^{65}Zn は、その肝臓に存在する ^{65}Zn の消化管吸収率は $^{65}\text{ZnCl}_2$ と同等であり、筋肉に存在する場合は高い吸収率であった。第1表に示したように、試料間の安定 Zn 濃度は同等である。したがって、生物組織との共存・結合の様態に依存して ^{65}Zn の消化管吸収率に差異が出現したものと考えられる。

2. 生物に取り込まれた ^{125}I の消化管吸収率

放射性ヨウ素の消化管吸収率は安定ヨウ素の共存量、放射性ヨウ素を摂取する前の安定ヨウ素の摂取量等に強く依存し、多量の安定ヨウ素は放射性ヨウ素の消化管吸収率を抑制する方向に作用する。

一方、放射性ヨウ素を取り込んだ生物を、*in vitro* で消化酵素を用いて逐次処理して、生理的食塩水へ透析すると、生理的食塩水中に検出される放射性ヨウ素の量は消化過程の進行とともに増加するのが一般的傾向である。しかしその消化過程の進行にともなう検出量の増加する様態は生物種間で差異があった。この放射性ヨウ素を取り込んだ生物をラットに投与すると、その消化管吸収率に差異のあることを観察した⁶⁾。逐次消化の結果、生理的食塩水中に検出した ^{125}I 積分値の消化前の ^{125}I 存在量に対する割合と、ラットによる消化管吸収率の関係を、それぞれ NaI の

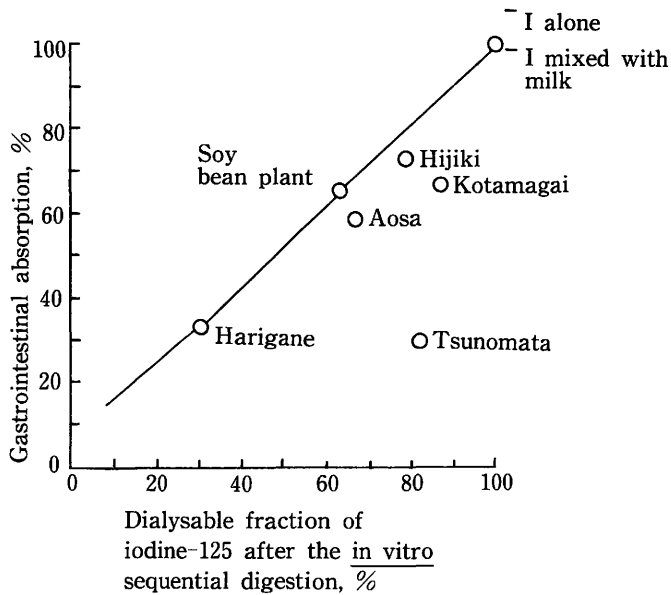


図 1

Table 1 Gastrointestinal absorption, concentration of Fe and Zn and body constituents.

Biological samples tested (order in absorption)	Concentration, ppm		Body constituents		
	Fe	Zn	protein	lipid	ash
kotamagai (^)	24	10	—	—	—
Control	24	10	—	—	—
Hamachi, liver (.H)	42	3.9	8.1	8.1	0.63
Control	43	3.9	0	0	0
Hamachi, muscle (v)	42	4.9	17	12.4	1
Control	43	6.1	0	0	0
White fish (v)	—	—	—	—	—
Oyster (v)	36	160—270	9.7	1.8	1.6
ZnCl ₂	—	—	—	—	—

¹²⁵I を用いた結果の相対値で表して、第 1 図に示した。比例関係の成立する傾向が認められる。取り込まれた ¹²⁵I の組織との結合の強度を消化酵素への耐性で評価すると、生物種により差のあることが示唆された。第 2 表に放射性ヨウ素を取り込んだ生物をラットへ経口投与したときの消化管吸収率を、¹²⁵I の場合の相対値で示した。¹²⁵I の消化管吸収率はほぼ 100% である。

おわりに

ヨウ素と亜鉛は栄養学、生理学的に体内代謝に関する知見は豊富である。しかし食物連鎖を介して放射性ヨウ素、放射性亜鉛を経口摂取して受ける内部被曝線量を推定するための情報は著しく不足している現状である。消化管吸収率に限定しても、関与する要因は多い。モデル食品生物を設定して、この生物を経口投与した後のキネティクスのみをもって、食用生物を摂取することで受ける内部被曝の推定をおこなうことは不可能である。放射性物質を取り込んだ多種類の生物について経口投与実験をおこない、蓄積したデータから胃腸管吸収率と存在形に関する一般則が導き出されることになると考えられる。しかしこの範疇に入る動物実験には、多大の人的労力が必要であるので、現状では急速に推進することはきわめて困難である。

残留率をも含めて、この要因に関する *in vitro* 実験系の確立が、線量推定の可能性と信頼性に関して重要である。

また、内部被曝線量は経口的に摂取する放射性物質の量と代謝および体格で決定されるので、放射性物質の放出から食品に到達するまでの放射生態学的挙動や生物学的挙動は重要な因子である。一方、ヒトが社会的動物であることにより、食品の流通に関する経済的因子、食品の選択に反映される文化・教育に関する因子、さらに人口構成なども経口的に摂取された放射性物質による内部被曝の推定におよぼす存在形の影響を評価する上で、考慮しなければならない因子である。

参考文献

- 1) 日本アイソトープ協会訳：作業員による放射性核種の摂取の限度。ICRP Pub30, 1980.
- 2) 日本放射性同位元素協会訳：体内放射線の許容線量。ICRP Pub2, 1960.
- 3) Honstead, J.F. and Hilderand, P.W.: Uptake and Retention of Zinc-65 from Certain Food, *Health Physics*, **13**, 649-652, 1967.
- 4) Honstead, J.F. and Brady, D.N.: The Uptake and Retention of ^{32}P and ^{65}Zn from The Consumption of Columbia River Fish. *Health Physics*, **13**, 455-463 1967.
- 5) 内山正史, 白石義行, 湯川雅枝, 岡林弘之, 市川龍資：同時投与された放射性 Co, Mn, Zn よ比較代謝と生物同化型投与による修飾。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, NIRS-M-49, 104-112 1983.
- 6) 内山正史, 白石義行, 湯川雅枝, 岡林弘之, 市川龍資：生物同化型ヨウ素の代謝。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研究」(昭和53年～57年度)最終報告書, NIRS-M-49, pp. 97-103, 1983.

4 調理操作による食品中のヨウ素の 除去効果について

住 谷 みさ子*

Removal of Radioiodine from Leafy Vegetables and Algas by Cooking.

Misako Sumiya

Division of Radioecology
Laboratory for Radioecology, NAKAMINATO
National Institute of Radiological Sciences

Abstract

Removal of radionuclides from dietary food by cooking is one of the important factor to estimate the internal radiation dose through daily foods. In this paper, removal of radioiodine from leafy vegetables and algae by cooking are discussed.

Spinach, *spinacea oleracea*, and komatsuna, *Brassica Rapa Var prividis*, were transplanted to culture solution with $^{131}\text{I}^-$. After 24 hours adsorption those vegetables were submitted to cooking, that is, washing with water and boiling with 0.5% NaCl solution and then washing with water again for removing the harshness. In addition, spinach, exposed to gaseous CH_3I and I_2 for 6 hours in a exposure chamber, were also examined. Percentage removal obtained was as follows ; 60 to 80% for I^- and CH_3I , while only 30% for I_2 . Significant differences was not observed between spinach and komatsuna.

Sea algar are commonly used for Japanese dishes. They are commercially sold as dried or half-dried algae. Therefore, they are steeped in water before cooking. Loss of iodine from algae during the steeping procedure was examined. The loss rates

* 放射線医学総合研究所・環境放射生態学研究部

obtained were 5% for wakame, *Undaria pinnatifida*, (steeping time : 6min.), 19% for Hijiki, *Hijikia funciform*, (steeping time : 30min) and 72% of Tangle, *Laminariaceae*, (steeping time : 15min) respectively.

はじめに

食品に含まれる放射性物質からの、人の内部被曝線量を計算する場合、調理加工による放射性物質の除染効果は、無視することのできないパラメータの一つである。我々は、調理によるRIの除染効果に関しての仕事が続いているが、放射性ヨウ素に絞って述べる。

大気中に放出された放射性ヨウ素の critical pathway は、我が国の場合、ホウレン草、小松菜などの非結球性の葉菜であると考えられている。葉菜の最も popular な食べかたは、『お浸し』であるが、葉菜にヨウ素が、取り込まれる時の化学形によって、お浸しにした時の除染率が異なる¹⁾。そして、その除染率の違いがそのまま被曝線量にはねかえる。

一方、放射性ヨウ素が沿岸放出された場合を考えると、放射性ヨウ素は海藻類に濃縮されるが、海藻の種類によっては濃縮されたとしても、その全量が人間の代謝経路に入るとは限らない²⁾。今回コメントとして、この2つの問題について実験の一端を述べる。

1. 葉菜にヨウ素が取り込まれる時の化学形によって、お浸しにした時のヨウ素の除染率が異なるという実験結果について紹介する。

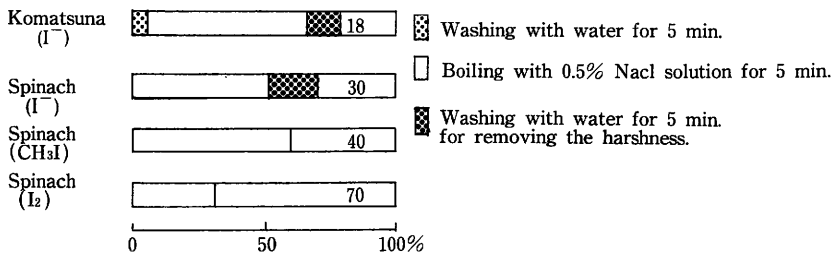


Fig. 1 Percentage removal of radioiodine from leaf vegetables by washing and cooking

Fig. 1 に、お浸しを作る時の手順、および放射性ヨウ素を含む葉菜を先の方法で調理した場合の、葉菜からの除染率を示した。グラフ上の数字は葉菜に最終的に残ったヨウ素のパーセンテージである。一番上は小松菜、下の3本は、いずれもホウレン草についての実験結果である。小松菜は、水耕液に iodine-131 をヨウ素イオンの形態で添加し、24時間経根吸収させて得られたものを先の手順で調理した結果である。小松菜に残ったヨウ素の量は、18%であった。つまり、お浸しにすることにより80%強のヨウ素が除去されたことになる。ホウレン草の場合では、最初の棒グラフは、小松菜の場合と同様、ヨウ素イオンの形で経根吸収させた場合で、次の2つはガス状のヨウ化メチル及びI₂の雰囲気の中に、ホウレン草を6時間放置し、ヨウ素を葉面吸収させた場合である。このような方法で、ヨウ素を取り込ませ、お浸しにすると、Fig. 1 に示したように、除染率が異なる。特にI₂で葉面吸収させた場合はかなりのヨウ素が除染されずにホウレ

ン草に残る。この事実は調理による除染率を一律に適用する訳にはいかないことを示唆している。被曝線量を予測する上で一考を要する問題であると考える。

2. 次に沿岸放出された放射性ヨウ素, 特に半減期の長い iodine-129 の海藻からの摂取について実験の一端を紹介する。この実験は, 本来, 海藻中の安定ヨウ素の利用性を調べるために行ったものだが, iodine-129 の場合に当てはめても差し支えないと考える。

Table. 1 にワカメ, ヒジキ, コンブを水に浸けた場合, 溶出してくるヨウ素のパーセンテージを示した。この溶出時間は, それぞれの市販されている乾物を, 煮る前に柔らかくするための調理時間である。

Table 1 Extraction of iodine from algae by water

Algae	Steeping time (min.)	Rate of extraction (%)
Wakame	6	5
Tangle	15	72
Hijiki	30	19

ワカメを水に浸けて, 6分間放置した場合, その5%位しか水に出てこないが, ヒジキの場合は30分で19% コンブの場合は15分間で70%のヨウ素が水にとけ出す。なお, コンブからだしをとる時には12~24時間位水に浸けるか, 水から入れて沸騰するまで煮るか, いずれかの方法がとられるが, その場合ヨウ素の水への溶出率は, とともに約80%であった。Table. 2に, 母乳中の安

Table 2 Iodine contents in human milk in relation to intake of the element by nursing woman through algae

Subject (age)	Days after delivery	Iodine content (ug I /l)	Iodine inke (mg I) 24hr prior to sampling from	
			Tangle	Other algae
A (33)	51	100	0	0.1
	52	6430	32	0.8
	53	367	0	0.2
	54	135	0	0.1
B (28)	39	84	0	0.1
	40	133	0	3.9
	40	147	0	3.9
	41	113	0	0.1
C (30)	61	476	2	1.7
	61	407	2	1.2
	61	337	2	1.2
	62	352	2	1.2

定ヨウ素濃度と海藻摂取量との関係を示した。case Cは約4mgのヨウ素をコンブ以外の海藻から摂取した場合、case Bは2mgのヨウ素をコンブ（コンブのだし汁）から、1.2mgのヨウ素をコンブ以外の海藻から摂取しているが、コンブ以外の海藻を食べても母乳中の安定ヨウ素濃度はbackground levelの100~150 μ g/l程度であったが、コンブのだし汁、またはだし汁ごとコンブを食べた場合（トロロコンブの場合でも）例外なく母乳中の安定ヨウ素濃度が上昇している。つまり、放射性ヨウ素がワカメから取り込まれてもあまり人体の代謝系には入らないけれども、コンブ中に取り込まれたiodine-129は人体に取り込まれ易いと推測される。

おわりに

今後、ヨウ素以外の放射性核種に関しても化学形を加味した調理加工による除染効果について詰める必要があると考える。

参考文献

- 1) Sumiya, M. Muramatsu, Y. Uchida S. and Yanagisawa K. : *J. of Radiat. Res.*, **25**, 12, 1984.
- 2) Muramatsu, Y. Sumiya M. and Ohmomo Y. ; *Hoken Buturi*, **18**, 113-117, 1983.

5 生体試料中の微量元素の分析 にかかわるいくつかの問題点

森 田 昌 敏*

Problems in the Determination of Trace Elements in Biological Samples

Masatoshi Morita

National Institute for Environmental Studies

Abstract

In discussing biological accumulation of trace elements, two points, accurate measurement of trace elements and determination of chemical form, have been important. As to accurate measurement, preparation and evaluation of certified reference materials is discussed. Contamination and systematic error due to the difference of analytical method are one of the sources of inaccuracy. Analytical results of human serum and hair reference material are collected for 20 laboratories and shown in the table. A new method for characterization of trace elements in biological samples is proposed. The method is to use inductively coupled plasma atomic emission spectrometry for the detector of high performance liquid chromatography. Application data to human serum is shown.

1 はじめに

微量元素の生体内蓄積を議論するにあたって、2つの点が重要と考えられる。一つはその元素の量が正確に測定されるか否かである。もう一つは、元素の形態（化学形）を明らかとする必要

* 国立公害研究所

があることであろう。もちろんこれ以外にも、生体側の要因にも注目すべき点はあるが、一応この2点の重要性は疑いのないところであろう。

元素の量の正確な測定は、常に分析化学上の課題ではあるが、特に生体試料において難しい。難しい理由は、生体にとって必要な元素は比較的高い濃度で含まれているが、不必要な、或は少量しか必要でない元素は、非常に濃度が低く、そして生体試料自身は相当複雑なマトリックスといえるためである。

もう一つの課題である生体試料中の元素の化学形に関する研究は、更に複雑な現象を対象としており、わずかな研究が進んでいる状況といえよう。この両者の点に関し、筆者の若干の経験を書き記述することとする。

1 生体試料中の微量元素分析の問題点

生体試料中の微量な元素の正確な濃度を求めることは容易ではない。分析の確度と精度を高めるためには、分析法をみがいでいくだけではなく、適当な標準資料を用いてのチェックが必要となる。国立公害研では、人血清および人毛髪の種類2種類の標準試料を調製し、国内の信頼度の高い約20の研究機関に依頼して共同分析を行っている。

人血清は、臨床検査センターで検査に用いられたあとの血清をプールし、冷凍保存しておいたものを用いて調製した。解凍後、0.45 μ のメンブランフィルターでろ過し、5mlづつ瓶詰にした後、凍結乾燥し、 γ 線(C_{60})照射したものである。分析結果の例を表1に示す。

同位体希釈分析法による分析の結果、一部元素について、有意な不均一さが認められたが、比較的多く含まれる元素については、おおむね良好な値が得られている。比較的多くとは、大概1ppm付近と言えよう。このように分析値がある程度収束し、いくつかの原理の異なる分析法で一致する場合は、標準値を定めることが可能となる。受認できる誤差を考慮して、一応の保証値を認定することが可能な元素はCa, Cu, Fe, K, Mg, Na, P, Zuの8元素である。

これ以外の元素は、原理の異なる三つの分析法で値が求められないか、あるいは測定値の誤差が大きすぎるため保証値を得られなかった。一般にppbオーダーで含まれてくる元素の分析は極めて困難である。おそらく、このあたりが現在の分析化学の限界を表わしているであろう。また血清という試料が、多量の無機塩と蛋白質を含み、且つ有害性金属等をほとんど含まない。極めて分析の難しい試料であることも指摘される。

毛髪は、血清に比較して重金属等の分析の易しい試料である。その理由は、NaやK等の塩を多量には含まないこと、微量金属が濃縮されていることが挙げられる。一方毛髪分析は、標準試料が得がたいこともあって、余り精度管理面で十分であるとは言いがたかった。国立公害研究所で作製した試料は、毛髪をメノウのボールミルでくだいたものである。メノウの粉が若干混入したという問題点があるが、一応使用にたえるものである。共同分析の結果は表2に示すようなものとなった。

Al, Ca, Cu, Fe, Hg, K, Mg, Mu, Na, Ni, Ti, Zuについては原理の異なる三つの分析法

表1 人血清 (NIES NO. 4) の分析値の分布

Element	Value		Technique	Element	Value		Technique		
Ag	(1.32)	ppb	IDMS	Cl	2680	ppm	INAA		
Al	0.30	ppm	AAS	3200			POT		
	6.83		INAA	3400			POT		
	4.5		INAA	3276			INAA		
	0.59		INAA	3000			INAA		
	1.5		INAA	2360			INAA		
			INAA	2850			INAA		
Au	0.00600	ppm	INAA	3000		INAA			
Ba	(0.51)	ppm	INAA	Co	2.66	ppb	AAS		
	0.62		ICP	1.0	INAA				
Br	8.28	ppm	INAA	0.7			INAA		
	4.3		POT	7.7			INAA		
	6.47		INAA	Cr			2.50	ppb	AAS
	6.8		INAA	4.5			INAA		
	3.7		INAA	3			INAA		
	8.1		INAA	Cs			(1.1)	ppb	INAA
Ca	360	ppm	INAA	0.81			INAA		
	76.8		SMAC	0.8			INAA		
	75.6		AAS	Cu			0.77	ppm	AAS
	74.5		AAS	0.90			AAS		
	76.6		SP	1.09			AAS		
	88.2		AAS	(1.04)			IDMS		
	71.4		AAS	1.02			AAS		
	86.8		AAS	1.02			AAS		
	77.9		AAS	1.06			AAS		
	75.3		ICP	0.98			ICP		
	79		ICP	1.03			AAS		
	76		ICP	1.11			ICP		
	81.9		AAS	1.04			ICP		
	81.8		FES	1.03			AAS		
	79.5		ICP	1.04			ICP		
Cd	(1.74)	ppb	IDMS						
	1		AAS						
	0.43		AAS						

表1 人血清 (NIES NO. 4) の分析値の分布 (続き)

Element	Value		Technique	Element	Value		Technique	
Fe	1.06	ppm	AAS	Mo	3.59	ppb	AAS	
	1.13		AAS					
	1.6		INAA					
	1.08		AAS					
	1.1		AAS					
	1.0		INAA					
	1.10		ICP					
	1.06		INAA					
	1.06		ICP					
	1.06		AAS					
Hg	2.34	ppb	AAS	Na	3188	ppm	INAA	
K	166.6	ppm	FES				3070	FES
	171.9		FES				3120	FES
	164.6		SMAC				3030	SMAC
	182.6		AAS				2735	INAA
	178		FES				3300	INAA
	178		AAS				2720	INAA
	179		AAS				3293	AAS
	167		ICP				2700	INAA
	168		ICP				2980	AAS
	172		FES	3400	AAS			
174	AAS	3060	ICP					
173	ICP	2900	ICP					
Mg	19.2	ppm	AAS	Ni	9.28	ppb	AAS	
	19.3		AAS				50	INAA
	20.7		AAS	P	107.1	ppm	CPAA	
	19.9		AAS				107	SP
	19.6		AAS				108	SP
	19.6		AAS				105	ICP
	19.0		ICP				110	ICP
	19.0		ICP				108	ICP
	18		ICP				103	SP
	20.5		AAS				Pb	(101)
20.4	ICP							
Mn	3.83	ppb	AAS	Rb	8.201	ppm	INAA	
	(6)		RNAA				0.17	INAA
	0.52		INAA				0.32	INAA
	5		ICP				Sb	0.8
Sc	0.13	ppb	INAA					
	0.31		INAA					
	4.1		INAA					

表1 人血清 (NIES NO. 4) の分析値の分布 (続き)

Element	Value		Technique	
Se	0.0415	ppm	SF	IDMS : 同位体希釈質量分析法
	0.110		INAA	AAS : 原子吸光法
	0.094		INAA	INAA : 機器中性子放射化分
	0.25		AAS	ICP : ICP 発光法
	0.18		INAA	POT : ポテンシヨメトリー
	0.082		INAA	SMAC : オートアナライザー (比色法)
Sr	0.05	ppm	ICP	SP : 分光光度法
Tl	(0.38)	ppb	IDMS	FES : フレーム発光法
V	5.18	ppb	AAS	SF : 分光蛍光法
	33		INAA	
	12		ICP	
Zn	0.89	ppm	AAS	
	0.83		AAS	
	0.777		INAA	
	0.63		INAA	
	0.737		INAA	
	0.833		AAS	
	0.89		INAA	
	0.93		AAS	
	0.67		INAA	
	0.88		AAS	
	0.89		AAS	
	0.81		ICP	
	0.93		AAS	
	0.94		INAA	
	0.94		ICP	
	0.92		AAS	
0.91	ICP			

表2 毛髪 (NIES No. 5) の分析値の分布

Element	Value	Technique	Element	Value	Technique	
Br ($\mu\text{g/g}$)	90	INAA	Cu ($\mu\text{g/g}$)	15.9	GFAAS	
	90	INAA		16.7	ICP	
	80.9	INAA		17.4	AAS	
	87	INAA		17	AAS	
	110	INAA		16.7	AAS	
	92	INAA		15.7	AAS	
Co ($\mu\text{g/g}$)	722	ICP		18.5	ICP	
	740	AAS		16.8	AAS	
	707	INAA		15	INAA	
	510	AAS		13.36	GFAAS	
	737	AAS		14.3	IDSIMS	
	730	ICP		16.7	ICP	
	736	AAS		16.1	ICP	
	712	INAA		16.2	AAS	
	750	INAA		16.1	INAA	
	692	IDSIMS		16.2	ICP	
	723	ICP		13.2	ICP	
	780	INAA		Eu ($\mu\text{g/g}$)	0.0028	INAA
	728	ICP			0.00037	INAA
	736	AAS	Fu ($\mu\text{g/g}$)	224	ICP	
	640	INAA		226	AAS	
	719	ICP		233	INAA	
700	ICP	240		AAS		
Cd ($\mu\text{g/g}$)	0.21	GFAAS		224	AAS	
	0.24	AAS		225	ICP	
	0.198	IDSIMS		220	AAS	
	0.23	INAA		198	INAA	
	0.23	GFAAS		136	SP	
Co ($\mu\text{g/g}$)	0.47	INAA		220	INAA	
			230	INAA		

表2 毛髪 (NIES No. 5) の分析値の分布 (続き)

Element	Value	Technique	Element	Value	Technique
Fe ($\mu\text{g/g}$)	228	ICP	La ($\mu\text{g/g}$)	0.27	INAA
	228	INAA		0.26	INAA
	230	ICP		0.21	INAA
	221	AAS		0.184	INAA
	210	INAA	Mg ($\mu\text{g/g}$)	198	AAS
	224	ICP		211	ICP
	217	ICP		206	AAS
Hf ($\mu\text{g/g}$)	0.0106	INAA		244	INAA
Hg ($\mu\text{g/g}$)	3.92	INAA		220	AAS
	4.49	AAS		207	AAS
	3.8	INAA		202	ICP
	4.3	INAA	214	AAS	
	3.91	AFS	350	INAA	
	3.94	AAS	206	ICP	
	3.6	INAA	213	ICP	
	4.8	CVAAS	209	AAS	
I ($\mu\text{g/g}$)	0.82	INAA	220	INAA	
	1.1	INAA	207	ICP	
	0.62	INAA	201	ICP	
K ($\mu\text{g/g}$)	34.6	AAS	Mn ($\mu\text{g/g}$)	5.37	AAS
	34.2	FES		5.3	ICP
	38.7	ICP		5.0	INAA
	38	AAS		5.8	AAS
	50.8	AAS		5.6	AAS
	31	INAA		5.1	INAA
	32.0	IDSIMS		5.49	AAS
	32	INAA		5.1	ICP
	34.5	FES		4.83	INAA
	36	INAA		4.55	GFAAS
	28.3	ICP		6.5	INAA
	35.9	AAS		5.3	GFAAS

表2 毛髪 (NIES No. 5) の分析値の分布 (続き)

Element	Value	Technique	Element	Value	Technique	
Mn ($\mu\text{g/g}$)	4.8	INAA	P ($\mu\text{g/g}$)	168	ICP	
	4.8	ICP		167	SP	
	5.4	INAA		151	ICP	
	5.17	ICP		159	ICP	
	5.06	AAS		168	ICP	
	4.7	INAA		166	ICP	
	5.3	ICP		Pb ($\mu\text{g/g}$)	5.96	IDSIMS
	5.35	ICP			6.31	GFAAS
Na ($\mu\text{g/g}$)	26.0	AAS	Rb ($\mu\text{g/g}$)	0.22	INAA	
	25.9	FES		0.192	IDSIMS	
	26.0	ICP		0.16	INAA	
	26.5	INAA	S (%)	5.8	INAA	
	26	AAS		4.9	INAA	
	26.6	AAS	Se ($\mu\text{g/g}$)	1.50	INAA	
	30.0	ICP		1.26	INAA	
	29.2	AAS		1.25	SF	
	25.1	INAA		1.44	INAA	
	25	INAA		1.4	INAA	
	26.1	INAA		1.29	INAA	
	25.1	FES	Sb ($\mu\text{g/g}$)	0.078	INAA	
	26	INAA		0.071	INAA	
	22.5	ICP		0.08	INAA	
Nd ($\mu\text{g/g}$)	0.3	INAA		0.07	INAA	
	Ni ($\mu\text{g/g}$)	1.85	GFAAS	0.073	INAA	
1.84		INAA				
1.75		IDSIMS				
1.73		INAA				
1.8		GFAAS				

表2 毛髪 (NIES No. 5) の分析値の分布 (続き)

Element	Value	Technique	Element	Value	Technique	
Sc ($\mu\text{g/g}$)	0.052	INAA	Tl ($\mu\text{g/g}$)	0.0216	IDSIM	
	0.0495	INAA		U ($\mu\text{g/g}$)	0.02	INAA
	0.057	INAA	V ($\mu\text{g/g}$)		0.55	INAA
	0.057	INAA			0.51	INAA
	0.046	INAA		0.70	INAA	
0.46	GFAAS					
Si (%)	1.25	INAA	0.56	INAA		
Sm ($\mu\text{g/g}$)	0.016	INAA	1.2	INAA		
	0.0197	INAA	0.67	INAA		
Sn ($\mu\text{g/g}$)	1.6	INAA	0.21	SP		
Sr ($\mu\text{g/g}$)	2.20	ICP	Yb ($\mu\text{g/g}$)	0.025	INAA	
	2.25	IDSIMS		Zu ($\mu\text{g/g}$)	174	ICP
	2.4	ICP	176		AAS	
	3.5	INAA	155		INAA	
	2.24	ICP	170		AAS	
	2.27	ICP	176		AAS	
Ta ($\mu\text{g/g}$)	0.0064	INAA	171		AAS	
Tb ($\mu\text{g/g}$)	0.0034	INAA	185		ICP	
Th ($\mu\text{g/g}$)	0.034	INAA	170		AAS	
	0.022	INAA	141		INAA	
Ti ($\mu\text{g/g}$)	23.0	ICP	154		INAA	
	20	INAA	162	IDSIMS		
	22.1	ICP	160	INAA		
	25.0	ICP	165	ICP		
	22	INAA	167	INAA		
	19.9	SP	168	ICP		
	22.8	ICP	171	AAS		
	19.4	ICP	164	INAA		
		150	ICP			
		169	ICP			
		175	AAS			

で一応一致した値が得られている。これら以外の元素については、現在の段階では確度を決定できるほど十分な分析技術がそろっていないといえるかも知れない。

十分に確度を検討しえない場合というのは、両立しうような原理の異なる分析法が得られないということに起因することが多い。そしてこれは、大ざっぱにいて 1ppm 以下の濃度の元素について起りやすい。確度を保証できなくても、選択性の高い手法で分析することは可能であり、現実にはそのような手法で研究が進行していることは確かである。しかし、精度管理の重要性は明らかである。

分析の誤差の要因として、共存物質の妨害と実験操作上の汚染が大きい。特に後者については特に気をつける必要がある。生体中の微量元素は、しばしば非常に低濃度なためである。例として血清中の Cr の値が挙げられよう。

血清中の Cr 濃度は、20年程以前には、正常人中で数 10ppb の濃度で含まれているとされていた。10年程前には、その値は数 ppb 程度ではないかとされ、最近では 0.1ppb 付近か、それ以下ではないかと考えられはじめている。ステンレス針の注射器で血液を採取すると、ステンレスからの Cr の溶出がおこり、桁違いの分析値を示すことが明らかとなり、最近の方法では、血管に刺し込んだプラスチックチューブから採血しなければならないとされる。

このようなサンプリングに際しての汚染の他に、試料の分解処理過程でしばしば発生する。例えば配分解処理を行うときには、クリーンベンチの内で、テフロン製の容器を用い、非沸騰型蒸留器で蒸留精製した酸を用いて分解するのがよい。室内の降下物は、生体試料の分析値に決定的ダメージを与える場合がある。

実験室環境を整備し、また実験操作上にはいり込む汚染を最小とすることは、Good Laboratory Practice (GLP) と呼ばれるが、精度管理上の有効な手法である。

最後に、分析手法によって系統的誤差が存在することも指摘されよう。これは生体試料や、土壌、底質の試料のような複雑なマトリックスで起りやすい。原理の異なる複数の分析法で分解したとき、両者の分析値の不一致から気づくのであるが、一つの分析法だけで値をだしている場合は要注意といえよう。

2 生体中の元素のキャラクタリゼーションについて

生体中の元素は、単にその濃度だけでなく、その化学形態や機能についても記述されるべきであろう。化学形態を記述することは、容易ではなく、それに利用できる分析手法も限られている。ここでは HPLC/ICP 法について報告する。本法は高速液体クロマトグラフの検出器として ICP を利用するもので、ICP の元素選択状検出能が生かされている。

図 1 に標準タンパク質の分離検出例を示す。分離条件は、カラムに Toyo 3000sw を用い、塩化ナトリウム水溶液 0.17M のものを用いて展開する。カラムの出口を ICP のネブライザーの吸入部に接続し、1 分間 1ml の流速で送り込む。ICP のプラズマ条件は出力 1.25kw、クーラントアルゴンガス流速 18l/min、サンプルガス 0.5l/min、ネブライザーはジャーレルアッシュ製クロ

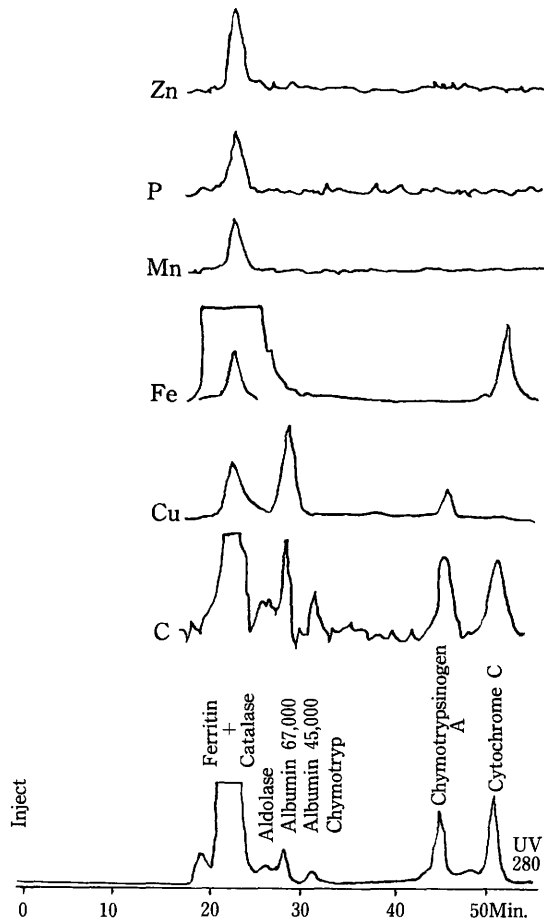


図1 分子量標準ヌレパクのクロマトグラムタレパク

スフロー型である。また発光線の波長は、C (247.6nm), Co (228.6nm), Cu (324.9nm), Fe (259.9nm), Mu (257.6nm), P (241.9nm), Zu (213.8nm) であった。

用いたカラムは分子篩クロマトグラフ用のものであり、分子量の大きいものから順に溶出してくる。本法により、分子量、UV 吸収特悦、元素組成が同時に得られる。特に金属を含むような生体高分子の分析には有効と考えられる。

図2に示したものは、人血清のクロマトグラムである。保持時間20分の手前に現われているピークは、排除限界を越す分子量にあるものなどを含んでおり、IGM, α_2 マクログロブリン, α_1 リポプロテイン, β -リポプロテイン等を含んでいる。30分のあたりに出るピークはIGG, 34分あたり最大のピークはアルブミンである。

これらの主要なタンパク質のピークに対応して、Cu, Fe, Zuの3種類の元素が存在しているかは興味深い。CuはIGGとは少し異なる位置にピークをもち、セルロプラスミンとして存在していることがわかる。また、それ以外の血清タンパクとは結合していないことも明らかである。

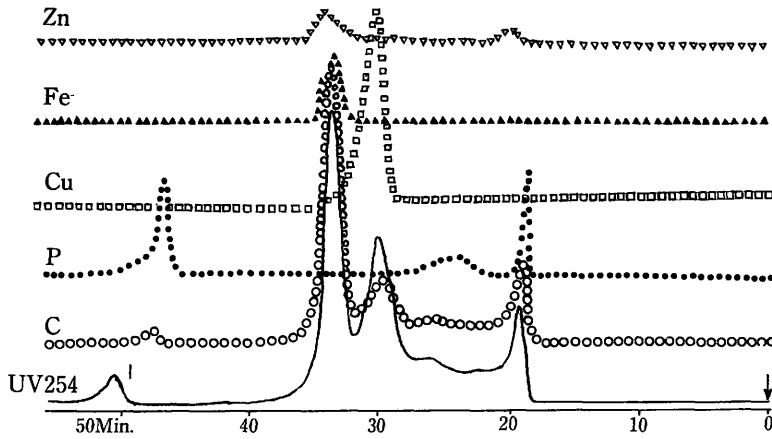


図2 人血清のクロマトグラム

また Fe はアルブミンより少し前に溶出し、トランスフェリンとして存在していることがわかる。Cu と同じく、他の蛋白とは結合していない。一方亜鉛は主として二つの蛋白（アルブミンおよび最初の大きな蛋白）と結合しており、ごく少量は IGG と結合していることがわかる。即ち、Fe と Cu は専用のキャリア蛋白として存在しているのに対し、Zn は特定のキャリア蛋白をもたずに、アルブミン等と弱く結合しているように思われる。

図3 はセルロプラスミンの安定性を示している。最下段のプール血清は、 -20°C 以下に凍結保存されていたもの、中段の凍結乾燥血清は、和光純薬製のコントロール血清で冷蔵保存されていたもの、そして最上段は国立公害研凍結乾燥血清（NIES No4）で、室温で保存されたものである。本来存在すべきセルロプラスミンが一部又は全部分解し、アルブミンと再結合していることがわかる。このような現象を追跡する上で HPLC/ICP の手法は明らかに有効である。

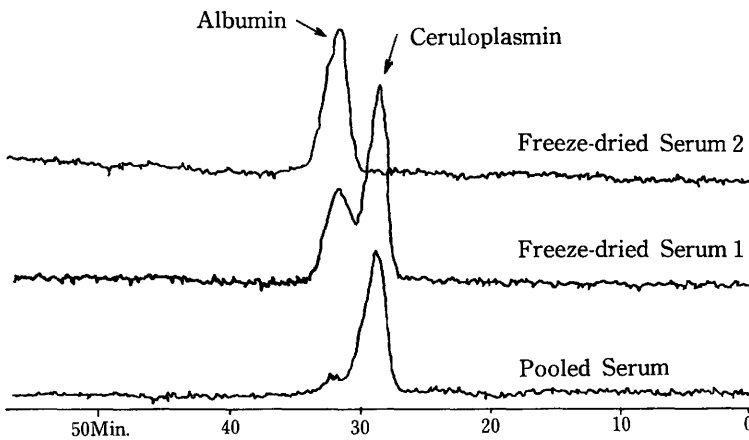


図3 凍結乾燥血清のクロマトグラム

生体中の元素のキャラクタリゼーションを比較的簡単に行なおうとすると、このようなクロマトグラフと元素分析法を結びつけた混成法（ハイブリット法）により行うことが出来る。このような方法として、LC/原子吸光法，LC/中性子放射分析，LC/けい光 X 線などが考えられるし、またいくつかの報告が存在する。また局所分析として、電子顕微鏡/けい光 X 線，PIXE やレーザープローブ質量分析法があり、一部成果を挙げつつある。今後の重要な研究課題といえよう。

IV 総合討論

元素の化学形が人体被曝線量評価に及ぼす影響

Problems on Radiation Dose Assessments under the Influence of Chemical Forms of Radionuclides

座長

佐伯 誠道 (放射線医学総合研究所)

指定発言者

猿橋 勝子 (地球化学研究協会)

伊沢 正実 (日本原子力発電株式会社)

小林 定喜 (放射線医学総合研究所)

丸山 隆司 (放射線医学総合研究所)

渡利 一夫 (放射線医学総合研究所)

発言者

池田 長生 (筑波大学化学系)

市川 龍資 (放射線医学総合研究所)

熊沢喜久雄 (東京大学農学部)

上田 泰司 (放射線医学総合研究所)

河村 正一 (放射線医学総合研究所)

滝沢 行雄 (秋田大学医学部)

本田 嘉秀 (近畿大学理工学部)

熊沢 蕃 (日本原子力研究所)

福田 整司 (動力炉核燃料開発事業団)

PANEL DISCUSSION—Problems on radiation dose assessments under the influence of chemical forms of radionuclides.—

Chairman :

Masamichi Saiki (National Institute of Radiological Sciences)

Panelist :

Katsuko Saruhashi (Geochemistry Research Association)

Masami Izawa (Japan Atomic Power Company)

Sadayoshi Kobayashi (National Institute of Radiological Sciences)

Takashi Maruyama (National Institute of Radiological Sciences)

Kazuo Watari (National Institute of Radiological Sciences)

Commentator :

Nagao Ikeda (Institute of Chemistry, University of Tsukuba)

Ryushi Ichikawa (National Institute of Radiological Sciences)

Kikuo Kumazawa (Faculty of Agriculture, University of Tokyo)

Taishi Ueda (National Institute of Radiological Sciences)

Shoichi Kawamura (National Institute of Radiological Sciences)

Yukio Takizawa (Faculty of Medicine, Akita University)

Yoshihide Honda (Faculty of Science and Technology, Kinki University)

Shigeru Kumazawa (Japan Atomic Energy Research Institute)

Seiji Fukuda (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

総 合 討 論

元素の化学形が人体被曝線量評価に及ぼす影響

はじめに

佐伯誠道（座長）

昨日から今日にかけて、大気、陸、海から、放射性物質が食品、人体にいたるまでの経路において、放射性物質の化学形の相違が移行に与える影響を総ざらいしました。したがって、総合討論においては、これらの科学知識を、環境に放出された放射性物質によってもたらされる人の放射線被曝線量の予測にどのように反映させてゆくかを論じていただきたい次第です。先ず問題提起を予めお願いしてあった5名の指定発言者にお話ねがいます。

海洋中の物質循環と元素の形態変化

猿橋勝子（地球化学研究協会）

猿橋でございます。風邪のため昨日のご発表を伺えなかったことをまずお詫びしておきたいと思えます。

今日のお話を朝から伺っておりますと、化学形の問題が、盛んに討論されている事を、本当に嬉しく思いました。

数年前の事を思い出しますと本当に隔世の感がいたします。三宅泰雄先生が、以前から度々化学形に頭をむけるようにとおっしゃっていますが、それが今や多くの方によって化学形に関する研究が始められていることを、本当にうれしく思います。指定発言者ということですが、私は、特に海洋環境における問題について日ごろ考えておりますことを、少し述べさせていただきたいと思えます。

海洋と言いますと地球表面積の3分の2を覆い、平均して4000mの深さをもつ大きな水溜まりですけれども、とかく海洋といえば塩類が溶けている無機元素が多量に溶けている環境だと言うように長い間単純に考えられてきました。しかしそこには生物がすんでいるので、単に無機元素が溶解している水溜まりではない。溶解している無機元素の量は多いけれども、それとともに

そこに生物がすんでいることを常に忘れないことが重要だと思います。そこに存在する生物によって作られる有機物の量は、たとえ非常に少なくても、その存在は海洋環境には、極めて重要な事だと思います。従いまして海洋の化学的問題を論ずるときには、無機態だけ、あるいは有機態だけでなく、それらの循環と言いますか、それらの移り変わりも含めて全体として考えることが、必要だと思います。たとえば私共は、生物環境に関して基本的な元素である炭素、窒素などについて研究を続けて参りましたが、炭素は多量に溶けていますけれども、その中の有機炭素は一割にも満たない。また、無機態の炭素含量は、海水 1kg 当たり 25~30mg が溶けていますが、これにたいして有機態の炭素は表面で海水 1kg 当たり 4~5mg が溶けていることが分かりました。この極めて少量の有機炭素が、非常に重要な役割を果たしていることをここで申し上げたいとおもいます。

従来は、有機炭素は海水 1kg にわずか 1mg しか溶けていないと言われておりました。私どもは測定にも問題があると考え、研究を進めて参りますと、理論的にも海水 1kg に約 4~5mg 位の炭素は有機態として溶けているはずである事が分かってきました。その主な物は蛋白質の分解生成物であろうと思われれます。窒素については有機、無機の合計で海水 1kg 当たり 0.6~0.7mg の窒素が溶けています。表面の場合は、その殆ど、すなわち 0.5~0.7mg が、有機態である事が同じく私どもの研究から分かりました。有機態は分解して無機態になり無機態が更に有機態が変わっていくという海洋に於ける物質循環を考えることにもなって参ります。放射性核種についても同様に有機、無機態を考慮しながら研究を進めなければならない事になります。

本日は主として炭素、窒素についてはお話ししましたが、これだけでなくこのことは多くの金属元素についても言えることです。先の講演において水銀についてお話ができましたけれども、水俣病の原因が果たしてメチル水銀という単純な有機化合物か、あるいはそれが分析操作途中における分解生成物であるかということも問題ではないかと思っております。

これらの重金属を含む有機物が、海水の中でどのような化学形で存在するかということは、私共も関心のあるところでございますので、今後更に解明を進めていかれる事を、期待している訳でございます。私共は海水中の溶存炭素が、今まで考えられていた量の数倍が有機態として海洋表面に溶けていることを理論的にも、また実測値からも明らかにすることができました。

水銀についてもまた新しい分析法の開発と共に研究が進み、さらに理論的にも解明が進められていくことにより研究が進展し、実態が一層明らかになるであろうと思います。海洋における、ある表面で少なく、海底に向かって含量が増えている場合の多くは、表面では殆どが有機態になっている核種ではないかと思います。

今後もそういう点に目をむけながら、これらの研究がますます発展して行きますことを期待して、私の発言に致します。

被曝線量評価の見地から

伊沢正実（日本原子力発電株式会社）

今回のセミナーの主題のうち「被曝線量評価」の観点から述べてみたい。

被曝線量を推定または予測するためには、環境への放射性物質の注入から人の被曝にいたるみちすじを、たとえ近似性は悪くても、モデル化することが行われる。きわめて簡略化したみちすじがICRP Publication 7等を示されていて、それは第1図の通りである。図中の□でこまれた各コンパートメントを特定すること、および、コンパートメント間の関連をあらわすパラメーターとその数値を決めることが必要となる。

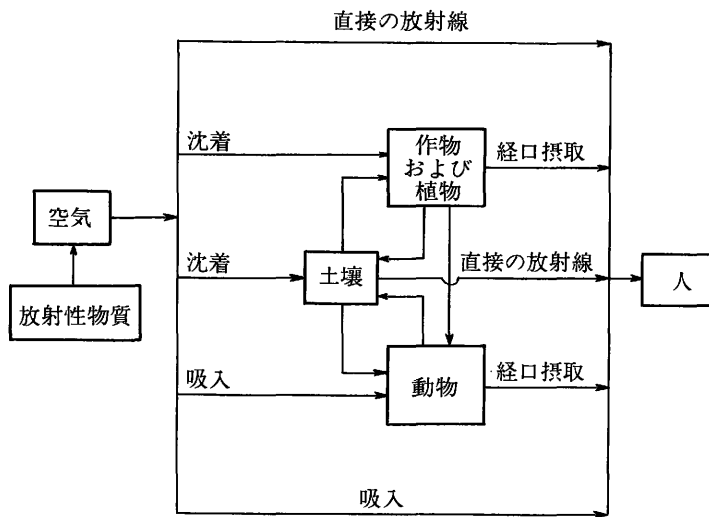


図1 大気中に放出された放射性物質と人との間の簡略化された経路

その手法には、ICRP Publication 29によると、2つ、すなわち濃縮係数法（CF法）とシステム解析法（SA法）があるとされ、それぞれに一長一短がある。前者は、各コンパートメント間の関係を、濃縮係数という比較的簡単に求め得るパラメーターを使って、系全体が平衡状態にある場合を表現するものであり、後者は、コンパートメント間の放射能の移行を時間の関数としてあらわすことにより、パラメーター数は多くなり、手法は複雑でむずかしくはなるが、時間変動を表現することができる。Publication 27に例示されている、ヨウ素の大気中への連続放出を想定したときの、両手法による陸圏のコンパートメント化を図示したのが第2図と第3図であり、両手法による人体のコンパートメント化を図示したのが第4図、第5図である。図中にある各パラメーターの意味をここで一々説明する余裕はないが、どちらの手法を使うにしても御覧のように数多くのパラメーターの1つ1つに値を与えなければ数値解を得ることはできない。

（Publication 27には、例示にすぎない、との断り書きをつけたうえで、すべてのパラメーター値を表として与えているので、参考にされたい。）しかし実際には、これらの系の中でいわゆる

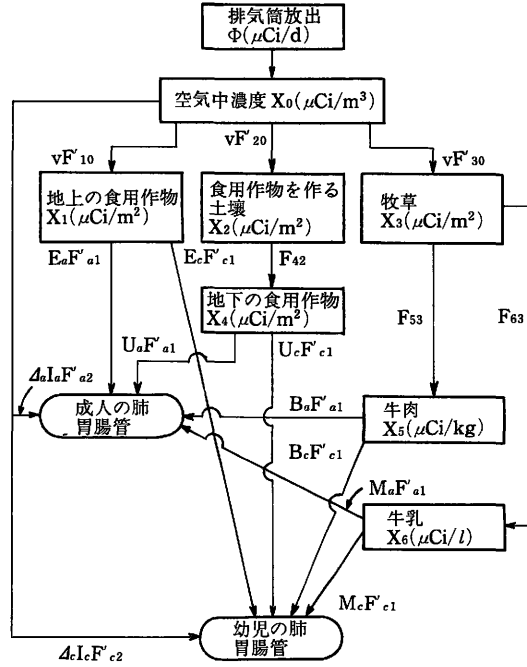


図2 CF法における陸圏の概念的コンパートメント化。例示にすぎない。

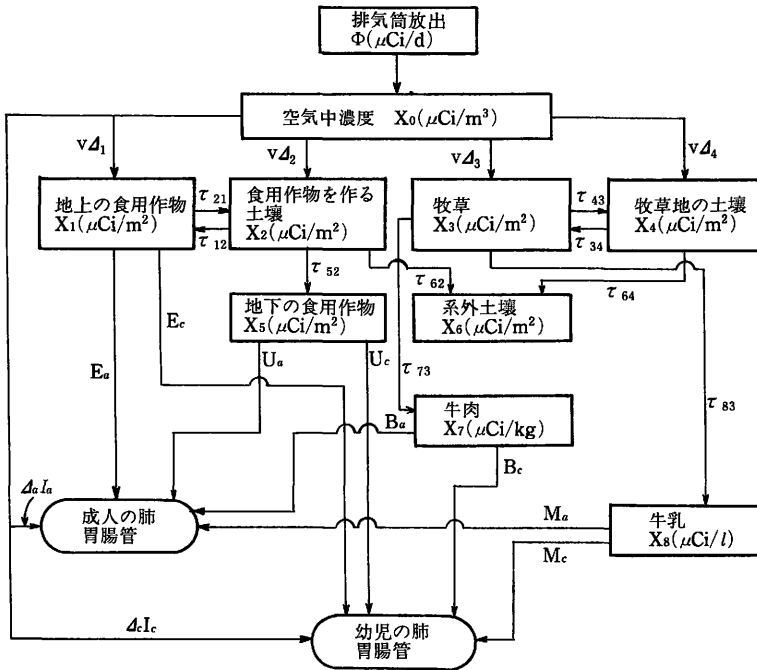


図3 SA法における陸圏の概念的コンパートメント化。例示にすぎない。

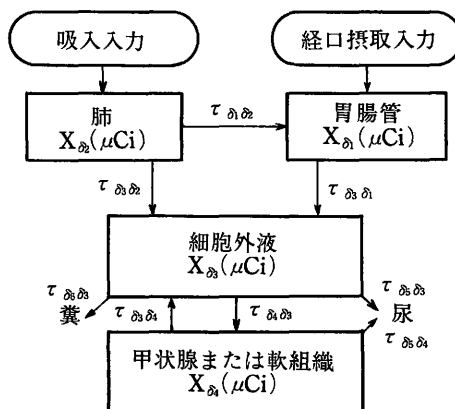


図4 CF法における人体の概念的なコンパートメント化. 例示にすぎない.

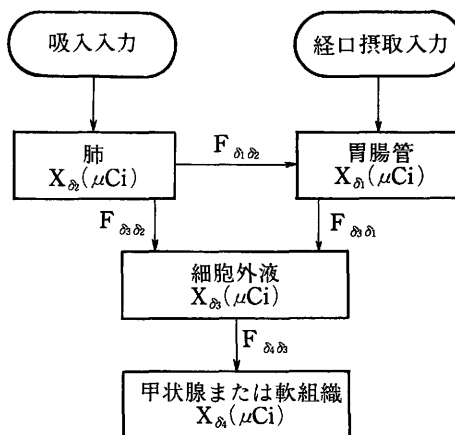


図5 SA法による概念的な人体のコンパートメント化. 例示にすぎない.

critical pathway (決定経路) に沿ったものをおもに考慮することで、目的を果すことのできる場合が多いであろう。重要なパラメーターを抽出するには sensitivity analysis (感度解析) を用いると有効であり、大気放出ヨウ素の例でいうと、この解析によって、地表や植物への沈着速度が最も重要なパラメーターであることがわかる。

昨日から各講師によって述べられてきたように、環境の各セクター内およびセクター間の物質移動のパターンについて多くの知見が得られているが、まだくわしくはわかっていない点も多いようである。線量予測という最終目的を達成するためには、たくさんの知見をどのように組合せてモデルを作るか、また、現時点における知見によって上述の critical なものをえらび出すにはどうするか、を考えることが必要となろう。また、感度解析のほか、robustness analysis (堅固度解析) を行ってみることも、目的達成に役立つであろう。このセミナーの主題のような具体的な目的をもつ研究にとっては、専門的、詳細なデータを求めることが大切であることは勿論であるが、それに加えて、上述のような観点から、ときに調査、研究の全体像をふりかえって考察す

ることも重要と思う。

被曝線量の値まで出そうとするならば、目的核種の人体内分布を求めなければならない。従前のように critical organ (決定器官) の線量当量ではなくて、実効線量当量、また体内被曝にあっては実効預託線量当量を求めようとする場合にはとくにそうであり、これに役立つ研究はそれほど多いとは思われない。また、公衆のうける線量当量を出そうとするならば、公衆、とくに子供に関する標準的な種々の数値を用いる必要がでてくる。

特定の化学形態の放射性物質を問題としなければならないときには、ICRP Publication 30にはそのようなデータはほとんど載っていないから、自らデータを集め、判断し、計算を進めることとなる。こういうやり方が必要かどうかは、求めるべき線量当量の正確さと精度により大きく左右されるであろう。ICRPでは現在、放射性医薬品を投与された患者の被曝に関する報告書を作成中と聞いているので、一般環境の問題ではないけれども参考にすることができよう。

摂取された放射性核種の化学形の差異によるリスクの大きさの違い—Pu-239の例

小林定喜 (放射線医学総合研究所)

放射性核種の化学形が異なると摂取後の体内における挙動 (移行・蓄積・排泄) の様態が変わり、その変化に応じて種々の器官・組織における濃度も変る。その結果、生物影響の現われ方にも変化が生じ、生体全体としての放射線リスクの種類や大きさが変わってくる。その端的な例としてプルトニウム (Pu) を吸入摂取した場合の悪性新生物誘発リスク推定値の化学形による差異について述べる。

Pu-239には硝酸化物のように溶解度の比較的高い化学形と、酸化物・水酸化物のように溶解度が低い化学形とがある。ICRPの分類によると前者をClass W、後者をClass Yとしている。class W, YのそれぞれについてPuを1 Bq吸入摂取した場合の標的器官・組織における50年間の預託線量 (Sv) の推定値と、この線量によって標的器官に悪性新生物が生ずるリスクを 10^6 人当りの発生数として算出した値を表1に示す。ここでは50年間の預託線量によって発がんリスクが潜伏期間に関係なく全て発現するものと仮定している。

表1 Pu-239 吸入によるがん発生数推定値 (1 Bq 当り)
化学形による差

がんの種類 (標的器官)	Class W (可溶性)		Class Y (不溶性)		リスク係数 ($\times 10^{-6}/Sv$)
	預託線量 (50年) Sv	がん発生数 (10^6 人当り)	預託線量 (50年) Sv	がん発生数 (10^6 人当り)	
白血病(骨髄)	2×10^{-4}	8	7.6×10^{-5}	3.0	4×10^4
肺がん(肺)	1.8×10^{-5}	0.7	3.2×10^{-4}	12.8	4×10^4
骨肉腫(骨表面)	2.5×10^{-3}	25	9.5×10^{-4}	9.5	1×10^4
肺がん(肺)	5.3×10^{-4}	15.9	2.1×10^{-4}	6.3	3×10^4
小計		≈ 49		≈ 32	

預託線量 (Sv/Bq) は ICRP Pub. 30 Part I Supplement による。

リスク係数は肺がんについては BEIR-III、他のがんについては ICRP Pub. 26 による。

可溶性の程度によって問題となる悪性新生物（がん）の種類が異なり、Class W では、骨肉腫と肝がん及び白血病が主たる疾患であるのに対して、Class Y では、肺がんが最も大きいリスクとなる。合計で Class W は約50（49）、Class Y は約30（32）で、可溶性のものの方ががんのリスクは高いことになる。

以上のように人体摂取後のことのみを考えても化学形の違い（ここで溶解度の違い）によって考えるべきリスク（種類と大きさ）が変わってくるが、このようなことは他の核種の場合にもみられ、原子力施設等から放出放射能のリスク評価を行う場合には人体摂取以前の環境移行中における影響を含めて一貫して体系的に化学形の影響を、各過程における不確かさの幅の評価も含めて、検討する必要があると思われる。

人体被曝線量評価に及ぼす元素の化学形の影響

丸山隆司（放射線医学総合研究所）

人体内に摂取された放射性物質からの臓器・組織の吸収線量を算定するためには、次のデータが必要である。

- (a) 経口，吸入，経皮など摂取経路
- (b) 摂取された放射性物質の放射能および半減期
- (c) 放射性核種の崩壊データ
- (d) 線量を評価すべき標的臓器・組織の位置，質量およびサイズ
- (e) 放射性物質が線源臓器・組織の中に滞留する放射能の時間および空間分布
- (f) 標的臓器・組織に吸収される線源臓器・組織から放出された放射線エネルギーの割合

これらのデータのうち(b)と(c)は物理に関係するが、その他は生物学に関係している。線源臓器・組織に $1\mu\text{Ci}$ 放射性物質が1時間滞留するとき、まわりの標的臓器・組織の受ける線量 D_{rad} は、あらゆる核種についてMIRD（Medical Internal Radiation Dosimetry：医療用体内放射線量計測）法によって計算されている。これらの結果は表にまとめられており、線源臓器・組織中の放射性核種と累積放射能がわかれば、標的臓器・組織の吸収線量は容易に算定できる。

MIRD 法

まず、人体が図6のような楕円柱および楕円錐台で構成されるとし、胴部底面の中心を原点とする3次元座標系を考える。体内のすべての点はこの座標系により (x, y, z) で与えられる。骨格および臓器の形状は、例えば肺は楕円球で近似するなど、すべてを簡単な数学立体で表わし、コンピュータ計算が可能な数式で近似している。図1をMIRDファントムと云うが、標準欧米人の体格に合わせた大きさであり、中に入っている臓器な組織の大きさも欧米人用である。日本人の体格に合わせたMIRD法は放医研で考案されている²⁾。

β 線のような非透過性放射線を放出する場合には、線源臓器・組織が標的臓器・組織であるが、特性X線や γ 線のような透過性放射線を放出する核種ではかなり離れたところにある臓

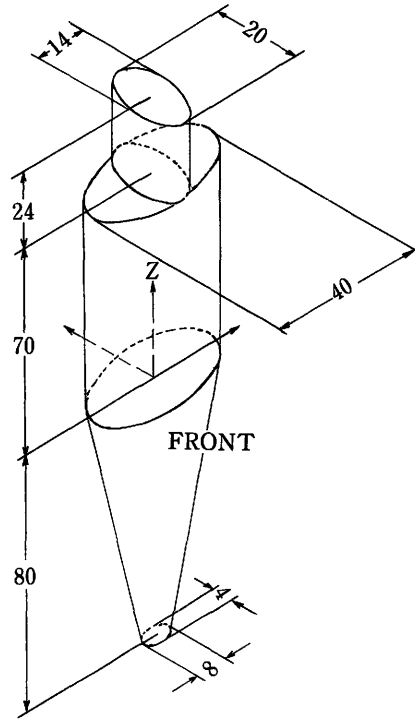


図6 MIRD ファントム (単位: cm)

器・組織が標的となる。核種が同一でも、摂取の仕方やその核種の含まれる放射性物質の化学形によって、線源臓器・組織の種類やその中での放射能の滞留の様相も異なる。MIRD法、単位累積放射能（滞留放射能と滞留時間の積， $\mu\text{Ci} \cdot \text{hr}$ ） \bar{A} あたりの吸収線量（rad）の比 S を核種別に計算して作表している。線源臓器・組織が複数個あるので、それらすべてからの S の成分， $S(r_k \leftarrow r_k)$ ， $S(r_k \leftarrow r_h)$ ， $S(r_k \leftarrow RB)$ （ RB は k および h 以外のすべての臓器・組織である）。

累積放射能， \bar{A}

\bar{A} の値は、放射性物質の線源臓器・組織への滞留に関係しており、それらの物質を構成する元素やその化学形に依存する。一般に体内被曝線量評価には、MIRD法が適用され、標的臓器・組織の平均吸収線量を \bar{D} （rad）は次式で計算される。

$$\bar{D} = \bar{A} \cdot S \quad (1)$$

問題とする核種 j の実効半減期 T_j ，ある線源臓器・組織の中に滞留する放射能の摂取量に対する割合 α_j ，および全摂取量 A_{0j} とすれば、核種 j の \bar{A} の値は次式で求められる。

$$\bar{A} = 1.44 \sum_j A_{0j} \alpha_j \cdot T_j \quad (2)$$

表 1

放射性医薬品	投与方法	物理的半減期	線源臓器	生物学的データ		累積放射能A ($\mu\text{Ci}\cdot\text{h}$)	吸 収 線 量	
				投与量のうち線源臓器に滞留する割合	生理学的半減期		標的臓器	線量 (mrad/ μCi)
^{123}I -オルトヨウ化ヒプ ル酸	静注	13時間	腎 全 身 膀胱内容物 ^{3*}	0.34 0.10 0.05 0.10 0.4025 0.085 0.0125	2分 10分 50分 12時間 18分 1時間 7.5時間	0.187 0.370	膀胱壁 腎 卵巣 精赤 全 身	2.5 0.065 0.032 0.020 0.01 0.011
^{123}I -ヨウ化物	経口	13時間	腸 肝 胃 甲 状 腺	(最大甲状腺 摂取率15%)			肝 卵巣 赤 色 胃 精 甲 状 全 身	0.028 0.034 0.030 0.23 0.012 7.5 0.027
^{123}I -ローズベンガル	静注	13時間	肝および胆管 胆嚢内容物 ^{8*} 小腸および内容物 大腸上部の内容物 大腸下部の内容物		0.67時間 0.36時間 0.11時間 0.06時間		胆 嚢 壁 消 化 管 小 腸 大腸上部(壁) 大腸下部(壁) 肝 卵 赤 色 精 赤 色	0.25 0.60 1 1.5 0.19 0.28 0.080 0.014
^{125}I -ヨウ化物	経口	60.2日	腸 肝 胃 甲 状 腺	(最大甲状腺 摂取率15%)			肝 卵巣 赤 色 胃 精 甲 状 全 身	0.22 0.033 0.077 0.26 0.018 450. 0.29
^{125}I -オルトヨウ化ヒプ ル酸	静注	60.2日	腎 全 身 膀胱内容物 ^{3*}	0.34 0.10 0.05 0.01 0.4025 0.085 0.0125	2分 10分 50分 12時間 18分 1時間 7.5時間	0.271 0.432	膀胱壁 腎 卵巣 精赤 全 身	1.9 0.069 0.008 0.0047 0.0026 0.0058
^{125}I -ヒト血清アルブ ミン	静注	60.2日	全 身 ^{4*} 膀胱内容物 ^{3*}	0.95 0.05	14.7日 28時間	391.2	膀胱壁 赤 色 卵 精 全 身	1.2 1.0 0.69 0.56 0.67
^{131}I -ヨウ化物	経口	8.06日	肝 胃 甲 状 腺	(最大甲状腺 摂取率15%)			肝 卵巣 赤 色 胃 精 甲 状 全 身	0.35 0.14 0.20 1.6 0.085 800. 0.47
^{131}I -ヒト血清アルブ ミン	静注	8.06日	全 身 膀胱内容物 ^{3*}	0.95 0.05	14.7日 28時間	173	膀胱壁 卵 精 赤 色 全 身	3.4 1.9 1.8 1.9 1.7
^{131}I -オルトヨウ化ヒプ ル酸	静注	8.06日	全 身 腎	0.0125 0.085 0.4025 0.01 0.05 0.10 0.34	7.5時間 1時間 0.3時間 12時間 50分 10分 2分	0.4272 0.264	膀胱壁 腎 卵巣 精赤 全 身	13. 0.41 0.073 0.053 0.021 0.028
^{131}I -マイクロスフェア (15~20 μm)	静注	8.06日	肺 ^{4*} 身体の残りの部分 膀胱内容物 ^{3*}	0.57 0.37 0.06	45時間 4時間 ∞	32 17	膀胱壁 卵 精 赤 色 全 身	3.7 0.23 0.2 0.31 14.5 0.49
^{131}I -大凝集ヒト血清 アルブミン	静注	8.06日	肝 肺 ^{4*} 身体の残りの部分 膀胱内容物 ^{3*}	0.015 0.045 0.09 0.8 0.05	250時間 9時間 0.5時間 7.8時間 ∞	2.6 8.4 14.3	膀胱壁 肝 肺 卵 精 赤 色 全 身	4.5 0.99 4. 0.2 0.17 0.2 0.26
^{131}I -ローズベンガル	静注	8.06日	肝および胆管 胆嚢内容物 ^{8*} 小腸および内容物 大腸上部の内容物 大腸下部の内容物		1.5時間 2.77時間 9.0時間 16.6時間		胆 嚢 壁 消 化 管 小 腸 大腸上部(壁) 大腸下部(壁) 肝	1.1 3.5 14. 35. 0.80

さて、 α_j および T_j は人体中での放射性物質の分布によって異なる。ある種の放射性物質について生体内での放射能分布は動物実験で調べられており、化学形が分布を決める上で非常に重要であることはよくわかっている。しかし、定量的な分布になるとデータ不足であるので、さらにこの種のデータの蓄積が必要とされている。

ヒトについては安定元素や化合物の体内分布が ICRP 報告書³⁾などに与えられているので、ある核種についてはそれらのデータが用いられることはある。その場合、次の点に注意する必要がある⁴⁾。

- (a) 環境や食生活のちがいで個人差が大きい。
- (b) 環境や食餌中の元素の化学形は摂取した放射性物質のそれとは同じではない。
- (c) 放射性物質では半減期があるため、安定元素の体内分布とは異なることがある。例えば、³²P は摂取後、骨に集まるが、短半減期のためリンの安定元素の体内分布とは異なる。

人体内での放射性物質の分布は、核医学における放射性医薬品を投与した患者で観測することはできる。しかし、核医学で診断・治療以外の目的で測定を行わないため、放射性物質の分布に関するデータは乏しい。

ヨードを例にとり、化学形および核種による標的臓器・組織量を表 1 に示す⁵⁾。投与量 $1 \mu\text{Ci}$ あたりの線量で与えられている。

投与方法は医療では静脈注射（静注）が多いので、このデータをそのまま環境に適用できないが、化学形による標的臓器とそれへの吸収量のちがいがよくわかる。

おわりに

体内被曝線量評価には、MIRD 法が用いられている。単位累積放射能 ($\mu\text{Ci} \cdot \text{hr}$) あたりの吸収線量 (rad) である S 値は MIRD 法で与えられているが、累積放射能 \bar{A} は放射性物質の化学形、生物データなどに関係している。このため、MIRD で厳密な S 値を得ても \bar{A} で大きな不確かさがでてしまい、結果としての平均線量 $\bar{A} \cdot S$ はかなりの誤差を伴う。現状では、環境放射能による体内被曝線量計算のシステム化のために、動物実験や核医学利用によるデータの蓄積を急ぐべきである。

参考文献

- 1) MIRD Pamphlet 5.(Snyder, W. S., et al.): Estimation of absorbed fraction for monoenergetic photon sources uniformly distributed in various organs of a heterogeneous phantom. *J. Nucl. Med., Supl. No. 5*, 1969.
- 2) 山口 寛：大きさの異なる人体への MIRD 法を適用する際の変換法。日医放学会誌, 39, 1979。
- 3) ICRP 23 : Report of Task Group of reference man. International Commission on Radiation Protection, Pergamon Press, Oxford, 1974.
- 4) ICRU Report 32 : Methods of Assessment of absorbed dose in clinical use of radionuclides.

International Commission on Radiation Units and Measurements, Washington, D. C., 1979.

5) 丸山隆司：放射性医薬品による被曝線量，放射線医学大系，36，中山書店，東京，1985.

放射性ルテニウム研究に関連して

渡利一夫（放射線医学総合研究所）

放射性ルテニウム (^{106}Ru , ^{103}Ru) は核分裂収率が比較的大きく，かつ化学的挙動が複雑なため放射線影響を考える上で重要な核種として知られている。これまではフォールアウトによる環境試料や再処理工場からの低レベル廃液の放出による海洋の放射能汚染を対象とした研究が主として行われてきた。

これらの研究を通じて常に指摘されてきたのは実験結果の再現性が低いことである。これはルテニウムが多くの原子価状態をとり得る元素であり，そして二つ以上の酸化状態のものが共存するケースが多いことに原因がある。さまざまな要因のある動物への取り込みや体内挙動が複雑になるのは当然のことである。

したがって，放射性ルテニウムの研究を行う時には常にその化学形に考慮を払わなくてはならない。フォールアウトを対象とする場合には核爆発時の高温で生じた気体状の酸化物 (RuO_4) が冷却，還元されて不溶性の酸化物 (RuO_2 等) あるいは水溶性の化合物になって環境中に降下，分布するとされており，イオン形の季節による影響も指摘されている。また，海洋放出の場合にはニトロシル化合物が対象になる。すなわち，再処理工程では使用済み燃料は硝酸で溶解されるためのルテニウムは種々なニトロシル化合物 (RuNO ニトラト錯塩，ニトロ錯塩等) を生成する。これらは比較的安定であるので放出廃液中の主要化学種と考えられる。

研究の進展とともに環境試料中での化学的挙動の解明も進み，また，分離分析法も一応確立された。近年，核実験の回数も減少し放射性廃棄物の処理，処分システムも改良されて現在では前述の化学種のものに代って以下に述べるように揮発性ルテニウムと有機態ルテニウムが重要になってきている。

揮発性ルテニウムについて

再処理工程において揮発性核分裂生成物の処理が現在重要な課題の一つとされている。なかでも放射性ルテニウムの対策には力が注がれている。すなわち，使用済み燃料の溶解，脱硝，ガラス固化時に発生する高酸化状態の揮発性ルテニウムの還元生成物がフィルターの目づまりを起したり，ステンレススチールの汚染，腐蝕の原因となるからである。

一方，保健物理の分野でも揮発性ルテニウムが今後の課題である。たとえば，環境試料処理，とくに灰化時における揮散が温度だけでなく共存する物質による影響も無視できないことが最近あきらかにされている。500°C で骨の灰化を行った場合， ^{106}Ru は10時間では損失がないのに対し塩酸が共存すると 33% が揮散する。硝酸の場合には 400°C，6 時間でもほぼ完全に揮散する。

リン酸塩の存在も揮散に影響を及ぼすことがあきらかにされており生物試料や食物の灰化時には十分に注意が必要になる。

また、被曝線量評価の問題にしても再検討が必要であることが指摘されている。すなわち、ICRP 勧告ではこれまで ^{106}Ru 、 ^{103}Ru に関しては肺や消化器を決定臓器としているが、 ^{103}Ru を取り扱う実験で生じた人体汚染事故の例では口、鼻の粘膜や皮膚への表面付着が問題であることを示している。したがってこれまでとは異なった観点から線量評価の研究を進める必要があろう。

有機態ルテニウムについて

環境試料や生体中での放射性核種や微量元素の物理化学的存在状態を知ることはその分布や生物への影響を理解する上で必要である。イオン状、非イオン状、粒子状、あるいは大きさ等に関する研究が行われてきたが、水中の有機リガンドや有機錯体との反応、高分子有機物との結合など近年重金属元素と有機物との関連が注目されている。放射性核種、とくにルテニウムについてはほとんど知られていないのが現状であるがその溶存状態についてさまざまな方法でアプローチが試みられている。たとえば、水系環境中における放射性ルテニウムの挙動に及ぼす溶存有機物質の影響がしらべられニトロシル化合物のクロロ錯体とグリシンあるいは水酸化物と L・ α ・アラニンとの反応生成物は海水中でも安定に存在する可能性が示唆されている。また、プランクトン、海草、魚貝類等のような海産物や海底堆積物を通しての摂取など有機態ルテニウムの影響が無視できないことが示されており今後その生成や挙動の解明が期待される。

しかし、無数の有機物質が存在している環境試料中で放射性核種の存在状態をしらべることはきわめてむづかしい問題である。沝過法、抽出法、吸着法、電気化学的方法等を用いて報告例も増加してきたが問題点は数多く残されている。最近、非イオン性巨大網状構造樹脂（アンバーライト XAD-2 など）を天然水中の有機態金属の吸着、分離に利用する試みに対してもいくつかの問題点が指摘されている。この樹脂は水中の有機物の吸着にすぐれた効果を示すもので金属イオンは単独では吸着されないが錯塩を生成するような有機試薬を共存させて有機態の形にすると吸着されるようになる。たとえば ^{106}Ru もオキシ錯塩の形にすると吸着される。このような現象を天然水中の有機態金属の吸着に利用しようとするものである。しかし、最近有機試薬が存在しなくても無機錯陰イオンやコロイド状の重金属元素が XAD-2、XAD-7 に吸着されることが報告されている。また、樹脂に先に吸着された有機物と金属イオンが反応して吸着される可能性も考えられる。さらに、この種の樹脂は製造過程あるいは保存中に微量のイオン交換性部分が混入、発生し陽および陰イオン交換基が不均一に散在していることもあきらかにされている。したがって、有機態、無機態あるいはイオン性、非イオン性などの判別をこの種の樹脂だけを用いて行うことには問題がある。いくつかの方法を組み合わせる必要があるであろう。

指定発言で提起された問題点

佐伯誠道（座長）

これで指定発言者の御見解発表を終わりました。冒頭に猿橋先生は御自身の研究をふりかえってみて海洋における元素の化学形の重要性をのべられ、实例をあげて地球化学的見地から環境における物質循環、昨日の滝沢先生の御提言を採ると環境代謝とでも申しますか、ともかく元素の移行を把握するに際しての化学形の重要性を指摘されました。また最後に渡利先生は、核燃料再処理施設廃棄物として注目される核種のルテニウムについて、その化学形に関連する問題を具体的に挙げて今後の研究課題について考察されました。この元素は無機物としては珍しいほどに化学形が変化し、さながら有機物のようにだと著名な化学者が嘆き入っただけあって厄介な代物です。かつて、動燃の再処理施設液体廃棄物の沿岸海洋放出に関しての総合研究の折に、小柳卓氏（放医研）、石川昌史氏（放医研）、出雲義明氏（公衆衛生院）が、それぞれの手法を駆使して「海水中での化学変化と生物濃縮機構」に関して新知見を発表されたことを思い出しますが、これら知見にもとづく総合成果報告には、まとめ役であった私は四苦八苦した経験があります。かねてから、環境における元素の化学変化の研究は当然ながら重要と主張していたものの、その研究は安易でないと思ひ知らされたものです。

さて、被曝線量評価に関連しては、お二人の発言がありました。伊沢先生はICRP Publication 29記載の計算モデルとして濃縮係数法とシステム解析法を解説され、丸山先生はミルド法などをとり入れての被曝線量算定の問題をあげられました。小林先生は、Puの場合を例にして、その「化学形（溶解性）が最終的にヒトのリスクにどの程度影響するか」をB. Cohenの計算により示し、また肺への沈着量が同じとして癌リスクはPuO₂がPu(NO₃)₄の2.5倍になることをあげられました。

いずれも重要な問題点を指摘いただき、有難うございました。これらの御発言内容について御質問がありましたらどうぞ……。それでは、特にございませぬようなので、次に進ませていただき、マイクをフロアーに移して、先ず各セッションの座長の先生方に御発言をいただきます。

土壌における放射性核種の移行について

池田長生（筑波大学・化学系）

土壌のセッションにおきましては、茅野先生の御講演、成富先生、大和先生のコメントがありました。いずれも有益で、大変参考になりました。これに関連致しまして、私どもの方では、土壌を一つのクロマトグラフ系と考え、土壌中における放射性ヨウ素の垂直方向への移行速度の推定を試みましたので、簡単に報告させていただきます。

図7に茨城県東海村で採取致しました2個所の壤質砂土について、放射性ヨウ素の垂直分布の一例を示しました。何れも表面から30cm ぐらいの深さまで¹²⁹Iが検出されます。これらの土壌

試料につき、 ^{125}I トレーサーを用いて、バッチ法で分配係数 (K_d) を求めますと、それぞれ48.16[ml/g] になります。

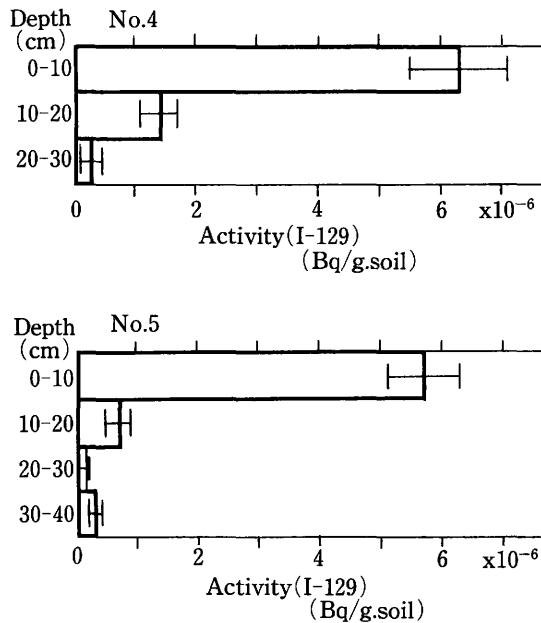


図7 縦方向のI-129の分布

この値を用いて、土壤中に底面積 1cm^2 、高さ 30cm のカラムを考え、土壤表面に降下、供給された放射性ヨウ素が、 30cm の深さにまで達するのに要する時間を計算してみました。

一般に試料中のある成分が溶出するまでに要する溶離液 (この場合は雨水) の容積 (V ml) は、理想的な条件のもとでは、次式によって与えられます。

$$V = I + M \cdot K_d$$

ここに I は間隙容量 [ml]、 M はカラム中の保持体 (この場合は土壤) の量 [g] であります。この式を用いて V を求めますと、表1に示しますように、それぞれ 1300cm^3 、 530cm^3 になります。すなわち、これだけの雨水を要することになります。水戸地方の平均年間降雨量は 1340mm ですから、上述の V の値はそれぞれ 10y 、 4y の降雨量に相当するわけです。すなわち、これらの土壤中を鉛直方向に 30cm 移動するのに、表3の第5行に示しますように、それぞれ約 10y 、 4y を要することになります。

Table 1 Adsorption behavior of I^- on soil

Soil No.	D (ml/g)	Density (g/cm ³)	V (cm ³)	Time required (y)
No. 4	48	1.5	1300	10
No. 5	16	1.8	530	4

海洋における放射性核種の移行について

市川龍資 (放射線医学総合研究所)

海水のセッションの座長をしましたが、内容の論議はともかくとして、座長のおっしゃるように、感想をのべたいと思います。半田先生の講演は御専門分野を、放射性物質と関連づけた内容でやさしく話をしていただき、感銘をうけました。先生がスライドでお示しになりましたように、海洋での放射性物質の動きは海水の動きにともなうことを主体に考えていると、実際と非常に違ってくるので、水中懸濁物（サスペンション）の沈降などに着目しなければならない。私は、低レベル放射性廃棄物の太平洋における深海処分の安全評価にかかわってきました。今までに行った評価法は、6,000メートルの海底に投棄された固体廃棄物より放射性物質が溶出して、海水の動きとともに表面に拡散するとの計算であり、サスペンションやセディメントへの吸着は一切除外してやりました。そこで、もう少し現実的に近づけようとのことで、去年あたりから国際的な検討が始まっています。すなわち、GESAMP (Group of Experts for Scientific Aspects of Marine Pollution) 専門委員会が発足して、サスペンションの沈降などの計算モデルが作成されましたが、深海底汚染にともなう表層海水の濃度は従来の方法に比べて1~2けた薄くなる結果になりました。これらは、未だ予備的な作業です。どんな種類のサスペンションがどの程度に存在するか、また放射性核種を吸着する能力 (K_d 値) はどうか等、実際にはデータが足りないのが苦勞もあるようです。

農作物への放射性核種の移行について

佐伯誠道 (座長)

このセミナーの冒頭における大気、土壌、海水のセッションにおいて、主として地球化学的見地からの話をうかがった訳ですが、放射性核種の環境での挙動を追求する私たちの環境放射能研究と上記の講演内容との関連を期待したのが、主催関係者の意図でした。ただいま市川先生が指摘されたような事例をはじめ、多くの知見について冒頭セッションから得ることが多く、かみ合った論議を進めることができたことには、私も感銘を受けました。これにつづいて、生物関係のセッ

ションがあった訳ですが、座長の御意見をいただきたいと存じます。

熊沢喜久雄（東京大学・農学部）

農作物のセッションで座長をさせていただきました熊沢です。実は私は、ビキニ事件の時に農作物の汚染調査を手伝ったことがあるのですが、それ以後は斯方面の研究会に出たことがなく、放医研セミナーに始めて参加させていただきました。昨日の朝から、ずっと聞かせていただきましたが、各方面の知識を結集して一つの大きな目標に向かって研究を進めることは大変に重要であると改めて感じた次第です。放医研の大桃さんから丁寧なお話があり、農環技研の小林さんからもコメンターとしての御説明がありました。フォールアウト調査の折には、先ず葉面に付着するとのこともあり、また実験し易いこともありで、葉面収着に関した研究が行われました。しかし、長い目でみた場合に土壌経由の吸収も検討が必要と思います。放射性核種の土壌を通じての農作物への移行をあらわす計算モデルがつくられても、それに用いるパラメータを求める実験を誰がやるのが問題でしょう。農業関係研究者にとっては本筋のテーマでないため、関心がうすいので何処かが中心的に実施してひっばって行く必要があります。

先ほど池田先生も述べられましたが、土壌は一つのイオン交換体としても考えられるのですが、猿橋先生もおっしゃったような海洋についての考え方が土壌でも適用される必要があると思います。土壌の種類を考える場合に、鉱物、地質学者の分類とは別に、私たちは作物の養分吸収などを考える観点からの整理をしています。土性の酸化還元の問題、有機物含量、塩基、アニオン、カチオンの置換容量等の多くの問題があり、研究が後れがちになる訳です。海水に比べて土壌は扱い難いようにも思います。昔はRIの野外実験が出来ましたが、現在では困難なのに、RI用ライシメーター施設もないとは。普通の実験室内における小規模な実験だけでは求められないパラメータもあるので、5～10年なりの計画で実験を進めてほしいと感じました。注文がましい感想をのべさせていただきました。

海洋生物への放射性核種の移行について

上田泰司（放射線医学総合研究所）

海洋生物セッションの概略をおさらいしてみます。小柳さんの話は、結論的に申しますと、今までに報告されている濃縮係数を整理してみると2/3までは10のオーダー以下の差であるが、1/3は 10^2 オーダーのばらつきが認められるとのこと。他所で行ったデータによれば、Puの5価と6価との濃縮係数の差は10オーダー以下みたいです。放医研でやったRu, I, Co, Feについては、化学形によってのばらつきは10オーダーつまり10倍以下の差とのこと。鈴木さんは、海藻を餌育している海水中に無機物を加えると有機形に変化して行くことをCoによる実験結果で示し、このように有機型となったCoはアワビへの濃縮係数が無機型の場合と異るとの話だったと思います。それから、本田先生からは生物濃縮を考えるときには生体膜の透過性と化

学形の関係などの情報を集めて勉強する必要があるとのお話がありました。

この3人のお話に対して活発なディスカッションがあったので、主なものを紹介させていただきます。茅野先生からは、化学形以外のファクターが色々あるようだが、生物濃縮への相互関係、相乗効果の追求が重要とのことでございました。それから半田先生から、生物濃縮に関して分子レベルの研究も必要ではないかとの質問があり、放医研側としては当面は実用的な数字を出すとの立場もあるのでそこまでは追求できないという返事をしたのですけれども、細々とはやっています。たとえば、超遠心分離でミトコンドリアをとり出したとか細胞分割して何処に放射性物質が入っているとか、そういうことも、やっていないわけではないということを変更して追加させていただきます。それから、滝沢先生から環境代謝という言葉が現れ始めているがどう思うかとのことでしたが、これについて小林さんのお話になりました。ハンフォードの炉が閉鎖してから1年たってもイガイに⁶⁵Zn汚染が認められることからエコロジカル・ハーフライフという言葉が使われていましたが、こんなことともかわかりがらうとのことです。

考えますと、放医研といたしましては、海洋関係については、化学形、雌雄差、成長段階、季節差などの諸因子について濃縮係数の変動を考えてきた訳で、そういうファクターについて具体的に数字を言えるようになったことは進歩したのではと感じました。

食品の放射性核種について

佐伯誠道（座長）

今回のセミナーでは、農作物や海洋生物とは別に、食品セッションを設けて食品成分の基礎知識の解説に加えて、放射性核種の調査加工中の消長、また食品摂取と体内吸収について考察した訳です。このセッションの座長に御意見をお願いいたします。

河村正一（放射線医学総合研究所）

食品セッションの座長を担当させていただきましたが、私は放医研に入る前に国立衛生試験場の食品関係の所におりまして、ビキニ事件のときに魚や農作物なども扱いましたので、縁があるなという気がしました。食品中の重金属やPCBの調査など色々の問題がありますが、それ以後は私は勉強していませんが、友人の言によると食品に関連した重金属の動きには色々難しいことがあるようです。カドミウム、亜鉛、ヒ素、鉛、水銀についての一般公害の問題で、核分裂生成物や誘導放射性物質あるいは超ウラン元素とは全く違うとはいえ、考え方は同じではないかと思えます。

鈴木先生のお話で、自然の食品中の亜鉛を定量し、女子大生をモデルとして吸収量を測定したとのことで、意義があることと思えます。亜鉛というのは、必須の元素ではないかと思えます。最近では輸液が盛んに行われていますが、精製技術が発達したので亜鉛が除去されて、輸液供与の患者さんに亜鉛欠乏症が出ているとの話です。そういう次第で、亜鉛のお話を興味をもって聞か

せていただきました。内山さんのお話は、これも亜鉛で、またヨウ素も実験しておられますが、化学形によって胃腸管吸収がかなり違うとの結果でございます。住谷さんは、食べる状態、例えばおひたしにした時のヨウ素の除染などを調べました。またコンブのヨウ素がよく水にとけ、その水溶液からの人体吸収率が高いことが示されました。全体を通して、食品の放射性核種の化学形問題は非常に難しいのですが、いずれも面白い御報告であったと思います。

人体の放射性核種について

佐伯誠道（座長）

さて、このシンポジウムの目的は人体の放射線被曝評価に寄与する研究の推進であります。そこで最後のセッションは被曝線量算定に必要な人体そのものの問題、つまり放射性物質の体内での移動、蓄積、排出などのメタボリズムを採り上げた訳です。滝沢先生には最終セッションをまとめていただいたばかりでございますが、再び御意見をお願い致します。

滝沢行雄（秋田大学・医学部）

人体関係のセッションは、諸先生から先ほどお話があったばかりですから、内容の紹介は省略させていただきます。このセミナーの目的は被曝線量評価ということでございますが、環境から人体への移行や蓄積については、従来から計算モデルがありますが、環境科学は最近かなり進歩していますので、このモデルやパラメータは絶えず見なおして行かなくてはならないと思います。厚生省では今年、ヘルスリスクについての戦略を立てるとのことで、公衆衛生委員を中心に案をつくり始めています。放射線被曝線量評価についても、放医研にそのような部ができて小林先生があたっておられるとのことで、時機を得たものではないかと思えます。さて、被曝線量評価に用いる計算モデルやパラメータに、住民の生活様式の変化あるいは食品流通機構の変化などが影響をおよぼします。この傾向は、一般公害の水銀やカドミウムについての日本のデータからもうかがうことができます。

さて化学形の問題ですが、水銀を例にあげますと、健康を害する化学形はメチル水銀あるいはエチル水銀に限られているとのことです。多量に使用された農薬の酢酸フェニル水銀や乾電池の無機形の水銀は、人体への影響上からはあまり問題でない訳です。環境中において水銀は無機形と有機形とが厳然と存在し、人体にも無機形のフリーな水銀がやはりあります。しかし、環境中の無機水銀が、微生物や光の作用によりましてメチル水銀になるというような事実が分ってきました。

人体のセッションで、岡林先生が2～3の問題を整理して出して下さいましたが、生物学的パラメータに関しては未だ分からない点が多く、実際的なデータが乏しいと思えます。やはり、吸収率、移行率、排泄速度のような生理学的、生化学的情報は、当然のこと必要でありましょう。職業被曝を主な対象としてつくられてきたICRPについては、放射性降下物の超ウラン元素など低

線量を考える為には、やはり問題点があるのではないかと思います。ストロンチウムの日本人における生物学的半減期は、放医研による永年の観察によるとICRPで使っている値と違うとの成果もあがっている訳ですが、放射医には内部被曝研究棟もできたことですから、これをよい機会に研究が進めばと思い、感想をのべさせていただきました。

佐伯誠道（座長）

これで各セッションの座長からの御意見や御感想が、一先ず終わったので、フロアにいらっしゃる他の先生方の御意見をお願いいたします。突然で恐縮ですが、手始めに只今の滝沢先生の御意見に関連して、本田先生に追加の御提言をいただけたらと存じますが、如何でしょうか。

本田嘉秀（近畿大学・理工学部）

人体に関する被曝線量推定の上から色々とお話いただいた訳ですが、より一層リアルに被曝線量推定をするには、放射性元素の体内での挙動を詳しく知る必要があります。先ほどお話がありましたように、生理学的、生化学的からの研究をもう少しされてもよいのではないかと思います。公害物質につきましては、かなり詳しくやられているようですが、放射性核種については放射エネルギーの全体的な把握が行われていたようです。実効線量当量を考えますと、それぞれの器官、臓器、組織についての被曝線量とリスクの情報が必要になって参りますので、これらの点を更に研究することが必要と考えております。

評価のための計算モデル

佐伯誠道（座長）

さて、次に全般的な話題についての問題提起あるいは御質問がありますでしょうか。

熊沢 蕃（日本原子力研究所）

この分野に関して私は全くの門外漢なのですが、私が米国の環境保護庁に2年半ほど行っておりましたとき、ここで働いている東大（農学部）元教授から聞いた話についてうかがいます。化学物質は新しいものが出来るので、米国環境保護庁ではコンピューターを使って解析して、有毒物と化学形が似たものを有毒と判断する研究が行われているとのこと。こういうことは、日本ではどうなっているのですか。若し御存知の方があれば、教えていただきたい。

被曝評価についても、現有のものについてと、将来に生ずるものを考えていきますと、実験だけでなく、予測モデルを作って攻めてゆく必要があるかと思えます。また、一つ一つの化学形によって線量評価にどんな偏差が出てくるかの解析の他に、全体でどうなるかのマクロなモデル開発みたいなもの考えることが大切ではないかと感じているものです。

佐伯誠道（座長）

化学薬品等の有害性については、日本でも環境庁関係の委員会で、生物的試験に先立って化学形（構造式）で判断して注目すべき物質を選別していますが……。さて、放射線被曝評価に関しては、放医研の丸山さんか、小林さんから御意見をいただけますか。

丸山隆司（放射線医学総合研究所）

とかく、モデルというのは、放射線効果などについてモデルをつくる場合についてもそうなのですが、最近はコンピューターが発達したためプログラムなどを簡単につくれるものですから、簡易なモデルで一つの事象を解析して説明できると、合った合ったというものの、他のものに適用してみると合わなかったりということがあります。例えば、原爆による被曝の再評価もそうでございます、いろいろやってみたらどうも違うということになりました。環境に関するプログラムを一つのフローチャートを作って進めて行く場合にも、やはり、何か実験的な裏づけを常に言いながらやらないと、変な方向に行ってしまうと、最後に数字だけが残る。これが、私どもの一番心配していることです。実験的な裏づけがないものを使ったばかりに、結果はでてきても、正当な評価ができないというような問題が生じるのではないかと思います。そういう次第ですから、是非とも実験的な裏づけをしながらモデルを開発するべきだと思っております。

小林定喜（放射線医学総合研究所）

コンピューターコードを整備して将来予測を行うようなことは、確かにこれからの方向であろうと思います。只今の御意見にそって申しますと、化学物質についても放射性物質についてもデータベースを正当につくらないと駄目だと思います。これらの点について、アメリカは進んでいると思っております。

滝沢行雄（秋田大学・医学部）

確かに、アメリカはリーディング・カントリーという訳で。熊沢蕃氏からの御質問の最初の方の化学物質についても、6万程の物質の中で大気中ではどうか、水中ではという具合に、環境保護庁が責任をもって検討しています。日本でも慶応大学工学部の橋本教授等が色々やっていて報告書も出ております。水とオクタノールの配分率から毒性の見当をつけたりというようなことを、日本でもやっているということでございます。

さて、生物学的なパラメータ設定に資するために、数多くの動物を使った実験が行われることとなるが、最近、英国を中心にヨーロッパでは動物福祉（animal welfare）の立場で、動物愛護協会から供試動物の制約が提言されている。われわれは、OECD環境委員会の協力研究の一環として、生体影響テスト手法を確立し、小動物を対象とした難分解性物質の消化管吸収および蓄積性を検討している。

本法は、正常発育を示した ddY 系雄マウスを、吸収実験では35匹、蓄積実験では40匹、対象

5匹、計80匹を使用する。吸収実験は既知のLD₅₀値の1/30量を経口ゾンデを用いて胃内へ1回投与したのち、1、2、3、5、7、10、24時間目に5匹ずつ屠殺し、消化管・尾部・手足・毛皮を完全に除去し、全身（頭部を含む）の体内残存量を測定する。蓄積実験は隔日連続投与とし、初回投与から3、5、7、9、13、17、21、29日目に5匹ずつ屠殺し、さきと同様に全身の体内蓄積量を測定する。一般に慢性毒性試験では雌雄のマウスとラット、計600匹程度を供試することになるが、動物数を最小限にとどめる本法は、膨大な化学物質のスクリーニングとしてその効用は大きい。

最後に、厚生省は本年、「有害物質の健康リスク評価システムに関する研究班（班長：国立公衆衛生院長 鈴木武夫）を発足させ、その戦略について検討しているが、原子力の平和利用の進展を受けて、放射線安全についての戦略もまた今後の大きな課題ではないかと思えます。

被曝評価精度向上の研究推進

佐伯誠道（座長）

そろそろ終了時刻がせまって参りましたので、このセミナーの全般を通じての御意見をいただきたいのですが、どなたかお願いできますか。それでは、共催学会を代表しての福田先生によるセミナー冒頭においての御挨拶で「化学形の問題は時機を得たもの」とのおほめをいただいた訳でございますが、この2日間の発表と討論を通じての御感想がございましたら。

福田整司（動力炉・核燃料開発事業団）

今回は色々勉強させていただき有難うございました。2日間つづけて全部に出席は出来なかったのですが、印象的な点をあげると、人体被曝線量評価に関連して、人が直接に無機物を摂取する場合と、生物に摂取させた後に人が摂取する場合とで、吸収率が違うということです。今日の講演を聴いていて再び感じたのですが、化学形の問題は確かに重要なことがよく分かりました。どの放射性核種のどういう化学形が線量評価上のクリティカルなかななどを、今後さらにやっていただきたいと思えます。それから、小林先生のお話でしたか、色々の評価にともなつての誤差の問題が出ておりましたが、最終的なリスク評価には数桁のフレがあるようだとの御指摘には、一寸ショックを感じた訳でございます。この件も、どういう点を今後研究すればリスク評価上の不確かさの幅が狭くなるのか、そのところを検討して今後最非とも狭めていただきたいと思っております。その折の話に、原子力施設からの放射性物質の放出源情報にも一桁くらいのフレがあるのではないかとのことでしたが、現在の原子力施設の平常運転で放出されている放射性物質の情報はほぼ正確な値であると私たちは考えております。

む す び

佐伯誠道（座長）

貴重な充実した内容の御意見を諸先生からいただき、有難うございました。

今回、化学形の問題を採り上げるにいたりましたのは、特に問題を提起しようと力んだ訳ではなく、私どもの研究進展の流れに従ったにすぎません。御承知の向が多いと存じますが、放医研では十年余以前から特別研究と称する複数の研究部からの研究者が合体して特定の課題に取り組むプロジェクト研究を実施してきております。その一つに環境研究を採り上げており、5年計画で実施しているので現在は3回目であり、「環境放射線による被曝線量評価」特別研究を実施中です。これは5つの中課題の下に12小課題に分れていますが、中課題の第1は土壌から農作物への核種の移行、2番目は核種の海洋における挙動と生物濃縮、3番目はインハレーションの問題と核種の環境での挙動が外部被曝に与える影響、4番目は生体内代謝、5番目が線量評価のための人体特性と物理学的特性という次第です。このような各グループの成果を持ち寄って整理総合して線量評価の精度をあげようと、仕事を進めている訳ですが、計らずも各グループ共に核種の化学形の問題を真剣に扱っていることが分かりました。ヨウ素を例にとると、化学形の違いによる大気から植物葉への収着の相違については以前に実験済ですが、新たに土壌や海水中の化学形変化と農作物や海洋生物への移行が明らかになってきましたし、化学形の相違によって生体内残留率が異なることも分り、さらには、食品の調理加工が人体への摂取に与える影響も実測されました。すなわち、ヨウ素の環境から人体内に至るまでの流れが、化学形を主題としてつながり一連のフローチャートとなった訳です。

この例に示されたように、化学形に関するデータが多くなってきたので、この際に総ざらいして検討してみることに致した訳です。いくらか分ってきたヨウ素にしても、未だ検討することが多々ありますし、原子力利用に関連しての重要核種のうちで未検討のものも残されています。十数年前に環境特別研究の前身である放医研・海洋調査実施の折には、濃縮係数に与える環境要因の影響解明をはかりました。水温上昇にともなう魚の濃縮係数の変化は2～3倍にすぎないことなど、原子炉温排水問題の解明に役立ったものでした。砂泥に収着された核種は、たとえそこにカレイが生息しても、海水溶存のものほどは影響されないことも、若干の核種について数値的に示し得たと存じます。先程、上田泰司さんが、環境要因や化学形で濃縮係数がどれ位の幅で変動するかを示されましたが、このような御検討は非常に有意義なことと思います。

計算モデルに化学形の問題をとりあげた例は古くからあります。かつて1962年に海水許容濃度を提案した米国科学アカデミー-NRCの報告書では、亜鉛、カドミウム、コバルトなどは錯体を生成し易いので、このために魚介藻類への生物濃縮に影響を及ぼすこと等を懸念して、これらの核種に対しては安全係数10を挿入しています。1/4世紀を経た今日、化学的情報は確かに増してきておりますので、化学形に関する定量的な計算モデル・パラメータを実験的裏づけによって提唱できるよう、さらに研究と解析とに努力をしたいものと存じます。

このような意味あいでは、このセミナーによってもたらされた科学情報が活用されることを望む次第であり、追って出版を予定されるセミナー進歩集も、関係者に有効に利用されることを願うものです。丁度、時刻となりましたので、終始にわたって参加された多数の皆様にお礼を申し上げて、総合討論を終わりたいと存じます。

V 付録：セミナー概要

Annex : Review on the Seminar

付録：セミナー概要

佐伯 誠道* 小柳 卓* 大桃 洋一郎*

1984年12月6～7日の両日にわたって、「放射性核種の化学形が被曝線量評価に及ぼす影響」セミナーが放射線医学総合研究所（放医研）主催、日本保健物理学会共催で、千葉市穴川の放医研講堂で開催された。演題は3つのセッションと総合討論とに大別されている。冒頭のセッションは高島良正氏（九大・理）、半田暢彦氏（名大・水圏）、茅野充男氏（東大・農）によって地球化学的あるいは農学的見地から、環境における元素の存在形に関するの最新知識と化学形態別の定量法が紹介された後に、放射性核種に関する研究成果が原研、動燃、農環技研、放医研からの数名の研究者により大気、土壌、海水のそれぞれについて発表された。第2セッションは「環境での移行」、第3セッションは「食品、人体における移行と代謝」がとりあげられたが、放医研の演者による化学形の影響についての総説につづいて、放医研、公害研、農環技研、大学関係からの関連研究成果が発表された。総合討論は斯分野に関する研究の効果的推進と学問水準向上とを目的としたセミナー参加者全員による討論の場であり、熊沢喜久雄氏（東大・農）、本田嘉秀氏（近畿大・理工）、猿橋勝子氏（地球化学研究協会）、池田長生氏（筑波大・化学系）、滝沢行雄氏（秋田大・医）、福田整司氏（動燃）、熊澤蕃氏（原研）、伊沢正実氏（原電）等と放医研の多くの研究者からの見解発表と意見交換とが2時間にわたって行われた。参加人数は186名で、その内訳は放医研43名、その他の研究所52名、地方公共団体の衛生研究所あるいは公害技術センター等35名、大学関係24名、行政機関等15名、電力関係17名であった。

さて、環境における元素の存在形と形態別分析測定法に関しては、先ず大気について、産業活動からもたらされる廃ガスが及ぼす大気組成の変化と、現存する大気中の天然および人工放射性物質の代表的なものの存在形態が解説された。形態別分析測定に関しては、大気中のトリチウム（HTO, HT, CH₃T）に加えて、超ウラン元素と放射性ヨウ素の存在形態別分離定量法が発表された。

次いで、土壌に関しては、土壌の起源、元素の組成と出入および滞留時間などの概説につづいて、土壌に付加された金属元素が、どのような存在形態をとりうるかを吸着、沈着、固定、特異吸着に分類しての解説がなされた。土壌は固相、液相、気相の3相からなり、固相は岩石の風化

* 放射線医学総合研究所那珂湊支所

でできた粗粒無機質粒子やコロイド無機質粒子のほか有機物や生物を含む複雑なものであるだけに、このような体系的な説明は関係研究者にとって有難かった。さらに農作物への金属元素の移行解明の観点から、元素の土壤中での存在形に関する可給態（作物に吸収され易い形態）の考え方と、その分離測定法についての解説もあった。研究例としてはヨウ素については、 I^- および IO_3^- の根圏域からの溶離パターンのちがいを並びに作物への移行に関して畑と水田における存在形態の相違が発表された。核燃料サイクル関連施設の増加に伴って ^{129}I の土壌への蓄積による放射線被曝線量評価が重要となりつつあるので、時宜を得た話題提供であった。

海水中における元素の存在形を解明するにあたっては、何よりもまず地球上に見出されるほとんどすべてのものが存在すると言われている無機元素の海洋での動態を究明することが最も重要な研究課題であるが、存在量の上では比べものにならない程に少量である有機化合物が、無機元素の動向に対してきわめて大きな役割を果たしていることが、豊富な研究成果を基に解説され、多くの関心を引くところとなった。特に海洋における有機物の滞留時間が短いことを考慮すると、有機物質と結びついた形の放射性核種の鉛直分布にも影響が予測され、海洋環境での放射性核種の移行解析に対して、それら水圏科学の情報が貴重な学問的裏付けとなることを印象づけた。有機物の存在形態として大別される懸濁物と溶存態の2者について、それぞれ溶媒抽出をはじめとする種々の形態別定量法が紹介されたが、無極性の XAD 樹脂の応用に関しては、いくつかの問題点が指摘され、研究者の注意が喚起された。

生物への移行に及ぼす元素の化学形の影響に関しては、農作物と海洋生物がとりあげられた。農作物では、葉面に沈着した放射性物質は水溶性であるかどうかで葉面吸収の効率が左右される実例が示された。つまり、付着した水溶性の放射性物質は作物全体に運ばれ易い。しかし、元素によって異なるのは当然で、 I や Cs に比べると Sr , Ce , Pu などは移動し難い。また、フィールドでの観測データによると、現存する ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co は難溶性で葉面付着量の 10% 以下が水溶性であるに過ぎない。なお、原子炉事故時に放出が予想されるヨウ素の葉面沈着ならびに経根吸収に及ぼす化学形の影響に関する室内実験結果と、放射性降下物の実測データを解析して求めた ^{90}Sr と ^{137}Cs の米への直接（葉面）沈着と経根吸収の結果が紹介された。海産生物への移行に際しても当然のことながら、溶存、コロイド、粒子などの元素の存在形が影響するが、溶存種のなかでも、無機、有機の錯体や、酸化還元などの荷電状態の違いによっても、それぞれの化学種の間で海産生物への移行、蓄積、代謝、排出などに有意差が認められることが、遷移金属元素を主体とした数多くの実験例と共に解説された。放射線被曝線量算定に用いるパラメータの一つである濃縮係数に対する化学形の影響範囲はほぼ一桁程度と見込まれるが、その影響検討研究の重要性があらためて浮き彫りにされたと言えよう。

食品、人体における移行と代謝に関してはコバルトを例にとって、放射性コバルトをラットに投与した実験で、無機形に比べるとシアノコバラミン（有機形）の方が体内残存率が高い傾向が示された。更に、化学形を異にしたヨウ素、亜鉛、ルテニウムなどについても、同様の実験結果が発表された。内部被曝線量算定にあたって人体の代謝に関する生理学的パラメータが用いられ

ているが、これらの化学形に関する実験結果を活用して線量算定の精度を高めることがのぞまれる。化学形の異なるヨウ素をとり込ませた葉菜を調理して「お浸し」をつくったところ、ヨウ素の除染率が化学形に左右されたとの発言がコメントよりあった。食品における存在形態と調理加工中の変化に関する研究報告は至って少ないので、今後の検討を期待したい。

総合討論においては、多くの話題が提示された。海洋に関しては、国際的にも海洋での放射性核種の存在形態が益々重視されており、放射性固体廃棄物の深海投棄に関する安全評価にあたって海底セディメントへの収着を導入するようになったこと。土壌に関しては、鉱物学あるいは地質学的な分類の他に、植物による養分吸収などの機能的観点からの土性の整理をすすめる必要があることと、その研究を実施するためにはRI実験用の植物栽培ライシメータ設置がのぞましいこと。人体の内部被曝線量算定に必要な放射性核種の吸収率や生物学的半減期などの生化学的パラメータも核種の化学形に影響されることが多いため、ラットなどによる動物実験の継続実施がのぞまれるが、動物実験結果の人への外挿の妥当性については更に検討の要があること。計算モデルの設定、コンピューターコードの整備が重視されるのは当然であり時代の趨勢でもあるが、常に実験的な裏づけを求めて行く努力をしないと、実用価値の低いプログラムを生ずる危険があること。放医研において現在実施中の環境放射線の被曝評価に関する特別研究は、農作物、海洋、呼吸、代謝、人体組成等のグループに分れて研究を進めているが、放射性核種の化学形の影響に関しての報告が図らずも各グループから提出されつつあり、特にヨウ素については大気→葉面、土壌→農作物、海水→海洋生物、人体における吸収率と排出率など一連の影響が明らかになりつつあること。このような諸知見を通じて、放射線被曝線量評価にあたって環境に放出された放射性核種の化学形の及ぼす影響を再認識し、各科学分野の専門家が相互に研究への協力を約すことができた。

—Isotope News No. 369, 49-50, (1985.3) より日本アイソトープ協会の許可を得て転載—

座長一覽

List of chairman

Session I -1	山県 登 (N. Yamagata)	国立公衆衛生院
Session I -2	池田 長生 (N. Ikeda)	筑波大学・化学系
Session I -3	市川 龍資 (R. Ichikawa)	放射線医学総合研究所
Session II -1	熊沢喜久雄 (K. Kumazawa)	東京大学農学部
Session II -2	上田 泰司 (T. Ueda)	放射線医学総合研究所
Session III -1	河村 正一 (S. Kawamura)	放射線医学総合研究所
Session III -2	滝沢 行雄 (Y. Takizawa)	秋田大学医学部
Session IV	(総合討論) 佐伯 誠道 (M. Saiki)	放射線医学総合研究所

事務局 (Organizing Committee of Seminar) 一覽

委員長 Chairman	佐伯 誠道	M. Saiki
副委員長 vice-Chairman	小柳 卓 大桃洋一郎	T. Koyanagi Y. Ohmomo
委員 Member	丸山 隆司 渡利 一夫 小木曾洋一 稲葉 次郎 岡林 弘之 福士 清 内田 滋夫 石川 昌史 石原 照一 田中 昭	T. Maruyama K. Watari Y. Oghiso J. Inaba H. Okabayashi K. Fukushi S. Uchida M. Ishikawa T. Ishihara A. Tanaka
編集担当 Editor	佐伯 誠道 大桃洋一郎 住谷みさ子 田中 昭 進士 賀一	M. Saiki Y. Ohmomo M. Sumiya A. Tanaka Y. Shinji

第12回放医研環境セミナー報文集

放射性核種の化学形が被曝線量評価に及ぼす影響

昭和61年3月発行

編集担当 佐伯 誠道
大桃洋一郎
住谷みさ子
田中 昭
進士 賀一

放射線医学総合研究所

260 千葉市穴川4-9-1

電話 0472-51-2111